

CsK₂Sb マルチアルカリフォトカソードの特性研究 STUDY OF CHARACTERIZATION OF CsK₂Sb MULTIALKALI PHOTOCATHODE

横田 温貴^{*A)}、栗木 雅夫^{A)}、根岸 健太郎^{A)}、郭 磊^{A)}、浦野 正洋^{A)}、許斐 太郎^{B)}、清宮 裕史^{B)}
Atsuki Yokota^{*A)}, Masao Kuriki^{A)}, Kentaro Negishi^{A)}, Rai Kaku^{A)}, Masahiro Urano^{A)}, Taro Konomi^{B)}, Yuji Seimiya^{B)}

^{A)}Hiroshima Univ.

^{B)}High Energy Accelerator Research Organization (KEK),

Abstract

The CsK₂Sb cathode is durable, its quantum efficiency(QE) is as high as 10% and can be driven by green light (~500nm). Therefore, it is considered to be one of the best candidate of a high brightness electron source for the advanced electron accelerators such as Energy Recovery Linac (ERL) and Free Electron Laser (FEL). We developed system to evaporate the cathode as thin film in vacuum and study the cathode performance, such as QE and the evaporation condition, current and lifetime. We report the properties of the cathode such as lifetime, and optimization of the evaporation conditions.

1. 序論

近年、ILC や FEL、ERL^[1] などの次世代線形加速器の研究開発が進められている。これらの次世代線形加速器では、シンクロトロン等の円形加速器では実現できない高性能なビームを実現することが可能であると期待されている。しかしその反面、線形加速器では電子源の性能が加速器のビームの性能に直結する。たとえば、FEL や ERL においては、第三世代放射光源における電子銃よりも、二桁から三桁小さいエミッタンスを要求される。リニアコライダーにおいては、スピン偏極した電子ビームが大きな役割を果たす。これらの先進加速器の要求を実現する電子源としてフォトカソード電子銃が注目されている。フォトカソード電子銃はレーザー光による光電効果によって電子ビームを生成する電子銃である。この電子銃は、レーザーによる電子ビーム形状の高い操作性から、低エミッタンス、短パルスなどの優れた性能を持っている。また、GaAs カソードと円偏光レーザーによる光電効果からは、偏極電子ビームを生成できる。

フォトカソード電子銃では、大電流発生が必要な場合、陰極の劣化による引き出し可能電流の低下が技術的課題となる。フォトカソードの一種である NEA(Negative Electron Affinity)-GaAs カソードは、光電効果の量子効率(QE)が10%程度と高く、赤色光での励起が可能など優れた特性を持つが、NEA 表面の耐久性が低いのが課題である^[2]。一方、Cu や Mg などの金属カソードは耐久性が高く丈夫であるが、QE が 10⁻⁴ 以下と低く、紫外光での電子励起が必要であり、大電流の発生は難しい。

そこで近年注目されているのが2種類以上のアルカリ金属を用いたマルチアルカリフォトカソードである。マルチアルカリフォトカソードは、耐久性が高く、波長が500nm 帯の緑色光で電子発生が可能で、QE が10%程度と高いとされるのが特長のフォトカソードである。このような特性から、大電流生成が必要な、FEL や ERL のような線形加速器による次世代放射光源、小型線形加速器によるレーザーコンプトン散乱による準単色X線源等、先進的線形加速器における加速器の電子源として期待されている。マルチアルカリフォトカソードは、

光電子増倍管などの光電面として実用化されているが、加速器用電子源としての実績は乏しい。そのため、最適化された成膜技術が確立されておらず、電荷引出しや時間経過による QE の減少への理解も不十分である。

広島大学ではマルチアルカリカソードの中でも比較的 QE が高いと報告されている CsK₂Sb カソード^{[3][4]}の研究、および生成技術の確立のため、専用の実験装置を構築し実験を行っている。本稿ではカソード生成実験および電子引き出しによるカソード劣化の寿命測定実験についての結果と考察を記述する。

2. マルチアルカリフォトカソード試験装置

マルチアルカリフォトカソード試験装置の概要について説明する。装置は以下の部分から構成される。

- カソードを生成するための基板 (SUS 製、31 mm × 31 mm の正方形)
- カソード基板を加熱、バイアス電圧印加のするためのカソードマウント機構
- Sb、K、Cs を蒸着するための蒸着源
- 蒸着した金属の蒸着量を測定するための水晶振動子膜圧計
- レーザー光を導入するためのビューポート

