

## イリジウム・セリウム光陰極材料の高性能化に向けた研究開発

### IMPROVEMENT OF PHOTOEMISSION PROPERTIES OF IRIIDIUM CERIUM

佐藤大輔<sup>#, A)</sup>, 澁谷達則<sup>A)</sup>, 小川博嗣<sup>A)</sup>, 田中真人<sup>A)</sup>, 黒田隆之助<sup>A)</sup>, 吉田光宏<sup>B)</sup>, 豊川弘之<sup>A)</sup>  
Daisuke Satoh<sup>#, A)</sup>, Tatsunori Shibuya<sup>A)</sup>, Hiroshi Ogawa<sup>A)</sup>, Masahito Tanaka<sup>A)</sup>, Ryunosuke Kuroda<sup>A)</sup>,  
Mitsuhiro Yoshida<sup>B)</sup>, Hitoshi Sugawara<sup>C)</sup>, Hiroyuki Toyokawa<sup>A)</sup>

<sup>A)</sup> National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST)

<sup>B)</sup> High Energy Accelerator Research Organization (KEK)

#### Abstract

Iridium cerium (Ir-Ce) is a metal compound which has a low work function (under 3.0 eV) and a high melting point (1900 – 2250 °C). The quantum efficiency (QE) is 0.02 to 0.04 % at UV wavelength (266 nm) after laser cleaning. In practical use of it as photocathode, spatial uniformity of the QE is essential to generate a high charge and low emittance electron beam from it. In our group, we have been studying the surface cleaning technique for Ir-Ce photocathode and improvement of the quality of Ir-Ce compound in order to make the QE distribution uniform. As a result of the optimized laser cleaning, the spatial uniformity of the QE in Ir-Ce photocathode was drastically improved.

#### 1. はじめに

光陰極とは、光電効果を用いて物質中から電子を自由空間に放出させる電子源の総称である。光陰極は、他の電子源とは異なり、生成する電子ビームの(1)大電流(または高電荷)と低エミッタンスの両立や、(2)3次元形状制御[1]、(3)スピン偏極[2]といった操作を可能にする点が大きな特徴である。以上のような利点から、光陰極はX線自由電子レーザー(XFEL[3])やエネルギー回収型リニアック(ERL[4])に代表される先端光源加速器やILC[5]などの次世代衝突型加速器への採用が検討されており、最先端電子加速器において重要な要素技術の一つである。

電子加速器において、最終的に得られる電子ビーム性能(電流量、エミッタンス、パルス幅、エネルギー拡がり等)は、電子生成時のビーム品質に大きく依存する。光陰極は、高品質(高輝度、低エネルギー拡がり等)な電子ビームが生成可能な電子源ではあるが、目標とする品質の電子ビームを長期安定的に供給するためには、量子効率(Quantum Efficiency, QE: 入射光子数に対する放出光電子数の割合)が十分高く、かつ加速器のメンテナンス周期程度の期間は十分に維持できる1/e寿命を持つ光陰極材料を選定することが非常に重要となる。しかし、この量子効率と1/e寿命の関係は、常に光陰極の実用上の大きな問題となっている。以下では、代表的な光陰極材料を例に各々の特徴について述べる。

NEA (Negative Electron Affinity)-GaAs は、スピン偏極電子ビームの生成が可能であり、高いQE(530nmで10%以上[6])を持つことが大きな特徴である。しかし、H<sub>2</sub>O、O<sub>2</sub>などの残留ガス分子によって陰極性能が失われやすいため、ロバスト性に大きな問題がある。次に、セシウム(Cs)やカリウム(K)などを薄膜蒸着することで優れた機能を発現するCsK<sub>2</sub>Sbなどのマルチアルカリ金属光

