

# J-PARC 3GeV シンクロトロン用荷電変換フォイルの作製状況

## FABRICATION STATUS OF CHARGE STRIPPER FOIL FOR 3GeV SYNCHROTRON OF J-PARC

仲野谷 孝充<sup>#,A)</sup>, 吉本 政弘<sup>A)</sup>, 山崎 良雄<sup>A)</sup>, 竹田 修<sup>B)</sup>, 佐伯 理生<sup>B)</sup>, 武藤 正義<sup>B)</sup>  
Takamitsu Nakanoya<sup>#,A)</sup>, Masahiro Yoshimoto<sup>A)</sup>, Yoshio Yamazaki<sup>A)</sup>,  
Osamu Takeda<sup>B)</sup>, Riuji Saeki<sup>B)</sup>, Masayoshi Mutoh<sup>B)</sup>  
<sup>A)</sup> JAEA

<sup>B)</sup> Nippon Advanced Technology Co. Ltd.

### Abstract

In the 3 GeV Rapid Cycling Synchrotron (RCS) of the Japan Proton Accelerator Research complex (J-PARC), we adopted the carbon stripper foil for the multi-turn H- charge exchange injection. The charge exchange foil which use in RCS is fabricated by the arc discharge method with the boron doped carbon electrode. The foil fabricated this method is called HBC foil (Hybrid Boron mixed Carbon stripper foil). HBC foil had been developed at KEK. It has high durability for the beam irradiation damage. In past days, the foil fabrication process was conducted in KEK Tsukuba-site and the foil preparation process was conducted in JAEA Tokai-site. In 2017, the foil deposition apparatus has been relocated from KEK to JAEA, and we started both processes in Tokai-site. We carried out the offline beam irradiation test for the new HBC foil which fabricated in JAEA, and we confirmed that its performance is equivalent to the original HBC foil. Next we tested a new HBC foil with actual beam in RCS and we confirmed it could withstand 1 week beam irradiation. After that, we started user operation with the new HBC foil in 2018. So far we accomplished stable user operation for one year by using the new HBC foil only.

### 1. はじめに

J-PARC 3GeV シンクロトロン(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。RCS で使用している荷電変換フォイルは、炭素を主体にホウ素を添加した HBC フォイル (Hybrid Boron mixed Carbon stripper foil)である[1]。この HBC フォイルは KEK 菅井氏により開発されたもので、ビーム照射に対して強い耐久性を持つことが大きな特徴である。これまで HBC フォイルの作製工程は、成膜過程を KEK つくばで実施し、フォイルの調製過程を JAEA 東海で実施する分業体制で行ってきた[2]。2017 年より、フォイル蒸着装置を KEK つくばから JAEA 東海に移設し、作製工程を統合した。移設後に新たに JAEA で作製した HBC フォイル(J-HBC)の性能を評価するために、QST 高崎研 TIARA において照射試験及び性能分析を実施した。そして、実機でのビーム照射試験を経て、利用運転での使用を開始した。本稿では蒸着装置移設の経緯と新しく作製した J-HBC フォイルの特性や J-PARC 利用運転での使用状況について報告する。

### 2. HBC フォイルについて

#### 2.1 HBC フォイルとは

炭素棒を電極とし、アーク放電を細かく制御しながらアーク蒸着させて長寿命の炭素フォイルを作製する新成膜法(Controlled AC-DC Arc Discharge:CADAD)を 1988