マルチアルカリカソードには 10⁻⁷~10⁻⁹Pa 程度の超高真空が必要なことから、これらの装置は SUS 製の真空容器中に収められており、NEG ポンプおよびイオンポンプにより排気を行っている。Figure 1 にマルチアルカリフォトカソード試験装置の写真を載せる。右下の管状の真空容器内部でカソード生成や電子引き出し実験を行う。真空容器は化学研磨したステンレス製で、高さ 270 mm、直径約 100 mm の柱状の主管に、ICF152 フランジを上下両端に取り付けてある。側面には ICF114 のフランジを1つ、ICF70 のフランジ7つの計8つを、4つずつ上下二段で、長さ 100 mm の小管の先に配置している。

Figure 2 は装置上段フランジ内部の略図である。カソード基板支持機構は図右側の ICF114 のフランジに取り付けてある。膜厚計は上部 ICF152 フランジに中心から少しずらし、容器の中央に配置した蒸着源に対して基

* m153030@hiroshima-u.ac.jp

板と対称な位置に取り付けている。膜厚計とカソード基板に対象に成膜させることで基板上的膜厚を取得するためである。蒸着源は図中での上下方向への移動機構を備えており、蒸着する物質がカソードの正面になるように移動できる。Figure 2 の下側のように光導入用ビューポートからレーザー光を導入することで、蒸着中も QE を測定することが可能である。また、下段のフランジには真空計、NEG ポンプ、イオンポンプを取り付けている。

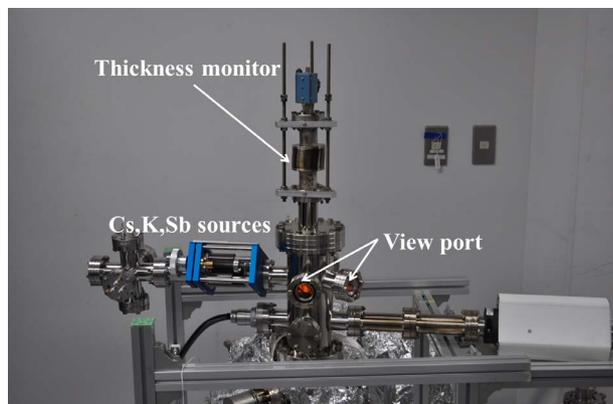


Figure 1: The photograph of the cathode and test chamber of evaporation in Hiroshima University.

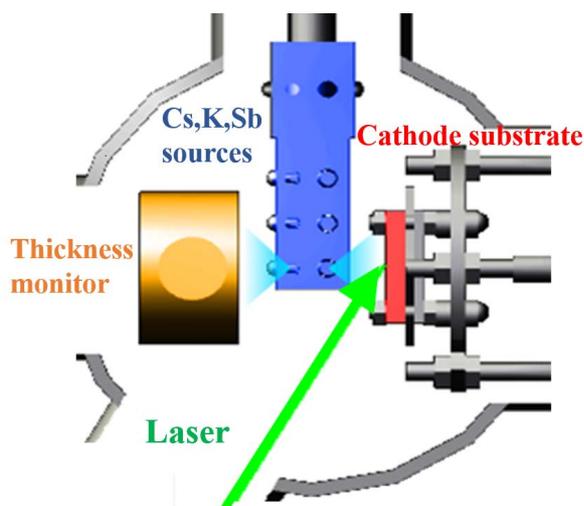


Figure 2: The schematic drawing of the evaporation system.

3. データ測定系の構築

本研究ではマルチアルカリフォトカソードの寿命測定を行うために、長期間にわたり、カソードの QE を測定する必要がある。また、電荷密度寿命を求めるためには、連続的にレーザーを同じスポットに照射し続ける必要がある。これらの測定を行うため、次のような手順でデータ計測を繰り返すシステムを構築した。QE 測定を行うための光学系は、レーザーの二波長切替、および照射位置の自動制御が可能である。PC からこのレー

ザーシステム制御を含め、光電流、実験環境であるカソード基板温度、真空度などのデータ取り込みを行うシステムを LabView(National Instrument) を用いて作成した。データ取得の手順の略図を Figure 3 に示す。二つの波長 (532nm および 405nm) のレーザーでカソード基板上を二次元的にスキャンし、同時にカソード上での光電流値を計測することで QE の二次元分布を取得する。それらのデータを取得後、405nm レーザーを特定のスポットに連続的に照射する。以上のプロセスをおよそ 2 時間おきに繰り返すことで、QE の面分布の変化を求め、さらに特定スポットにおける電荷引出に起因する劣化を測定した。

