

# 理研 28GHz 超伝導 ECR イオン源の高温オーブンをを用いた鉛ビーム生成 LEAD-ION BEAM PRODUCTION USING HIGH TEMPERATURE OVEN OF RIKEN 28-GHz SUPERCONDUCTING ELECTRON CYCLOTRON RESONANCE ION SOURCE

長友傑 <sup>\*,A)</sup>, 日暮祥英 <sup>A)</sup>, 大西純一 <sup>A)</sup> 上垣外修一 <sup>A)</sup>

Takashi Nagatomo <sup>\*,A)</sup>, Yoshihide Higurashi <sup>A)</sup>, Jun-ichi Ohnishi <sup>A)</sup>, and Osamu Kamigaito <sup>A)</sup>

<sup>A)</sup> RIKEN Nishina Center

## Abstract

The development of a lead (Pb) ion beam was initiated because one of the next research project is to study nuclear structure in the heavier mass number region than currently studied at the RIKEN Nishina Center. In order to evaporate a solid-state sample with high melting point such as uranium oxide and vanadium in an ion source plasma chamber, a high temperature oven (HTO) with a tungsten crucible that was able to be heated up to 2000 °C was already developed. On the other hand, the melting point of Pb is much lower than that of these materials, which raised concerns about the ability to control Pb evaporation amount using HTO. Therefore, we prepared a test bench to investigate the controllability of Pb evaporation using HTO and measured the correlation between the heating power applied on the crucible containing the Pb powder and the amount of vapor from the crucible. Furthermore, the vapor was actually generated from the crucible of HTO installed in the superconducting ECR ion source (R28G-K), we have successfully extracted the Pb ion beams with several charge states distributed around  $Q = 25+$ . In near future, an investigation of the optimum ion source parameters for the stable supply of the high-intensity  $Pb^{31+}$  beam will be initiated.

## 1. はじめに

理研 RI ビームファクトリー (RIBF) [1] の将来の主要研究テーマとして、質量数のより大きな領域の不安定核構造の研究が計画されており、その中で鉛近傍の不安定核が注目される研究テーマのひとつである。現在、理研仁科センター RIBF で行われている比較的重い不安定核構造の研究では、超伝導サイクロトロン SRC で加速したウランビームをベリリウム標的に照射し、二次ビームとして質量数  $A \sim 100$  程度の不安定核種を生成・供給している。ウランビームと標的との反応が核分裂反応が主要な反応であるため、質量数がウランの半分程度の不安定核の生成に非常に適したビームといえる一方、鉛近傍の質量数の大きな不安定核の生成には適さない。そこで、我々は、核分裂を起こさず、且つ、大きな質量をもつ一次イオンビームとして、鉛の多価イオンビームの開発を開始した。

常温で金属固体である鉛のイオンビーム化するには、鉛を一度蒸発させ、イオン源内のプラズマに供給しなければならない。理研 RIBF では、酸化ウランやバナジウムの高融点物質をイオンビーム化するために、イオン源内部で  $\sim 2000$  °C まで加熱できる高温オーブン (High Temperature Oven HTO) を既に開発し [2]、それら大強度ビームを安定に供給している。高融点物質の蒸発器として開発された HTO を用いて、融点が低い鉛 (327 °C) を安定に長期間イオンビーム化できるかが本研究の目的である。第一段階として、テストベンチを整備し、金属鉛の粉末を HTO で強熱し鉛蒸気の発生試験を行うとともに、実際にイオン源中で鉛蒸気を発生させ、鉛イオンビーム生成試験をおこなったので、その結果を報告する。

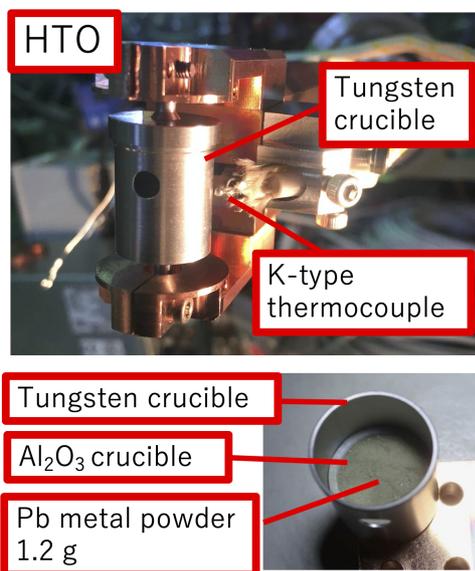


Figure 1: A crucible used in the HTO. K-type thermocouple was used to measure the temperature. Approximately 1.2 grams of Pb metal powder was contained in a ceramic crucible made of  $Al_2O_3$  and the sample and the tungsten crucible were electrically insulated.