陰極は、NEA-GaAs 光陰極と比較するとロバスト性が高く、QE もそれぞれ 10%以上@532nm[7]と高いことから、特に大電流生成用の電子銃で多く採用されている[8, 9]。しかし、1/e 寿命は、陰極の運用真空環境で大きく変動し、例えばCsK<sub>2</sub>Sb 光陰極では10<sup>-7</sup> Pa以下の環境下で寿命は1000時間程度[10]しかないといった問題がある。これらの光陰極材料とは対照的に、純金属光陰極材料(Cu, Mg, Pb等)は、量子効率が10<sup>-3</sup>~10<sup>-2</sup>%[11]と非常に低く、さらには光励起に紫外光源が必要である。また、運用前には表面研磨や化学処理、レーザークリーニングやイオンビームクリーニング、アニーリングといった様々な表面処理が必要となる[12]。しかしながら、1/e 寿命が非常に長い(~1年[13])ため、高出力レーザーシステムと組み合わせることで、例えばシングル電子バンチ運転などの平均電流を必要としない電子ビームの運用においては、長期メンテナンスフリーで連続安定運転可能な電子銃システムを構築できる点は大きな利点である。さらには、純金属光陰極は光電子放出に寄与する領域が最表面から数nm程度に限られることで光照射に対する応答速度が速く、fsオーダーの極短パルスの電子ビームを生成可能であり、超短パルス高速電子線回折(UED)などの高時間分解計測などへの電子ビーム利用を可能にしている。

産総研では、電子加速器を用いた先端計測技術開発と標準確立を目指した計測技術開発、および技術の橋渡しを目的とした量子ビーム利用拠点構築を進めており、その目標に向けて、現在は光陰極型電子銃をはじめとした電子源・電子銃の研究開発を重点的に行っている。また、高エネルギー加速器研究機構(KEK)と連携してSuperKEKB電子入射器用電子銃に関する研究開発を行っている。我々は、上記の二つのプロジェクトの実現に向けて共通の課題である、「高品質な電子ビームを長期安定的に供給できる長寿命でロバストな光陰極材料の研究開発」を行っている。我々は特に、イリジウム・セリウ

<sup>#</sup> dai-satou@aist.go.jp

ム(Ir-Ce)化合物という二元系金属化合物に着目し、材料開発から光陰極としての利用可能性の検証まで行ってきた。本稿では、イリジウム・セリウム光陰極の性能評価等の現状について報告する。

## 2. Ir-Ce 化合物

Ir-Ce 化合物は大気中で安定な金属であり、Irリッチの組成において 1900°C~2250°C[14]という高い温度範囲に融点を持つ二元系金属化合物である。Ir-Ce 化合物は、3.0 eV 以下の仕事関数を持つことが報告されており、イオン衝撃や表面汚染に高い耐久性を持つこと[15]が知られている。また、光陰極としての性能については、波長 266nm の紫外光に対する量子効率が約 0.02~0.04%と、大気中で安定な金属としては、比較的高い量子効率をもつことがわかっている[16]。1/e 寿命に関しては厳密には確定していないが、KEK の電子入射器において Ir<sub>7</sub>Ce<sub>2</sub> 光陰極を用いた高周波電子銃を運用し、約二年間、光陰極の交換と特別な表面処理(レーザークリーニング等)を行うことなく、メンテナンスフリーで 0.01%の量子効率を維持することに成功した実績がある[17]。以上のように、Ir-Ce 化合物は実際に電子加速器に光陰極材料として搭載され、運用するフェーズまで到達し、コミッションを通じた長期間の電子生成実験を経て、実利用環境での利便性の高さと光陰極としての優れた特性が明らかになりつつある。

現在、Ir-Ce 化合物の光陰極として運用は、KEK で建設が進められている SuperKEKB 加速器で開始している。当該プロジェクトでは、5nC/bunch の高電荷電子ビームを 20 mm-mrad 以下の低エミッタンスで長期安定的に生成する電子銃システムが求められている。しかし、要求されるバンチ当たりの電荷量が大きく、空間電荷効果によるビームの発散効果によってビームエミッタンスの増大とビーム損失が深刻な問題となる。大口径(直径 6~8mm)の光陰極を使用して、空間分布が均一なレーザーパルスで大面積で均一に照射することで、大口径の電子ビームを生成し、空間電荷効果によるビーム損失とエミッタンス増大効果をできるだけ低減しながら電子ビームを加速するようなスキームで要求性能の実現を目指している[16]。このような方法で、光陰極から高電荷・低エミッタンスの電子ビームを生成するためには、光陰極表面の量子効率の空間一様性が非常に重要となってくる。そこで、我々は Ir-Ce 光陰極の光電子放出面上で量子効率空間分布を一様にするため、①表面処理方法の研究と②材料自体の改良に取り組んでいる。本稿では、特に①に関する取り組みの現状について述べる。