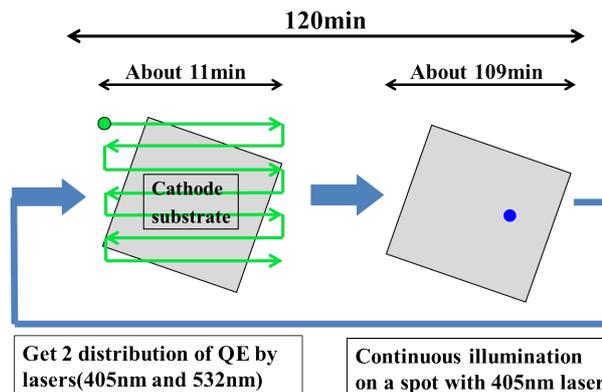


Figure 3: The procedure of measuring cathode lifetime.

4. 実験結果

4.1 マルチアルカリカソード生成実験

マルチアルカリカソードの生成は基板上に 3 種類の材料金属を順番に蒸着することで行った。本実験では先行研究 [5] [6] [7] にならい、Sb、K、Cs の順番で蒸着を行い、CsK₂Sb カソードの生成を試みた。蒸着の典型的な手順を以下に示す。

- 基板を 600 °C で 1 時間加熱洗浄する。その後、温度を 100 °C まで下げて蒸着中温度を一定に保つ。
- 所定の膜厚まで Sb を蒸着する。
- 所定の膜厚まで K を蒸着する。
- QE が最大となるまで Cs を蒸着する。
- 基板温度を室温まで下げる。

生成したカソードの性能を評価する値として QE を用いている。本研究では QE を入射した光子の数と発生した電子の数との比で定義している。 η を量子効率、 $N_{electron}$ を出される電子の個数、 N_{photon} を入射する光子の個数、 I をカソードに流れた電流、 e を電子の荷量、 λ を光子の波長、 P を入射させるレーザーのパワー、 h をプランク定数、 c を光速として式で表すと、

$$\eta = \frac{N_{electron}}{N_{photon}} = \frac{I/e}{\lambda P/hc} \approx 1.24 \frac{I [\text{mA}]}{\lambda [\text{nm}] P [\text{W}]} \quad (1)$$

となる。この蒸着実験プロセスの一例を Figure 4 に示す。QE 測定には、波長 405nm のレーザーを使用してい

る。K を蒸着し始めた後から QE が上昇し始める。その後、Cs を蒸着することで QE が大きく増加する。蒸着中の真空度は Sb 蒸着時に 9×10^{-9} Pa 程度であり、K、Cs 蒸着の際は 2×10^{-7} Pa 程度であった。この蒸着時には、最終的に QE は約 11% まで到達した。

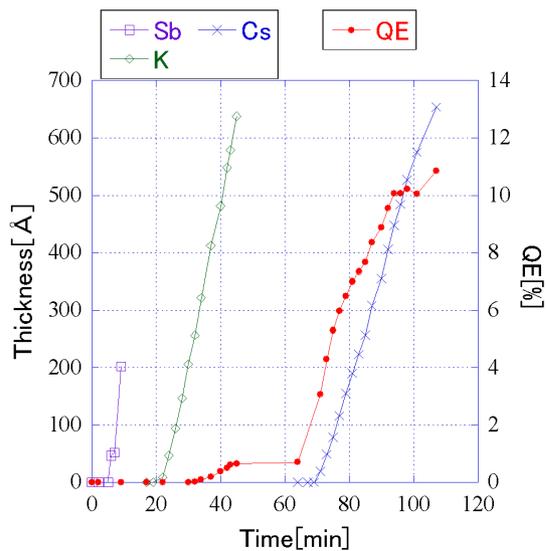


Figure 4: Time course of QE and evaporation thickness.

