

# マルチアルカリ高量子効率・高耐久フォトカソードの研究

## STUDY OF MULTI-ALKALI PHOTOCATHODE TO REALIZE HIGH QUANTUM EFFICIENCY AND HIGH ENDURANCE

清宮 裕史, 栗木 雅夫, 山本 記史, 郭 磊, 横田 温貴 (広島大学院先端研)

Yuji Seimiya, Masao Kuriki, Norihito Yamamoto, Lei Guo, Atsuki Yokota (Hiroshima Univ. Adsm)

### Abstract

CsK<sub>2</sub>Sb multi-alkali photocathode is considered to be one of the best candidate of the high brightness electron source of the advanced electron accelerator such as Energy Recovery Linac (ERL) and Free Electron Laser (FEL) because of the excellent features: high quantum efficiency, long lifetime, and driven by green laser. We developed an evaporation system to study the cathode performances, such as quantum efficiency (QE) and the cathode lifetime. CsK<sub>2</sub>Sb thin film cathode was successfully made in this chamber. The cathode lifetime was measured and the result suggests that the cathode has an extremely long lifetime regarding to the extracted charge density.

## 1. 導入

フォトカソードは、電子発生に適切なレーザーを使用することで、発生する電子ビームの時間や空間方向に高い操作性を実現し、低エミッタンス、短パルスといった、通常の熱カソードでは生成が難しい優れたビーム性能を実現する。そのため ERL<sup>[1]</sup> や FEL といった、高輝度電子ビームを要求する先端的な線形電子加速器の電子源に必要不可欠な装置となりつつある。例えば、ERL 放射光源においては平均電流が 10-100mA、エミッタンスが 0.1mm.mrad という高い性能が要求されている。そのため電子源のフォトカソードにはいくつかの候補がある。NEA-GaAs カソードは赤色励起で QE が 10% を超える非常に高い量子効率を持つが、耐久性が低く、長時間の大電流運転には、現状では耐えられるか定かではない。Mg や Sm といった純金属系カソードは非常に高い耐久性を持つが、量子効率が 10<sup>-2</sup>% 未満と低く、励起に紫外光が必要となるため、大電流の運転は難しい。一方、マルチアルカリカソードは緑色励起、10% 程度の高量子効率、高耐久といった優れた特徴がある。緑色励起可能であるため、Nd:YAG や Yb:YAG といった固体レーザーの二倍波を利用することができ、高いレーザーパワーが得やすい。コーネル大学における大電流引き出し試験において、60mA の引き出し電流で QE が 1e とするまでの時間がおおよそ 30 時間という良好な結果を得ている<sup>[2]</sup>。

広島大学では、この CsK<sub>2</sub>Sb カソードのため、独自の蒸着装置を制作し、QE やカソード寿命といったマルチアルカリカソードの性能評価を行った。我々の蒸着システムでは、超高真空中でアンチモン (Sb)、カリウム (K)、セシウム (Cs) を使用する。典型的な真空度は約 5 × 10<sup>-9</sup>Pa である。一般的に、これらの物質から精製される化合物は 1 つではなく、Cs<sub>3</sub>Sb、Cs<sub>2</sub>KSb、CsK<sub>2</sub>Sb、K<sub>3</sub>Sb と様々であり、我々の実験においてどの化合物が生成されているかは定かではない。CsK<sub>2</sub>Sb の QE が高いという報告や<sup>[3][4]</sup>、結晶性のよいマルチアルカリは高い QE を持つといった報告がなされているが<sup>[5]</sup>、その基板温度、蒸着速度、膜厚といったカソード生成条件は詳しく判明していない。一方、最近では、単に結晶性

がよければいいというわけではなく、立方晶を作ることが高い QE を達成するために必要であることがわかってきた<sup>[6]</sup>。本研究においては、各々物質の蒸着条件、すなわち基板温度、蒸着膜厚、蒸着速度、などを指標として、量子効率およびその劣化特性としての寿命を評価し、最適な条件を探り、一定レベルの QE、寿命を持つカソード蒸着法を確立した。

