

Development of a controlling method for the carbon build-up on thin carbon stripper foil

薄い炭素ストリッパ膜上の炭素 build-up 制御法の開発

Y. Takeda^{A)}, I. Sugai^{A)}, M. Oyaizu^{A)}, H. Kawakami^{A)}, T. Hattori^{B)}, K. Kawasaki^{B)}

^{A)} High Energy Accelerator Research Organization, Oho 1-1, Tsukuba-shi, Ibaraki, 305-0801 Japan
^{B)} Tokyo Institute of Technology, Ookayama 2-12-1, Meguro-ku, Tokyo, 152-8550 Japan

Abstract

Hydrocarbon gases in a vacuum chamber is built up on thin carbon stripper foils during beam bombardment. The carbon built-up plays a negative roll to the beam transmission for ion beam, especially heavy ion like gold. In order to overcome this problem, we have been developing a controlling method of the carbon build-up. By using a heating method with a high power infra-red ray device, we have succeeded not only controlling the carbon build-up, but also extending the lifetime of carbon foil.

We have found that suppressing temperature of the build-up was 400 ± 50 °C and its completely controlling temperature was beyond 600 °C. By this controlling the lifetime of the heated foil showed about 2 times longer than the foil without the heating treatment.

1. はじめに

加速器において、イオンの荷電変換を行うために炭素ストリッパ膜が用いられている。近年、加速器のイオン源の飛躍的な発展によってビームの強度が強まり、荷電変換に使用する炭素ストリッパ膜の寿命は著しく悪くなっている。我々は、この短寿命化の問題に対処し、より長寿命化を目指して、極端に薄い数 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ (50 Å) から極端に厚い $\sim 500\mu\text{g}/\text{cm}^2$ (25000 Å) の炭素ストリッパ膜を開発し、ビーム照射による膜厚特性を系統的に調べている。

10MeV 以下の低エネルギー加速器で、加速粒子の荷電変換を行う場合、ガスまたは厚さ $10\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 以下の非常に薄い炭素ストリッパ膜が使われる。炭素ストリッパ膜はガスに比べてストリップ効率が高く、しかも高いイオンが生成されやすいため、真空や経費の面で加速器にとって都合が良い。しかし、薄い炭素膜を用いた場合、ビームの照射により、真空中の残留ガスから解離された炭素が水素や酸素を含んだ混合物となり炭素膜上に附着、堆積 (build-up) する。従来から Build-up の増加によりストリッパフォイルの強度が増すことで、膜の寿命が延びるのではないかと考えられてきた。我々の実験から、build-up 現象はストリッパ膜の寿命を著しく低下させると共にビームの透過電流を下げることが判明した。したがって、この build-up を制御し、膜厚を安定させることが出来れば、安定したビームをより長時間供給することができることが可能である。本研究はこの build-up を制御する手法を開発することが目的である。[1-3]

2. Build-up 現象

長寿命炭素ストリッパ膜の開発の過程で、ビームを長時間照射することにより、膜厚が変化していくことを実験により確認した。この現象は、炭素ストリッパ膜の膜厚が $10\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 以下では膜厚増加、 $\sim 15\mu\text{g}/\text{cm}^2$ では膜厚一定、 $50\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 以上では減少するという3つの異なるものがあることを突き止めた。(3.2MeV, Ne⁺, ビーム電流 $2 \pm 0.5\mu\text{A}$ の場合) 特にこの中で、照射量に対し膜厚増加を示す現象について、我々は build-up と呼んでいる。

この build-up は、イオンビームにより残留ガス等が解離された炭素がストリッパ膜上に附着することで起こる。build-up 現象は真空中の炭化水素系の残留ガス分子がストリッパ膜の表面に附着し、入射ビームとの相互作用あるいは標的からの二次電子により、解離することによるラジカル重合が起こり、膜上に炭素が堆積する。堆積するものは、炭素を中心に、真空残留ガス中の水素や酸素も含まれる重合炭素である。

Build-up は、特に重イオンビームに対して、電流透過率を落とす等の悪影響を与える。例えば酸素のような軽イオンビームでは膜厚変化が2倍になっても電流透過率にはあまり影響しないが、金のような重イオンビームでは約半分まで下がってしまう。[4] 重イオンビームになるほど膜厚依存性は大きく、高い電流透過率を得るためには、出来る限り薄く、膜厚が安定であることが望ましい。このように build-up を防ぐことは、加速器の運転効率にも与える影響が大きい。