## 3. 表面処理

純金属系光陰極や LaB<sub>6</sub>、Ir-Ce といった金属化合物系光陰極は、大気中で安定な物質であるため、電子銃にロードロックシステム等が不要で取り扱いやすい。しかしながら、大気中での取り扱いの際に、陰極表面に不純物が付着し、量子効率が低下する。また、このような不純物の付着は、陰極表面の不均一な量子効率空間分布を生じさせ、発生する電子ビームの空間プロファイルに大

きく影響する。これらの問題を解決するためには、一般に、(1)レーザークリーニングや(2)アニーリング、(3)イオンビームクリーニングといった表面処理プロセスを施すことで改善される。本研究では、Ir-Ce 光陰極に対して表面処理プロセスを施し、その前後での量子効率空間分布の変化を実験的に検証した。

量子効率空間分布の計測は、参考文献[16]の図 5 に示された量子効率測定システムを基に行った。本計測では、光陰極に約-1.0 kV の電圧を印加し、レーザー照射を垂直方向から行った。放出された光電子は、ファラデーカップで補足した後、オシロスコープ(DPO3034、Tektronix 社製)を用いて信号を検出した。光電子放出並びにレーザークリーニングによる表面処理には、パルス幅 10ns、繰り返し周波数 10Hz の Q スイッチ Nd:YAG レーザー(B. M. Industries, series 500)の第四高調波( $\lambda = 266\text{nm}$ )を用いた。レーザークリーニング並びに量子効率空間分布計測においては、CaF<sub>2</sub> 製レーザー入射窓直前の光学系を X-Y 方向に制御することで、陰極表面全体へのレーザー光の走査を可能にした。このレーザー照射システムを用いて陰極表面全体をレーザー光で走査しながら、各照射点での量子効率を計測し、最終的には 2次元量子効率空間分布を取得した。

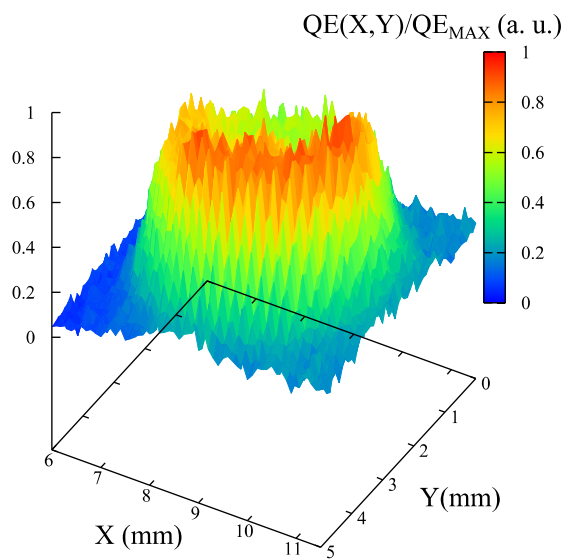


Figure 1: QE map of Ir-Ce photocathode before laser cleaning.

なお、本計測には、2018年7月現在、SuperKEKB 電子入射器の高周波電子銃に搭載されている Ir-Ce 化合物と同じインゴットから切り出したサンプルを使用した。測定サンプルの前処理として、計測前には光電子放出面を鏡面研磨し、超音波洗浄を行った。また、本計測時は常に真空容器内の圧力が  $5 \times 10^{-7}$  Pa 程度の超高真空環境を維持しながら実施した。

Fig. 1 は、レーザークリーニング処理前に計測した Ir-Ce 光陰極表面の量子効率分布を示している。このグラフの X, Y は陰極表面にレーザー光を走査しながら照射する際に制御する2つのアクチュエーターの絶対位置(mm)

を示すパラメータである。また、同グラフの縦軸とカラーバーはともに最大量子効率( $QE_{MAX}$ )の値で規格化された各点での規格化量子効率の値を示している。Fig. 1 を見れば、ある一部の領域で量子効率が著しく低くなっていることがわかる。この要因としては二つ考えられ、一つは量子効率が低い箇所の表面に不純物が付着している可能性と、もう一つは、材料そのものに著しく量子効率が異なる組成や結晶方位が存在しており、その違いが表れている可能性がある。仮に原因が前者であれば、レーザークリーニングを行うことで量子効率空間分布の不均一さが改善される可能性が高い。

