

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 5 月 31 日現在

機関番号：33603

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009～2011

課題番号：21540305

研究課題名（和文） J-PARC 加速器のための荷電変換炭素薄膜の開発

研究課題名（英文） Development of carbon stripper foils for J-PARC Accelerators

研究代表者

武藤 英 (MUTO HIDESHI)

諏訪東京理科大学・共通教育センター・准教授

研究者番号：80434489

研究成果の概要（和文）：我々はこれまで核子当たり 100~200keV/u の重イオンビームのための長寿命荷電変換用炭素薄膜の開発を行って来た。このエネルギー領域の場合、必要膜厚は 1~20 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  であった。今回の開発では、高エネルギー負水素イオンおよび中高エネルギー重イオンのための 50~100  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  の厚い炭素薄膜の開発を行った。これまで世界ではこのような厚い炭素膜の製作は、製作歩留まりが悪いことなどからイオンビームスパッタリング法で行われて来たことはなかった。

研究成果の概要（英文）：For over a decade, we have developed super long-lived carbon stripper foils of 1-20  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  thickness by the heavy ion beam sputtering method. Foils of this thickness are mainly used for heavy ion beams of 100 ~ 200 keV/u. Recently, high energy negative proton and heavy ion accelerators have started to use carbon stripper foils of over 100  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  in thickness. However, the heavy ion beam sputtering method was unsuccessful in production of foils thicker than 50  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  as resulted in the collapse of carbon particles from substrates during sputtering process. The reproduction probability was less than 25%. The samples of the carbon foil received had surface defects. However, the defects were eliminated by introduction of a substrate heater during sputtering process. In this manuscript we describe a highly reproducible method for thick carbon stripper foils by a heavy ion beam sputtering with krypton and xenon gases.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	2,600,000	780,000	3,380,000
2010 年度	600,000	180,000	780,000
2011 年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
総計	3,700,000	1,110,000	4,810,000

研究分野：物理学

科研費の分科・細目：原子核・素粒子

キーワード：イオンビーム・スパッタリング・原子核ターゲット・荷電変換・加速器

## 1. 研究開始当初の背景

(1) タンデム型バンデグラフ、リニアック、サイクロトロンおよびシンクロトロンのビームエネルギーをより高くし、加速効率を向上

させる方法に荷電粒子の電子をはぎとる荷電変換がある。ガスターゲットによる荷電変換に比べ炭素薄膜は変換効率が高く、また加速器の高性能化に伴い高真空が望まれるように

なったので、自己支持型固体ターゲットによる荷電変換の方法が注目されるようになった。タンデム型バンデグラフの場合は加速器の内部に炭素薄膜は設置されてチャージを変化させる。また、不安定核などの重イオンを加速する場合、炭素薄膜はイオン源の後段のRFQ加速器の後に設置される。また陽子シンクロトロンに使用される場合は、前段の線形加速器でH<sup>+</sup>を加速し、シンクロトロンへ入射する際に電子をはぎとり軌道を変えて、H<sup>+</sup>をシンクロトロン内に打ち込む方法がとられている。

(2) しかし、従来からある熱による蒸着法である電子ビーム蒸着法、アーク放電法やエチレングスを使った直流グロー放電クラッキング法、また高価な方法であるレーザーアブレーション法などの炭素薄膜は、荷電変換効率良好ではあったが、低エネルギー領域の大強度ビーム電流、あるいは重イオンによる損傷により短時間で破壊され、その寿命が短く、加速器の運転効率を著しく低下させるという欠点があった。

(3) その後、我々東京大学原子核研究所—東京工業大学グループは、これらの方法とは異なる「制御型交直併用式アーク放電法」(Controlled AC and DC Arc Discharge Method, 略称CADAD法)を開発し、15μg/cm<sup>2</sup>の膜厚で3.2MeV、Ne<sup>+</sup>ビームの照射実験で市販の熱蒸着炭素膜の約40倍(これまでの炭素膜が20分程度の寿命だったのに対し13時間の平均寿命)の長寿命化に成功した。この方法は世界的にも有名になり、ロスアラモス国立研究所のLAMPFで使用され、さらに膜の高温耐久性能を向上させて高エネルギー加速器機構—日本原子力研究所が共同で建設しているJPARC加速器の初段ブースターへのビーム入射のために使用されている。また、オークリッジ国立研究所のSNS、フランスのITA計画などにも使用される予定である。

