

# CsBr 保護膜付与による Cs-Te 光陰極寿命改善効果に関する研究

## STUDY ON EFFECTIVENESS OF CsBr PROTECTIVE FILM ON Cs-Te PHOTOCATHODE

全 炳俊<sup>#</sup>, 梅村 勇輔, Sikharin Suphakul, 紀井 俊輝, 増田 開, 大垣 英明  
Heishun Zen<sup>#</sup>, Yusuke Tsugamura, Suphakul Sikharin, Toshiteru Kii, Kai Masuda, Hideaki Ohgaki  
Institute of Advanced Energy, Kyoto University

### Abstract

High quantum efficiency and robust photocathodes are key component for advanced accelerators driven by photocathode RF guns. A possible candidate is the Cs-Te photocathode with CsBr protective film which has been reported as a photocathode having high quantum efficiency and robust feature by a group in Los Alamos National Laboratory. However, another group reported that they could not improve the lifetime of Cs-Te photocathode by adding CsBr protective film. The effectiveness of CsBr protective film on the Cs-Te photocathode is unclear. We have started our research work on the CsBr protective film on the Cs-Te photocathode. The developed vacuum evaporation system and first results on Cs-Te and CsBr evaporation are shown in this report. The material compositions of the Cs-Te and CsBr film were measured by Rutherford Backscattering Spectrometry. The analysis results are also discussed in this report. Furthermore, quantum efficiency of Cs-Te photocathode depending on the thickness of CsBr protective film has been measured. A first sample of Cs-Te photocathode with 20-nm CsBr protective film has been fabricated and lifetime lengthening effect has been investigated. The lifetime of the first sample was around 11 hours and no significant improvement of the cathode lifetime could not be observed.

### 1. はじめに

Cs-Te は高量子効率光陰極材料として知られており、DESY の FLASH では高周波電子銃中においては 5%を超える量子効率を 150 日以上に渡り維持し、使用する事が出来たとの報告がある<sup>[1]</sup>。しかし、この様な長寿命を達成するには、電子銃中の真空度を常に  $1 \times 10^{-9}$  Torr 以下に保つこと、フッ素等による電子銃及び真空層の汚染源を除く事が必要である。FLASH では電子銃直後のビームライン中真空層内にて使用されていたテフロン製のワッシャーを除去する事で、劇的に寿命が改善したとの報告がある<sup>[2]</sup>。しかし、高周波電子銃中の真空を  $1 \times 10^{-9}$  Torr 以下に常に保ち、清浄な真空条件を実現するのは、容易なことでは無く、多くの施設では、150 日という長い寿命を実現するには至っていないのが現状である。

そこで、高量子効率、長寿命を比較的容易に実現可能な真空条件下で維持可能な光陰極を実現する為に考えられた手法が光陰極表面に保護膜を付与する手法である。例えば、K-Cs-Sb 陰極に CsBr 保護膜を付与する事で、25 分間の間、150 Torr の酸素雰囲気中に保持しても急激な量子効率の低下の生じない(初期量子効率 5.3%@312nm → 3.6%)耐久性の有る光陰極が実現されている<sup>[3]</sup>。

高周波電子銃用保護膜付き陰極に関しては、Los Alamos National Laboratory の Regenerative Amplifier FEL 用 L-Band 高周波電子銃で使用された Cs-Te 上に CsBr 保護膜を付与した陰極に関する報告がある<sup>[4]</sup>。この論文では、真空度等の条件は不明であるが、

Cs-Te 蒸着直後の量子効率は 10%程度であり、この上に 4 nm 厚の CsBr を蒸着した際に量子効率は 5%程度まで低下したが、2 ヶ月間の間、量子効率低下の兆候は見られなかったと報告されている。一方、CERN の光陰極開発グループでも CsBr 保護膜付き Cs-Te 陰極成膜実験が行われたが、蒸着直後の量子効率が 4.3%であった Cs-Te 光陰極に 2 nm 厚の CsBr 保護膜を蒸着した際に量子効率が 1.2%に低下し、その後、長期保管して寿命調査を行った所、保護膜の有無による有意な寿命改善効果は見られなかったとの結果が報告されている<sup>[5]</sup>。