また、うすいストリッパ膜の破損の原因は、これまで、放射線損傷による機械的な強度の劣化と考えられてきた。ところが、我々の長寿命炭素ストリッパ膜の開発と最近の膜厚特性の研究によって、約 $5\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 以下のストリッパ膜は、build-up によって照射前の膜厚の2~3倍になって、ついには破けることが見出された。このことから、我々はこの炭素 build-up によってビームによる放射線損傷に対して短寿命化を誘発する原因があるのではないかと推測した。

我々の系統的な研究の中で炭素ストリッパ膜への build-up が、真空度、残留ガス成分、ビーム電流、強度や安定性等の諸パラメータの中でも特に膜の温度に非常に敏感に影響していることを見出した。膜の温度を制御することで、build-up 制御の臨界温度を見出し、高い再現性を持って確立できれば、長寿命化とともに高い透過電流のビームを長時間、安定に供給できることが期待できる。

3. 実験方法

3-1. 実験装置

炭素ストリッパー膜の寿命、膜厚変化の測定実験は東京工業大学理学部のバンデグラーフ加速器（エネルギー 3.2 MeV、電流 $2 \pm 0.5 \mu\text{A}$ 、ビームスポット 3.5ϕ 、 Ne^+ イオン）を用いて行った。炭素ストリッパー膜は振り分けマグネット 0 度コースに設置されている散乱槽（真空チャンバー）に取り付けられ、ビーム照射が行われる。散乱槽には透過電流を測るファラデーカップ、照射中の膜厚の変化、及び膜厚に含まれる軽元素成分を測定するために SSD が下流 22.5 度方向に取り付けられている。また、ビーム入射方向 45 度には、真空中でストリッパー膜を加熱できる 1 kW と 2 kW の赤外線加熱装置が取り付けられている。（図-1）

ビームは、後方に取り付けられたファラデーカップでビーム電流量の状態を測定し、位置とスポット形は散乱槽内に取り付けられている石英（コルツ）で確認しながら一様になるように調整した。

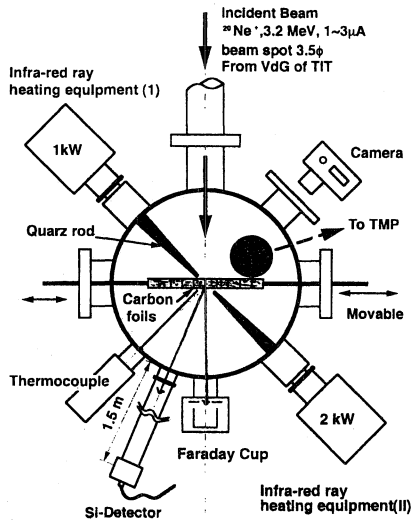


図-1 Experimental Setup for the lifetime measurements

3-2. 炭素ストリッパー膜の製作

測定ストリッパー膜は我々の開発した“制御型 DC アーク放電法 (CDAD)”を用いて作製したクラスターフォイルを用いた。比較のために市販のアリゾナ社製フォイルと、うすい膜では世界で最も寿命が長いと言われているドイツ・ミュンヘン工科大のレーザーアブレーション法で作製したレーザープラズマフォイルの 3 種類を使用した。今回測定で使用したストリッパー膜の膜厚は $3.0 \pm 1.0 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ である。膜は $10 \text{ mm}\phi$ の穴を持つ SUS-304 のターゲット枠に取り付けた。

3-2. 寿命、膜厚変化測定

ストリッパー膜の寿命 (mC/cm^2) はファラデーカップから測定される単位面積あたりのビーム透過電流の積算量と定義する。膜の破損の判断は、肉眼で確認して明らかに壊れた時、または、透過電流が半分以下に落ちた場合とした。また、膜厚 ($\mu\text{g}/\text{cm}^2$) は、下流に備えた SSD によりラザフォード前方散乱 (RFS) 法によってマルチチャンネルアナライザーで測定されたスペクトルの炭素散乱

粒子の積分量 (カウント数) を市販のアリゾナ社製の膜と比較、校正することで求めた。アリゾナ社製の膜は、非常に膜厚の均一性が取れており、信頼性の持てる膜であるため基準として用いた。