(4) このCADAD法と同時に、我々は重イオンビームスパッタリング法を用いて炭素薄膜の製作および寿命測定を行ってきた。図1にイオンビームスパッタリング法の概略図を示す。この方法は、Physical Vapour Deposition法とも呼ばれ、熱による真空蒸着法とは原理的に異なり、ビームのインパクトによりターゲット原子を飛び出させる方法で、高融点物質の薄膜製作が可能になる。しかし、世界ではイオンビームスパッタリングによる炭素薄膜の開発は、製作に長時間を必要とし、一度に大量生産ができないなどの理由からほとんど行われて来なかった。また、ガラス基板に堆積した炭素薄膜の付着力が強く、基板からの炭素薄膜のセパレーション

がしにくく、機械的強度がもろいことなどもあったので、この方法にあまり手がつけられなかった。

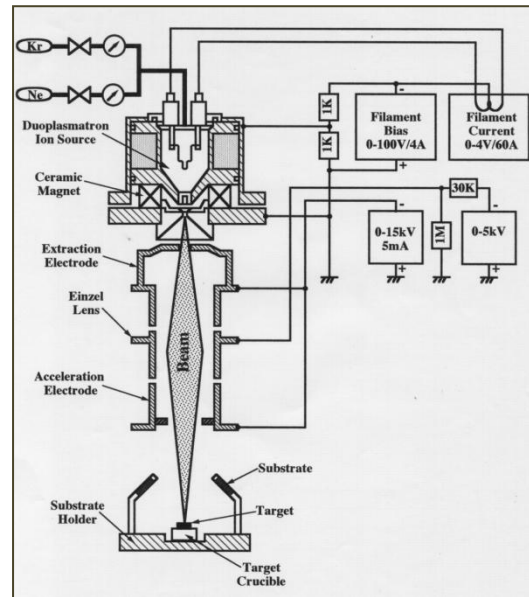


図1. イオンビームスパッタリング装置

(5) しかし、我々は重いクリプトンガス(Kr)に軽いネオンガス(Ne)を混合させたガスでスパッタリングを行うなどの改良を行い、市販の熱蒸着法による炭素薄膜に比べて約60倍の長寿命を示す、CADAD法よりさらに長寿命の炭素薄膜の開発に成功した。また、高価な不活性ガスによるスパッタリングの他に、窒素ガスによるスパッタリングで製作した炭素薄膜も長寿命を示すことを発見した。特に不活性ガスによる炭素薄膜の長寿命化は再現性もあり我々は世界でも認められることとなり大成功であった。

(6) それゆえ工業的には成功したが、その炭素薄膜の結晶構造、電気的特性、グレインサイズの変化など、その長時間照射に耐えるメカニズムは未解決のままであるのでこれを解明する。また、CADAD法では陽子ビーム用の厚膜(300μg/cm<sup>2</sup>)の製作が可能であるが、イオンビームスパッタリング法では製膜途中で内部応力が増し、膜が崩れ落ちてしまう現象があり、現在約50μg/cm<sup>2</sup>の膜厚が限界であるのでこの問題を解決し、薄い膜厚ではCADAD法より良好な特性を示すこのイオンビームスパッタリング法で長寿命厚膜の製作も目指すことになった。

## 2. 研究の目的

(1) 1999年に東京大学原子核研究所が閉所となり、この科研費申請の代表である武藤英が海外にポスドクとして出てしまったため、老朽化したイオンビームスパッタリング

