

# CsBr 保護膜による Cs-Te フォトカソードの高耐久化に関する研究

## STUDY ON DURABILITY IMPROVEMENT OF Cs-Te PHOTOCATHODE BY CsBr COATING

江澤健太郎<sup>#, A)</sup>, 丹羽智朗<sup>A)</sup>, 福岡凜大<sup>A)</sup>, 小柴裕也<sup>A)</sup>, 鷺尾方一<sup>A)</sup>, 坂上和之<sup>A), B)</sup>

Kentaro Ezawa<sup>#, A)</sup>, Tomoaki Tanba<sup>A)</sup>, Rinto Fukuoka<sup>A)</sup>, Yuya Koshiba<sup>A)</sup>, Masakazu Washio<sup>A)</sup>, Kazuyuki Sakaue<sup>A), B)</sup>

<sup>A)</sup> WISE, Waseda University

<sup>B)</sup> UT-PSC, The University of Tokyo

### Abstract

We have been conducting basic and applied research for high quality electron beam generation, using 1.6cell laser photocathode RF-gun. In our accelerator experiments, two kinds of semiconductor photocathodes are used: Cesium Telluride (Cs-Te), and Cesium Potassium Antimonide (Cs-K-Sb). Semiconductor photocathodes are known for high quantum efficiency (Q.E.) about 5~10% and comparably long 1/e lifetime. High quantum efficiency photocathodes can reduce the power requirement of the laser system, and long lifetime photocathodes can decrease frequency of the maintenance, contributing to an efficient experimental environment. For these reasons, high Q.E. and long lifetime photocathodes are necessary in accelerator experiments. For developing robust and long lifetime photocathodes, we performed coating CsBr protective films on Cs-Te photocathodes. In this paper, we report the CsBr thickness dependency of the lifetime of Cs-Te photocathodes.

### 1. はじめに

近年、FEL や ERL への応用の観点から、高輝度な電子ビームの需要が高まってきている[1,2]。それに伴って、高輝度で低エミッタンスな電子ビームの生成に貢献するフォトカソードへの注目も高まってきている。フォトカソードとは、光電効果を利用して電子を取り出す電子源である。大きく分けて金属フォトカソードと半導体フォトカソードの 2 種類に大別される。金属フォトカソードに比べて、高い量子効率(Q.E.: Quantum Efficiency)を有するため、半導体フォトカソードは次世代加速器用の電子源としての応用が期待されている。我々の研究室では現在、半導体フォトカソードの 1 種である Cs-Te フォトカソード(Q.E.<10%)を電子源として採用している。

しかしながら、半導体フォトカソードは金属フォトカソードに比べて寿命が短い傾向にあり、電子源として採用した場合、どうしても電子源を入れ替える頻度が多くなってしまふ。実際、我々の研究室では Cs-Te フォトカソードをおよそ数か月から半年に 1 回交換している。加えて、半導体フォトカソードは超高真空下でしか高いクオリティを保つことができず、劣悪な真空環境にさらした場合、たちまち Q.E.が低下してしまうことが知られている。例えば、Cs-Te フォトカソードに酸素ガスをおよそ 130[L](単位[L]に関しては 2.2 節を参照)暴露すると、フォトカソードが劣化し、Q.E.が暴露前の 10~20%にまで低下することが分かっている[3]。

これらのことから、高 Q.E.でありつつ、劣悪な環境に耐えられる耐久性、長期間電子ビームを取り出せる寿命を併せ持ったフォトカソードの開発が、加速器実験には求められている。当研究室では高耐久・長寿命なフォトカソードを作成・評価することを目的に、Cs-Te フォトカソ

ードに CsBr 保護膜をコーティングする実験、コーティングした Cs-Te フォトカソードに酸素ガスを暴露する実験を行っている。本発表では、Cs-Te フォトカソードに付与する CsBr 保護膜の厚みを変えたときに、Cs-Te フォトカソードの寿命がどのように変化したかを報告する。さらに、Cs-Te フォトカソードに付与すべき CsBr 保護膜の最適な膜厚について報告する。

