

CARBON FOILS DEVELOPMENT FOR THE RIKEN RI-BEAM FACTORY

H. Hasebe, H. Ryuto, N. Fukunishi, M. Kase and Y. Yano
RIKEN (The Institute of Physical and Chemical Research)
2-1 Hirosawa, Wako, Saitama 351-0198, Japan

Abstract

To be used as charge strippers in the RIKEN RI-beam factory (RIBF), two kinds of long-lived carbon foils have been developed. One is small-sized foils with the thickness ranging from 0.02 to 0.1 mg/cm², which is used in the low energy section. The other is 100 mm diameter foils with the thickness ranging from 0.1 to 0.5 mg/cm² which will be used in the rotating foil device in the high energy section. Present status of the development on carbon foils for the RIBF is described.

理研RIビームファクトリーの為の炭素薄膜開発

1. はじめに

現在、理研加速器研究施設 (RARF) [1]ではイオンビームの荷電変換用として、カーボンの薄膜 (C-foil) を使用している。設置されている場所は重イオン線形加速器 (RILAC) 下流と AVF サイクロトロン (AVF) 下流の2カ所である。C-foilは0.02~0.1mg/cm²の厚みの物をイオンの種類とエネルギーに応じて選択し使用する。C-foilは14 mmの丸穴の開いたアルミニウムのホルダーに貼り付け最大40枚と20枚が入るフォイルチェンジャーに装着してコントロール室よりリモート操作で交換する。

当初市販品のC-foilを使用していたが、近年、ECRイオン源と加速器の性能向上により加速されるイオンビーム強度が増加し、C-foilの寿命は激減した。したがって加速中にC-foilを頻繁に交換することとなり安定なビーム供給がされなくなる事態が起こった。そこで1999年に高真空蒸着装置 (EBX-2000C by ULVAC) を導入し、自作による長寿命C-foilの開発をはじめ、市販品の100倍を越える長寿命C-foilを作ることになった [2]。このC-foilは2000年から荷電変換用として運転時に使用している。RIビームファクトリーでは、ウラン (U) の加速が予定されており、理研リングサイクロトロン (RRC) の下流に直径100mm、厚み0.1~0.5 mg/cm²の大面积C-foilを回転させる荷電変換装置が設置される [3]。そのためより厚く、大面积で長寿命なC-foilの研究開発が必要とされている。今回はその開発の状況を報告する。

2. C-foil制作

2.1 アーク放電法

アーク放電法によるC-foilの製作は、菅井らによって開発されたCADAD法 [4]で行う。EBX-2000Cの底面中央に2つのアーク放電蒸発源がセットされており、ACとDCで使い分けて使用している。

グラファイトのロッドを電極として取り付け、その間にアーク放電させて蒸着する。アーク放電の電流値 (I_d) は0~500 Aの範囲で可変である。DCのアーク放電蒸発源は0.06~0.1 mg/cm²厚の膜の制作時に使用する。この範囲の厚みのC-foilの制作においては、始めに剥離剤を基板に蒸着し、次にACアーク放電で蒸着、次にDCで蒸着、再びACで蒸着する。すなわちC-foilはAC/DC/ACと3層の積層構造となる。それ以下の薄いC-foilはACアーク放電蒸発源のみで1層の膜として制作する。アーク放電蒸発源の放電する角度 (θ_{arc}) は可変である。放電の方向がチャンパー底面と水平のときを $\theta_{arc}=0^\circ$ とし、 45° まで傾ける事が出来る。成膜時は水晶発信式膜厚計で膜厚をモニターしている。基板は最大直径5インチの物が4枚セット出来る。膜厚分布のばらつきを高めるため、基板の角度 (θ_{sub}) はチャンパー底面に対して $30 \sim 60^\circ$ ($\theta_{sub}=30 \sim 60^\circ$) の範囲で可変になっており、垂直軸の周りを回転させる。抵抗蒸発源はアーク放電蒸発源の両脇に位置し剥離剤 (NaCl, NiCl₂, LaCl₃) の蒸着に使用する。アーク放電法で作られるC-foilの厚みは0.01~0.1mg/cm²である。これ以上の厚みの物はピンホールや剥離が発生して制作が難しい。

