

# CYRIC の負イオン加速における多層グラフェンのストリッパフォイルへの 適正評価

## EVALUATION OF SUITABILITY OF MULTILAYER GRAPHENE FOR STRIPPER FOIL IN CYRIC NEGATIVE ION ACCELERATION

米倉章平<sup>\*,A)</sup>, 伊藤正俊<sup>A)</sup>, 足立智<sup>A)</sup>, 服部幸平<sup>A)</sup>, 今間可奈子<sup>A)</sup>, 林拓夢<sup>A)</sup>, 細谷弦生<sup>A)</sup>,  
山崎峻平<sup>A)</sup>, 松田洋平<sup>B)</sup>, 高橋研<sup>C)</sup>, 高橋直人<sup>C)</sup>, 鈴木惇也<sup>C)</sup>, 本間隆之<sup>C)</sup>

Shohei Yonekura<sup>\*,A)</sup>, Masatoshi Itoh<sup>A)</sup>, Satoshi Adachi<sup>A)</sup>, Kohei Hattori<sup>A)</sup>, Kanako Konma<sup>A)</sup>,  
Hiromu Hayashi<sup>A)</sup>, Genki Hosoya<sup>A)</sup>, Shunpei Yamazaki<sup>A)</sup>, Yohei Matsuda<sup>B)</sup>, Ken Takahashi<sup>C)</sup>,  
Naoto Takahashi<sup>C)</sup>, Junya Suzuki<sup>C)</sup>, Takahiro Honma<sup>C)</sup>,

<sup>A)</sup> CYRIC, Tohoku Univ.

<sup>B)</sup> Konan Univ.

<sup>C)</sup> SHI Accelerator Service Ltd.

### Abstract

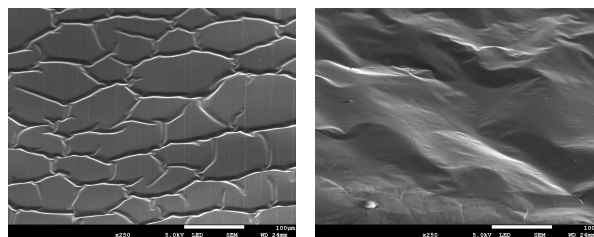
CYRIC is currently attempting to accelerate negative deuterium ions for the production of high-intensity neutron beams. The stripper foils to extract negative ion from the cyclotron expect to have a long lifetime, and reduce the number of replacement works. The multilayer graphene foil, manufactured by Kaneka Corporation, is reported to have thermal conductivity four times higher than that of copper, as well as high thermal stability and strength. In this study, multilayer graphene foils and evaporated carbon foils were used as stripper foils, and their thicknesses were measured before and after the use. The thickness of the foil was determined from the energy loss of the alpha particle due to the foil using an alpha-ray source. We report on the suitability of the multilayer graphene as a stripper foil by comparing the changes in thickness of multilayer graphene foils and carbon foils after negative ion irradiation.

### 1. はじめに

現在、CYRIC ではサイクロトロンでの大強度中性子ビーム生成に向けて大強度負重水素イオン加速を試みている。負イオンを正イオンとして引き出すためには荷電変換フォイルが使用される。荷電変換フォイルに求められる性能は、長寿命で厚さが均一でピンホールがないことが挙げられる。長寿命であるとフォイルの交換頻度を減らすことができる。厚さが均一でなくピンホールがあると、荷電変換後のビームに悪影響を及ぼす可能性がある。本研究では、株式会社カネカが製作した多層グラフェンフォイル (Multilayer Graphene Sheets, MLG) [1,2] を荷電変換フォイルとして負イオン加速で使用し、ビーム照射前と後の厚さを比較することでフォイルの寿命を評価した。比較対象として、蒸着生成した ACF フォイル (The Arizona Carbon Foil Co., Inc.) も負イオン加速に使用して、ビーム照射前と後の厚さを測定している。それぞれのビーム照射前のフォイルの SEM 画像を Fig. 1 に示す。株式会社カネカ製のグラフェンシートは厚さ  $37 \mu\text{m}$  のものが理研のウランビーム荷電変換に使われて長寿命を示している [3]。本研究では数十 MeV の負重水素イオンの荷電変換に適した薄いフォイル (およそ  $0.5 \mu\text{m}$ ) を使用した。

### 2. フォイルの厚み測定

三種混合アルファ線源 ( $^{148}\text{Gd}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{244}\text{Cm}$ ) とコーリメーター (直径  $2 \text{ mm}$ ) を用いることで、複数点



(a) ACF foil

(b) Graphene foil

Figure 1: SEM images of ACF foil and graphene foil.