我々の研究グループでは、Cs-Te 光陰極に対する CsBr 保護膜の有効性を明らかにするため、Cs-Te および CsBr が蒸着可能な真空蒸着装置を設計、製作した。本プロシーディングスでは、開発した真空蒸着装置について報告すると共に、これまでに得られた実験結果について報告する。

### 2. Cs-Te、CsBr 真空蒸着装置

#### 2.1 全体概要

図 1 に装置の全体構成を示す。装置は図上側の蒸着チェンバーと、下側の陰極交換用チェンバーとで構成される。蒸着チェンバーには水晶式膜厚計 (INFICON 社製 QCM センサー-UHV 水晶式検出器) と蒸着源ホルダー、陰極マスク & マウントが直線上に配置されており、Te および CsBr 膜厚を膜厚計により測定する事が可能である。陰極ホルダー及び陰極は真空槽と絶縁されており、真空槽に設置された電圧導入端子と接続されている。これにより、陰極に負電圧を印加し、UV 光照射時・非照射時に流れる電流の差を測定する事で、量子効率を測定する事

<sup>#</sup>zen@iae.kyoto-u.ac.jp

が可能となっている。また、量子効率測定用の UV 光は合成石英製真空窓から真空層中に導入され、陰極面上で集光される。陰極はトランスファーロッドにより真空チェンバー中を移送する事が可能となっており、陰極交換用チェンバーに引き出してゲートバルブを閉める事で、蒸着用チェンバーの真空を破ることなく、陰極の交換・洗浄を行う事が可能である。蒸着用チェンバーの下方には 80L/s のイオンポンプ(ULVAC 製、PST-4CM)が設置されており、陰極交換用チェンバーの下方には 30L/s のイオンポンプ(ULVAC 製、PST-030CU)が設置されている。これらのポンプによる排気により、 $1 \times 10^{-8}$  Torr 程度の真空度が達成されている。排気系の増強による真空度の向上は今後の課題の一つである。

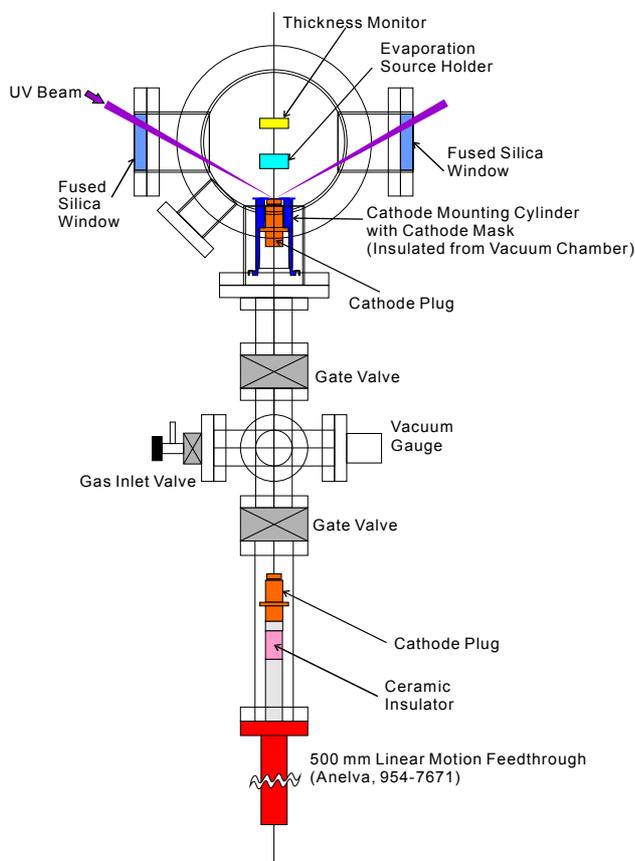


Figure 1: Schematic diagram of photocathode evaporation system developed at Institute of Advanced Energy, Kyoto University.