### 2. 実験装置・実験方法

#### 2.1 実験装置

Figure 1 に実験で用いる蒸着チャンバーの外観を、Fig. 2 に蒸着チャンバー内部の概略図を、Fig. 3 に蒸着現ホルダーの外観をそれぞれ示す。当研究室では、蒸着源ホルダーにアルカリ金属蒸着用のディスペンサーをセットできるようになっている。ディスペンサーは SAES Getter 社製の Cs ディスペンサーまたは K ディスペンサーをセットしている(当研究室では Cs-Te フォトカソードのほか Cs-K-Sb フォトカソードの研究も行っているため)蒸着源ホルダー内の 2 つのタングステンバスケットには蒸着源を入れることができるようになっており、鷺尾研究室では Te, Sb, または CsBr を入れている。これらのディスペンサーやタングステンバスケットに電流を流して蒸着源を加熱することによって、各金属原子を Mo 基板上に蒸着することができるようになっている。蒸着源ホルダーを挟んで、Mo 基板の反対側には膜厚計が備わっており、これによって蒸着中、蒸着源の蒸着速度をリアルタイムで測定することができる。

チャンバー内の真空環境はドライルーツポンプ、ターボ分子ポンプ、イオンポンプ、NEG ポンプによって作り出されている。これらのポンプによってチャンバー内はおおよそ  $3 \times 10^{-8} Pa$  程度の超高真空状態となる。蒸着の最中は  $3 \times 10^{-8} \sim 5 \times 10^{-7} Pa$  の環境となる。

<sup>#</sup> kenhorizon@asagi.waseda.jp

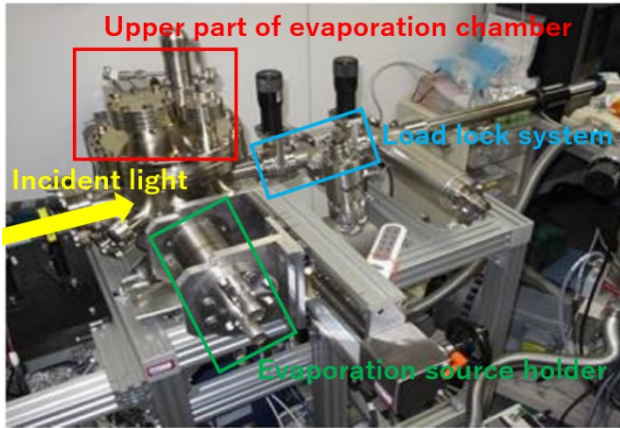


Figure 1: Picture of the evaporation chamber.

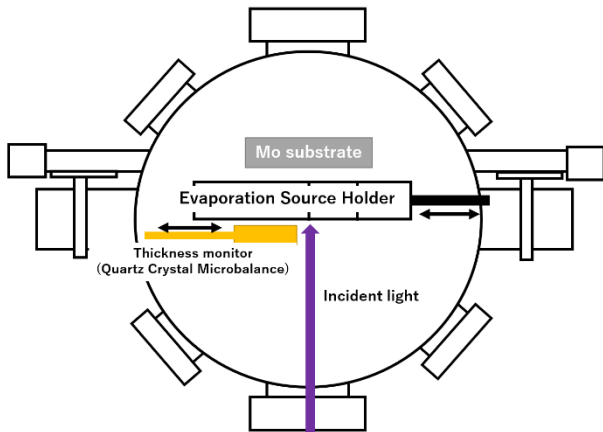


Figure 2: Schematic of the evaporation system.



Figure 3: Picture of evaporation source holder.

## 2.2 実験方法

実験は次のような手順で行った。

- I Cs-Te フォトカソードを Mo 基板上に作成
  - II 決まった厚さだけ CsBr をコーティング
  - III 保護膜付きフォトカソードに酸素ガスを暴露
  - IV Q.E.の減少を評価し寿命 $L_0$ を算出
- Cs-Te フォトカソードは初めに Te を Mo 基板上に20