## 2. 蒸着システム

広島大学で開発しマルチアルカリカソードの蒸着試験システムの概略を Fig. 1 に示す。このシステムでは、マルチアルカリカソードは蒸着によって生成され、レーザー光電効果によって生じる電流測定による QE 測定、カソード寿命測定が可能である。また、カソード蒸着過程における膜厚や基板温度は、カソード性能に大きく影響する<sup>[7]</sup>。基板上の膜厚を推定するために水晶振動子による膜厚計が実装されている。蒸着中もモニターできるように膜厚計は蒸着源に対して基板と対称になるよう設置されており、蒸着源についても対称に蒸気を発生するよう設計されている。また、基板には基板温度を測定し、コントロールするための熱電対、ヒーターが取り付けられている。さらに、レーザーを基板に対して斜めから入射することで膜厚計との干渉を避けることができ、これによって QE と膜厚の同時測定が可能となっている。基板には 30mm × 30mm の SUS304 を使用している。レーザーが外部よりビューポートを通して入射するが、レーザー入射路にミラーを乗せた移動ステージを設置し、基板上でレーザー照射位置を二次元的に走査することが可能である。実験で使用するレーザーは約 8mW の 473nm 青色レーザーと、約 0.7mW の 532nm 緑色レーザーの二種類である。

マルチアルカリカソード生成や、電子引き出しの際には超高真空が必要である。超高真空用の排気装置としてイオンポンプ、NEG が取り付けられており、基本真空度は 5 × 10<sup>-9</sup>Pa 程度であり、蒸着時は 10<sup>-8</sup> ~ 10<sup>-7</sup>Pa 程度である。

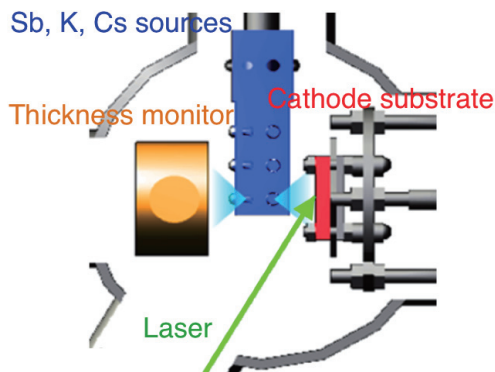


Figure 1: A schematic drawing of evaporation system in Hiroshima University.

### 3. レーザーパワー変動の評価

レーザーパワーの変動は QE 測定に誤差を与えるため、これを出来る限り抑制した上で、その変化をモニターする必要がある。本システムの光学系では、レーザーをビームサンプラーで数%だけ反射し、その反射光を PIN フォトダイオードで測定しレーザーパワーの変動をモニターしつつ、QE 測定を行うことができる。パワーの変動は、主に温度や電源の揺らぎに依存すると考えられる。そこで、チラーを用いてレーザー筐体の温度を調整している。測定の結果、レーザー筐体の温度 17℃付近で、青色レーザーパワーの変動が 30 分で rms にして 2.2%となった。

レーザー光の一部を遮蔽した状態（いわゆるナイフエッジ測定）で、レーザーパワーの変動を測定することで、レーザーの位置変動を見積もることができる。なぜなら、レーザー光を半分遮蔽するようにナイフを設置した状態で測定されたパワー変動の相対値は、レーザー位置が揺らぐことによる変動と、レーザーパワー全体の変動とを含んでいるからである。この状態で測定される相対的なパワー変動  $P_{x,m}$  は次のように書き表すことができる。

$$(\Delta P_{x,m})^2 = (C_x \Delta x)^2 + (\Delta P_{time})^2. \quad (1)$$

ここで、 $\Delta P_{time}$  は全体のレーザーパワーの相対的変動であり、この値は前段落にて記述した 2.2% に相当する。 $\Delta x$  は位置変動、 $C_x$  は相対的パワーの位置に対する微分係数で、ナイフエッジ測定における傾きとして測定可能な量である。ナイフエッジは 45° と 135° 傾いた 2 つのカッターの刃を V 字型にして、それを水平に移動させてレーザー光を遮蔽する位置を変えることにより、二軸上でのレーザーのプロファイリングを行う。このとき、二つの刃の方向を U 軸、V 軸とする。測定時間 30 分では、青色レーザーで  $\Delta P_{u,m} = 3.7\%$ 、 $\Delta P_{v,m} = 2.9\%$  であった。