についてアルファ線をフォイルに局所的に照射し、通過後のエネルギーをシリコン検出器で測定した。炭素にアルファ線が入射したときの電子阻止能は SRIM [4] を用いて計算した。エネルギー損失と電子阻止能からフォイルの厚みを推定した。実験のセットアップを Fig. 2 に示す。

Table 1: Thickness of ACF Foil and Graphene Foil Before and After Beam Irradiation

	Graphene foil	ACF foil
Beam irradiation (C)	0.998	0.5
Foil thickness		
Before irradiation ( $\mu\text{m}$ )	$0.526 \pm 0.012$	$0.965 \pm 0.009$
Foil thickness		
After irradiation ( $\mu\text{m}$ )	$0.514 \pm 0.013$	$0.935 \pm 0.015$

\* shohei.yonekura.t5@dc.tohoku.ac.jp

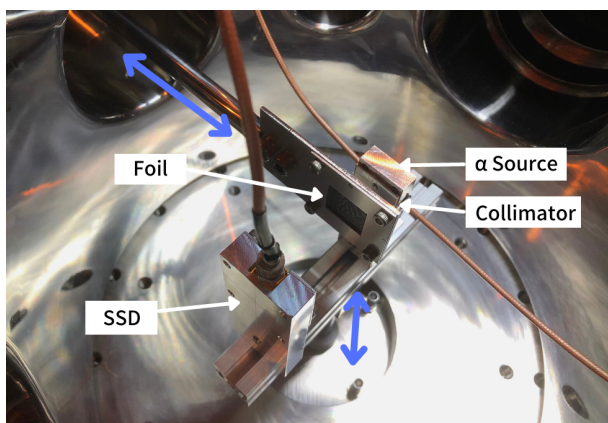


Figure 2: The experimental setup for foil thickness measurement.

### 2.1 実験結果とフォイルの寿命

フォイルに照射したビーム量と照射前と後のフォイルの厚さを Table 1 に示す。グラフェンフォイルの厚みの減少は 0.998 C で  $0.012 \pm 0.018 \mu\text{m}$ 、ACF フォイルの厚みの減少は 0.5 C で  $0.030 \pm 0.017 \mu\text{m}$  であった。

フォイルの厚さが指数関数的に減っていくと仮定し [5]、厚さ  $t(\mu\text{m}) = \text{初期厚さ}(\mu\text{m}) \times \exp(-\text{定数} \times \text{ビーム照射量}(C))$  とした。ACF フォイルと多層グラフェンフォイルの厚さはそれぞれ式 (1)、式 (2) に従うとして寿命の比較をした。

$$t = 0.965 \times \exp(-0.0632 \times C) \quad (1)$$

$$t = 0.526 \times \exp(-0.0231 \times C) \quad (2)$$

指数関数の肩の定数を比較すると、多層グラフェンの方が緩やかに厚さが減少していく。厚さが半分になるまでの照射量で比較すると、グラフェンが 30 C、ACF が 11 C のため、グラフェンの方がおよそ 2.7 倍寿命が長いと考えられる。

### 2.2 フォイル厚さ減少の要因考察

フォイルの厚さが減少した要因について考察する。フォイルの厚みの減少量から失われた炭素原子の個数を推定すると、 $0.030 \mu\text{m}$  減少した場合およそ  $0.135 \times 10^{19}$  個である。ビーム照射量が 0.5 C の時、電子は  $0.312 \times 10^{19}$  個フォイルを流れたことになる。負重水素イオンから電子を 2 個剥ぎ取るため、フォイルを通過した負重水素イオンの個数はこの半分だと考えられる。負重水素イオン 12.8 MeV での散乱断面積  $658 \text{ mb}$  [6] を用いると、負重水素イオンが衝突した時に散乱した炭素原子の数はおよそ  $0.116 \times 10^{14}$  個である。負重水素イオン 25 MeV の時、束縛された電子一つのエネルギーは 6.82 keV である。この時の炭素との散乱断面積は小さく [7]、電子がフォイルに当たって散乱する炭素原子の個数は少ないと考えられる。よって散乱で失われる割合は全体の個数と比較すると少ないため、散乱以外の要因が支配的だ

と考えられる。別の要因として、フォイルの温度上昇による影響が考えられる。ACF の熱伝導率は  $0.2 - 2.2 \text{ [W/m K]}$  [8] であるのに対し、多層グラフェンの熱伝導率は  $1900 - 2000 \text{ [W/m K]}$  [1] である。熱伝導率の高い多層グラフェンフォイルでは ACF フォイルに比べてビームスポットのみに熱が集中しづらくなることが影響していると考えられる。