## 2. 高温オーブン HTO

高温オーブン HTO は、酸化ウランやバナジウムなどの高融点物質をイオン源内で蒸発させる目的で開発された [2]。Figure 1 に示されるように、HTO で使用されるタングステン製の坩堝は、内直径 14 mm、高さ 20 mm、厚さ 0.38 mm の薄肉の円筒の形状である。坩堝内側底面から 10 mm の位置に、直径 4 mm の蒸気噴出口が側面に設けられている。バナジウムやウランビー

\* nagatomo@riken.jp

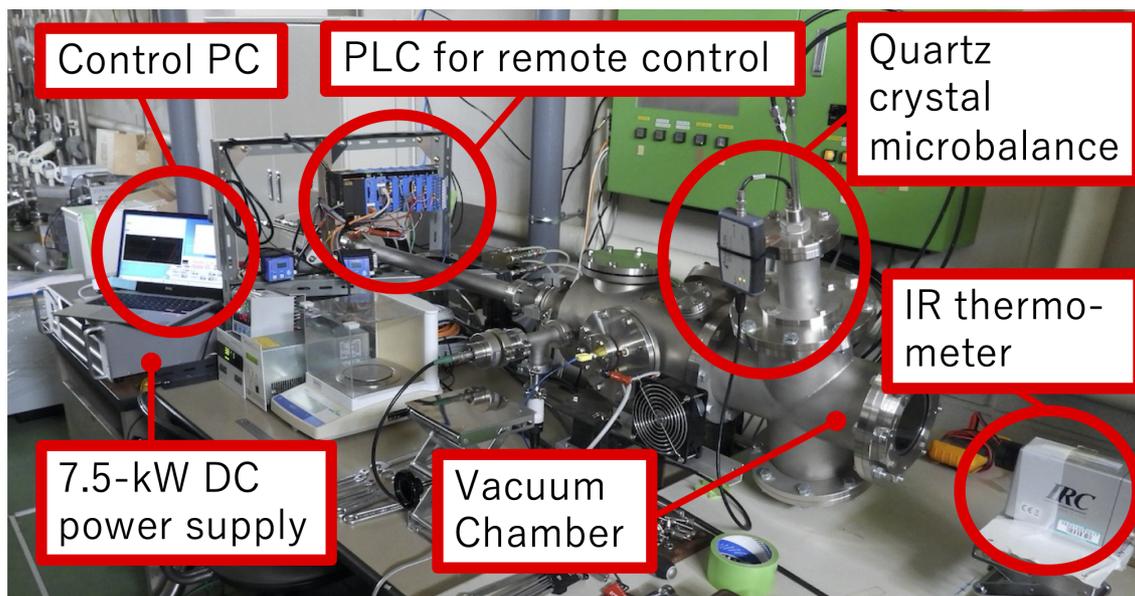


Figure 2: Test bench for the Pb evaporation using the HTO.

ムの生成の際には、このタングステン坩堝に流される 600-700 A の大電流で生じるジュール熱によって、内部に仕込んだ固体試料を強熱し、安定に蒸発させることに成功している。一方、CERNにおいて、この HTO より遥かに低電力 ( $\leq 20$  W) のオープンを用いて鉛ビームの供給しているが [3]、現在、理研 RIBF ではこの低電力オープンを使用していない。現行の HTO を鉛ビームに生成に利用可能ならば、その低電力導入のための開発コストと開発時間を抑えることができ、その上、ビーム切替え毎にオープンシステムを入れ替える必要がなくなるため、イオン源準備の時間を大幅に短縮できる利点がある。そこで、我々は、ウランやバナジウムの多価イオンビーム生成で実績のある HTO を用いた鉛ビーム開発を開始した。