年頃、KEK 菅井氏のグループが開発した[3]。CADAD 法は蒸着レートが大きいと、厚いフォイルの作製に有利な方法であった。一方、RCS に入射される 400MeV の Hビームを高効率で荷電変換するためには厚さが 340 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  程度と蒸着膜としては比較的厚い荷電変換フォイルが必要である。菅井氏らは従来の CADAD 法で RCS のための荷電変換フォイルの作製に取り掛かったが、厚さが 100 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  以上になると蒸着膜が基板から剥がれ落ちてしまいフォイル作製が困難であることが判明した。そこで CADAD 法をベースにアーク放電の炭素電極棒に軽元素をドーブして膜質の改善を試みた。結果、ホウ素を混ぜることで顕著な密着性の向上が得られることを発見し、700 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  までの厚い炭素フォイルの作製が可能となった。このように少量のホウ素を炭素棒に添加し、これを電極としてアーク蒸着法により作製したフォイルを HBC フォイルと名付け特許を取得した[4]。

#### 2.2 HBC フォイルの実績

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[5]。利用運転でのビーム出力は 2008 年に 4kW から始まり、年を追うごとに段階的に出力を上げ、2015 年には 500kW に達した。

Figure 1 に 2016 年 10 月から 2018 年 7 月までに RCS に入射した入射粒子数の履歴を、Fig. 2 にその間のフォイルの経時変化の写真を示す。この期間、運転は KEK で作成したオリジナルの HBC フォイル(Original-HBC)を使用した。2016 年に 150kW で利用運転を開始し、9 ヶ月経過後のフォイルの表面は歪みが発生し変化が見られるも、形状の変形はあまり起きていない。その後、夏季メンテナンスを間に挟み、2017 年 10 月から再び同じフォイルで利用運転を開始した。ビーム出力は 300kW

<sup>#</sup> nakanoya.takamitsu@jaea.go.jp

から開始し、段階的に 500kW まで上げた。フォイルの形状の変化が進行している様子が観察された。2018 年 7 月の利用運転終了後に J-PARC の大強度化に向けた 1MW のビーム試験を実施した。試験時間はわずか 1 時間であったが、試験の前後でフォイルに目立った変化はなく、Original-HBC は 1MW のビームに耐えることが確認できた。

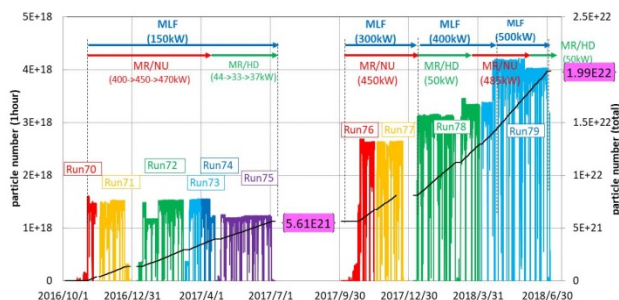


Figure 1: History of beam power in J-PARC RCS at 2016-2017.

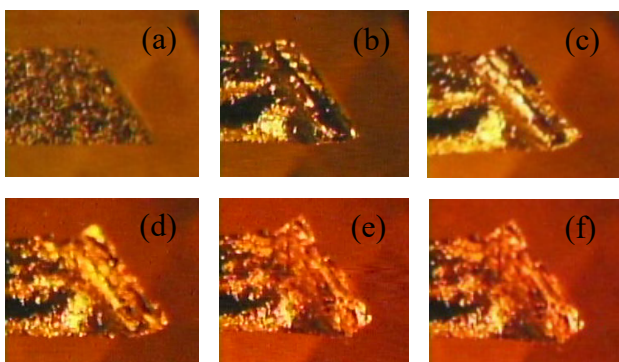


Figure 2: Ageing effect of foil surface due to the beam irradiation for 2 years. (a) before irradiation, (b) total incident H<sup>+</sup> particle number  $5 \times 10^{21}$  (c) ditto  $5.61 \times 10^{21}$  (d) ditto  $1.0 \times 10^{22}$  (e) ditto  $1.99 \times 10^{22}$  (f) after irradiated 1MW beam for 1 hour.