Fig. 2 は、Fig. 1 の計測で使用した測定サンプルに対してレーザークリーニングを施した後に、再度計測した規格化量子効率の空間分布を示している。レーザークリーニングとして、パルスエネルギーが約 500  $\mu\text{J}$  のレーザーパルスをおおよそ 2000 shots/ $\text{mm}^2$  の密度でサンプルに照射した。その結果、Ir-Ce 光陰極の量子効率空間分布は Fig. 2 に示すように大幅に改善され、レーザークリーニングによる量子効率の均一化を図ることができた。

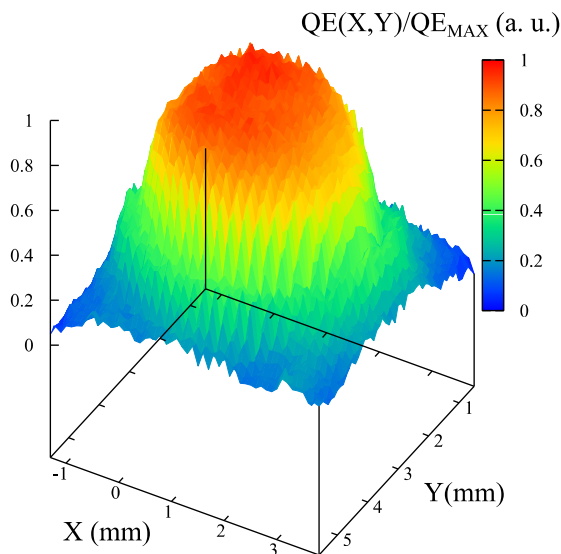


Figure 2: QE map of Ir-Ce photocathode after optimized laser cleaning.

#### 4. まとめ

Ir-Ce 光陰極に対して量子効率空間分布の均一化を目指した表面処理法に関する研究を行った。その結果、ナノ秒のパルス幅を持つ紫外光を用いて、最適条件でレーザークリーニングを施すことで量子効率空間分布を大幅に改善することに成功した。今後は、「量子効率空間分布に由来するビームプロファイルの不均一さ」から生じる、高周波電子銃内での様々な影響(ビーム損失、エミッタンス増大等)を数値シミュレーションで定量的に算出し、最終的に必要なビームパラメータの実現に向けて、必要な量子効率の空間分布一様性を詳細に検討する。

#### 謝辞

本研究の一部は、NEDO 事業「高輝度・高効率次世代レーザー技術開発」プロジェクトの一部として行われました。

#### 参考文献

- [1] H. Tomizawa, J. Vac. Soc. Jpn. 55, 2 (2012).
- [2] K. Togawa *et al.*, Nucl. Instr. and Meth. A 455, 118 (2000).
- [3] The Technical Design Report (TDR) of the European XFEL (2007).
- [4] Design Study of Compact ERL, KEK-Report 2007-7 (2007).
- [5] ILC Technical Design Report, KEK Report 2013, (2013).
- [6] D.H. Dowell *et al.*, NIMA 622 pp.685-697 (2010).
- [7] L. Guo *et al.*, PTEP (2017) 0033G01.
- [8] C. Hessler *et al.*, in Proceedings of IPAC2016, Busan, May8-13, 2016, pp. 3960 - 3963.
- [9] R. R. Mammei *et al.*, PRSTAB, 16, 033401 (2013).
- [10] M. Kuriki *et al.*, in Proceedings of PASJ2017, WEOM07 (2017).
- [11] T. Shrinivasan-Rao *et al.*, J.v Appl. Phys. 69(5), 3291 (1991).
- [12] T. Nakajyo *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. 2003, 42, pp.1470 - 1474.
- [13] E. J. Montgomery, "Characterization of Quantum Efficiency and Robustness of Cesium-based Photocathodes" PhD Thesis, University of Maryland, Baltimore (2010).
- [14] T. B. Massalski *et al.*, Binary Alloy Phase Diagrams. 2nd ed. Vol 2. ASM International, Ohio, 1990.
- [15] G.I. Kuznetsov, Journal of Physics: Conference Series 2, 35 (2004).
- [16] D. Satoh *et al.*, in Proceedings of PASJ2017, WEP106 (2017).
- [17] D. Satoh *et al.*, Energy Procedia 131, 326 (2017).