

## 高速重イオンビームのためのガス荷電変換装置の開発

### DEVELOPMENT OF GAS CHARGE STRIPPER FOR INTENSE HEAVY ION BEAM

今尾浩士<sup>#, A)</sup>, 奥野広樹<sup>A)</sup>, 久保木浩功<sup>A)</sup>

Hiroshi Imao<sup>#, A)</sup>, Hiroki Okuno<sup>A)</sup>, Hironori Kuboki<sup>A)</sup>

<sup>A)</sup> RIKEN Nishina Center for Accelerator-Based Science, Saitama, Japan

#### Abstract

The RIKEN RI beam factory pursues powerful and energetic very-heavy-ion beams such as U and Xe to produce a thousand of new isotopes. The charge stripper in the intermediate energy region around 10 MeV/u is a primary bottleneck for the acceleration because of the lifetime problem of solid-state strippers. Our group has been developed the new lifetime-free charge stripping techniques using thick gases for high-intensity heavy ions. First, we obtained some fundamental data for charge stripper with some gas species and found out the usefulness of the "low-Z" gas stripper which can obtain higher charge state equilibrium. We also developed the actual stripper using helium gas with some breakthroughs in huge differential pumping technology. The helium gas stripper was successfully operated in user runs with  $U^{35+}$  beams more than 1  $\mu A$  injected at 11 MeV/u. The stripper, which removed the primary bottleneck in the high-intensity uranium acceleration, greatly contributed the tenfold increase of the average output intensity of the uranium beams from the previous year.

#### 1. はじめに

重イオン加速における特徴的な自由度の1つとして加速価数の自由度がある。価数はイオン源だけでなく、加速途中においても、「荷電ストリッパー」によりコントロールする事が出来て、その性能は多段式重イオン加速器における「加速ストラテジー」を決定付ける。また荷電ストリッパーは、加速途中にビームと多量の物質が触れる唯一の場所であり、その耐久性・品質はビームの「エミッタンス」に直結する。

理研 RI ビームファクトリー (RIBF) [1]を初めとして、近年の大強度重イオン加速器における問題、とりわけウラン・Xe等の重元素イオンビーム大強度化における原理的な問題のいくつかは、この小さな基幹装置、荷電ストリッパーに集中しており、その研究開発は加速ビームの量と質を決める大きな鍵となっている。我々のグループでは特に大強度重元素イオンビーム加速の新要素技術として、厚いガスを用いた荷電ストリッパーの開発を行って来た。

#### 2. RIBFでの荷電変換における問題点

RIBFにおける2011年以前の $^{238}U$ ビーム、及び中重元素イオンの代表として $^{48}Ca$ ビームの加速スキームを図1に示す。いずれのイオンについても荷電変換は2回行われており、炭素膜を荷電ストリッパーとして用いてきた。

ウラン加速についてみると、28GHz-ECRイオン源[2]を含むRILAC2[3]から生成、加速された $^{238}U^{35+}$ ビームを理研リングサイクロトロン(RRC)で11 MeV/uまで加速後、 $\sim 0.3 \text{ mg/cm}^2$ の固定型炭素膜[4]、もしくは $\sim 0.35 \text{ mg/cm}^2$ の回転型CNT膜(第1ストリッパー)[5]を用いて $^{238}U^{71+}$ へ変換する。それを周波数固定サイクロトロン(fRC)で51 MeV/uまで加速し、 $17 \text{ mg/cm}^2$ の炭素膜(第2ストリッパー)で $86+$ へと荷電変換後、後段の中間段リングサイク

ロトロン(IRC), 超伝導リングサイクロトロン(SRC)へと入射される。最終エネルギー345 MeV/uまで加速後、超伝導RIビーム生成分離装置BigRipsへと送られる。イオン種に依らず1  $\mu A$ の強度でBigRipsへ送る事が加速器の目標である。