### 2.3 J-HBC 作製の経緯

J-PARC で使用する 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 月以降、つくばでの成膜過程が継続できなくなり、フォイル供給が途絶してしまいった。利用可能な HBC フォイルの在庫は数年分しかなく、このままフォイルの供給がなくなれば利用運転の安定的な継続が困難となる。そこで我々はフォイルの蒸着装置を KEK つくばから JAEA 東海に移設し、JAEA スタッフによる蒸着を行うことを決定した。KEK と JAEA との間で装置の移管手続と特許の使用許諾について協議し、2017 年 2 月につくばから東海に蒸着装置を移設し装置の再立ち上げを行った。Figure 3 (a)に移設前の装置内部の様子を示す。蒸着装置はアルバック製の汎用型蒸着装置 EBX-2000 に対してフォイル作製に特化した改造がなされたものである。約 1 年間放置された蒸着装置は内部のアーク蒸着源の水冷箇所から複数水漏れがあったため、装置の内面が結露している状態で腐食の進行が深刻であった。3 式のアーク蒸着源が備わっていたが、健全なもの同士を組み合わせることで 1 式とせざるを得

なかった。この他にも様々なオーバーホールを装置メーカーの協力のもと実施した。Figure 3 (b)に移設・オーバーホール後の装置内部の様子を示す。

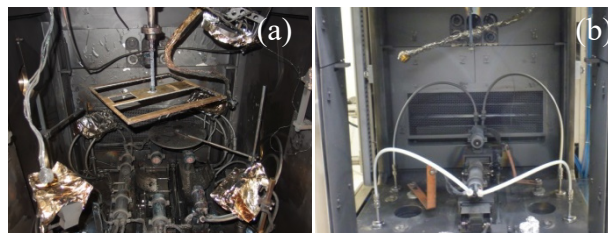


Figure 3: Inside view of EBX-2000. (a) before relocation, (b) after relocation and overhaul.

### 3. HBC フォイルの作製

JAEA スタッフによる HBC フォイルの作製はまさに手探りでのスタートであった。KEK で作られていたオリジナルの作製方法を踏襲するにも、作製法については断片的な情報しか残されておらず、また蒸着装置自体もオーバーホールと内部部品の再セットアップのため、作製環境は大きく変わってしまっていた。Table 1 に作製条件の主な相違点を示す。内部オーバーホールの実施により真空のベース圧力は 2 桁程度向上した。また、元々は 3 式の蒸着源を使って蒸着中に炭素電極の組合せやアークモードを切替えて蒸着を行っていたが、蒸着源が 1 式になったため、DC アークのみで蒸着している。また、アーク放電時間は数秒程度連続で放電させていた様であったが、大電流に対する電気的安全性を確保するため 1 秒に制限した。さらにオリジナルでは基本的にはアノード電極に純炭素棒、カソード電極にホウ素 20%添加の炭素棒を使用していたが、それに対して、J-HBC ではアノード、カソードともにホウ素 20%添加された炭素棒を使用している。この理由は JAEA で蒸着を開始してから相当後になってオリジナルの方法が判明したためである。

Table 1: Differences of Fabrication Condition between KEK and JAEA

	KEK	JAEA
Vacuum pressure	$\sim 10^{-4}$ Pa	$\sim 10^{-6}$ Pa
Arc current	500A	500A
Discharge time	a few sec	1sec
Arc mode	AC and DC	DC
Anode electrode	pure carbon	boron doped carbon
Cathode electrode	boron doped carbon	boron doped carbon

### 4. J-HBC と Original-HBC との比較

#### 4.1 外観の違い

Figure 4 に J-HBC と Original-HBC の外観の違いを示す。Original-HBC は細かな凹凸状のシワが均一に密集してザラザラと荒れた表面をしている(Fig. 4 (a), (c))。一方 J-HBC の表面は非常に平滑で強い金属光沢を持った鏡面状であり、網目模様の深いシワが入っている

