

平成21年 5月29日現在

研究種目：基盤研究（B）  
 研究期間：2007～2008  
 課題番号：19340072  
 研究課題名（和文） 2300K超高温に於いても高温損傷のないハイブリッド型超寿命炭素フォイルの開発  
 研究課題名（英文） Development of Hybrid Long-Lived Carbon Stripper Foils with High Durability at 2300K  
 研究代表者  
 菅井 勲（SUGAI ISA0）  
 大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構・加速器研究施設・研究員  
 研究者番号：80150291

研究成果の概要：制御型直流アーク放電法を用いてクラスター炭素粒子にボロンを混合したハイブリッド型炭素（HBC）フォイルの開発に成功した。炭素にボロンカーバイド（ $B_4C$ ）を混合することにより基板との密着性が著しく高くなり、これによって  $100 \mu g/cm^2$  から  $700 \mu g/cm^2$  の厚い蒸着膜を安定に作る事ができた。HBC フォイルは  $2000 \pm 300K$  の高温度環境下でも高温損傷が極めて少なく優れた高耐久性の特性を示した。この高耐久性 HBC フォイルの寿命は従来の市販品の炭素フォイルの平均 300 倍、先端素材ダイヤモンドフォイルの 80 倍以上の長寿命を示した。これらの結果から、高耐熱性 HBC フォイルは今後ピンホールの解決すべき問題は残るものの J-PARC 等の大強度加速器やウラン等の重イオン加速器等のストリッパフォイルとして、また、原子核物理、核物性、超重元素生成の実験等に用いる  $1500K$  以下の融点を持つターゲットのバッキング膜に広く使われることが期待できる。

## 交付額

(金額単位：円)

|        | 直接経費       | 間接経費      | 合計         |
|--------|------------|-----------|------------|
| 2007年度 | 11,200,000 | 3,360,000 | 14,560,000 |
| 2008年度 | 3,500,000  | 1,050,000 | 4,550,000  |
| 年度     |            |           |            |
| 年度     |            |           |            |
| 年度     |            |           |            |
| 総計     | 14,700,000 | 4,410,000 | 19,110,000 |

研究分野：原子核ターゲット

科研費の分科・細目：物理学・素粒子、原子核、宇宙線、宇宙物理

キーワード：炭素フォイル、荷電変換、大強度陽子加速器、炭素ターゲット、バッキングフォイル、重イオン加速器

## 1. 研究開始当初の背景

昔は加速器イオン源の強度が弱いので、炭素薄膜やターゲットの強度や寿命は全く問題ではなかった。しかし、最近のイオン源それに関係する加速器技術の格段の進歩により大電流が実現され、 $1400K$  以上の高温度に対して著しい高温損傷（変形、膜厚減少、

ピンホール）により劣化し破損する。このため  $1400K$  以上の高温度に於いても耐久性のある炭素フォイルは必要不可欠になってきた。例えば、現在、茨城県の東海村で稼働中の大強度陽子加速器（J-PARC）の加速器技術開発の中で最難関の一つである、負水素イオンビーム用荷電変換の炭素ストリ

ッパーフォイルはピーク温度で 2000K 以上になり従来の炭素フォイルでは強い変形により極めて短時間で破損する。結果として、そのフォイル交換時における作業員への放射線被曝が大問題となり、加速器の運転効率の著しい低下をもたらす。このため 2000 ± 300K の高耐久性の厚い炭素フォイル (> 100ug/cm<sup>2</sup>) の開発実現が強く期待されていた。

## 2. 研究の目的

- (1) 15年枚に我々の開発したクラスター炭素フォイルの役割は大強度イオンビーム照射に対して著しく強い特徴を持つ。

しかしながらこの製膜法による最大の厚さは 140 μg/cm<sup>2</sup> であり、又膜厚減少とピンホールが極めて大きい等の欠点を持つ。この欠陥を克服するため、ボロンをクラスター炭素にドーピングすることによりこれらの欠陥を解決することがこの研究のアイデアである。即ち、ボロンを炭素に混合したハイブリッド型ボロン-炭素膜は次のような特徴を持つ。

- (2) 基板との密着性が極めて優れているため 140μg/cm<sup>2</sup> 以上の厚膜が出来る。
- (3) 2000K 以上の高温での蒸気圧が単体の炭素とボロン膜に比べて二桁低い蒸気圧であること、さらに低スパッター率の性質を有するので 2000K のフォイルの高温でも蒸発による膜厚減少が少ない。

従って、上記 1)、2)、3) の特徴を併せ活かすことにより 2000K でも高温損傷(変形、膜厚減少、ピンホール発生)が極めて少ないハイブリッド型炭素フォイルを開発することが研究の目的である。