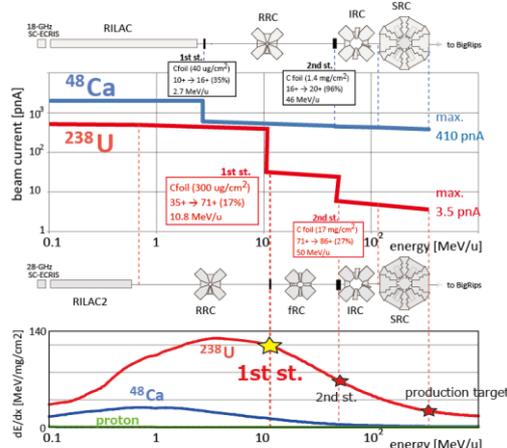


図1 : RIBFにおけるウランの加速スキーム。

2011年に達成された最大ビーム強度でのエネルギー依存性も図1に示した。ウラン第1ストリッパーとしては回転型CNT膜が用いられた。比較的大強度ビームが得られている $^{48}Ca$ ビームに比べ、イオン源強度の違いはあるが、 $^{238}U$ ビーム強度は加速と共に大幅に減少している事が分かる。これは主に荷電変換の難しさが原因である。ウランのような重元素イオンは内殻電子の束縛エネルギーが大きいため、一般に電荷質量比  $q/A$  の値を上げるのが困難であり、価数を上げるためにはエネルギーを十分に上げてから荷電変換する必要がある。軽いイオンの荷電変換に比べて荷電変換効率は下がり、また必然的に膜厚が厚くなる。ビームのエネルギー損失は増加

し、エミッタンスグロースを招く。

また、最も深刻な問題はウランビームによるダメージであり、炭素膜の劣化、破損は実効的な変換効率、照射時間やビーム品質減少の原因となる。特に第1ストリッパーで大きな問題となっていて、強度の上限を決めるボトルネックであった。トータルの熱負荷、パワーロスという意味では生成標的が最大だが、図1下段に示すように第1ストリッパーで最大になるのは単位長エネルギー損失  $dE/dx$  である。ウランの  $dE/dx$  は特に第1ストリッパー入射エネルギー近傍で大きく、我々の入射目標強度  $10 \mu A$  は、 $dE/dx$  でノーマライズすれば、例えば  $400 \text{ MeV}$ 、 $500 \text{ mA}$  の陽子ビームに相当する。更に局所的なエネルギー損失によるサーマルスパイクと付随するイオンハンマリング等の非線形なダメージも報告されており[6]、状況はより深刻である。

ウランの第1ストリッパーで固体を使用する限り、 $1 \mu m$  程度以下の薄膜を使用せざるを得ず、脆弱性、不均一性との戦いで、熱伝導も期待できない。実際、ウラン照射における第1ストリッパーでのダメージは深刻で固定型の炭素膜では  $20 \text{ pA}$  程度の照射強度においても使用時間は半日程度であった[7]。2011年には炭素膜の応用として、CNT ベースの面積炭素膜を回転膜として使用し、実効的な面積を増やして、ダメージを散逸させるといった取り組みが成果を上げた[5]。使用可能時間は飛躍的に上がり、 $250 \text{ pA}$  以上の照射強度においても3-5日の使用が可能となった。しかし 1)膜交換時の加速器調整に伴うダウンタイム、2)膜の経時劣化や部分破損による実効変換効率の低下、3)膜厚の不均一性起因のエネルギー広がりによる後段サイクロトロン通過効率の減少、等の問題が生じていた。数十倍以上の強度増強を目指すにあたり、耐久性や膜厚均一性を劇的に改善するための更なる新機軸が必要とされていた。これは RIBF だけでなく、米国 FRIB 計画[8]等を含む、次世代 RI 生成施設の共通問題でもあった。

## 2. ガスストリッパー基礎研究

### 2.1 高速重イオン用ガスストリッパー

ガスは耐久性、安定性等に優れているが、密度が低く、残留イオン化等のプロセスが抑制されるため、平衡電荷が固体に比べて低いという弱点もある。また、真空中への窓なし蓄積が必要で、特に我々が使用する高速イオンに対しては比較的大掛かりな蓄積システムが必要となる。

開発当初の命題は「最適なガス種は何か?」という事であったが、入射イオン種、エネルギー、必要価数、ビーム品質、蓄積性、取扱性等の様々な要素で決まる。特に、既存の後段加速器 fRC で加速するための最低必要価数 69 価に到達できるのかどうか、どの程度迫れるのかは開発規模を決める重要事項であった。しかし、平衡電荷・荷電分布といった基礎