### 3. テストベンチにおけるオフライン試験

HTO は、先述したように高融点物質の蒸発用に開発されたため、比較的低温で蒸気化する鉛の蒸発量の制御性に懸念があった。そこで、Fig. 2 に示すテストベンチを整備し、HTO を用いた鉛蒸発量制御試験を行った。テストベンチは、長期間の試験を行えるよう PLC によって制御された。オープン加熱用の大容量電源の遠隔制御を行いながら、その電流・電圧値、後述する真空度、坩堝の温度測定値や膜圧計 (QCM) の測定値等、必要な全てのデータは、加速器施設のストレージサーバーに時系列で保存された。Figure 2 の真空チャンバー内に、タングステンの坩堝 (Fig. 1) を設置した。Figure 1 の下図に示すように、タングステン坩堝と金属鉛とを電気的に絶縁するためにアルミナ製の坩堝を使用した。アルミナ坩堝の中に、約 1.2 グラムの鉛の粉末を準備した。7.5 kW の直流電源 (松定プレジジョン社製 PR10-750) を用い、高真空中 ( $10^{-5}$ - $10^{-4}$  Pa) で坩堝を加熱し、金属鉛の粉末を蒸発させた。坩堝の発熱量 (加熱電力  $P_{\text{HTO}}$ ) を一定に制御し、坩堝の温度一定に維

持した。水晶膜厚計 (QCM, Inficon 社製 SMD-2) の水晶振動子上に堆積する鉛の重量をモニターすることで、坩堝の温度を維持している間、一定の割合で鉛が蒸発していることを確認した。十分に鉛試料を蒸発させた後、坩堝を真空チャンバーから取り出し坩堝内の鉛の残量を秤量することで、鉛試料の単位時間あたりの蒸発量の坩堝の温度依存性を測定した。

真空チャンバーに設けられた人工石英製のビューポートを通して、赤外温度計を用いた坩堝の温度測定を試みた。今回使用した赤外温度計 (チノー社製 IR-CA S3CS) の温度測定範囲は、600 - 3000 °C である。今回の測定において、坩堝が赤熱する前に鉛イオンビームを生成するために十分と考えられる蒸発量 (10 mg/h 以下) に達し、この赤外温度計の測定範囲外であった。そこで、K 型熱電対 (Fig. 1) 使用し温度の測定を試みた。熱電対の測定端を坩堝にしっかりと接触・固定するために、太めの熱電対 (AWG20) を選定した。しかし、Fig. 1 に示されるように、熱電対を固定しているアルミ製のブロックが水冷の銅ブロックに固定されているため、これらの温度差が大きくなってしまい、この太い熱電対自体の熱伝導によって熱が逃げ坩堝の温度が正確に測れない (低く測定される) ことが懸念された。このため、坩堝の温度は参考値とし、タングステン坩堝での加熱電力  $P_{\text{HTO}}$  を蒸発量を制御するための指標とした。

Figure 3 は、テストベンチで得られた鉛金属の蒸発量の加熱電力  $P_{\text{HTO}}$  依存性である。Figure 3 から、加熱電力が 165 W 付近から金属鉛の蒸発が始まり、 $P_{\text{HTO}}$  に対して指数関数的に蒸発量が増加し、 $P_{\text{HTO}} = 570$  W で蒸発量が約 11 mg/h に達することがわかった。これまでに行った HTO を用いた金属イオンビーム生成の経験から、10 mg/h 以下の蒸発量で、原子核研究にとって十分な強度のイオンビームを供給できると考えられる。鉛蒸気が急増する加熱電力  $P_{\text{HTO}}$  の範囲 (165 - 194 W) において、熱電対で測定した温度は、484 °C から 569 °C

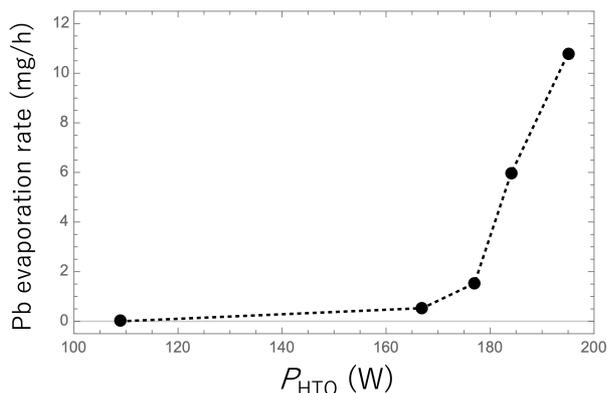


Figure 3: Pb evaporation rate in unit of mg/h as a function of the crucible heating power  $P_{HTO}$ .