(Fig. 4 (b), (d)). この深いシワの発生の度合いは蒸着基板を大気に取り出した際の温度と湿度に強く影響されることが分かった。夏場の高温多湿な環境ではシワの密度が高く、逆に冬場の環境ではシワの発生は少ない。シワの密度が高いほど、シワが折り目の役割となりフォイルの機械的強度が増すため、取り扱いが容易になる。また、蒸着膜は基板を水に浸して剥離・回収している[6]。この際、深いシワに沿って水が蒸着膜と基板の間に入り込むため、シワの密度が高いほど剥離しやすく、歩留りが向上する。このため、蒸着取出し後すぐに恒温恒湿槽に入れることでシワの発生を再現させるよう、手順を見直した。

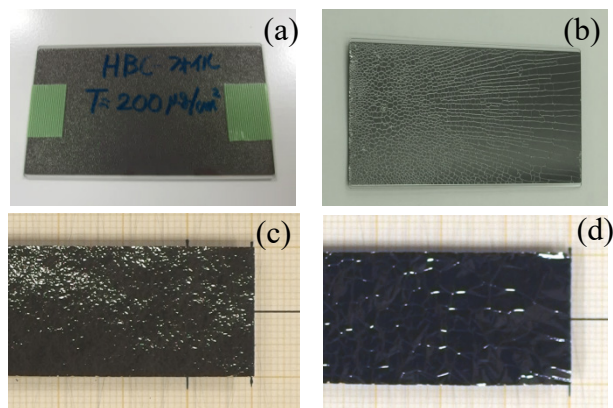


Figure 4: Surface of original-HBC and J-HBC. (a) original-HBC deposited on substrate, (b) J-HBC deposited on substrate, (c) Head of prepared original-HBC, (d) Head of prepared J-HBC.

#### 4.2 SEM 観察

Figure 5 に Original-HBC と J-HBC の SEM 像を示す。肉眼での観察では両者の表面形状は大きく異なるが、50000 倍に拡大した SEM 像ではほぼ同じ表面構造をしており、直径 300nm 程度の粒子で構成されている。

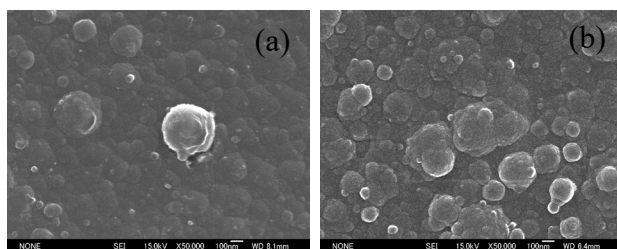


Figure 5: SEM image of original HBC and J-HBC foil at 50000-fold magnification. (a) Original-HBC foil, (b) J-HBC foil.

#### 4.3 Ar 照射試験

J-HBC フォイルのビーム照射に対する耐久性を調べるため、量研機構高崎 TIARA にて Ar イオン 300keV でのビーム照射を行い、Original-HBC との比較試験を実施した。Figure 6 に両フォイルに対する Ar ビームの照射前後の写真を示す。ビーム電流 200nA の場合、両フォイルとも照射開始後数分で表面のビーム痕が目立ち

始め、15 分後にはビーム痕は完全に鏡面化し、その周辺部に放射状のシワが発生した。また、ビーム電流 500nA の場合では、両フォイルともより早く鏡面化が進行し、5 分照射直前にいずれもホルダーの境界部から亀裂が入り破損した。これらの結果より、J-HBC フォイルも original-HBC フォイルと同等のビーム耐久性を有することが期待できる。