装置は廃棄処分になってしまった。そこでまず、新しいスパッタリング装置を作る。

(2) 装置が完成したら、重イオンによるビームスパッタリングで炭素薄膜の製作を行い、その炭素原子の向配やグレインの大きさなどの内部構造、ビーム照射による膜の結晶化がどのように起こるのかのメカニズムの解明を行う。

(3) 上で述べた CADAD 法よりも薄い膜厚 ( $15 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ) では長寿命であるこのスパッタリング法で、困難であった厚膜 ( $100 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  以上) の製作を試みる。そのために内部のゆがみ応力を製膜中に取り去るためのアニールヒータを真空チェンバ内に導入する。

(4) 窒素ビームを用いた窒化炭素膜の製作を試みる。窒素ビームを用いたスパッタリング法でも  $15 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  の膜厚では CADAD 法で作った炭素膜と同程度の長寿命を示すことを我々は発見したが、再現性に問題があった。また、薄膜の成分分析でも窒素は多く含まれていなかった。窒素ビームについては、まだグラファイトターゲットとのスパッタリング現象のメカニズムがよく分からないので、加速電圧、基板温度などのパラメータを変えて炭素薄膜の製作を行い、ビーム照射による結晶化の現象を調べる。

(5) 東京大学原子核研究所のターゲット室は全国共同利用機関の一つとして実験者に原子核ターゲットを提供してきた。しかし閉所となってしまった今でも、理化学研究所、東京工大原子炉研など全国の加速器のある研究機関で原子核実験をしている研究者は、原子核ターゲットを必要としている。それゆえ、このスパッタリング装置で再び彼らのための原子核ターゲットの製作も行う。

(6) 上述したように、炭素薄膜を含んだイオンビームスパッタリング法による原子核ターゲットの開発では、我々が世界の最先端を歩んできた。今後このイオンビームスパッタリング法で、さらに長寿命の炭素薄膜の開発ができれば、世界中の研究機関の荷電変換用炭素薄膜は我々が提供することになる。また、基板をシリコン単結晶にして炭素原子をゆっくり堆積させればダイヤモンド薄膜の製作も可能となる。世界であまり研究されていないこのイオンビームスパッタリング法で、さらに原子核分野だけでなく半導体電子工学分野にも応用が広がっていくことが期待できる。

### 3. 研究の方法

#### (1) 平成 20 年度

#### ① イオンビームスパッタリング装置の製作

図 1 に示す通り、この装置はガスをイオン化しイオンビームを作り出すイオン源がまず上部にある。次にこの下段に真空チェンバがあり、この内部にはイオンビームを加速するための引き出し加速電極、イオンビームを収束させるためのレンズ収束系電極、スパッタリングさせるターゲットを置くビームストップ部、およびターゲット粒子を堆積させる基板をセットするホルダなどから構成されている。すでにこれらの図面は描き上げられているので、真空チェンバ、デュオプラズマ型イオン源、引出し加速電極、集束レンズであるアインツェル電極、ターゲットをセットするビームストップ部およびターゲットホルダの製作を行う。

#### ② 真空排気系およびガス系の設計製作

スパッタリングを行うときのチェンバ内の真空度は  $10^{-4} \text{ Pa}$  のオーダーであり、窒素トラップも設置される。現在ではターボ分子ポンプの使用が一般的だが、真空チェンバ内での作業での落下物や、反応性ガスの使用もあるので、従来からある油拡散ポンプとロータリポンプとの組み合わせで真空排気系の製作を行う。また、デュオプラズマトロンイオン源に導入するガスのコントロール系の製作を行う。これはガスボンベからレギュレータを経て、ニードルバルブによって  $\text{cc}/\text{min.}$  のオーダーでコントロールされイオン源に供給される装置である。それゆえ、不活性ガスおよび窒素用のガス流量計の製作を行う。

#### ③ 各種電源の購入と配線

図 1 に示すようにスパッタリング装置には、イオン源のためのフィラメント電源 ( $0\text{-}4\text{V}/60\text{A}$ ) およびバイアス電源 ( $0\text{-}100\text{V}/4\text{A}$ )、またビーム加速のための加速電源 ( $0\text{-}15\text{kV}/5\text{mA}$ ) とレンズ収束のためのアインツェル電源 ( $0\text{-}5\text{kV}/5\text{mA}$ ) が必要である。そのためこれらの電源の仕様設計はすでに終わっているので業者に発注を行う。