4.2 カソードの寿命測定

実際の加速器の運転では、電子原から電子ビームを長期的に供給し続ける必要がある。しかしカソードは電子ビームの引き出しなどによって QE が劣化することが知られており、特に運転時に数十 mA クラスの電流を引き出す ERL のような運転条件で高い量子効率を維持することは実現されておらず、カソードを実用化の上での課題となっている。本研究では、実験解析のために現象論的にカソード劣化の定式化を試みることにする。本研究では QE の劣化には時間によるものと、引き出し電荷密度によるものがあると仮定し、前者を時間寿命、後者を電荷密度寿命と呼ぶことにする。これら二つの成分によるカソードの QE 劣化のモデルを二成分モデルと呼ぶことにし、このモデルを仮定した QE は以下のように表現される。

$$\eta(t, \rho) = \eta_0 \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \exp\left(-\frac{\rho}{\Theta}\right) \quad (2)$$

ここで、 η は QE、 η_0 は電荷の引出を開始した時点での QE (初期 QE)、 t は時間、 τ は時間寿命、 ρ は引き出し電荷密度、 Θ は電荷密度寿命である。ビーム引き出しを行わない場合、QE の劣化は時間劣化だけとなるため以下のようなになる。

$$\eta(t) = \eta_0 \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \quad (3)$$

今回取得したデータのうち、405 nm のレーザーを連続照射した以外の点では、引出電荷量は小さいと考え、Figure 5 に示すようにこれらの点から時間寿命 τ を求めた。平均の τ を求める際、波長 405 nm のレーザー

を連続照射した点をのぞき、カソード中心付近の縦横 18mm の正方形の範囲の測定点の平均をとり、 τ を評価した。この範囲の測定点を用いた理由は、遮蔽物などによりレーザーが照射できない点を除外するためである。Figure 5 で、横軸は時間を時で表し、縦軸は測定点の平均 QE を示す。QE の測定に 405 nm の波長のレーザーを用いた場合の時間寿命は 4580 ± 100 時間である。また、QE の測定に 532 nm レーザーを用いた場合の測定した場合の時間寿命は 1530 ± 40 時間である。数値の誤差はすべて統計誤差のみである。

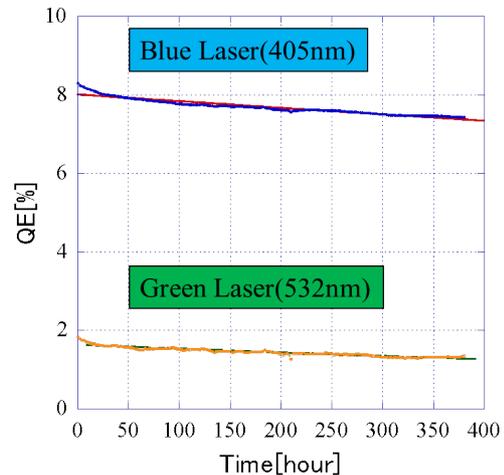


Figure 5: Blue and yellow show that QE degradation caused by time course effect measured by using blue(405nm) and green(532nm) laser.

電荷密度寿命は、連続的に 405 nm のレーザーを照射した点のデータより求めた。レーザーのスポットサイズは 0.6 mm^2 程度、典型的な引出電流値は $70 \mu\text{A}$ 、測定中の平均真空度は 4×10^{-8} Pa 程度であった。Figure 6 はレーザーを連続照射した点の積算電荷密度に対する QE の変化である。黄色の点は測定された値、青い点は後述する補正された値を示す。時間による劣化成分を無視するために、 $\tau \rightarrow \infty$ として、式 (2) に代入すると、右辺は第二項目のみ残る。この式を用いて、Figure 6 の黄色の点の最適化曲線を引くと緑の線になり、電荷密度寿命を求めると $1830 \pm 30 \text{ C/mm}^2$ という結果を得た。この値は本カソードが非常に高い耐久性を持っていることを示している。電荷を引き出している間も時間は経過しているので、この値は時間による劣化成分と電荷引出しによる劣化成分の二つが含まれている。そこで時間による劣化成分を差し引くことにより、電荷引出のみによるカソードの寿命を推定するために式 (2) を以下のように変形する。

$$\eta'(t, \rho) = \eta(t, \rho) \exp\left(\frac{t}{\tau}\right) = \eta_0 \exp\left(-\frac{\rho}{\Theta}\right) \quad (4)$$

ここで η' は、時間による劣化成分を補正した QE の値である。時間による劣化成分の補正には、405nm のレーザーを連続照射した点の周りの点の平均時間寿命 $\tau = 5700$ 時間を用いて補正を行った。この値を用い