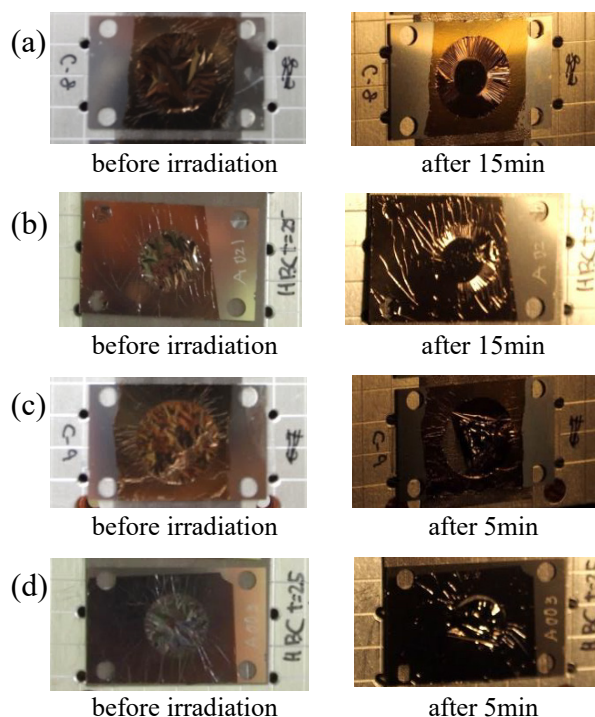


Figure 6: Observation of surface variation between Original-HBC and J-HBC by Ar ion irradiation. (a) Original-HBC irradiated 200nA Ar beam, (b) J-HBC irradiated 200 nA Ar beam, (c) Original-HBC irradiated 500nA Ar beam, (d) J-HBC irradiated 500nA Ar beam.

#### 4.4 PIXE

HBC フォイル内に混入する不純物元素の低減はビームによる放射化を抑制するためにも重要である。Figure 7 に Original-HBC と J-HBC の PIXE のスペクトルを、Table 2 に PIXE スペクトルより算出した不純物元素の重量比を示す。両者ともフォイルに含まれる微量不純物の構成元素はほぼ同じであるが、いずれの元素も J-HBC では Original-HBC と比較して 1/5 以下に低減している。移設後に実施した装置のオーバーホールにより、蒸着装置内部の清浄度が向上した結果と考えられる。

Table 2: Weight Ratio of Impurities between Original HBC and J-HBC Calculated from PIXE Spectra

	Original-HBC	J-HBC
Al	1.07	0.162
Ca	0.549	0.0981
Fe	0.348	0.0549
Co	0.0721	0.0111

[ppmw]

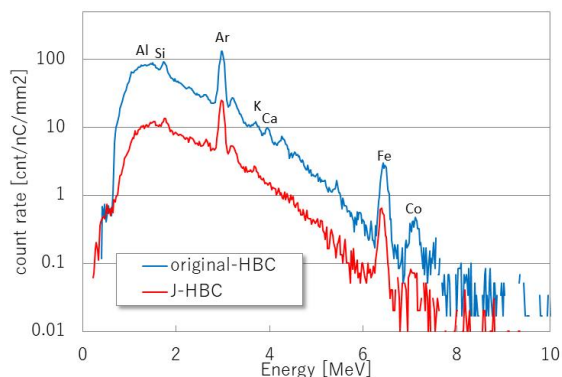


Figure 7: Comparison of PIXE spectra between original HBC and J-HBC foil.

## 5. 利用運転での使用

### 5.1 利用運転での使用実績

高崎研 TIARA での評価試験を経て、2017 年の夏季メンテナンス期間に J-HBC フォイル 1 枚を試験的に実機に装填し、11 月の加速器スタディの際に 300kW 30 分間の照射試験を実施した。30 分間の照射により表面にわずかな変形が確認されたが、正常に入射ビームを荷電変換しており、加速器の運転に支障がないことを確認した。この結果を受け、翌 12 月に J-HBC フォイルによる 300kW での利用運転を 1 週間実施した。結果、1 週間の利用運転で表面形状の変化はあったものの、荷電変換効率に異常はなく安定的に利用運転を継続することができた。