ナイフエッジによるレーザーキャンを Fig. 2 に示す。Fig. 2 の左半分のプロットが U 軸、右半分のプロットが V 軸スキャンに相当する。このときのレーザーのサイズは、それぞれ  $\sigma_u = 0.41\text{mm}$ 、 $\sigma_v = 0.45\text{mm}$  であった。測定場所がカソードから離れているため、カソード上でのスポットサイズとは異なる値をとる。Fig. 2 から、ナイフエッジ測定における傾き、すなわち微分係数は

$C_u = 0.941/\text{mm}$ 、 $C_v = -0.869/\text{mm}$  となる。以上の量を用いて、Eq. (1) から青色レーザーの位置変動は、およそ  $\Delta u = 0.031\text{mm}$ 、 $\Delta v = 0.022\text{mm}$  であった。ナイフエッジにより測定されたビームサイズは 0.4 - 0.5mm 程度であるから、レーザーサイズに対するこの揺らぎは、U 軸で 7.6%、V 軸で 4.9% 程度となる。つまり、相対的レーザーサイズ変動は  $\Delta\sigma_u = \sqrt{1 + 0.076^2} - 1 = 0.29\%$ 、 $\Delta\sigma_v = \sqrt{1 + 0.049^2} - 1 = 0.12\%$  であり、相対的面積変動は  $\Delta S = (1 + \Delta\sigma_u)(1 + \Delta\sigma_v) - 1 = 0.41\%$  と非常に小さいことがわかる。

次のセクションから始まる測定結果では、ビームサンプラーによるレーザーパワー変動をモニタリングしていないため、レーザーパワーの測定は蒸着源の切り替え時や寿命測定中に適宜行った。今後は、レーザーパワーのモニタリングを行い、その変動を考慮した QE の連続データを取得可能にする予定である。また、このレーザーパワー変動の測定時間は 30 分と短いため、今後は長時間の安定性を評価していく予定である。

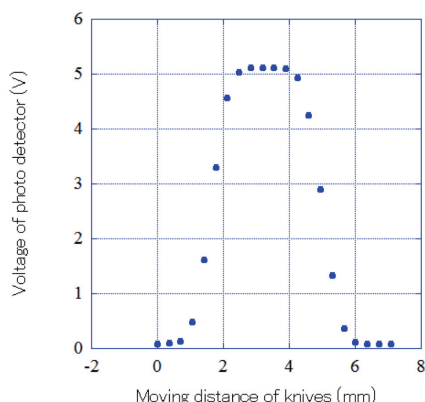


Figure 2: Knife edge scan with blue laser.

### 4. 結果

#### 4.1 カソード蒸着実験

マルチアルカリカソードを基板に Sb, K, Cs を順に蒸着させることで生成する。その典型的な手順を以下に示す。

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

蒸着中は、QE 測定を同時に行っている。このプロセスはリファレンス<sup>[8][9][10]</sup>を参考にしている。

この蒸着実験プロセスの一例を Fig. 3 に示す。QE 測定には、青色レーザーを使用している。K を蒸着し始めた後から QE が増加し始め、その後 Cs を蒸着することで QE が大きく増えていることがわかる。真空度は

Sb 蒸着時に  $2 \times 10^{-8}$  Pa 程度であり、K、Cs 蒸着の際は  $1 \times 10^{-7}$  Pa 程度であった。この蒸着時には、最終的に QE は 6% 近くまで到達した。