## 2.2 蒸着源および蒸着源ホルダー

図 2 に今回使用した蒸着ホルダーの写真を示す。この蒸着源は 2 つのタングステンバスケットを有し、2 つのディスペンサー型 Cs 蒸着源をマウント可能なものとなっている。Cs 蒸着源には Alvasource を用いた。タングステンバスケットの一つには Te 蒸着用の Te 小片が、もう片方には CsBr 蒸着用の CsBr 小片が入れている。通常、CsBr の真空蒸着には粉末状の CsBr 蒸着源が用いられるが、この場合、蒸着にボートを使用する必要があり、

蒸着方向が上方向に限られる。そこで、本研究では Te と同じ配置で CsBr の蒸着が可能となる様に、CsBr の蒸着源として、赤外光学窓用 CsBr 円板から切出した CsBr 小片を蒸着源として使用する事とした。小片を利用する事には、CsBr は潮解性のある材料であり、粉末よりも小片の方が表面積が小さく、潮解の影響を受けにくいというメリットもある。

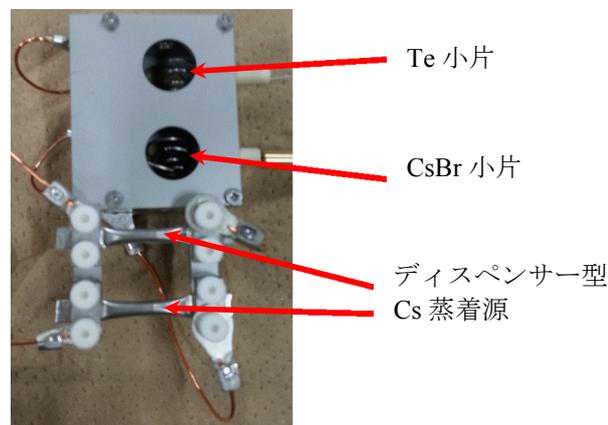


Figure 2: Photograph of evaporation source mount. Two molybdenum baskets is used for evaporating a Te chunk and a CsBr chunk. Two Cs dispenser sources can be mounted.

## 2.3 陰極基板

陰極基板には現在、我々の研究グループで開発を進めている 1.6 空腔光陰極高周波電子銃に挿入可能なモリブデン製陰極プラグを用いた。図 3 に写真を示す。写真の通り、トランスファーロッドと陰極ホルダーとの間にはアルミナ製の絶縁体が接続されており、これにより、真空槽と陰極との絶縁をとる事で、量子効率測定を可能にしている。



Figure 3: Photograph of the cathode plug and mount of the cathode. The cathode plug is electrically isolated from the vacuum chamber to enable measurement of photo-induced current and quantum efficiency of the cathode.

## 2.4 量子効率測定用 UV 光源・電圧源・電流計

量子効率測定には UV 光源として DUV LED (Thorlabs 社製 LED265W-UVTOP)を用いた。この UV LED は中心波長 265 nm、半値幅 10 nm、300  $\mu$ W の DUV 光を発生させる事が可能な光源であり、波長が変えられない点が Xe ランプと分光器を用いた

光源に劣るが、価格は 5 万円弱と格段に低価格な点が魅力的である。アイリスにより集光性の悪い成分をカットし、集光レンズにより陰極面上に集光した。集光サイズは 1~2 mm であり、UV 光強度は約 4  $\mu\text{W}$  である。光強度は随時、パワーメータ(Gentec-EO 社製 PE10I-Si-USB)にて測定した。また、UV 光源の光路には電動シャッターが設置されており、紫外光の照射・非照射が自動で変更可能となっている。量子効率測定時には照射時と非照射時の陰極電流の差をとり、光誘起電流を測定する事で、量子効率測定の精度を向上させた。