nm 蒸着し、その後 Q.E.を測定しながら Cs を蒸着する逐次蒸着法にて作成した。フォトカソードの Q.E.がピークの60%に落ち込むまで Cs を蒸着し続けた<sup>1)</sup>。CsBr は作成した Cs-Te フォトカソードそれぞれに対し 5,10,20,30nm を目標に蒸着を行った。酸素ガスの暴露はチャンパー内の圧力が  $1 \times 10^{-5} Pa$  前後になるように調整した。酸素暴露中もフォトカソード作成中と同様に Q.E.の測定を行った。酸素ガスにより Cs-Te フォトカソードを意図的に劣化させ、Q.E.がどの程度低下するのかを調べた。Q.E.の減少を定量的に評価するために、Lei[4]らが提唱するカソードの劣化モデルを利用した。この劣化モデルでは、フォトカソードの Q.E.は酸素ガス暴露中、次のように低下していく。 $\eta$ は Q.E.[%],  $\eta_0$ は酸素暴露前の Q.E.[%],  $L$ は暴露量[L],  $L_0$ は暴露量で決まる寿命[L],  $P$ はチャンパー内圧力[Pa],  $t$ は酸素暴露を始めてからの経過時間[sec]である。

$$\eta = \eta_0 \exp\left(-L/L_0\right) \quad (1)$$

$$L[L] := P[Pa] \times t[sec] \times 133 \times 10^{-6} \quad (2)$$

暴露量  $L$  とは、ガスをどれくらい暴露したかを定量的に評価するための物理量であり、Eq. (2)のように定義される。このモデルでは、Q.E.は暴露量  $L$  の増加とともに指数関数的に減少していくと考える。酸素暴露後に得られた Q.E.の挙動に Eq. (1)でフィッティングをかけることで、保護膜付きカソードそれぞれに関して、暴露量で決まる寿命 $L_0$ を求めた。これらの手順を調べる CsBr 膜厚の数だけ繰り返した。得られた結果に基づいて、CsBr の膜厚と暴露量で決まる寿命 $L_0$ の関係を調査した。参考のために、CsBr 保護膜を付与していない Cs-Te フォトカソードにも酸素暴露を行って、暴露量で決まる寿命 $L_0$ を求めた。

## 3. 実験結果

### 3.1 暴露量で決まる寿命 $L_0$ の CsBr 膜厚依存性

Figure 4 に CsBr 膜厚ごとの、暴露量で決まる寿命 $L_0$ を示す。 $L_0$ の値は単位 [Pa·s]で表記すると $10^{-4} \sim 10^{-6}$ オーダーになってしまうため、単位[L](ラングミュア)で表記した。Eq. (2)から、1[L]は次のように決まる。

$$1[L] := 133 \times 10^{-6} [Pa \cdot s] \quad (3)$$

プロットは各年のセットアップごとに色分けしている。セットアップごとに、蒸着現ホルダーに備え付ける蒸着源を新しくしていることに注意されたい。2017 年は保護膜付与実験を繰り返し行っていないため、参考程度に図示している。

<sup>1)</sup> ピークを過ぎても蒸着を続けるのは、経験則に基づく。当研究室では、以前 Q.E.がピークに達した時に蒸着をやめて、Q.E.が大きく落ち込んでしまったことがある。

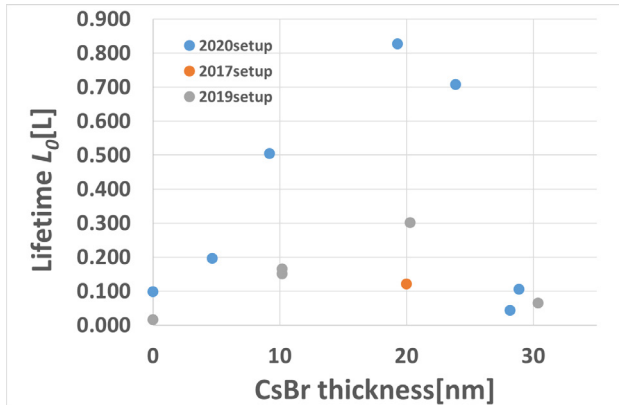


Figure 4: Lifetime of Cs-Te photocathode as a function of CsBr thickness.