#### ④ 基板アニール用フィラメントの製作

厚い炭素薄膜の製作のためのアニール用フィラメントを真空チェンバ内に導入する。上で述べたように製膜過程で生じる内部のゆがみを、アニールで取り去りながら堆積させることを試みる。フィラメントはタングステン (W) で電源についてはすでに絶縁トランスとスライダックを確保してあるので、真空チェンバとビームストップ部が出来上がったら導入する。

#### (2) 平成 21 年度

##### ① 炭素薄膜の製作

不活性ガスによる重イオンビームスパッタリング法で炭素薄膜の製作を行い、東京工業大学バンデグラフ実験室で照射実験を行う。それにより炭素薄膜のビーム損傷による

破壊のメカニズムの解明を行い、さらに長寿命化をめざす。

#### ② 窒化カーボン薄膜の開発

窒素ビームスパッタリングで炭素薄膜の製作を行い、窒化カーボン薄膜の製作を試みる。

#### ③ 炭素薄膜へのビーム照射実験

東京工業大学理学部バンデグラフ実験室で重イオンビームによる炭素膜への照射実験を行い、破壊のメカニズムを明らかにする。

#### ④ 原子核ターゲットの製作

原子核ターゲットの要望は、日本全国はもとより海外の研究所からも常にあり、東京大学原子核研究所が閉所になってから多くの研究者が困難を呈してきた。それゆえ、高融点材料薄膜製作が可能なスパッタリング法で、要望のある色々なターゲットの製作を行い世界中の実験者に提供する。

### (3) 平成 22 年度

#### ① 厚い炭素薄膜の製作

高エネルギー・ネガティブ・プロトンビームおよび中高エネルギー・重イオンビームのための  $100\mu\text{g}/\text{cm}^2$  以上の厚い炭素膜の開発を行う。

#### ② 国際共同研究

現在は、J-PARC 加速器などのビームの荷電変換炭素膜の仕事を共同研究で行っているが、この研究所の他にも米国の SANDIA 国立研究所との共同研究の計画があるので、このイオンビームスパッタリング法で長寿命の荷電変換薄膜の開発を行っていききたい。

### 4. 研究成果

(1) 完成したイオンビームスパッタリング装置の全体系の写真を図 2 に示す。これは前述の通り不活性ガス等をイオン化しイオンビームを作り出すデュオプラズマ型イオン源、イオンビームを加速、収束させるための電極、ターゲットを置くビームストップ、ターゲット物質を堆積させる基板をセットするホルダおよび真空排気系から構成されている。イオンビームによりスパッタされるターゲット物質は、加速電圧を印可されるビームストップに設置される。ビームストップは高純度グラファイトを用いて製作されている。イオンビームの加速電圧は、最大 15kV まで印可することが出来る。そのときのビームスポットは、アインツェル型集束レンズを調節することで 1~5mm  $\phi$  の大きさで使用される。ビーム電流は最大 3mA まで安定に上げることが出来るが、ターゲット物質の温度上昇を避けるために 1.5mA 程度で使用される。スパッタリングを行うときの真空チェンバ内の真空度は  $10^{-4}\text{Pa}$  のオーダーであり、この真空度のときのターゲット粒子の平均自由行程は約 5m であり、ターゲットと基板の距離