と測定されたが、先述したように熱電対自体の伝熱により局所的な温度低下が生ずる可能性を否定できず、実際の鉛の温度に比べ低めに測定されている可能性がある。上記  $P_{HTO}$  の範囲における電流設定値（電圧設定値）の範囲は、464 - 476 A (1.230 V-1.300 V) であり、坩堝加熱用電源 PR10-750 の設定精度と安定度を考慮したところ、鉛の蒸発量を十分に制御可能であることがわかった。

#### 4. RILAC イオン源 R28G-K による鉛イオンビーム生成試験

理研仁科センターの理研重イオンリニアック (RILAC) [4,5] の 28 GHz 超伝導 ECR イオン源 (R28G-K) [6] を用いて、HTO による鉛ビームの生成試験を行った。本研究におけるミラー磁場は、13 価バナジウムイオンビームを供給する際に使用するミラー磁場と同じ設定とした [6]。プラズマを安定に維持するためのサポートガスとして  $O_2$  を使用し、真空度が  $\sim 3 \times 10^{-6}$  Pa となるように調整した。0.5 kW の 18 GHz マイクロ波と 1.5 kW の 28 GHz マイクロ波をプラズマチェンバーに導入し、ECR を介してプラズマを加熱した。電氣的にフローティングされたプラズマチェンバーには、イオンビーム引出し電圧として 10.00 kV の高電圧が印加され、その高電圧電源の供給するドレイン電流は約 3.0 mA であり、通常ビーム供給時と同じ程度であった。これらイオン源パラメータは、HTO から発生した蒸気が鉛であることを確認するために使用したパラメータであり、鉛ビーム加速のために最適化されたパラメータではない。

R28G-K より引き出されたイオンビームは、イオン源下流に設置された分析磁石によって質量電荷比  $M/Q$  で分析され、その結果を Fig. 4 に示す。Figure 4 の上下図は、それぞれ、加熱電力  $P_{HTO}$  が 75 W と 125 W の時に得られたスペクトルである。本研究で使用した鉛試料は濃縮されていない天然の試料だったため、主要な同位体として  $^{206}\text{Pb}$ ,  $^{207}\text{Pb}$ ,  $^{208}\text{Pb}$  が、それぞれ、24.1%, 22.1%, 52.4% の比率で存在する。現状の分析電磁石はこれら近接した同位体を分離する能力はなかった。これら同位体に対し、電荷が 16+ から 34+ のときの  $M/Q$

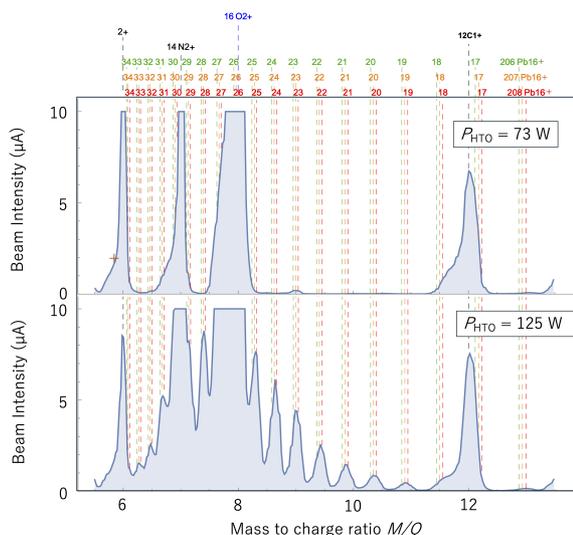


Figure 4:  $M/Q$  spectra obtained with the oven heating power  $P_{HTO}$  of 73 W (top) and 125 W (bottom).