的なパラメータに関しても、 $10 \text{ MeV/u}$  近傍でのウラン・Xe 等の重元素イオンに関する実験データは我々の知る限り皆無であり、また理論的な予想にもかなりの幅(例えばウランについて  $53 \sim 63$  価、炭素膜は約 72 価)があった。

まず、我々は既存のガス標的システム[9]を流用する事でいくつかのガスについて平衡電荷・荷電分布の測定を行った。実験では、窒素、アルゴン、二酸化炭素等のガスについて  $1 \text{ mg/cm}^2$  程度までの蓄積を行い、 $11 \text{ MeV/u}$  のウラン・Xe ビームについてそれぞれ荷電分布、平衡電荷のデータを得た[10]。その結果、窒素等のガスでは平衡価数は 56 価となり、69 価と大きなミスマッチがある事が分かった。一方、Xe ビームの場合は  $40.5$  価の平衡価数が得られ、後段加速器で加速可能である事が分かった。

ウランについての大きなミスマッチを埋めるため、入射エネルギーを上げる事で価数を上げる事が検討された。窒素ガスをを用い、 $11, 14, 15 \text{ MeV/u}$  の各入射エネルギーにおける平衡価数を測定し、価数導出の経験式のパラメータ調整を行い、この式を外挿する事で 69 価を得るために  $24\text{-}25 \text{ MeV/u}$  までの入射エネルギーが必要である事が分かった[11]。

### 2.2 Low-Z ガスストリッパー

Low-Z (Z: 原子番号) ガスをを用いる事でガスの低い平衡電荷を補えるのではないかと重要な提案がなされ、その可能性について検討された[12]。Low-Z ガスストリッパーとは原子番号の小さいガス(水素・ヘリウム)を用いたストリッパーで、Z の小さな原子では電子の束縛エネルギーが小さく、軌道電子の速度が入射ウランの速度に比べて小さいため、速度マッチングが悪く、電子捕獲過程が抑制される。このため平衡電荷が上がり、簡単な計算によるとヘリウム・水素について 65 価以上の平衡電荷が得られる見込みとなった。一方で、low-Z ガスの拡散性が大きく、真空中への「窓無し」蓄積が非常に困難であるという弱点があった。更に low-Z 原子の荷電交換反応の断面積は小さく、平衡電荷得るための物質量が、例えば  $11 \text{ MeV/u}$  のウランに対して、窒素ガスでの値  $0.15 \text{ mg/cm}^2$  に比べてずっと大きくなり、 $1 \text{ mg/cm}^2$  程度の標的が必要となる。実際過去に窒素ガスを蓄積するのに使用された差動排気系(標的長= $14 \text{ cm}$ , 4 段式, 初段 MBP 排気量  $\sim 1000 \text{ m}^3/\text{h}$  [9])で蓄積可能なヘリウムの最大量は  $15 \mu\text{g/cm}^2$ 、水素は  $3 \mu\text{g/cm}^2$  と桁違いに少なかった。例えばヘリウムについて世界的に見てもビーム利用の標的としては  $20 \mu\text{g/cm}^2$  程度が最大であった。

我々はまず薄い標的でもできる実験として、イオン化断面積、電子捕獲断面積の測定を行い、両者が等しくなる点から平衡電荷を決定し、実際ヘリウムの平衡電荷について 66 価でイオン化断面積と電子捕獲断面積が交差する事が実験的に確かめられた(図2)。これは、窒素よりも 10 価程度高い値で low-Z ガスの有効性が示された[12]。