Figure 4 より、CsBr 膜厚が0~20nm の範囲では、CsBr 膜厚の厚みが増すにつれて暴露量で決まる寿命 $L_0$ も増加していることが分かる。 $L_0$ はその値が大きいほどそのフォトカソードの酸素ガスへの耐性が高いことを意味している。すなわち、Cs-Te フォトカソードに CsBr をコーティングすることによって Cs-Te フォトカソードの酸素ガス耐性を高めることができたと言える。CsBr 保護膜によって、酸素ガスに弱い Cs-Te フォトカソードが酸素と相互作用しにくくなったため、Q.E.の減少が抑えられ、 $L_0$ が増加した。CsBr 保護膜の付与によって $L_0$ が増加した理由を、我々はそのように考えている。

次に Fig. 4 から、CsBr 膜厚が20nm よりも厚くなった時、 $L_0$ の値は減少していることが分かる。CsBr 保護膜が厚みを増していくと、 $L_0$ はある一定の値に収束していく、と我々は予想していた。再現性があることから、単純にCsBr 保護膜が厚くなるようコーティングすればいいわけではないことが明らかとなった。CsBr 膜厚が20nm を超えると $L_0$ の値が減少し始める理由については、次のような可能性が考えられる。

- (1) CsBr 膜厚)+(表面の酸素分子の層)の厚さが電子の散乱距離を上回り、電子がフォトカソード表面から飛び出す確率が低下したから。
- (2) 表面の酸素分子が Cs-Te フォトカソードと相互作用しなくなり、Cs-O 双極子が形成されなくなったから。

現時点で、結論を導くことはできず、今後の課題となっている。

CsBr 膜厚が20nm までは $L_0$ は増加すること、20nm 以上の膜厚では $L_0$ は減少していること。以上の2点から、Cs-Te フォトカソードに 20nm の CsBr 保護膜を付与すると、最も Cs-Te フォトカソードの酸素ガスへの耐久性を高めることができる、と結論付けられる。

### 3.2 暴露量で決まる寿命の酸素暴露前の Q.E.依存性

CsBr 保護膜を Cs-Te フォトカソードに付与すると、Q.E.が大きく低下してしまうことが、当研究室をはじめ様々な研究機関で確認されている[5]。参考のために、最も $L_0$ が

大きくなった、Cs-Te フォトカソードへ約 20nm の CsBr 保護膜を付与した時の相対的な Q.E.変化を Fig. 5 に示す。Figure 5 は CsBr 保護膜をコーティングする前の Q.E.を1とした時の Q.E.の変化を示している。CsBr コーティング前の Q.E.はおよそ 2%であった。つまり、CsBr を 20nm コーティングする過程で、Q.E.が初めの約 2 割、約 0.4%にまで低下していることが分かる。

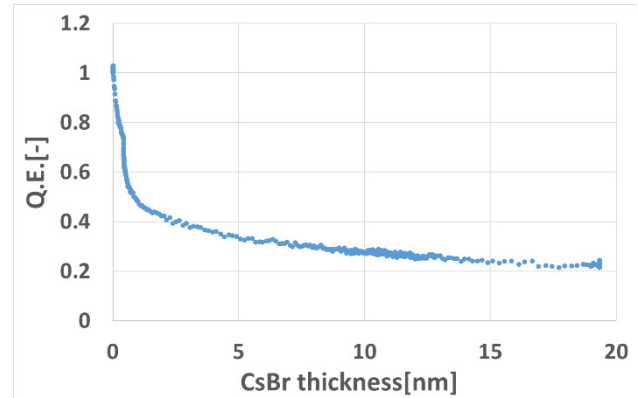


Figure 5: Q.E. of CsBr-coated Cs-Te photocathode as a function of CsBr thickness.

CsBr をコーティングしない場合、Cs-Te フォトカソードは2~3%近い Q.E.を持つ。そのような Q.E.の大きいカソードに酸素ガスを暴露した場合、もともと 0.4%ほどの Q.E.である保護膜付き Cs-Te フォトカソードよりも Q.E.が大きく低下する可能性がある。酸素ガス暴露後の Q.E.の低下が大きければ、必然的に $L_0$ の値は小さくなる。つまり、保護膜なしの Cs-Te フォトカソードの $L_0$ が小さくなるのは、酸素ガス暴露前の Q.E.が保護膜付き Cs-Te フォトカソードに比べて高いため、という可能性がある。