この結果から、2018 年の夏季メンテナンスの際に、作製ロットの異なる 3 種類の J-HBC フォイル 6 枚を実機に

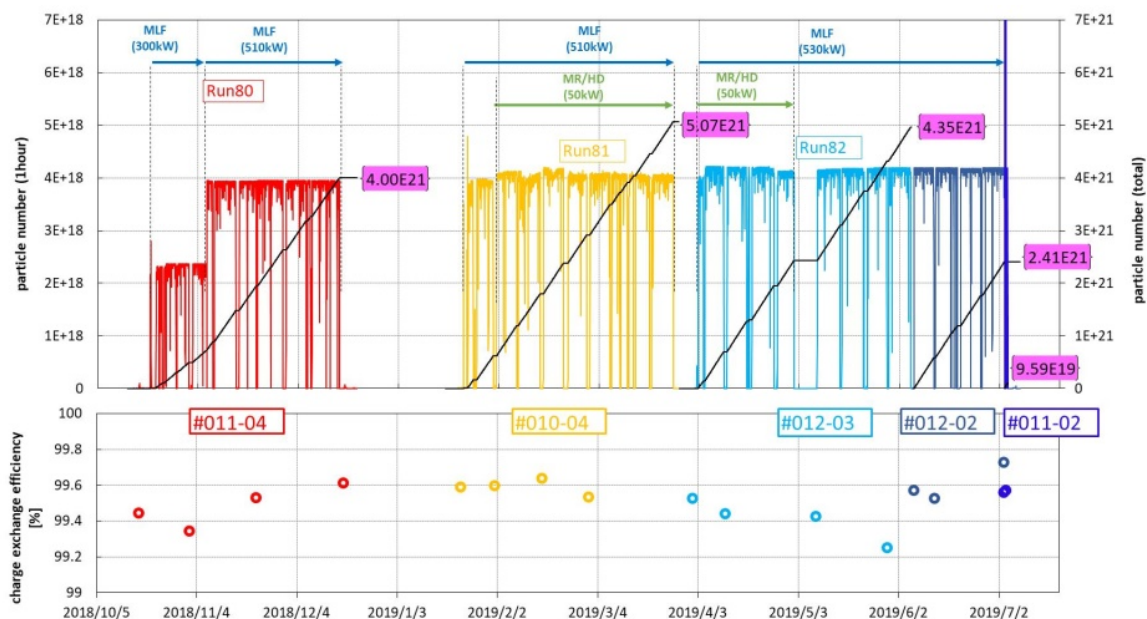


Figure 8: History of beam power in J-PARC RCS and charge exchange ratio of J-HBC at 2018-2019.