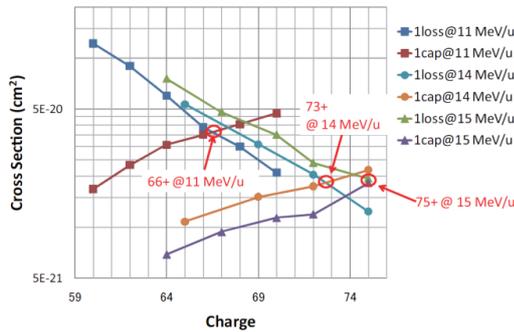


図 2 : 11, 14, 15 MeV/u におけるヘリウムガスのイオン化断面積と電子捕獲断面積の電荷依存性。

更により直接的な測定として、ヘリウムについて  $1.8 \text{ mg/cm}^2$ 、水素について  $1.1 \text{ mg/cm}^2$  までの厚い標的を準備し、水素・ヘリウムの電荷分布と発展が直接観測され、65 価までの高い平均電荷が可能である事が示された[13]。これは最初の low-Z ガスストリッパといえるが、標的部分の長さは約 8 m であり、ガス途中に三連四重極磁石を配置し、荷電変換を行いながら欲しい電荷のビームを収束させるという事を行う事で、12%程度の通過効率を確保した。この実験から、水素については蓄積が著しく困難で、効率的なデザインが難しい事が分かった。また、エネルギー損失が大きい事、不純物の影響が大きい事、可燃性ガスである事、等からもヘリウムガスの使用が第 1 候補として検討された。

### 3. ガスストリッパー実用研究

#### 3.1 プロトタイプシステム

ヘリウムガスの蓄積に特化させるのであれば 8 m の標的は必要なく、差動排気系の改良と併せてより短尺化が可能と思われた。我々は、ビーム光学から標的長さ (~50 cm) とチューブオリフィス形状の最適化を行い、ポンプの性能と差動排気バランスの最適化を行った。その上で、真空排気システムの大規模化(MBP 排気量 ~4200  $\text{m}^3/\text{h}$ )や、ガスの流れ攪乱板によるコンダクタンスの抑制を行う等のアイデア (図 3) でヘリウムガス蓄積性能を劇的に改善し、 $\phi 6\text{mm}$  以上のビームパスを確保し、 $2 \text{ mg/cm}^2$  までのヘリウムガスを蓄積可能なプロトタイプシステムの開発に成功した[14]。

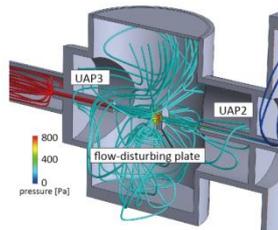


図 3 : ガス流れ攪乱板によるコンダクタンス抑制。

開発されたプロトタイプシステムを用い、11 MeV/u の  $^{238}\text{U}^{35+}$  ビームの荷電変換を行い、8 m 標的の同様、65 価までの平衡電荷が得られた。厚さを変えながら詳細な荷電分布が取得され、 $0.7 \text{ mg/cm}^2$  近辺の動作領域で 64+の変換効率が 25%近くまで上がる事が見出された。これは、電子シェル効果によるものと考えられ、固体の様な多段イオン化のないガス特有の効果といえる。64+の変換効率はこれまでの炭素膜の最大変換効率~18%よりも大きく、薄い標的でも効率良く得られるため、加速に適している。更に重要なパラメータとして、通過ビームのエネルギー拡がりがあった。ガスの厚さ均一性によってこのエネルギー拡がり炭素膜の半分程度に抑えられる事[14]が示されている。プロトタイプシステムにおける通過効率は  $0.7 \text{ mg/cm}^2$  の標的で 70%程度であった。

これらの結果から RIBF の第 1 ストリッパーとして、He ガスストリッパーが使用可能と判断し、後段 fRC の 64-65 価加速への対応[15]と He ガスストリッパー実用機の開発に取りかかった。

#### 3.2 実用機の開発

実用機による大強度ビームの荷電変換にはビーム損失を可能な限り避けるため、更なる大口径のビームパス ( $d = \phi 10 \text{ mm}$ ) を確保しながら  $0.7 \text{ mg/cm}^2$  程度までの He ガスを安定蓄積しなければならない。He ガスの漏れ量は非常に大きく(約 200 L/min)、それらをプロトタイプと同様に排気したのでは He ガスの消費量が多すぎて実用に耐えない。その為、プロトタイプで実現した以上の高性能差動排気系に加え、大流量のガス循環系の両立が不可欠であり、更に循環系において、断面積 ( $\sigma \propto Z^4$ ) の低い He ではその純度も重要なパラメータとなる。また、通過ビームの品質を保つため、厚さ均一性、安定性も当然保たなければならない。