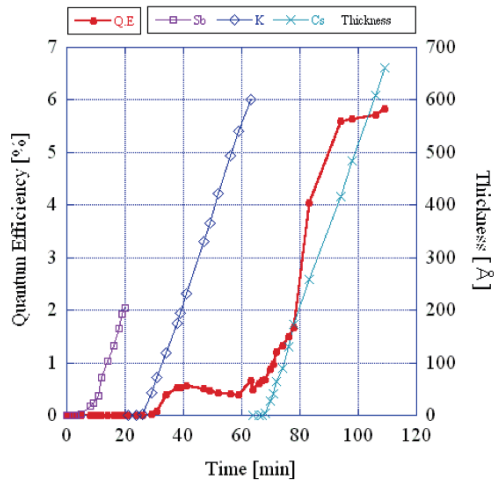


Figure 3: Time course of QE and evaporation thicknesses.

#### 4.2 カソード寿命測定

カソードの劣化として二種類の現象論的定義を考える。一つは時間経過によるカソード劣化の程度を表す時間劣化である。この寿命はビーム放射をしないときが重要となるためダーク寿命と呼ばれる。もう一つは電荷引き出しによるカソード劣化の程度を表す引き出し電荷密度劣化であり、電荷密度寿命と呼ばれる。これら二つの劣化を表現した 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、 $\eta$  は QE、 $\eta_0$  は QE の初期値、 $t$  は時間、 $\tau$  はダーク寿命、 $\rho$  は引き出し電荷密度、 $\Theta$  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ようになる。

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

カソードのダーク寿命は、基板にレーザーを照射する時間を出来るだけ短くし、引き出し電荷密度による劣化の影響が現れないよう測定する。緑色レーザーを使用してダーク寿命を測定した結果を Fig. 4 に示す。ダーク寿命  $\tau$  は 3506 時間であり、約 5ヶ月に相当する。そのため、加速器の運転時間として十分長い寿命を有することがわかった。

電荷密度寿命は連続的なレーザー照射によって測定される。この測定では、ダーク寿命測定で使われた緑色レーザーではなく、青色レーザーを使用している。青色レーザーのスポットサイズは  $0.82 \text{ mm}^2$ 、平均電流は  $90 \mu\text{A}$ 、真空度は  $2.8 \times 10^{-8} \text{ Pa}$  であった。電荷密度寿命は Eq. 2 から導出され、この結果を Fig. 5 に示す。赤プロットは、QE の時間と電荷密度劣化を示している。緑プロットは、Fig. 5 の赤プロットから、Fig. 4 で測定されたダーク寿命成分を差し引くことによって推定される電荷密度劣化を示している。ここで、カソード寿命はレー

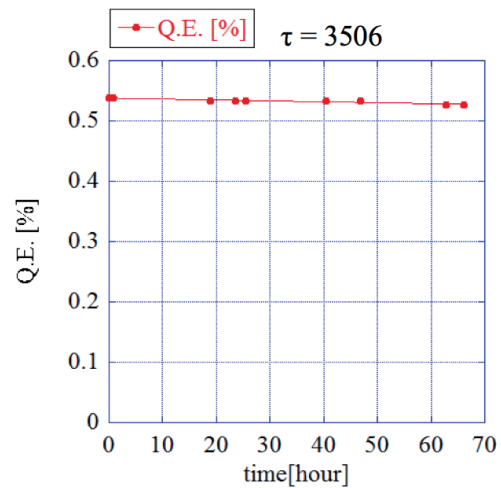


Figure 4: QE degradation caused by time course effect.

ザー波長や QE に依存しないと仮定した。このとき、電荷密度寿命  $\Theta$  は  $8300 \text{ C/mm}^2$  と推定される。仮に引き出し電流が  $100 \text{ mA}$ 、レーザースポット直径が  $3 \text{ mm}$ 、QE が  $1/e^2$  になるまでカソードを使用すると、324 時間使えることになる。これは 2 週間に相当する長さであり、典型的な定期メンテナンスの間の加速器の連続運転期間と同じである。一般的な傾向として、励起波長を短くすると、寿命は増加することが知られており、今回の二つの波長の異なるレーザーでの測定結果の差分による解析では、寿命成分を長く見積もっている可能性がある。ダーク寿命の補正をまったく行わない場合の電荷密度寿命  $\Theta'$  は、Eq. 4 によって与えられる。この実験における  $\Theta'$  は  $1220 \text{ C/mm}^2$  であった。この二つの数値から、真の電荷密度寿命は  $1200 \sim 8300 \text{ C/mm}^2$  の間にあると考えられる。この結果は、少なくとも先行研究であるコーネル大学の論文<sup>[2]</sup>の Fig. 4 から概算した  $1300 \text{ C/mm}^2$  に匹敵している。