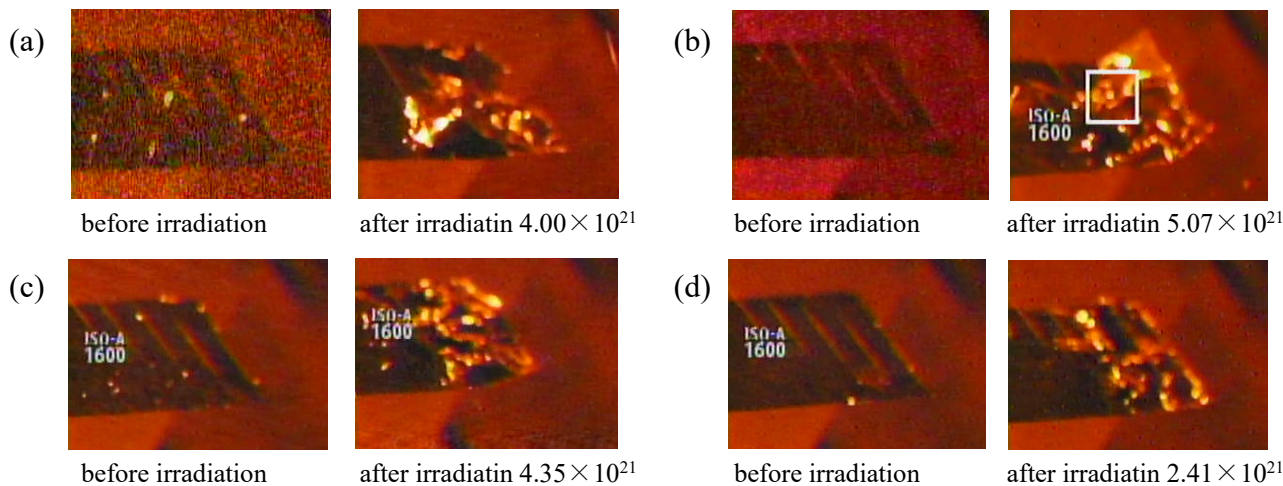


Figure 9: Ageing effect of J-HBC foil surface due to the beam irradiation. (a) Lot011-04, (b) Lot010-04, (c) Lot012-03, (d) Lot012-02.

装填した。この 6 枚の目的は最低 2 週間利用運転で安定的に使用できること及び各作製ロットの違いによる性能のバラツキの有無を確認することである。フォイルは最大 15 枚装填できるため、1 枚の J-HBC フォイルが最低 2 週間使用可能であれば J-PARC の年間運転週数である 30 週を確保可能である。J-HBC 以外には、Original-HBC フォイルと、200kW のビームで約 6 ヶ月間の使用実績のあるカネカ製グラフェンシート[7]を装填し、J-HBC に不備があっても利用運転が継続できるよう備えた。

2018 年 10 月より J-HBC フォイルによる利用運転を開始した。Figure 8 に RCS に入射した 1 時間当たりの入射粒子数とその積算数(総入射粒子数)の履歴と各フォイルの荷電変換効率の推移を、Fig. 9 に各フォイルの使用前後の写真を示す。

2018/10/15~12/24 まで使用した Lot 011-04 への総入射粒子数は  $4.00 \times 10^{21}$  個であった。ここで言う総入射粒子数とはリニアックから入射される H-粒子の積算値であり、周回ビームの粒子数はカウントしていない。ビーム照射により表面に大小の歪みが生じているが、元の形状はほぼ保っていた。荷電変換効率は使用開始直後に減少した後に増加に転じた。まだ十分に使用可能と考えられたが、年末のシャットダウンを機にフォイル交換を実施した。

2019/1/11~3/20 まで使用した Lot 010-04 への総入射粒子数は  $5.07 \times 10^{21}$  個であった。表面の歪みの発生に加えて早い段階からフォイルの先端がビーム下流方向に屈曲する変形が観察された。時間の経過とともに変形量は大きくなり、下流方向への変位はおよそ 6mm に達したが、荷電変換効率には大きな変化は見られなかった。

2019/4/2~6/4 まで使用した Lot 012-03 への総入射粒子数は  $4.35 \times 10^{21}$  個であった。これまでと同様にビーム照射により歪みが生じたが、先端が曲がることはなく元の形状をほぼ保った。また、荷電変換効率に大きな変化はなかった。

2019/6/5~7/8 まで使用した Lot 012-02 への総入射粒子数は  $2.41 \times 10^{21}$  個であった。使用期間が短いため表面の変形の進行は少ないが歪みが発生し始めている。荷電変換効率に大きな変化はなかった。

結果的に 4 枚の J-HBC フォイルのみで 1 年間の利用運転を達成することができた。この間、荷電変換フォイルを原因とするビームの中断はなく、安定的にビーム供給を行うことができた。しかし、Lot 011-04 の荷電変換効率が減少した後に増加に転じた理由や、Lot 010-04 のみ強い曲がりが発生した原因についてはわかっていない。今後、より高品質なフォイル作製を行う上で解決すべき課題である。