3-3 加熱装置

炭素膜に対し、上流 45 度と下流 45 度に 1 kW と 2 kW の赤外線加熱装置が取り付けられている。この赤外線加熱装置は、真空外にある熱源 [赤外線ランプ] から放射した赤外線が真空内外を結ぶ透明石英製導入ロッド内部で全反射を繰り返しながら、先端より放射して真空中の膜を加熱するものである。真空中において非接触で試料のみが加熱ができ、2 台あわせると $\sim 750^\circ\text{C}$ の高温まで加熱が可能である。

膜の表面温度は、ビーム照射前に高感度セラミック付熱電対を膜の接触限界まで近付けることで測定した。

4. 結果

図-2 に市販のアリゾナ社製炭素ストリッパー膜のビーム照射し、build-up 傾向を見た結果を示す。非加熱、 450°C 、 500°C 、 600°C 、 750°C で加熱した 4 種類を表示している。サンプル数は非加熱が 5 サンプル、 750°C は 3 サンプルの平均、 450°C 、 500°C 、 600°C はそれぞれ 1 サンプルをプロットしている。このグラフより、build-up の傾向は、加熱することにより build-up 量が若干少なくなることがわかる。その量は加熱なしのときに $0.8 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 増加に対し、 750°C 加熱のときに $0.5 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 増加となり、変化量は少ない。また、寿命は加熱しないもので $25.4 \text{ mC}/\text{cm}^2$ 、加熱したもので $40.5 \text{ mC}/\text{cm}^2$ と非加熱のものに比べ約 1.7 倍となった。

図-3 にレーザープラズマフォイルのビーム照射結果を示す。非加熱、 750°C での加熱をそれぞれ 5 サンプルの測定を行い、平均値を示している。このグラフより、build-up 量の傾向は、非加熱 (破損時で $4.6 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 上昇) と加熱有り (破損時で $1.4 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 上昇) を比較すると、加熱の方が約 30% 少ないことがわかる。しかしながら、少ないながらも build-up は起こっており、build-up は完全に制御されていない結果となった。また、寿命は、加熱しないもので平均 $124 \text{ mC}/\text{cm}^2$ (最低 $105 \text{ mC}/\text{cm}^2$ 、最高 $152 \text{ mC}/\text{cm}^2$)、加熱したもので平均 $143 \text{ mC}/\text{cm}^2$ (最低 $128 \text{ mC}/\text{cm}^2$ 、最高 $153 \text{ mC}/\text{cm}^2$) と加熱により約 1.1 倍伸びた。この結果から、加熱効果は見られなかった。

図-4、表-1 に我々の製作したクラスター膜のビーム照射結果を示す。室温と 100°C から 700°C まで 100°C 間隔で加熱した 8 種類を表示している。室温から順に 6、6、4、7、6、5、6、6 サンプル測定した、その平均値をプロットしたものである。このグラフより、build-up の傾向は、加熱有り無しでは、加熱することで増加の傾きが少なくなっている。このことから、膜を加熱することにより build-up を制御できることを示している。 400°C から寿命が延び始め、build-up も少ないことから、この温度より build-up の制御が始まることを示した。そして、 600°C からは、ほぼ完全に制御される結果となった。また、寿命は、加熱したものは、非加熱のもの比べ、約 2 倍延びることが確認された。

CDAD 法で作製したクラスターフォイルは、加熱により寿

命が著しく延びることが確認された。この値は、常温時のアリゾナ社製のストリッパフォイルに比べて、平均約10倍である。一方、レーザープラズマフォイルは、加熱によりほとんど変化がない。これは、テストサンプル数が少ないので、断言は出来ないが、膜の結晶構造の違いによるものと思われる。