## 3. 研究の方法

ボロンをドーピングしたハイブリッド炭素フォイルを作成するために蒸発源として制御型 DC アーク放電法 (Controlled DC arc Discharge Method) を使用した。最適ボロン混合量を探するためにボロン混合量として 10%, 20% それに 30% で作成した炭素ロッドを使用した。基板と蒸発源の距離は約 30cm、アーク電圧 100V、アーク電流 250A の蒸着条件で厚さ 200 μg/cm<sup>2</sup> から 500 μg/cm<sup>2</sup> の厚い膜を製膜した。ここで、直流アーク放電のカソード電極から 300 ± 100nm の大きな結晶サイズをアノードからは 3nm ナノスケールサイズの炭素粒子を蒸着した。その双方のサイズ効果の特徴を活かしたこの方法により製膜した HBC フォイルは次の方法により寿命と特性を調べた。

加速器からのイオンビーム照射に対する HBC フォイルの寿命と特性はイオンビームのエネルギー、イオン種、直流又はパルス等により異なることが予想されるため、次の 3 種

の異なる加速器からのビームを用いて行った。

- (1) 東工大のバンデグラーフ加速器の 3.2 MeV 直流の 3.0 ± 0.5μA のネオン重イオンビーム
- (2) KEK-650keV 直流負水素の 200μA の大電流イオンビーム
- (3) 米国国立ロスアラモス研究所の PSR の 800 MeV 100 μA 以上の H パルスイオンビーム

HBC フォイルはシングル HBC フォイルとその同じ厚さに相当する 2 枚重ねにしたダブル HBC フォイルも測定した。これはシングルとダブルではフォイルの温度が異なるため、それによる寿命と高温損傷効果を比較することが目的である。ここで比較のために世界で使われている各種フォイルを集めた。それは米国オークリッジ研究所の SNS (Spallation Neutron Source) 製の先端素材のナノ構造とマイクロ構造のダイヤモンドフォイル、世界の基準品として長い間最も使われてきた高温加熱蒸着法で作成したアリゾナカーボンフォイル、産総研のカーボンナノチューブ、神戸製鋼のマイクロダイヤモンドフォイル、カナダ TRIMUFU のダイヤモンドライクカーボンの各種フォイルである。これらの厚さは平均 350 ± 50 μg/cm<sup>2</sup> である。尚、HBC フォイル、SNS の両ダイヤモンドフォイル、それにアリゾナフォイルはフォイルのたわみを抑えるために 10 ミクロンの SiC ファイバーで両ターゲットホルダーで支えられている。

## 4. 研究成果

寿命試験結果の、一例として東工大のネオンビームで照射した結果ではシングル HBC フォイルとダブル HBC フォイルは

- (1) SNS のナノとマイクロダイヤモンドフォイルの 100 倍以上、市販のアリゾナ炭素フォイルの 400 倍以上の寿命を記録した。同様な結果は KEK-650keV とロスアラモス研究所の 800keV 負水素イオンビーム照射による結果でも得られた。
- (2) ここでダブル KEK-650keV の負水素ビームで照射したシングル HBC フォイルの温度は 2000 ± 100K,

ダブル HBC フォイルの温度は 1800 ± 100K を示した。シングル HBC フォイルの膜厚減少をアルファ線厚み計で調べたところシングル HBC フォイルは 30%, ダブル HBC フォイルは 20% を示した。このことはフォイル温度により膜厚減少量に違いがあることを示した。同様に両フォイルを目視で見るとシングル HBC フォイルはわずかにピンホールが観察されたが、ダブル HBC フォイルは全く見られなかった。この低膜厚減少はフォイルの性質が低蒸気圧と低スパッター率による低蒸発性の

特性を持っているためと考える。この低密度と低蒸発性を備えている特性こそが 1800±200K の高温での過酷な環境下でも 200 時間以上の高い耐久性を維持する源であると考えられる。

(3) 先端素材のダイヤモンドフォイルは 1800±200K の高温ではグラファイト化が急速に進み劣化するすることが判った。又フォイルの変形を防ぐ SiC ファイバーの有無に関わらず強い変形を起し寿命が尽きることが判った。これらの結果から HBC フォイルはダイヤモンドフォイル以上の寿命を持つことが実証された。

HBC フォイルの何が何故このような優れた性能を示すのかについて手がかりを得るために、HBC フォイルの密度を調べた。その結果、

(4) HBC フォイルの密度は 1.10 g/cm<sup>3</sup> でグラファイトやボロンカーバイドに比べて 1/2 以下の低密度を示した。この低密度こそが、大強度イオンビーム照射によるフォイルの急速な熱変形をもたらす収縮スピードの緩和の働きをすることが判った。

(5) 結論として、2000±300K の高温での過酷な環境下でも HBC フォイルは高温損傷に高い耐久性を持ち、100 時間以上の長寿命を示す優れたフォイルであることが判り、J-PARC、SNS 等の大強度陽子加速器の荷電変換のストリッパフォイルとしての営業運転に使用できる。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 10 件)