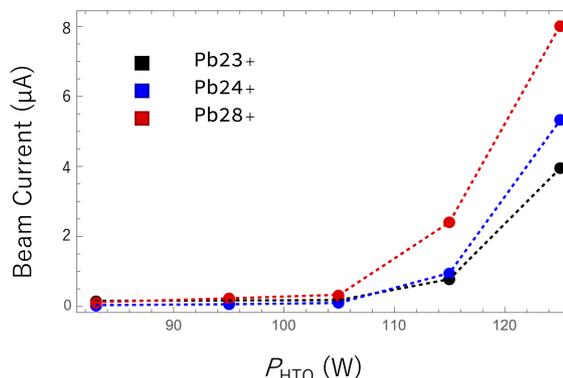


Figure 5: Obtained intensities of the Pb ion beams with the charge states of 23+, 24+, and 28+ as a function of the crucible heating power  $P_{HTO}$ .

を Fig. 4 中の縦の破線で示した。鉛とサポートガスの O イオン以外に、C や N イオンが検出されているが、HTO を交換する作業の際のエタノール洗浄や大気などがプラズマチェンバー内に残留しているために生じたと考えられる。Figure 4 に示すように、 $P_{HTO} = 75$  W では観測されなかった鉛のピークが、 $P_{HTO} = 125$  W の時に明らかに現れた。

価数 23+, 24+, 28+ の鉛イオンビーム強度（主要 3 同位体のビーム強度の和）の加熱電力  $P_{HTO}$  依存性を Fig. 5 に示す。Figure 5 から、加熱電力  $P_{HTO} = 110$  W 付近から全ての価数においてビーム強度が増加し始めている。これらの一連の測定に要した時間は約 4 時間で、その際に消費した鉛試料の重量は 1-2 mg であったため、蒸発量は 0.5 mg/h 以下と見積られる。テストベンチでの結果 (Fig. 3) と比較をすると、蒸発量やビーム強度が急激に立ち上がり始める加熱電力  $P_{HTO}$  は 15 W 程度なので、イオン源実機で観測された立ち上がりの始める加熱電力が約 50 W ほど低いように見える。こ

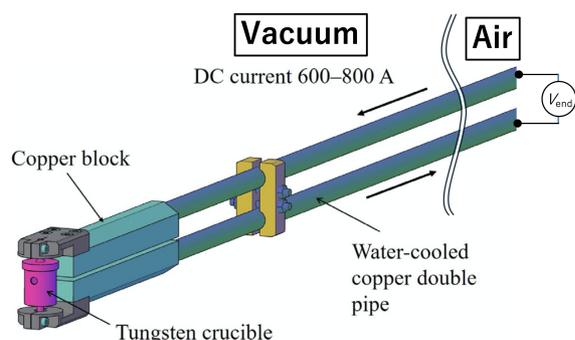


Figure 6: Schematic of the crucible and water-cooled copper pipes of HTO. To estimate the heating power  $P_{\text{HTO}}$ , the voltage between the the air-side ends of the copper pipes  $V_{\text{end}}$  was measured.

これは、加熱電力  $P_{\text{HTO}}$  の導出の際に坩堝の両端の電圧を直接測定していないことによる誤差と考えられる。本研究では、Fig. 6 に示すように、水冷された銅パイプの大気側の両端の電圧  $V_{\text{end}}$  を測定し、 $P_{\text{HTO}}$  を推定した。その2本の銅パイプの抵抗値は和は事前に測定されており（典型値は2.0 mΩ）、電源から出力される電流値と、測定された電圧  $V_{\text{end}}$  からそれらパイプで生じる電圧降下を差し引くことで得られる坩堝における電圧降下から、 $P_{\text{HTO}}$  を推定できると考えていた。しかし、坩堝と銅ブロックへの固定の際のトルクを管理していなかったことや、数テスラのミラー磁場と加熱のための大電流によるローレンツ力の影響により、坩堝と銅ブロック間での接触抵抗の違い等が生じる可能性があり、テストベンチとイオン源実機とで推定された加熱電力  $P_{\text{HTO}}$  に違いが生じたと考えられる。このように、加熱電力  $P_{\text{HTO}}$  の推定方法に改善の余地は残っているが、Fig. 4 の  $M/Q$  スペクトルと Fig. 5 に示される加熱電力  $P_{\text{HTO}}$  の増加に伴う鉛ビーム強度の急激な増加から、HTO の坩堝から発生する蒸気は、蒸発した鉛試料であることが確認できた。