そこで追加の実験として、酸素ガス暴露前の Q.E.をそろえて、暴露実験を行った。Figure 6(a)に CsBr 保護膜を 20nm 蒸着した Cs-Te フォトカソードに酸素暴露をした時の Q.E.と圧力の時間変化を、Fig. 6(b)に Fig. 6(a)から求めた Q.E.ーラングミュアプロットを、Fig. 7(a)に酸素暴露前の Q.E.を約 0.5%にした、CsBr 保護膜を付与していない Cs-Te フォトカソードの Q.E.と圧力の時間変化を、Fig. 7(b)に Fig. 7(a)から求めた Q.E.ラングミュアプロットをそれぞれ示す。さらに、Fig. 6(b)と Fig. 7(b)より求めた暴露量で決まる寿命 $L_0$ の値を、Table 1 に示す。寿命の単位はラングミュアであり、その定義は Eq. (3)で与えられる。

Table 1: Lifetime of Coated and Non-coated Cs-Te Photocathodes

CsBr 保護膜の有無	暴露量で決まる寿命 $L_0$ [L]
あり(20nm)	0.83
なし(0nm)	0.16

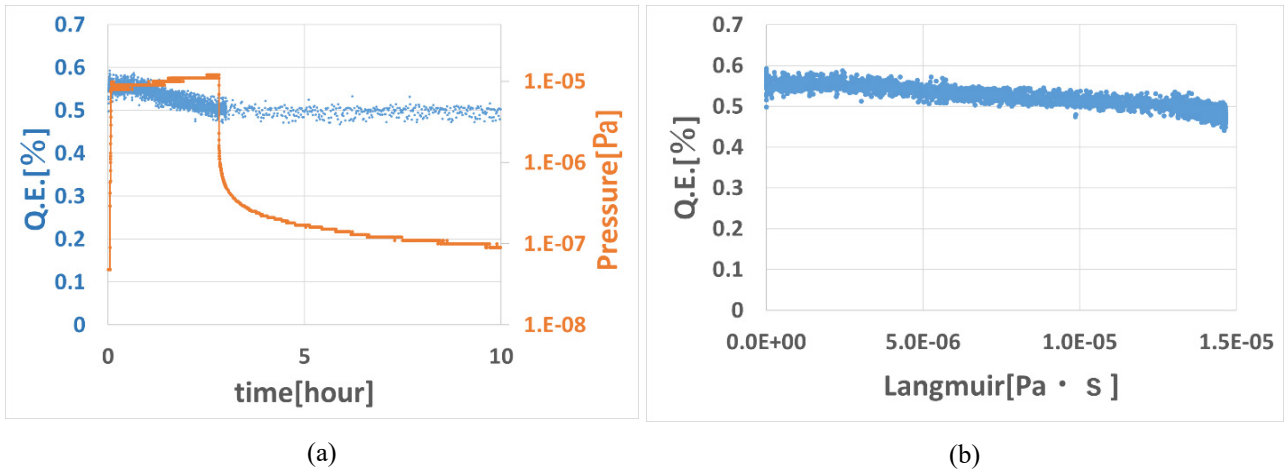


Figure 6: Experimental results of 20nmCsBr-coated Cs-Te photocathode. (a) Q.E. and pressure as a function of leaking time. (b) Q.E. as a function of Langmuir.