は約 6cm なので残留ガスによる散乱は無視可能である。



図 2. イオンビームスパッタリング装置の全体系 左が真空装置で右側にあるのが電源及びコントロールユニット

(2) イオンビームスパッタリングで炭素粒子をガラス基板に堆積させる方法で炭素薄膜を製作する。そのために、スパッタリングを行い、ガラス基板からカーボン薄膜をダメージなく剥離し、ターゲットフレームにマウントしなくてはならない。一般にガラス基板には剥離剤として NaCl、 $\text{NiCl}_2$  などの結晶系の物質を真空蒸着でコーティングする。しかしこの方法では、真空装置を使用するために時間がかかる、これらの物質は真空チェンバの金属部分を腐食する、また堆積する炭素粒子が下地である剥離剤の形状の影響を受けやすいなどの欠点がある。そのため我々は、有機系の剥離剤をティッシュペーパーなどにしみ込ませてガラス基板に塗布する方法を考案した。図 3 に炭素粒子を堆積させたガラス基板から蒸留水を用いて炭素薄膜を剥離し、ビーム照射をするためのターゲットホルダにマウントする行程を示す。

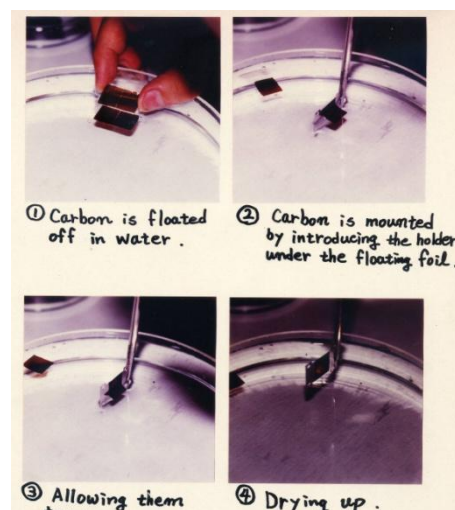


図 3. 炭素薄膜のターゲットフレームへのマウンティング行程

今回我々は、 $100\mu\text{g}/\text{cm}^2$ の厚い炭素薄膜の開発を行った。これまでこのような厚い炭素薄膜を重イオンビームスパッタリング法で製作することは世界では行われてこなかった。なぜならスパッタリングプロセスの途中で基板から炭素粒子がはがれ落ちてしまうなど、製作歩留まりの悪さが大きな要因となっているからである。しかし我々はこれまでの経験から、基板を真空チェンバ内にセットしたタングステン・フィラメントでアニールして、堆積した炭素粒子の内部に蓄積した内部応力を徐々に取り除くことで、この剥がれ落ちの現象を克服した。

(3) 製作した炭素薄膜の重イオンビーム照射による寿命測定は、図4に示す東京工業大学バンデグラフ実験室の $0^\circ$ 方向にある実験コースで行われた。 $3.2\text{MeV}$ の $\text{Ne}^+$ ビームは $4.75\text{MV}$ のバンデグラフ加速器から2台の静電四重極により $3.5\text{mm}\phi$ の大きさに収束され $22.5^\circ$ の振り分けマグネットを通る。そして振り分けマグネットを出た所にあるコロナスリットによって加速器の電圧が安定に制御されてビームが散乱槽へ導かれる。散乱槽へ導かれたビームは、炭素薄膜へ照射される。薄膜を通過したビームはその下流にあるファラデーカップへ導かれ電流が測定される。ファラデーカップには二次電子の影響をなくすためにエレクトロンサプレッサが取り付けられている。