これらを実現させる循環システムとして、我々はオイルフリーのメカニカルブースターポンプ(MBP)多段アレイを用いたガス循環システムを開発した[16]。基本的にはオイルフリーである MBP アレイを通過したガスは簡単な熱交換器とフォアライントラップのみを通して標的へと戻す事が可能である。前例のない方式で、ヘリウム圧縮によりポンプ温度  $80^\circ\text{C}$  程度に上昇するが、ロータリーポンプを用いた循環システムに場合に必要な、大流量ガス純化のためのシステムが省かれ、安定性、信頼性が増すと同時に大幅なコストダウンが可能となる。

実際の He ガス循環式荷電ストリッパーのデザインを図 4 上に示す。ストリッパー領域には全部で 22 台のポンプが接続されており、5 段階の差動排気が行われている (図 4 下)。非常に限られたスペースで多段の差動排気を実現するため、また、ビームパスの同軸性保証のため中心領域の真空チェンバー (メインチェンバー) は長さ 1.5m の一体型アルミチェンバーが使用され、その両端にターボポンプ接続用のサイドチェンバー、更に両端にモニターチェンバーが接続される。メインチェンバー及びサイド

チェンバー内部には真空隔壁が 0.2 mm の同軸精度で計 10 個設置されている。φ10 -15 mm の水冷チューブオリフィスがそれぞれの隔壁に接続され、ビームパスを確保しつつ、2 m 強の領域で標的圧力～10 kPa から BT 系真空圧力～10<sup>-5</sup> Pa まで約 9 桁のヘリウムガス差動排気を実現出来るようにデザインされている。プロトタイプで成功したガスの流れ攪乱板は計 4 枚設置されている。

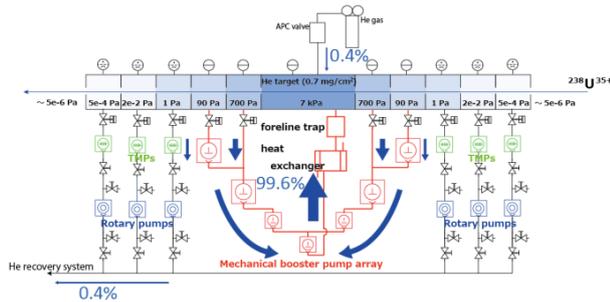


図 4 : He ガス循環式荷電ストリッパーのデザイン (上) と真空系統図 (下)。

大小計 7 台の MBP からなる MBP アレイの総排気量は 1.2×10<sup>4</sup> m<sup>3</sup>/h であり、約 200L/min のガスが循環される。ガス循環率はスクロールポンプによる標的からの直接排気量をコントロールする事で可変であるが最大 99.5%にする事ができる。コスト面の問題だけでなく、昨今世界的なヘリウム不足で、リサイクル率が仮に 95%でも MT に必要な He ボンベを準備できない状況であり、最大循環率は重要なパラメータであった。循環率 99.5%の場合、残りの 0.5%はターボ分子ポンプによって排気され、理研構内のヘリウム液化施設へと送られる。ガス標的の圧力でフィードバックをかけながら、この失われる 0.5%のガスがガスハンドリングシステムから供給され、標的圧力が保たれる。これは標的をリフレッシュし、不純物の蓄積とガスの放射化を防ぐ上でも重要である。

装置は RRC 本体室の A02 サイトに設置された。2012 年 1 月に上流ビームラインの組み換え、インフラの整備、ストリッパー設置を完了させ (図 5)、その後、ガス循環蓄積の試験を行い、性能に問題の