## 5.2 1MW ビーム試験

利用運転終了後の 2019 年 7 月に 1MW ビームを 10.5 時間連続照射する大強度ビーム試験を実施した。試験には 5 枚目の J-HBC フォイル(Lot 011-02)を使用した。Figure 10 に 1MW ビーム照射前後のフォイルの写真を示す。10.5 時間の 1MW ビーム照射によりフォイルの角がわずかに丸くなったが、表面に大きな変形はなく、歪みも発生していない。フォイルの破損もなかった。今回、J-HBC フォイルが 1MW ビームに 10.5 時間耐えられるこ

とが確認できたことは、将来的に J-PARC が目指す 1MW ビームでの利用運転達成に向けた大きなマイルストーンと言える。

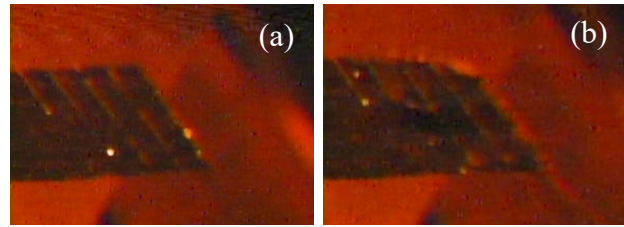


Figure 10: Observation of the J-HBC foil (#011-02) during 1MW beam irradiation. (a) Before irradiation, (b) After irradiation of 1MW beam for 10.5 hour.

## まとめ

HBC フォイルの作製は蒸着装置を KEK つくばから JAEA 東海へ移して継続することができた。新たに作製した J-HBC フォイルについて、外観は Original-HBC と異なるものの、Ar ビーム照射による、ビーム耐久性能の評価を行い、オリジナルと遜色ないことを確認した。また、J-HBC フォイルを用いた利用運転を開始し、2018-2019 年の 1 年間安定的に運転を継続することができた。さらに 1MW ビームによる大強度試験では、試験時間は約 10 時間であったが、1MW ビームに耐え得ることが確認できた。

## 謝辞

本研究の一部は QST 高崎研 TIARA (課題番号 2018A-C16) で実施したものである。4 章「SEM 観察」「Ar 照射試験」では量研機構 高崎の山本春也博士、岡崎宏之博士に、「PIXE」では山田圭介氏、山縣諒平氏に多大なご協力をいただき、HBC フォイルの分析と評価に関して大変有意義な議論を行えました。深く感謝いたします。

## 参考文献

- [1] I. Sugai, Y. Takeda, M. Oyaizu, H. Kawakami, Y. Irie, Y. Arakida, K. Hara, H. Hattori, K. Kawasaki, J. Kamiya, M. Kinsho, Nucl. Inst. and Meth. A561(2006), pp.16-23.
- [2] Y. Yamazaki, M. Yoshimoto, P.Saha, M. Kinsho, T. Taguchi, S. Yamamoto, I. Sugai, JRNC, 3, 305 (2015), pp.859-864.
- [3] I.Sugai, T.Hattori, H. Suzuki, H. Kinshita, H. Kato, K. Yamazaki, Nucl. Instr. and Meth. A265(1988)376.
- [4] Sugai *et al.*, JP2007545272A, 2005-11-15.
- [5] M. Yoshimoto, P.K. Saha, Y. Yamazaki, M. Kawase, R. Saeki, N. Hayashi, K. Yamamoto, H. Hotchi, T. Ishiyama, M. Kinsho, I. Sugai, Y. Irie, J. Phys.: Conf. Ser. 417 (2013), 012073.
- [6] R. Saeki, Y. Yoshimoto, Y. Yamazaki, N. Tobita, K.Okabe, M. Kinsho, O. Takeda, M. Mutoh, Proceedings of the 10th annual meeting of particle accelerator society of Japan 523 (2013).
- [7] A. Tatami, M. Tachibana, M. Murakami, T. Yagi, M. Murakami, AIP.: Conf. Proc. 1962, 030005 (2018).