陰極への電圧印加、陰極電流の測定には Keithley 社製 SourceMeter 2400 を用いた。この装置は内蔵電圧源により  $\pm 200\text{ V}$  までの電圧印加が可能であると共に、内部に分解能 50 pA の電流計を有している。高電圧の印加と微小電流測定を必要とする光陰極の量子効率測定に非常に適した電圧源内蔵電流計である。

### 3. 実験結果

#### 3.1 Cs-Te 蒸着試験

Cs-Te 蒸着の為、まず、Te の蒸着を行った。Te 蒸着用バスケットに流す電流を少しずつ上げながら、膜厚計の蒸着速度が 0.01 nm/s 程度の条件で蒸着を行った。3 nm 程度の膜厚の Te を蒸着する事に成功し、蒸着時間を変える事で膜厚を制御する事ができた。次に、量子効率を測定しながら Cs の蒸着を行った。図 4 に代表的な Cs 蒸着中の量子効率の推移を示す。Cs 蒸着量に依存して量子効率が増加している事が見て取れる。この実験で得られた最大量子効率は約 0.18%であった。10%程度の高い量子効率を得られる蒸着条件はまだ見つけられていない。

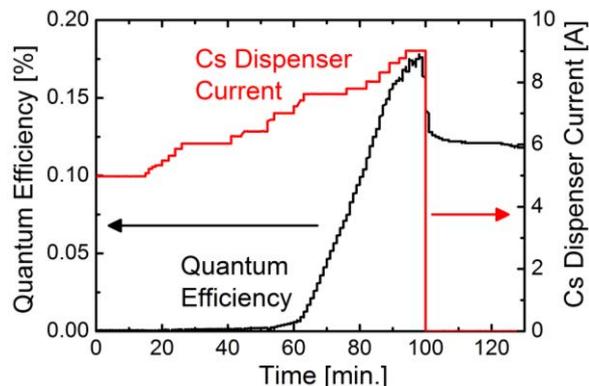


Figure 4: Temporal evolution of quantum efficiency during Cs evaporation.

蒸着した Cs-Te 膜の組成を Rutherford Backscattering Spectrometry (RBS)分析により分析する為、Te 膜厚 101 nm の上に量子効率が極大値をとるまで Cs を蒸着した陰極を成膜した。この際の陰極基板は Mo の平板である。RBS 分析の結果を図 5 に示す。RBS 測定には京都大学量子理工学教育研究センターの BSB 分析装置を用いた。RBS 分析にて得られた後方散乱イオンのエネルギー分布を理論計

算により解析した結果、Cs と Te が層をなしているのではなく、混在しており、その組成比が 1:1 の条件で実験結果と良い一致を得た。加えて、少量の Bi(ビスマス)の存在が示唆された。これは Alvasource が  $\text{BiCs}_3$  を蒸着源として用いており、過昇温により Bi が蒸着源から飛散したためだと考えられる。

Alvasource は得られる物質の純度や粒子の放出が少ないことなど、良い蒸着源である反面、一度使用すると大気解放した後に再使用できない事、電流を上げないと量子効率の上昇が非常に遅く、電流を上げると Bi が蒸着されてしまう事など、素人には扱い辛い。今後は KEK-ATF や早稲田大学などで使用され、良い結果が得られている SAES 社製の Cs 蒸着源に変更して試験を行う事を計画している。

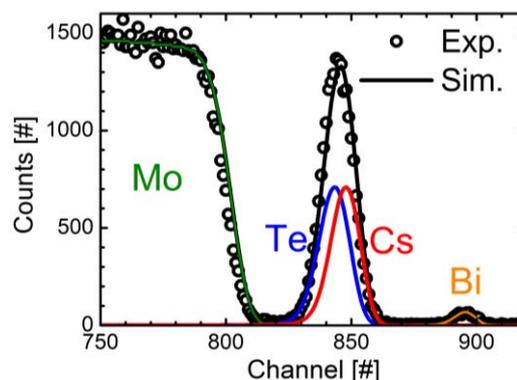


Figure 5: Result of RBS measurement of Cs-Te sample and fitted result given by SIMNRA code assuming same amount of Cs and Te with density of  $106.2\text{ atom/cm}^3$ .