### 3. ピンホール測定

3 種混合線源よりも放射能の高い  $^{241}\text{Am}$  線源を用いてコリメーターなしでフォイルにアルファ線を照射し、通過後のエネルギーをシリコン検出器で測定した。ピンホールがある場合、アルファ線がフォイルを通過せずに検出器に入るため、エネルギー損失が低い位置にイベントが見える。フォイルがない状態のヒストグラムとビーム照射前と後の ACF フォイルのヒストグラムを Fig. 3 に示す。

ビーム照射前と後の ACF フォイルのヒストグラム

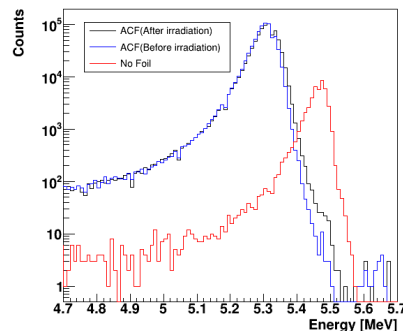


Figure 3: Counts of alpha rays on ACF foils before and after beam irradiation. The red histogram is no foil situation. The blue and black histograms passed through ACF foils.

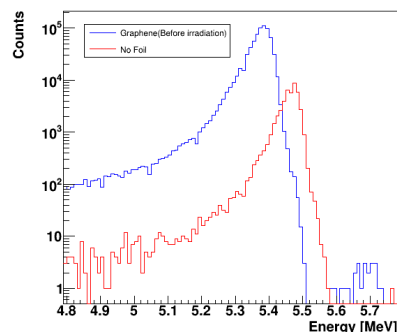


Figure 4: Counts of alpha rays on graphene foils before and after beam irradiation. The red histogram is no foil situation. The blue histograms passed through graphene foils.

を比較すると、ビーム照射後のヒストグラムでフォイルなしでピークのある 5.4~5.5 MeV 付近にカウント数が増えていることが分かる。これはビームが照射されることによってフォイルにピンホールや厚さが薄いところが増えたからだと考えられる。

フォイルがない状態のヒストグラムとビーム照射前の多層グラフェンフォイルのヒストグラムを Fig. 4 に示す。多層グラフェンフォイルは ACF フォイルのおよそ半分の厚さである。そのためそもそもエネルギー損失が小さく、フォイルありとフォイルなしのピークの位置が近いいためピンホールの有無は確認できなかった。

#### 4. まとめ

本研究では ACF フォイルと多層グラフェンフォイルについてサイクロトロン負イオン加速の使用前と使用後においてフォイルの厚さを測定した。測定はアルファ線のフォイルによるエネルギー損失によって厚さの変化を求めた。結果、多層グラフェンの方が照射したビーム量あたりの厚さの減少が、ACF フォイルと比較して少ないことがわかった。厚さがビームの照射量に対して指数関数的に減少すると仮定すると、厚さが半分になるまでの時間は、多層グラフェンフォイルの方が ACF フォイルよりも約 3 倍長いことがわかった。フォイルの厚みが減少するのは散乱よりは熱の影響が考えられ、多層グラフェンの高い熱伝導率がフォイルの長寿命化に寄与していると考えられる。

#### 参考文献

- [1] M. Murakami, A. Tatami, M. Tachibana, "Fabrication of high quality and large area graphite thin films by pyrolysis and graphitization of polyimides", *Carbon* 145 (2019) 23-30.
- [2] A. Tatami *et al.*, "Preparation of multilayer graphene sheets and their applications for particle accelerators", *AIP Conference Proceedings* 1962,030005 (2018).
- [3] H. Hasebe *et al.*, "Development of a high-density highly oriented graphite stripper", *EPJ Web of Conferences* 229, 01004 (2020).
- [4] J.F. Ziegler *et al.*, "SRIM - The stopping and range of ions in matter (2010)", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 268 (2010) 1818 - 1823.
- [5] Y. Takeda *et al.*, "Measurement of lifetimes of thin carbon stripper foils produced by ion-beam sputtering", *Vacuum* 84 (2010) 1448 - 1451.
- [6] A. Budzanowski *et al.*, "Elastic scattering and total reaction cross-sections for the interaction of 12.8 MeV deuterons with  $^{12}\text{C}$ ,  $^{58}\text{Ni}$ ,  $^{60}\text{Ni}$  and  $^{209}\text{Bi}$  nuclei", *Nuclear Physics* 49 (1963) 144-160.
- [7] J. Zubeltzu *et al.*, "Knock-on damage in bilayer graphene: indications for a catalytic pathway", *Physical Review B* 88(24) (September 2013).
- [8] A. J. Bullen *et al.*, "Thermal conductivity of amorphous carbon thin films", *Journal of Applied Physics* 88, 6317 (2000).