2.2 マグネトロンスパッタ源

0.1 mg/cm²以上の厚みのC-foilを制作するためにマグネトロンスパッタ源を使用してEBX-2000Cで試験的にC-foilの制作を行っていた。0.2 mg/cm²の膜を制作することが出来たが、本来のEBX-2000Cの基板の位置では蒸発源から遠過ぎて蒸着が出来なかった。基板と蒸発源の距離を短くする為に、蒸発源のシャッターに基板を固定し蒸着した。その為、膜厚は不均一であった。また、プラズマ生成にガスを使用するため、クライオポンプの再生を頻繁に行う必要があるという問題もあり、専用の蒸着装置の導入が望まれた。2005年3月にマグネトロンスパッタ源を装着する真空蒸着装置 (MUE-ECO-M-R by ULVAC) を購入した。円柱状横置き

(内径約300mm)のチャンバーの下部中央にマグネトロンスパッタ源が位置する。スパッタ源には直径3インチのターゲット（グラファイト）が装着出来る。基板は膜厚分布向上のために電動で回転される。基板は直径最大5インチの物1枚を装着可能である。基板にはEBX-2000Cを使用して剥離剤をあらかじめ蒸着する。プラズマを発生させるためにArガスを使用する。プラズマの生成には1 KW (DC) ほどの電力を消費する。膜厚は水晶発信式の膜厚計で常時モニター出来る。

膜厚が0.1mg/cm²以上のC-foilの蒸着は基板にゆっくりと積層し異常放電などによる大きな粒子の衝突が少ないマグネトロンスパッタ源で行うのが最適と予想される。また、大面積C-foilを基板から剥がし貼り付けるのは大変難しい。

2.3 熱クラッキング法

アーク放電法で製作したC-foilに続くさらに長寿命のC-foilの開発を目指し、2004年6月に化学的蒸着(CVD)装置を導入した。メタンガス(CH₄)を熱クラッキングしてC-foilを制作する。蒸着槽は容積約10 ℓで、外周に張り巡らした銅パイプに通水し冷却する。チャンバーの中央にフィラメントを取り付ける銅の水冷ブロック電極があり、最大26 mm×76 mmの大きさのNi板を取り付けることが出来る。Ni板はDCで加熱される。Ni板の表面温度は蒸着槽の覗き窓から放射温度計を用いて測定する。CH₄ガスの熱クラッキングは200~10000Paの圧力では約1100℃の温度で起こる。フィラメント温度を1100~1200℃に保つとCH₄のCとHが分離しCがNi板表面に張り付く。蒸着には20~30分の時間を要する。図1は厚みの違う3種類のNi板を用いたときの、CH₄ガス圧力と生成されるC-foilの厚みの関係を示したグラフである。200~300 Pa以上で蒸着が始まる。厚さ0.05 mmのNi板を用いた場合は、ガス圧を増やしても膜厚はあまり増えない。0.08と0.1 mmのNi板を用いた時は10000 Paまでは膜厚はガス圧にほぼ比例し増加するが、それ以上のガス圧では増加が鈍る。生成が終わったらフィラメントの温度を充分冷まし、N₂ガスで大気圧にし、Ni板を取り出す。取り出したNi板を王水に浸す。Niは溶解しNi板から剥がれたカーボンホルダーに貼り付ける。生成した膜の厚さが0.1 mg/cm²以下であると、王水との化学反応で発生するガスにより膜は損傷を受けて壊れやすくなり、使用に適さない。図2に貼り付けたC-foilの写真を示す。左がアーク放電法で作られた物(0.1 mg/cm²)で黒い。右は熱クラッキングで作られた物(0.2 mg/cm²)で金属光沢がある。膜厚はCVDの前後にNi板の重さを電子天秤で計測し、生成したC-foilの面積で割ったものである。