- ① I. Sugai, Y. Takeda, H. Kawakami, First results of target preparation by the HIVIPP method in pressures higher than one bar, Nucl. Instr. and Meth. 査読有 A590 (2008) 83-90, Oct. 16-20, 2006, GANIL
- ② I. Sugai, M. Oyaizu, Y. Takeda, H. Kawakami, T. Hattori, K. Kawasaki, Measurement of carbon sputtering yield by N<sup>+</sup> ion beam and lifetime dependence of resulting foils on thickness, Nucl. Instr. and Meth. 査読有、A 590(2008) 37-42
- ③ I. Sugai, M. Oyaizu, Y. Takeda, H. Kawakami, T. Hattori, K. Kawasaki, Lifetime improvement of slackened thin cluster carbon stripper foils by suppression of carbon buildup, Nucl. Instr. and Meth. 査読有、A 590(2008) 32-36

- ④ I. Sugai, M. Oyaizu, Y. Takeda, H. Kawakami, T. Hattori, K. Kawasaki, Improvement of thickness and uniformity of isotopically enriched <sup>12</sup>C targets on backings by the HIVIPP method  
Nucl. Instr. and Meth. 査読有、  
A 590(2008) 164-170, Oct. 16-20

[学会発表] (計 8 件)

- ① I. Sugai, A. Takagi, Y. Irie, Y. Takeda, M. Oyaizu, H. Kawakami, R. W. Shaw, M. A. Plum, C. S. Feigerle  
LIFETIME MEASUREMENT OF HBC-FOIL AND NANOCRYSTALLINE DIAMOND FOIL BY USING KEK-650KEV HIGH INTENSITY H<sup>-</sup>DC BEAM HB2008, 42<sup>nd</sup> ICFA Advanced Beam Dynamics Workshop on High-Intensity High-Brightness Hadron Beams, Nashville, USA, August 25-29, 2008
- ② I. Sugai, T. Takeda, H. Kawakami, M. Oyaizu, A. Takagi, Y. Irie, T. Hattori, K. Kawasaki  
Development of Hybrid Type Carbon Stripper Foils with High Durability at > 1800K for RCS of J-PARC  
PAC2007, Albuquerque, NM, USA, June 25-29, 2007
- ③ A. Takagi, I. Sugai, Y. Irie, R. W. Shaw, C. S. Feigerle, M. A. Plum  
Comparative Study on Lifetime of Stripper Foil Using 650 KeV H<sup>-</sup> Ion Beam  
PAC2007, Albuquerque, NM, USA, June 25-29, 2007
- ④ R. Shaw, M. Plum, L. Wilson, C. S. Feigerle, Y. Irie, I. Sugai, A. Takagi, M. J. Borden, T. Spickermann  
Spallation Neutron Source (SNS) Diamond Foil Development  
PAC2007, Albuquerque, NM, USA, June 25-29, 2007

[図書] (計 1 件)

- ① Isao Sugai, David Gilliam, Anna Stolarz, ELSEVIER, TOWARD THE REALIZATION OF TARGET AND STRIPPER FOIL TECHNOLOGIES FOR HIGH-POWER PROTON AND RADIOACTIVE ION ACCELERATORS 2008, ページ 1~233

[産業財産権]

○出願状況 (計 7 件)

名称：研磨方法および研磨装置

発明者：菅井 勲

権利者：大学共同利用機関法人高エネルギー

加速器研究機構  
種類：特許を受ける権利  
番号：特開 2008-238379  
出願年月日：2007/3/29  
国内外の別：国内

研究者番号：70391745

(3)連携研究者  
なし

名称：炭素フォイルの作製方法、炭素フォイル、この炭素フォイルを利用した荷電変換用ストリッパフォイル、及び炭素フォイルの作製装置

発明者：菅井 勲、小柳津 充広、武田 泰弘

権利者：大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構

種類：特許を受ける権利  
番号：国際公開番号：W02007/058224  
出願年月日：2006/11/15  
国内外の別：国内

名称：球状粒子製造方法、球状粒子および球状粒子製造装置

発明者：菅井 勲

権利者：大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構

種類：特許を受ける権利  
番号：特開 2008-036511  
出願年月日：2006/8/4  
国内外の別：国内

#### ○取得状況（計 1 件）

名称：被膜形成装置、被膜形成方法および被膜形成部材

発明者：菅井 勲

権利者：大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構

種類：特許権  
番号：特許第 4195941 号  
取得年月日：2008/10/10  
国内外の別：国内

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

菅井 勲 (SUGAI ISAO)

高エネルギー加速器研究機構・加速器研究施設・研究員

研究者番号：80150291

### (2) 研究分担者

高木 昭 (TAKAGI AKIRA)

高エネルギー加速器研究機構・加速器研究施設・講師

研究者番号：10100819

武田 泰弘 (TAKEDA YASUHIRO)

高エネルギー加速器研究機構・加速器研究施設・技師