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

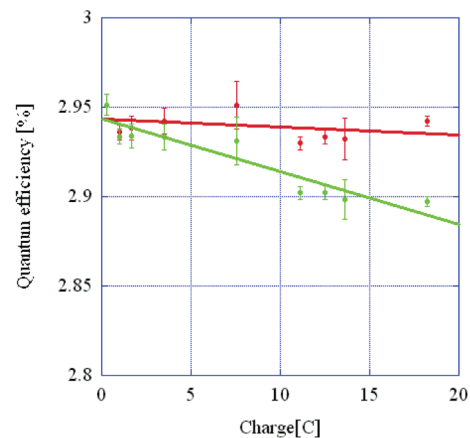


Figure 5: Green and red show that total QE degradation and QE degradation caused by extracted charge effect, respectively.



PASJ2014-MOOM06

4.3 Cs 過蒸着

我々のシステムでは、レーザー位置をスキャンすることで基板上的 QE の分布を観測できる。過去の計測から、Cs 蒸着中の QE は均一でないことが判明している [11]。先に述べた蒸着レシピを変更し、Cs を 1500Å まで過蒸着させることで Fig. 7 に示すようなほぼ均一な QE 分布を得ることができた。QE は青色レーザーで 6% 程度であった。

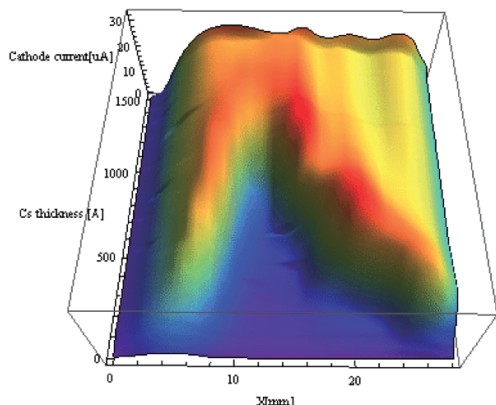


Figure 6: Time course of QE and evaporation thicknesses is shown.

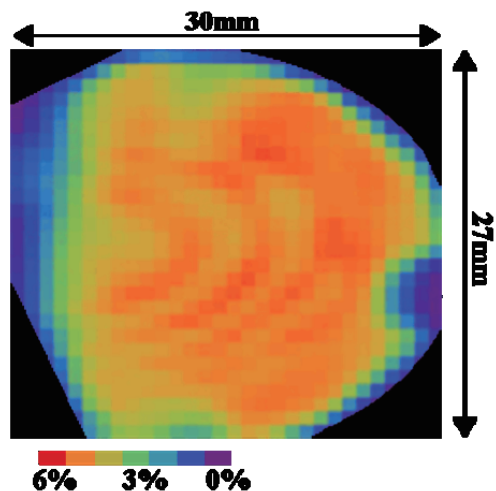


Figure 7: QE distribution on the substrate is shown.

4.4 QE と蒸着条件

カソードの高性能化を図るため、QE と膜厚、QE と基板温度との関係を調査した。Fig. 8 は QE と Sb の膜厚、Fig. 9 は QE と K の膜厚、Fig. 10 は QE と基板温度との関係を表す。Fig. 8 と Fig. 9 は、基板温度 100°C で、Fig. 10 については、同じ膜厚で測定されている。これらの QE 測定には青色レーザーを用いている。

Fig. 8 は、Sb の膜厚が 200Å 程度するとき QE が高くなることを示している。また、Fig. 9 は、QE は K の膜厚にあまり依存しないことを示している。Fig. 10 からは、QE は基板温度に大きく依存し、100°C 付近で QE が最