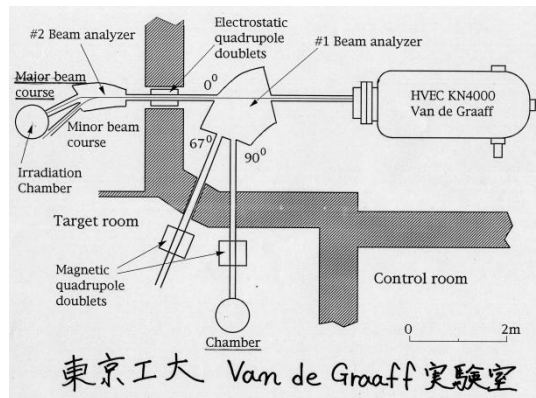


図4. 東京工業大学バンデグラフ実験室の概略図  $0^\circ$  コースの irradiation Chamber で照射実験は行われる。

(4)  $3.2\text{MeV}$ の $\text{Ne}^+$ ビームによる寿命測定を行った。ビーム電流は $3.0\sim 5.0\mu\text{A}$ であった。寿命は炭素薄膜が破壊されるまでの単位面積当たりを通過した電流積算量で表し、単位は $\text{mC}/\text{cm}^2$ である。図5にKrビームによるスパッタリングで製作した $100\mu\text{g}/\text{cm}^2$ の膜厚の炭素薄膜の照射写真を、また図6に同じ膜厚のARIZONA Carbon foilの照射写真を示す。ARIZONAは世界的にも有名な商業薄膜であるが、照射直後からシュリンクが発生

し、20分程度で破壊されてしまう。しかし、我々のイオンビームスパッタリングによる炭素薄膜は長寿命すぎるため、破壊されるまで待っているとマシンタイムが1週間あってもサンプルを1つ測定するだけになってしまうので、厚い薄膜の場合途中で止めなくてはならなかった。図5では、20時間照射しストップしたサンプルである。

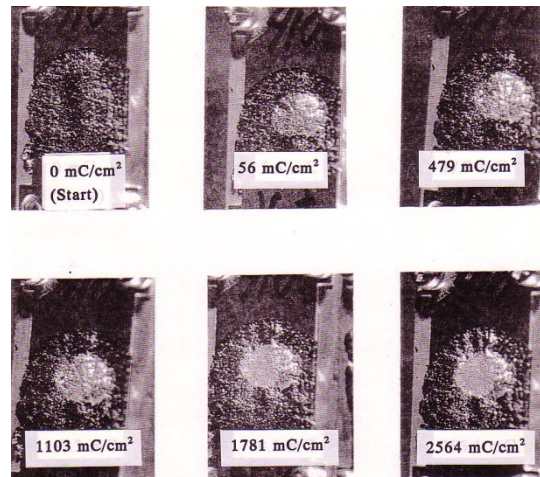


図5. Krビームによるスパッタリングで製作した炭素薄膜の照射写真

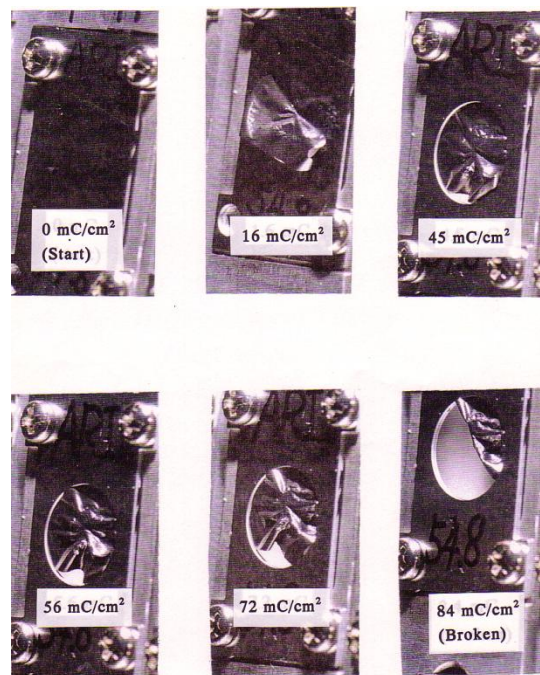


図6. Arizona Carbon foilの炭素薄膜の照射写真

(5) 照射後のサンプルのビームスポット部分について、東京工業大学研究協力課の $200\text{keV}$ 透過型電子顕微鏡(TEM)を用いてその構造を調べた。図7に今回照射したKrビームスパッタリングにより製作した炭素薄膜のビームスポット部分のTEMおよびTEDのパターンを示す。