3 . C-Foilライフタイム測定

低エネルギービームでのC-foilの寿命測定はRILACの旧入射器(500 kV静電加速器)の下流の専用のビームコースを用いて行う。ビームコースには

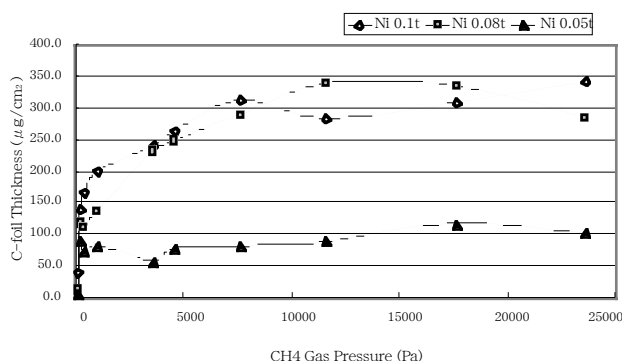


図1 CH₄ガス圧力と生成されるC-foilの厚み

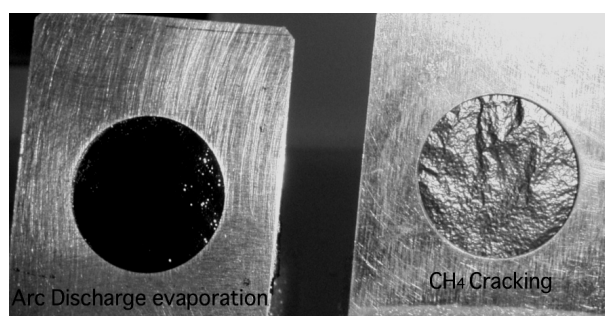


図2 ホルダーに貼り付けた製法の異なるC-foil

20枚のC-foilをセットする事ができる。ビームの調整は石英ガラス板(t=0.5 mm)上のビームの像の濃淡が無くなるように慎重に行う。膜が破れた事の判定は2台のTVカメラと通過したビームの量を監視して行う。

実際の使用条件に近い高エネルギービームを照射したC-foilの寿命はRILAC下流で荷電変換装置として実際に使用された実用時間から割り出す。一定の核種、エネルギー、量のビームを長時間当て続けると正確に計測出来ないで、サンプル数は少ない。ライフタイムの判定は低エネルギービームの場合と同様であるが、通過効率が悪くなって使用に適さなくなり、破れていないが交換となる物もある。この場合も寿命と判断する。

4 . 結果

表1は、8種類のグラファイト(東洋炭素社製)で制作した厚さ0.04 mg/cm²のC-foilのライフタイムと材料のグラファイトの特性と格子面間距離である。これらのC-foilはアーク放電法で制作した。蒸着の条件はI_d=300 A (AC), θ_{arc}=0°, θ_{sub}=30°である。照射したビームは32keV/nucleonの¹³⁶Xe⁹⁺で6.3 e μA、ビームサイズはスリットを用いて3×3mmの正方形である。比較の為にArizona製(CEF-40) [5]のライフタイムを基準としている。ライフタイムは各サンプル2枚以上に照射を行った結果の平均値である。また格子面間距離は粉末X線回析装置を用いて測定した。Arizona40の格子面間距離は薄膜から直接測定する事が出来た。IG-710がArizonaのC-

foilより120倍ライフタイムが長い結果となった。格子面間距離が小さい方がライフタイムは長くなる傾向があるようだ。ISO-880を除いて、グラファイトの格子面間距離と電気伝導度の値は相関がある様に見える。格子面間距離を測定するのは容易ではないので、アーク放電法で制作する場合のグラファイトの選定には電気伝導度の良い物を選ぶ事がライフタイムの長い物を作る近道と言えそうだ。

ライフタイムの一番長いIG-710と一番短いArizonaのC-foilをシリコン基板に貼り付けて粉末X線回析装置により結晶構造を測定した。図3はその結果である。どちらのC-foilからも結晶構造を示す際立ったピークが測定できずアモルファスなカーボンであることが解った。ArizonaのグラフにはSiのピークがあるがそれは基板からの物である。IG-710には小さいが、なだらかな傾斜のピークが2つある。アーク放電によってグラファイト構造が壊れ、なんらかの構造に変化したと想像される。IG-710のデータに現れた由来不明のピークが示す未知の構造がライフタイムを長くする働きをしている可能性があるだろう。

表2は高エネルギービーム照射テストの結果である。低エネルギーでテストした東洋炭素社製のグラファイトを用いて製作したC-foilの結果はまだ得られていない。結果を示したC-foilを製作するのに用いたグラファイトは、OT-5200N(S)（大和田カーボン工業社製）である。Arizona製(CEF-80)のC-foilと比較出来ていないデータも記載した。比較出来た物は50～100倍長寿命となっている。C-foilに照射したビームのサイズは典型的にはφ2～3mmである。

マグネトロンスパッタ源と熱クラッキング法で作られたC-foilのビーム照射テストの結果はまだ出ていない。近い将来行う予定である。

5. まとめ

制作したC-foilはアーク放電法では0.01～0.1mg/cm²、マグネトロンスパッタ源使用では0.1～0.2mg/cm²、熱クラッキング法では0.1～0.3mg/cm²の膜厚である。今後、実際に使用を計画している膜厚にはまだ到達出来ていない。大面積の物も完成させなければならない。課題は大きい。