## 5. まとめと今後の展開

理研 RIBF での次期計画遂行のために、ウランビームやバナジウムビーム生成で実績のある高温オープン HTO を用いて鉛ビームの開発を行った。鉛はウランやバナジウムと比較して融点がかなり低いために、HTO を用いて蒸発量を制御できるか懸念された。テストベンチを整備し、粉末状の金属鉛を仕込んだ HTO 坩堝を、高真空中において、大電流の通電によって加熱し、蒸発量の加熱電力  $P_{\text{HTO}}$  依存性を調べた。 $P_{\text{HTO}}$  が約 165 W の時に鉛が蒸発し始め、200 W 弱で 10 mg/h 程度の蒸発量となることがわかった。この蒸発量の  $P_{\text{HTO}}$  依存

性と加熱電源の仕様と比較して、十分に制御可能であることがわかった。次に、RILAC の超伝導 ECR イオン源（R28G-K）内に酸素ガスで発生させた ECR プラズマとともに、R28G-K 内部に設置された HTO を用いて鉛蒸気を発生させた。10.00 kV の電圧によって引き出されたイオンビームを分析電磁石で分析した結果、 $P_{\text{HTO}} = 125 \text{ W}$  の時に、鉛のピークを示す  $M/Q$  スペクトルを得ることができた。ある個数の鉛のビーム強度を加熱電力  $P_{\text{HTO}}$  の関数で表したところ、 $P_{\text{HTO}}$  が増加するほど、鉛イオンビームの強度が急激に増加する傾向が観測された。テストベンチで得られた蒸発量の  $P_{\text{HTO}}$  依存性と類似した傾向を示した。以上の結果から、HTO を用いて鉛ビームを生成・制御することが可能だということが確認された。

現在計画している荷電変換リング [7] を用いた加速方式では、鉛ビームの個数は 31 個が最適とされている。今後、31 個の鉛ビームの強度を最大化し、且つ鉛試料の消費量をできるだけ抑えられるイオン源のパラメータ（ミラー磁場、RF パワー、サポートガス）の最適値の調査を開始する。また、坩堝の両端の電圧を直接測定できるように HTO のシステムを改良し、試料の蒸発量の制御性を向上させる計画である。

## 参考文献

- [1] H. Okuno *et al.*, “Progress of RIBF accelerators”, *Prog. Theor. Exp. Phys.* p. 03C002 2012.  
doi:10.1093/ptep/pts046
- [2] J. Ohnishi *et al.*, “Practical use of high-temperature oven for 28 GHz superconducting ECR ion source at RIKEN”, *The 23th Int. Workshop on ECR Ion Sources (ECRIS2018)*, Catania, Italy, Sept. 2018, pp. 180-184.  
doi:10.18429/JACoW-ECRIS2018-WEB4
- [3] T. Kövener *et al.*, “Experiments to improve the performance of the GTS-LHC ECR ion source”, *J. Phys.: Conf. Ser.*, vol. 2244, p. 012020, 2022.  
doi:10.1088/1742-6596/2244/1/012020
- [4] M. Odera *et al.*, “Variable frequency heavy-ion linac, RILAC: I. Design, construction and operation of its accelerating structure”, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* vol. 227 pp. 187-195, 1984. doi:10.1016/0168-9002(84)90121-9
- [5] E. Ikezawa *et al.*, “Present status of RILAC”, *Proc. the 16th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan (PASJ2019)*, Kyoto, Japan, Jul.-Aug. 2019, pp. 1263-1265.
- [6] T. Nagatomo *et al.*, “High intensity vanadium beam for synthesis of new superheavy elements with well-controlled emittance by using “slit triplet””, *Rev. Sci. Instrum.* vol. 91, p. 023318 2020.
- [7] H. Imao *et al.*, “Charge stripper ring”, *Proc. the 13th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan (PASJ2016)*, Chiba, Japan, Aug. 2016, pp. 56-60.