ない事を確かめた。

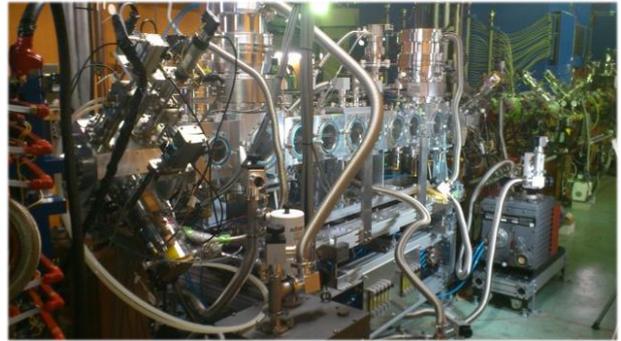


図 5 : RRC 下流の A02 サイトに設置されたガス循環式 He ガス荷電ストリッパー。

### 3.3 ビーム照射試験

実際にウランビームを用いた He ガス循環式荷電ストリッパーの試験を行い、不純物の影響や安定性などが調べられた。

He の電子捕獲断面積は小さく、Z の大きな分子、ポンプ油、水、空気等混入の可能性のある不純物の影響を大きく受ける。現在の標的圧力 10 kPa 近辺において、in-situ で精度良く不純物濃度を測定する簡単な方法はなく、実際に荷電分布を測定し、加速候補である 64-65+が十分な変換効率で得られる事を確認する必要があった。図 6 の赤丸が得られたガス循環を行った場合の平均電荷で、青と緑でプロットされたガスを排気した場合 (ガス循環率 0%) と同等の性能が得られており、不純物の問題はクリアされている。

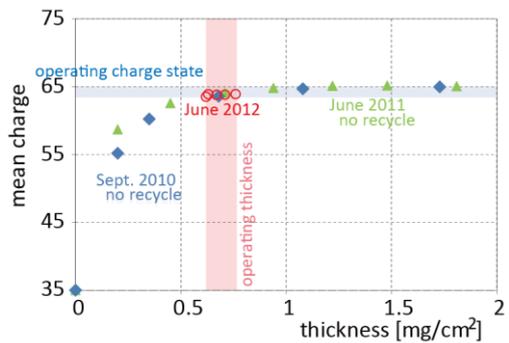


図 6 : 平均電荷のヘリウム標的厚さ依存性。

He ストリッパーの安定性について、ストリッパー通過後の位相変化を静電誘導型フェーズプローブで測定した。ガス圧力はゲージの読みで 0.5%程度の揺らぎに抑えられており、ガスストリッパー起因と思われる有意な強度、位相の変化はなかった。特に位相揺らぎについては回転炭素膜ストリッパーの 1/10 以下に抑えられており、良好であった。fRC 等の後段加速器の通過効率の向上、通過調整時間の短縮等に有利な点である。また、試験においてビーム通過効率は最大 90%が達成され、システムの重大な故障などはなく、特に MBP アレイの使用に問題がない事等、システムの堅牢性が確認された。

### 3.4 ユーザー運転での利用

開発された He ガス循環式荷電ストリッパーは、ビーム照射試験後、インターロックシステム等の整備を行い、2012 年秋に約 1.5 ヶ月のマシンタイムに実戦投入された。図 7 は 2012 年 (He ストリッパー)、及び 2011 年 (CNT 膜) の第一ストリッパー通過後のビーム強度を時系列でプロットしたものである。

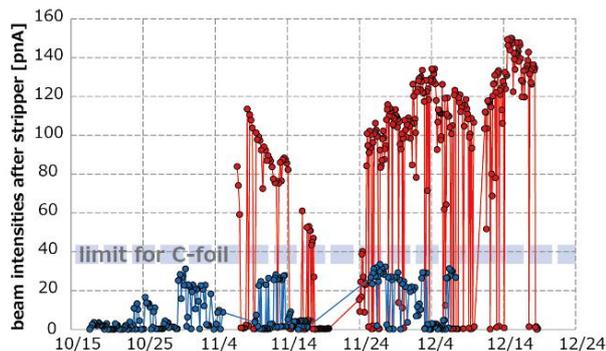


図 7 : 第 1 ストリッパー通過後のウランビーム強度の 2011 年 (青) と 2012 年 (赤) の比較。

2012 年の運転ではストリッパーへの入射強度は平均的に 1  $\mu\text{A}$  前後の強度に到達している。これは炭素膜を用いては安定運転が不可能な強度であり、大きなブレイクスルーである事が分かる。また、最終的な SRC 後のビーム強度における 2011 年と 2012 年の比較においても、最大強度(3.6 pA $\Rightarrow$ 15.1 pA)、供給率(56.7% $\Rightarrow$ 80.3%)、平均出射強度(1.6 pA $\Rightarrow$ 10.2 pA)の大幅な増強に成功している。これは He ストリッパーにダウンタイムが少ない事、劣化がなく効率が良い事が大きな寄与をしており、平均出射強度  $\times$  供給率という実効的なビーム強度の指標では実に 1 桁の増強に成功している。