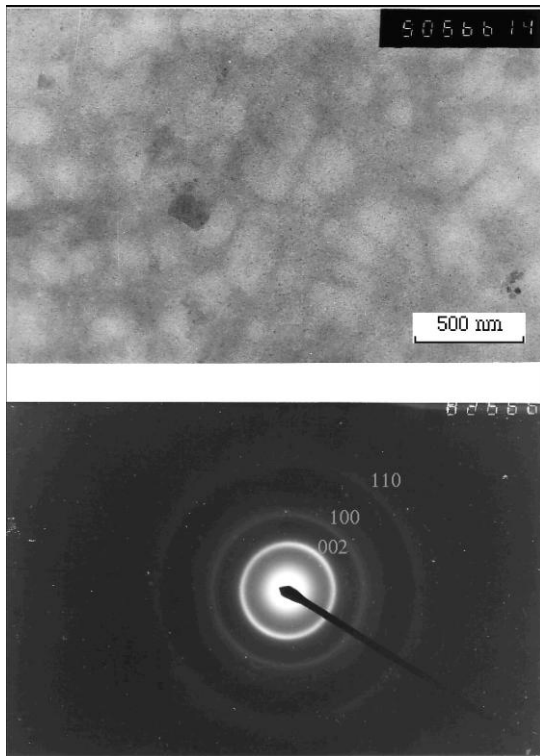


図7. 照射後のKrビームスパッタリングによる炭素薄膜のTEMの像とTEDパターン

これまで多くの学者が Arizona Carbon などの熱蒸着法やカーボンアーク法による炭素薄膜の構造に付いて研究して来た。彼らによるとこれらの炭素薄膜は、グラファイトの特徴である六方晶系の<002>面が、ガラス基板面に対して平行に成長する2次元な構造(bi-dimensional)になっていることが分かっている。しかし今回の我々の炭素薄膜の構造はこれらとは異なり、図7から分かるように<002>面はガラス基板に対して垂直に立っていて、しかもその面がそれぞれ勝手な方向に向いた等方的な構造(isotropic)をしていることが分かった。それゆえ照射中の写真を見ても分かるが、イオンビームスパッタリングによる炭素薄膜は、色が銀色であり黒色ではない。しかし市販の Arizona Carbon などは黒色をしている。なぜ我々の重イオンビームスパッタリングによる炭素薄膜が金属色をしているのか、長い間なぞであったがこのTEDパターンにより理解することができた。

(6) 装置が完成し、炭素薄膜の長寿命のメカニズムが判明した。今後は国内の J-PARC 加速器だけでなく、米国の SANDIA 国立研究所などと国際共同研究を行って行くことになっている。彼らのタンデム・バンデグラフ加速器のための薄い ( $5\sim 20 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ) 炭素薄膜およびその後段の RFQ に Au ビームをインジェクションするためのさらに厚い今回開発した  $100\mu\text{g}/\text{cm}^2$  の膜厚の炭素薄膜も用いるこ

とになる。

## 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2件)

① H.Muto, M.Oyaizu, K.Kawasaki and T.Hattori, Evaluation of carbon stripper foils produced by a nitrogen ion beam sputtering method, 164, 9, 2009, 561.

② H.Muto, Y. Ohshiro, M. Oyaizu, K. Kawasaki and T.Hattori, Proceedings of the 22nd International Conference on the Application of Accelerator in Research and Industry (CAARI2012), Aug. 5-10, Fort Worth Texas USA, Invited talk.

〔学会発表〕(計2件)

① H.Muto, M. Oyaizu, K. Kawasaki and T.Hattori, Ion beam sputtering and its applications, 第10回応用加速器・関連技術研究シンポジウム ARTA2009, 2009年6月12日, 東京工業大学フェライト記念館

② H.Muto, M. Oyaizu, K. Kawasaki and T.Hattori, Microstructure of long-lived carbon stripper foils, 第11回応用加速器・関連技術研究シンポジウム ARTA2010, 2010年6月18日, 東京工業大学フェライト記念館

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

武藤 英 (MUTO HIDESHI)

諏訪東京理科大学・共通教育センター・

准教授

研究者番号：80434489

### (2) 連携研究者

服部俊幸 (HATTORI TOSHIYUKI)

放射線医学総合研究所・客員研究員

研究者番号：50134648