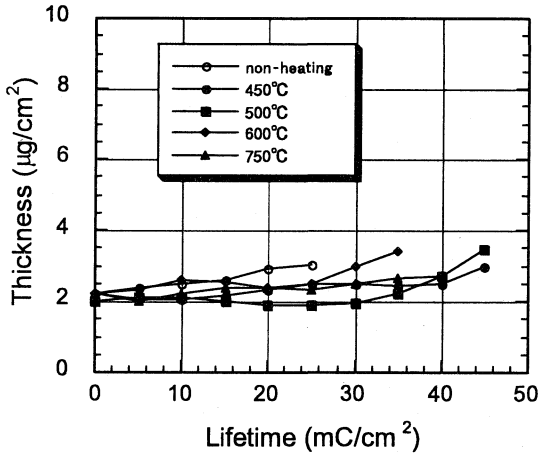


図-2 アリゾナフォイルの膜厚変化

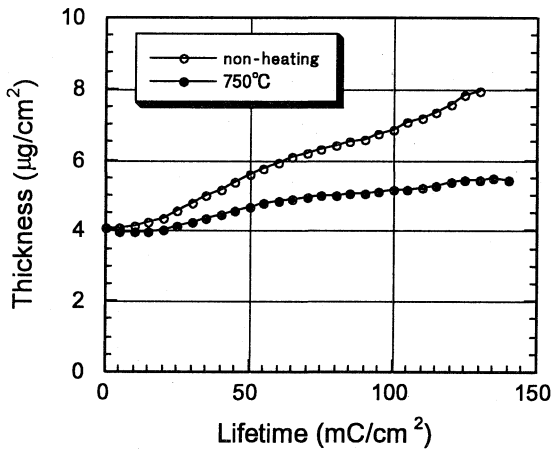


図-3 レーザープラズマフォイルの膜厚変化

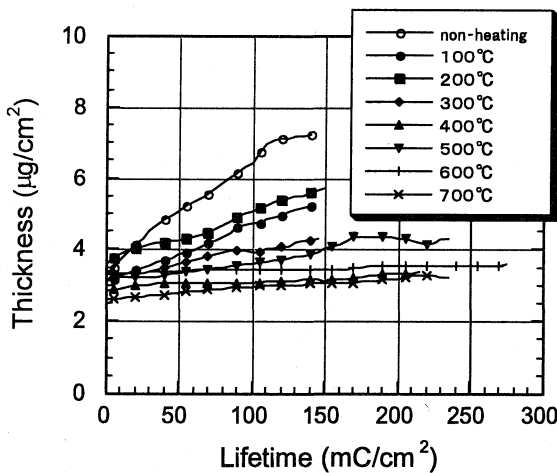


図-4 クラスタフォイルの膜厚変化

表1 クラスタフォイルの温度による build-up と寿命の変化

	平均膜厚 (μg/cm ²)	Build-up の増加量 (μg/cm ²)	膜厚に対する build-up 量の割合 (%)	平均寿命 (mC/cm ²)
非加熱	3.32	3.88	117	138.8
100°C	3.11	2.09	67	143.6
200°C	3.62	2.10	58	151.0
300°C	3.29	0.99	30	149.0
400°C	2.80	0.55	20	218.2
500°C	3.32	1.00	30	236.9
600°C	3.15	0.42	13	279.7
700°C	2.58	0.68	26	238.3

5. 成果、結論

Build-up 制御法の開発を目指した実験は、実験開始から2年間は build-up の制御を示す再現性の高いデータが得られなかった。しかし、加熱装置の性能以上の最大パワーで加熱したところビームの照射量と共に膜厚増加が見られない平坦に推移していく一つのデータが偶然得られた。この結果を基に、build-up の膜の加熱による制御が可能であることが確認され、様々な条件で測定が繰り返された。我々は、より、温度を上げ、正確なデータを得るために赤外線加熱軸が膜の中心になるようにアライメント調整を行った。これにより、最大750度までの加熱が可能となった。

その結果、炭素 build-up は約400°Cから抑制されはじめ、600°Cで build-up は完全に制御されることが高い再現性を持って確認できた。この実験から、驚くべきことに、クラスタフォイルでの寿命が build-up の制御によって、制御なしの膜に比べ約2倍を示した。これは、予想外の現象であった。この値は市販のアリゾナフォイルの10倍以上に相当する。また、レーザープラズマフォイルの結果より、膜の製法により build-up が寿命に与える影響が違うこともわかった。

今回の測定より1) build-up 制御の臨界温度(400°C)を見出した。2) 完全に build-up を制御できる温度(600°C)も見出した。この制御法を金のような重イオンビームのストリッパフォイルに用いれば、高透過電流で長時間安定にビームを供給できる。

また、この結果は加速器分野のみならず、原子、原子核物性分野への下地や標的薄膜への応用が可能でその意義は大きい。

参考文献

- [1] 武田泰弘他、Proceedings of Meetings on Technical Study at KEK, KEK proceedings 2001-3
- [2] I. Sugai et al., Besten 2001
- [3] 菅井勲他、平成11年度粒子線ガン治療加速器に関する共同研究報告書 放射線医学研究所
- [4] K.Shima, S.Ishii, T.Takahashi, I.Sugai, M.Oyaizu and T.Ishihara, Nucl. Instr. and Meth. B139(1998)451