#### 3.2 CsBr 蒸着試験

CsBr 蒸着用バスケットに電流を流す電流を少しずつ上げながら、膜厚計の蒸着速度が 0.01 nm/s 程度の条件で蒸着を行った。練習の為、目標蒸着量を設定し、4 回蒸着テストを行った。各蒸着試験での目標蒸着膜厚と得られた膜厚を表 1 に示す。おおよそ  $\pm 0.5\text{ nm}$  以下の精度で蒸着膜厚を制御する事ができた。

Table 1: Result of Test Evaporation of CsBr

Trial #	Target Thickness	Achieved Thickness
1	1.00 nm	1.04 nm
2	2.00 nm	2.34 nm
3	4.00 nm	4.20 nm
4	7.00 nm	6.75 nm

また、RBS 分析による組成分析用に膜厚 199 nm の CsBr 膜を成膜した。Cs-Te 同様、この際の陰極基板は Mo の平板である。RBS 分析の結果を図 6 に示す。RBS 分析にて得られた後方散乱イオンのエネルギー分布を理論計算により解析した結果、Cs と Br が層をなしているのではなく、混在しており、その組成比が 1:1、膜厚 182 nm の条件で実験結果と良い一致を得た。組成比・膜厚のパラメータを変化させ、測定データと比較した所、CsBr の組成比は 1:1 でほ

ば間違いなく、膜厚は 164~200 nm の間で有る事が分かった。RBS 分析により得られた膜厚と蒸着時に膜厚計にて得られた膜厚との差は 17 nm であり、膜厚計を用いて 10% 程度の誤差で CsBr 膜厚が評価可能である事が確認できた。

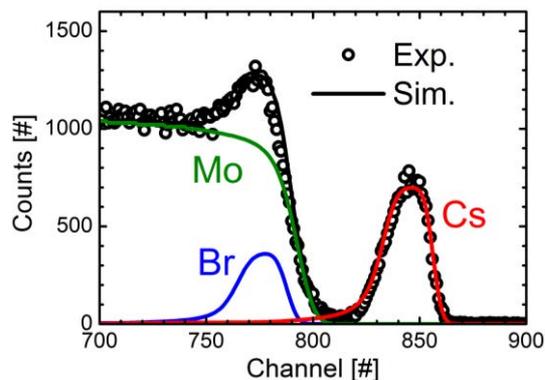


Figure 6: Result of RBS measurement of CsBr sample and fitted result given by SIMNRA code assuming same amount of Cs and Br with thickness of 182 nm

### 3.3 CsBr 保護膜付き Cs-Te 光陰極成膜

Cs-Te を成膜し、45 時間経過した後、量子効率変化が 0.05% / 5 時間以下になったのを確認し、その上に CsBr を成膜して CsBr 膜厚に対する量子効率の推移を測定した。この際、CsBr 蒸着源タングステンバスケットに流す電流は CsBr の蒸着速度が 0.01 nm/sec となる様に調整した。図 7 に量子効率の CsBr 膜厚依存性を示す。CsBr を 20 nm 程度蒸着した条件で量子効率は初期量子効率の約半分となった。また、CsBr の膜厚が厚くなるに従い、変化が緩やかになる傾向が得られた。