参考文献

- [1] E. Ikezawa et al.: "Present Status of Accelerators in RIKEN Accelerator Research Facility" in this proceedings.
- [2] H. Hasebe et al.: Proc. The 17th Int. Conf. on Cyclotrons and Their Applications, Tokyo, 2004-10, in press.
- [3] H. Ryuto et al.: Proc. The 17th Int. Conf. on Cyclotrons and Their Applications, Tokyo, 2004-10, in press.
- [4] I. Sugai et al.: Nucl. Instr. and Meth. A 362, (1995) 70
- [5] ACF-Metals Arizona Carbon Foil Co. Inc., URL: <http://www.techexpo.com/firms/acf-metl.html>

表1 材料の特性とC-foilのライフタイム

	Bulk Density	Shore Hardness	Specific Resistance	Bending Strength	Compression strength	Relative life time	Distance of between graphite planes
	g/cm ³		μΩ m	Mpa	Mpa		
Arizona 40						1	(3.378)
ISO-880	1.95	92	15.0	114	217	49	3.364
SIC-120	1.75	65	14.6	43	98	51	3.380
IG-120	1.76	57	11.5	44	93	51	3.380
IG-100	1.68	45	12.6	31	59	56	3.372
IG-110	1.78	53	10.3	44	84	63	3.369
IG-510	1.90	61	8.8	52	110	68	3.364
IG-430	1.81	52	8.7	55	92	98	3.362
IG-710	1.82	58	10.4	51	105	121	3.367

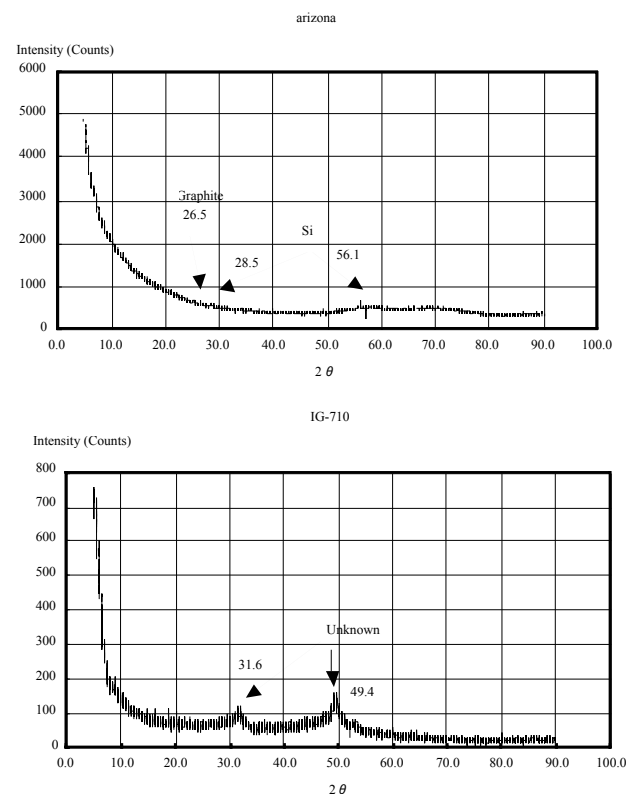


図3 粉末X線回析装置の測定結果

表2 C-foilのライフタイム（高エネルギー）

Ion	made by	Thickness	Beam Intensity	Beam Energy	life time
		(mg/cm ²)	(e μA)	(Mev/u)	(h)
⁴⁰ Ar ¹¹⁺	RIKEN	0.06	80	3.68	32.5
⁴⁰ Ar ¹¹⁺	RIKEN	0.08	80	3.68	16
⁴⁰ Ar ¹¹⁺	ARIZONA	0.08	80	3.68	0.283
⁵⁸ Fe ¹³⁺	RIKEN	0.08	5.5	3.62	72
⁸⁶ Kr ²⁰⁺	RIKEN	0.08	20	3.65	23
⁸⁶ Kr ²⁰⁺	ARIZONA	0.08	20	3.65	0.5
¹⁸¹ Ta ²⁰⁺	RIKEN	0.035	1	1.252	6
¹⁸¹ Ta ²⁰⁺	RIKEN	0.035	1.5	1.238	3
²⁰⁰ Hg ¹⁶⁺	RIKEN	0.035	1	0.93	2