1  $\mu\text{A}$  のウランビーム通過時の He ガスでの発光の様子を図 8 に示す。ビームの熱負荷によるガス密度の減少により実効的なガスの厚さが減少する可能性が懸念されていたが、この効果は小さく、ガス特有の熱負荷抑制機構の存在が示唆されている。機構の理解はガスストリッパーの限界を知る上で重要で現在のホットトピックスの一つとなっている。

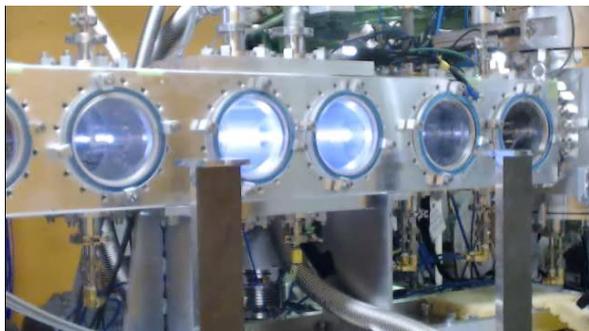


図 8 : 1  $\mu\text{A}$  の強度のウランビーム入射時の He ストリッパーでの発光の様子。

## 4. まとめ

ガスストリッパーについて基礎研究・実用機開発までの研究を一貫して行い、2012 年にはウランビーム加速の為の 11 MeV/u 「ヘリウムガスストリッパー」の実装に世界で初めて成功した。実際にユーザー運転に使用する事で、大強度ビーム ( $\sim 1 \mu\text{A}$ ) の安定的な荷電変換に成功している。耐久性の制限もなく、変換効率、ビーム品質が向上し、2012 年における加速後の実効ビーム強度の 10 倍増に大きな貢献をした。この成果は、ガスストリッパーだけではなく、様々な周辺基幹設備増強との相乗効果であり、2012 年にはイオン源の改良、fRC 改造[15]、ビームダンプ設置、Be ストリッパー開発等の成功があった。ガスストリッパー技術により従来のボトルネックを打ち破り、重元素イオンビームの新しい加速方式が実現したという事が言える。

最近、ガスストリッパー技術の更なる応用として、51 MeV/u の Xe ビームの荷電変換のために、20  $\text{mg}/\text{cm}^2$  の厚みの「空気」を用いたストリッパーの実装・運転も行われ、良好な成果を上げている。今後も、本研究で培われたガスストリッパー技術を更に高度化しながら、益々大強度化が進むであろうハドロン加速器分野において、様々な応用・貢献していきたいと考えている。

## 5. 謝辞

本研究は理研の加速器基盤研究部、住重加速器サービスの RIBF 加速器オペレータの総力を以て進められたものである。本研究を支えてくださった全ての方々に深く感謝の意を表します。

## 参考文献

- [1] Y.Yano, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B261, 1009 (2007)
- [2] Y.Higurashi et al., Rev. Sci Instrum. 83, 02A308 (2012).  
Y.Higurashi et al., Rev. Sci Instrum. 83, 02A333 (2012).
- [3] K.Yamada et al., Proceedings of IPAC12, TUOBA02 (2012).
- [4] H.Hasebe et al., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A 613, 453 (2010).
- [5] H.Hasebe et al., Proceedings of the 9th PASJ Meeting in Japan, WELR06 (2012)
- [6] A. Benyagoub and S. Klaumunzer, Radiation Effects and Defects in Solids, 126, 105 (1993).
- [7] N. Fukunishi et al., PAC09, MO3GRI01 (2009).
- [8] FRIB project, <http://www.frib.msu.edu/>
- [9] Kishida
- [10] H.Kuboki et al., Phys. Rev. ST-AB 13, 093501 (2010).
- [11] H.Kuboki et al., Phys. Rev. ST-AB 14, 053502 (2011).
- [12] H.Okuno et al., Phys. Rev. ST-AB 14, 033503 (2011).
- [13] H.Imao et al., Proceedings of the 8th PASJ Meeting in Japan, WEMH01 (2011)
- [14] H.Imao et al., Phys. Rev. ST-AB 15, 123501 (2012).
- [15] K.Kumagai et al., Proceedings of the 9th PASJ Meeting in Japan, WEPS055 (2012)
- [16] H.Imao et al., J. Radioanal. Nucl. Chem. DOI 10.1007/s10967-013-2649-x, (2013).