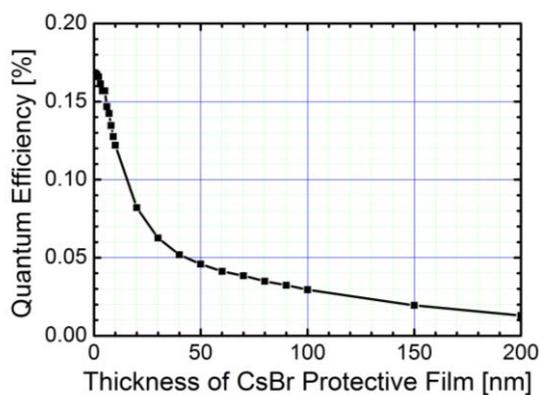


Figure 7: Dependence of quantum efficiency of Cs-Te photocathode with CsBr protective film on the thickness of CsBr protective film.

次に Cs-Te 成膜後、すぐに厚さ 20 nm の CsBr 保護膜の成膜を行った。その際の量子効率の時間変化を図 8 に示す。この際、保護膜成膜前の量子効率は約 4% であり、保護膜成膜直後の量子効率は 1.2% であった。図 8 より分かる様に、保護膜成膜後、約 10 時間で量子効率は半減しており、30 時間で 4 分の 1 になっている。この際の 1/e 寿命は約 11 時間であっ

た。保護膜をつけない場合の量子効率寿命も 10~20 時間程度であったため、今回の成膜条件では顕著な光陰極寿命の改善は見られなかった。

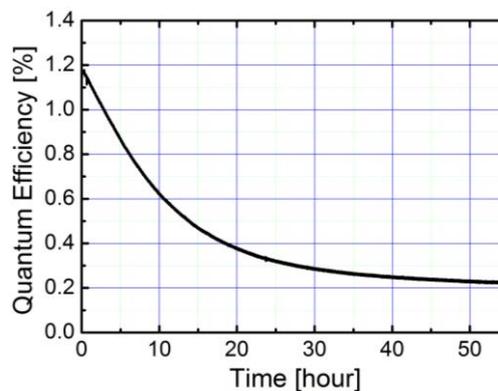


Figure 8: Temporal evolution of quantum efficiency of the Cs-Te photocathode with 20-nm CsBr protective film.

## 4. まとめ

本研究では、高耐久光陰極の実現を目指し、CsBr 保護膜付き Cs-Te 陰極を作成可能な真空蒸着装置を開発した。これまでに Cs-Te の成膜および CsBr の成膜、それらの RBS を用いた元素分析を行い、Cs-Te、CsBr が蒸着可能である事を確認した。また、CsBr 保護膜付き Cs-Te 光陰極の成膜を行い、寿命改善効果を調べたが、今回の製膜条件では顕著な寿命改善効果は見られなかった。

## 5. 今後の予定

今後は Cs 蒸着源を SAES 社製の物に交換し、10% を超える量子効率を持つ Cs-Te 光陰極の蒸着条件を探索すると共に、CsBr 蒸着条件を変えて系統立てた測定を行い、CsBr 保護膜による寿命改善効果について明らかにする事を目指す。

## 謝辞

本研究の実施にあたり、高エネルギー加速器研究機構の照沼信浩氏、早稲田大学の坂上和之氏、松崎脩理氏、西田万里子氏には Cs-Te 陰極成膜装置・成膜方法に関し、多くのご助言・ご指導を頂きました。京都大学 工学研究科土田秀次氏、鎌倉涼介氏には、RBS 分析の実施と解析に関し多大なるご支援を頂きました。また、本研究は高エネルギー加速器研究機構大学等連携支援事業の支援を受けたものである。

## 参考文献

- [1] S. Lederer et al., Proc. of PAC09, 2009, p.485-487.
- [2] S. Lederer et al., Proc. of FEL07, 2008, p.457-460.
- [3] A. Buzulutskov et al., Nucl. Instrum. Meth. A400, 1997, p.173-176.
- [4] D.C. Nguyen et al., Nucl. Instrum. Meth. A429, 1999, p.125-130
- [5] E. Chevallay et al., Proc. of XX International Linac Conference, 2000, p.110-112.