て、Figure 6 の黄色の点から時間による劣化成分を引くことによって推定される電荷密度劣化を表しているのが青の点である。Figure 6 の赤線は、式 (4) から求めた青の点の最適化曲線である。赤線から電荷密度寿命は $25900 \pm 5300 \text{C/mm}^2$ と推定される。この値は、本カソードが非常に高い耐久性を持つことを示唆している。しかし、モデル依存であるため、モデルの妥当性の評価を行っていく必要がある。また、この解析手法によって求められた値は、 τ の値に非常に敏感であるため、 τ 誤差の評価にも課題が残ると考えられる。数値の誤差はすべて統計誤差のみである。

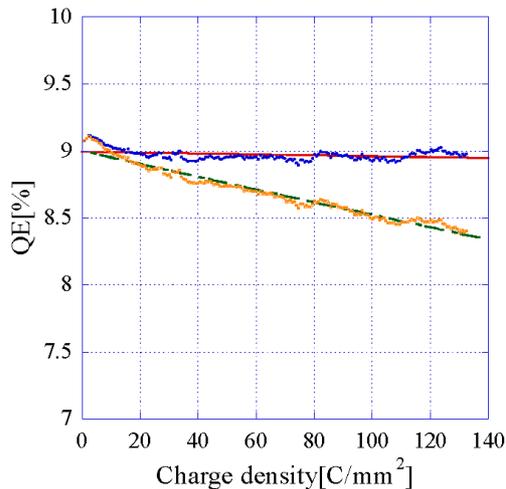


Figure 6: Blue and yellow show that total QE degradation and QE degradation caused by extracted charge effect, respectively.

4.3 初期 QE と時間寿命の相関関係

二つの波長のレーザーの初期 QE と時間寿命の相関関係を調べた。相関関係を調べるために、カソード中心付近の縦横 24mm の正方形の範囲の測定点を利用した。ただし、405 nm レーザーで電荷を引き出し続けた点は除く。Figure 7 に 532 nm レーザーで測定したカソードの初期 QE と時間寿命の関係をそれぞれ示す。青い点はデータ点を、赤線は直線でフィットした結果である。またグラフ上部の式はフィット結果を、R の値はデータ点の一次の相関係数を表している。Figure 7 から、相関係数は 0.56 であり、532nm レーザーでは、初期量子効率と時間寿命の間に相関があることが示唆される。一方、405nm レーザーで測定したカソードの初期 QE と時間寿命の相関係数は 0.16 と求められ、初期量子効率と時間寿命の間には 532nm の場合に比べて強い相関は見られなかった。定性的には、405 nm レーザーは 532 nm レーザーに比べて劣化の影響を受けにくく、そのために初期量子効率と時間寿命の相関が弱いと考えられる。本節の結果から、より寿命の長いカソードを生成したい場合には、波長の長い 532nm レーザーを用いて最適化を行った方がよいと考えられる。

また 405 nm レーザーと 532 nm レーザーでそれぞれの測定した初期 QE の相関関係を調べたところ、相関係数は 0.68 となり、相関関係があることが分かった。

405nm レーザーと 532nm レーザーでそれぞれの測定した時間寿命の相関関係について調べたところ、相関係数は 0.65 となった。よって 405nm レーザーで測定した時間寿命が長ければ、532nm レーザーで測定した時間寿命も長くなる傾向があるという結果を得た。

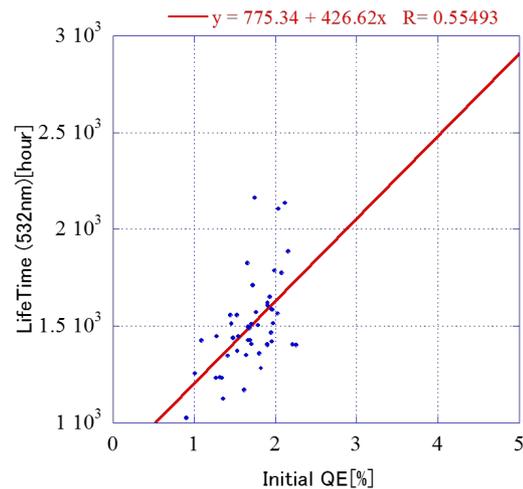


Figure 7: Relation of initial QE and Lifetime measured by 532 nm laser.