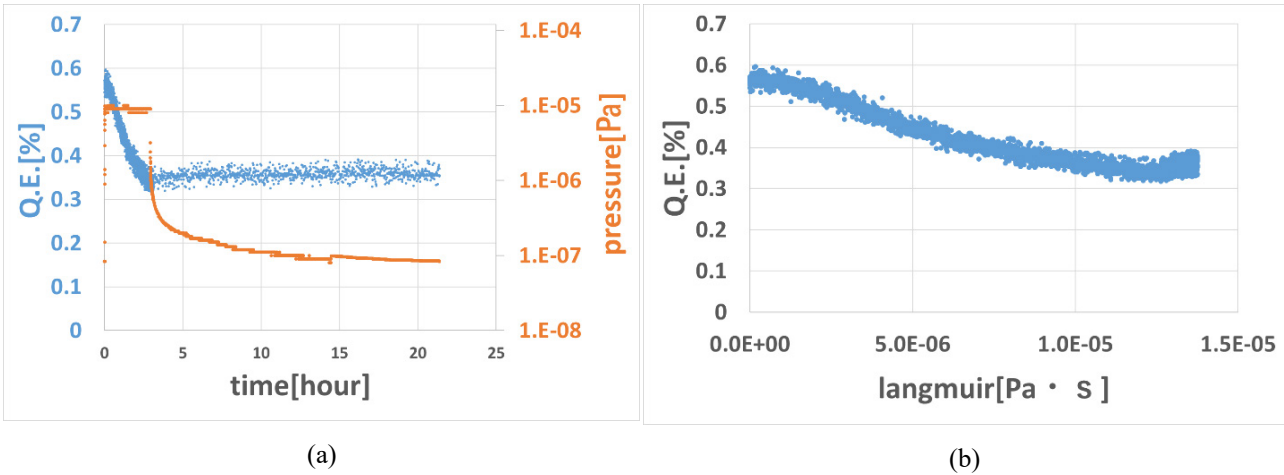


Figure 7: Experimental results of non-coated Cs-Te photocathode. (a) Q.E. and pressure as a function of leaking time. (b) Q.E. as a function of Langmuir.

酸素暴露前の Q.E.を揃えて実験を行った場合、Table 1 より、CsBr 保護膜を 20nm コーティングした Cs-Te フォトカソードの方が、コーティングしていない Cs-Te フォトカソードよりも、 $L_0$ の値が大きくなっていることが分かる。これによって、 $L_0$ は酸素暴露前の Q.E.に大きく依存していない可能性が示された。加えて、酸素暴露前の Q.E.によらず、CsBr が Cs-Te フォトカソードの保護膜として有用であることが示された。

#### 4. 結論

今回我々は、Cs-Te フォトカソードに CsBr 保護膜を付与し、CsBr 保護膜付き Cs-Te フォトカソードを作成した。作成したフォトカソードそれぞれに酸素ガスを暴露することで意図的にフォトカソードを劣化させ、暴露量で決まる寿命 $L_0$ を求めた。その結果、 $L_0$ は CsBr 膜厚が 0~20nm では膜厚の増加に伴って増加し、20nm 以上では膜厚の増加とともに減少する傾向が存在することが分かった。さらに、追加の実験として酸素暴露前の Q.E.をそろえて、

酸素暴露実験を行った。その結果、保護膜あり(20nm)のフォトカソードの方が保護膜なしのフォトカソードよりも $L_0$ が約 5 倍大きくなることが分かった。これらの結果によって、CsBr が Cs-Te フォトカソードの保護膜として有用であることが示された。そして Cs-Te フォトカソードの寿命をなるべく延ばしたい場合は、Cs-Te フォトカソードに約 20nm の CsBr 保護膜をコーティングするのが最適であると結論付けられた。

今後は酸素暴露前の Q.E.依存性、Q.E.変化の酸素圧力依存性について、さらなる試験を行う。

#### 参考文献

- [1] D.H. Dowell *et al.*, "Cathode R&D for future light sources", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 622 685-697,2010;  
[https://www.classe.cornell.edu/rsrc/Home/Research/ERL/ERL\\_Pubs2010/Deflecting\\_cavity.pdf](https://www.classe.cornell.edu/rsrc/Home/Research/ERL/ERL_Pubs2010/Deflecting_cavity.pdf)
- [2] T. Rao *et al.*, "Photocathodes for energy recovery linacs", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 557 124-130, 2006;

<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900205019844>

- [3] A. di Bona *et al.*, "Auger and x-ray photoemission spectroscopy study on Cs:Te photocathodes", *Journal of Applied Physics* 80,3024, 1996; <https://aip.scitation.org/doi/pdf/10.1063/1.363161>
- [4] Lei Guo *et al.*, "A STUDY OF BEAM LIFETIME OF NEA-GaAs CATHODE", proceedings of the 8th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, 2011; [http://www.pasj.jp/web\\_publish/pasj8/proceedings/poster/TUPS116.pdf](http://www.pasj.jp/web_publish/pasj8/proceedings/poster/TUPS116.pdf)
- [5] E Shefer *et al.*, "Photoelectron transport in CsI and CsBr coating films of alkali antimonide and CsI photocathodes", *Journal of Applied Physics* 92, 4758, 2002; <https://aip.scitation.org/doi/pdf/10.1063/1.1505684>