大となることを示している。いずれの測定に置いても、青色レーザーで 3% を超える QE を達成している。今後、これらの再現性や関係性の詳しい実験が行われる予定である。

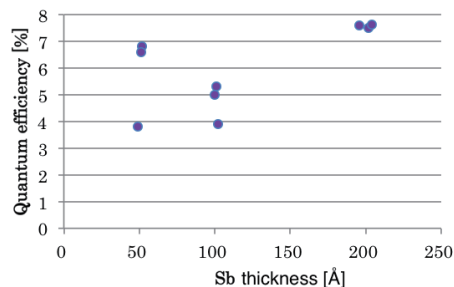


Figure 8: Relation between Sb thickness and QE.

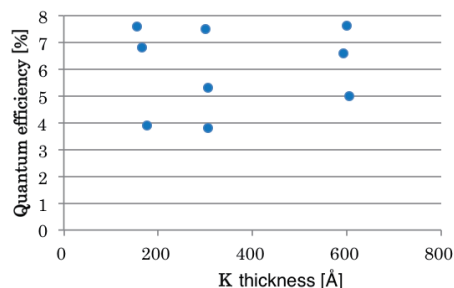


Figure 9: Relation between K thickness and QE.

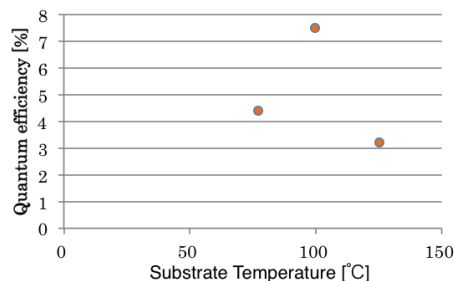


Figure 10: Relation between substrate temperature and QE.

5. まとめ

先端加速器カソードの最有力候補の一つであるマルチアルカリカソードの蒸着実験装置を設計、製作し、カソード生成に成功した。本装置により、QE やカソード寿命の測定を行い、QE と膜厚、基板温度の依存性を調査した。532nm レーザーを用いた際のカソードのダーク寿命は 3500 時間と非常に長いことが確認された。レーザー波長や QE の値によって寿命は変化しないという仮定の下では、473nm レーザーで電荷密度寿命が 8300C/mm<sup>2</sup> と高い性能を示唆する結果を得た。また、Cs を過蒸着することで一様で 473nm レーザーで QE 6% 以上の性能

を持つカソードが得られた。QE と膜厚、基板温度の依存性を研究し、Sb は膜厚が  $200\text{\AA}$  程度のとき QE が高いこと、K の膜厚はあまり QE に依存しないこと、基板温度は QE に大きく依存し、 $100^\circ\text{C}$  程度が QE が高いことが示唆された。今後は、実験の再現性を確かめるとともに、分子研 UVSOR において行っているマルチアルカリカソードの光電子分光および LEED 測定の結果と合わせて、最適なカソード生成条件の同定とその物理的解釈を行う。

## 6. 謝辞

本研究は、部分的に KEK 大学等連携支援事業、文部科学省委託事業「光・量子融合連携研究開発プログラム」、分子科学研究所共同利用研究などの支援を受けて行われた。

## 参考文献

- [1] Design Study of Compact ERL, KEK-Report 2007-7 (2007).
- [2] B. Dunhum et al., Appl. Phys. Lett. 102, 034105(2013)
- [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] S. W. Lee et al., TIPP(2011)
- [6] S. G. Schubert et al., proc. of IPAC2014, MOPRI018(2014)
- [7] R.L. Ternes et al., NIM Phys. Res. A318 (1992) 401-409
- [8] D.H. Dowell, et al., NIM Phys. Res. A 356, page167-176 (1995).
- [9] L. Cultrera, et al., proc. of PAC'11, wep244(2011).
- [10] J. L. McCarter, et al., proc. of PAC'11, wep284 (2011).
- [11] M.Kuriki et al., proc. of IPAC2013, MOPFI013(2013)