4.4 カソード寿命と引出電流の関係

電荷引き出しに使用する 405nm レーザーのパワーを変化させ、二成分モデルの妥当性を評価するため、時間寿命と電荷密度寿命がどのように変化するか調べた。このモデルでは、時間寿命の原因として残留ガスの吸着を考えており、時間寿命は真空圧力に逆比例することが予想される。また電荷密度寿命の原因としては、残留ガスがイオン化されることにより生成される正イオンの逆流現象を仮定している。イオン逆流のイオン密度は、ビーム電流密度と残留ガス密度の積で決まるため、電荷密度寿命も真空圧力に逆比例すると予想される。実験結果を Table 1 にまとめる。Table 1 から、引き出し電流を減少させると真空圧力が 1/6 程度に減少し、405nm のレーザーで時間寿命は約 4 倍、532nm のレーザーで時間寿命が約 3 倍になるという結果を得た。カソードの時間寿命は真空度に依存することが分かったが、真空度の減少の割合と時間寿命の増加の割合は異なっている。このことからカソードの時間寿命は全圧ではなく、特定の気体の分圧に関係していると考えられる。今後 QMS(Quadrupole Mass Spectrometer) を利用し、分圧を測定することで、より詳細な理解を試みたい。

また電荷密度寿命は大きく変化しなかった。本研究において式 (2) で仮定している二成分モデルでは、 τ は真空圧力に逆比例し、 Θ は引出電流密度と真空圧力に逆比例する。よって、引出電流値と真空圧力がともに減少している場合、電荷密度寿命は大きくなるはずである。しかし今回得られた結果では、電荷密度寿命に大きな差が見られなかった。この結果は従来のイオン逆流が電荷密度寿命の原因という仮説と矛盾する。この課題については、実験的に検証していく必要がある。数値の誤差はすべて統計誤差のみである。

Table 1: Summary of lifetime

Photo current[μ A]	70	30
Average degree of vacuum[Pa]	4×10^{-8}	7×10^{-9}
Temporal lifetime(405nm)[hour]	4580 ± 100	17500 ± 550
Temporal lifetime(532nm)[hour]	1530 ± 40	5000 ± 270
Charge density lifetime[C/mm ²]	1830 ± 30	2140 ± 60

5. 結論と今後の課題

本研究では、マルチアルカリフォトカソードの実験システムを構築し、カソード蒸着生成および寿命測定を行った。波長 405nm のレーザーで測定した場合、最大 QE は 11%波長 532nm のレーザーで測定した場合、最大 QE は 3%程度のカソードの生成に成功した。大電流を引き出すためには、Nd 系の固体レーザーの二倍波として生成可能な 532nm レーザーで高い QE が得られる方がよい。よって今後は蒸着条件の最適化によって、532nm での QE を上昇させることが課題である。

生成したカソードの耐久性を調べるために、電子引き出し実験を行い、QE の劣化に対する寿命を測定した。70 μ A 程度の電荷を引き出した場合の時間寿命は、波長 405nm のレーザーで測定すると 4580 ± 100 時間、波長 532nm のレーザーで 1530 ± 40 時間の寿命が得られた。よって 70 μ A 程度の引き出し電流では、現状でも加速器での実用上問題がないことを確認できた。さらに時間劣化による影響を差し引いた電荷密度寿命は 25800 ± 5300 C/mm² であり、マルチアルカリカソードの高い耐久性を示唆する結果を得た。ただしこの結果は、モデル依存であり、今後モデルの妥当性を含めた検証を行っていく必要がある。

引き出し電流の値を 1/2 程度にすると、真空圧力は減少し、時間寿命に大幅な増加がみられた。一方、電荷密度寿命には大きな変化が見られず、カソードの劣化プロセスの理解に課題を残した。

参考文献

- [1] Design Study of Compact ERL, KEK-Report 2007-7 (2007).
- [2] Photocathodewiki(<http://photocathodes.chess.cornell.edu/wiki/>)
- [3] C. Ghosh and B. P. Varma, J. Appl. Phys. 49, 4549 (1978)
- [4] B. Dunham, et al., " Photocathode Development for the Cornell Injector ", ERL 2011 (2011)
- [5] D.H. Dowell, et al., Nucl. Instrum. Methodes Phys. Res. A 356, page167-176 (1995)
- [6] L. Cultrera, et al., proc. of PAC ' 11, wep244(2011).
- [7] J. L. McCarter, et al., proc. of PAC ' 11, wep284 (2011).