

# 超高真空における電子刺激脱離と直流放電現象の関係

## RELATION BETWEEN ELECTRON-STIMULATED DESORPTION AND DC DISCHARGE IN ULTRA HIGH VACUUM

山本将博<sup>\*A)</sup>、西森信行<sup>B)</sup>

Masahiro Yamamoto<sup>\*A)</sup>, Nobuyuki Nishimori<sup>B)</sup>

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

<sup>B)</sup> National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology (QST)

### Abstract

High brightness electron source is a key device to realize future accelerators such as high repetition rate X-FEL and high luminosity of the electron-ion collider. DC-gun is one of the leading candidates, and a long time to stable operation with a high voltage and high field condition is required. In order to hold a high voltage equivalent several hundreds kilo-volt, high voltage (HV) conditioning process is indispensable. From the HV conditioning results of the DC-gun at the compact-ERL (cERL), we found that the electron stimulated desorption (ESD) phenomena at the anode plays an important role in determining the discharge voltage.

### 1. はじめに

近年、XFEL光源でもEURO-XFELやLCLS-II計画ではマルチバンチあるいは100 kHz相当までの高繰り返し化によって単位時間当たりのphoton数を稼ぐ光源加速器が立ち上がりつつある。これらの加速器が求める高繰り返しかつ高輝度の電子源の候補として、光陰極を利用する高電圧の直流電界型電子銃(DC-gun)は有力な候補の一つとなっている。実際に、Cornell大のDC-gunでは、LCLS-IIが要求するバンチ電荷量と同時にエミッタンスを満足するビームを生成できることを示し[1]、さらに平均電流70 mA相当で連続運転した実績[2]がある。また、KEKのcompact-ERL(cERL)でも平均電流の上限値はまだ1 mAであるが、DC-gunよりトラブル無く安定に電子ビームを供給し続けた実績ができた[3, 4]。

高輝度電子ビームを長時間安定供給するためには、電子銃には高い加速電圧を放電させることなく安定に維持し続けることが求められる。これを可能とするために不可欠となる準備操作として運転電圧よりも高い電圧まで昇圧、微小な放電を繰り返し発生させることで放電が発生する電圧を上昇させるコンディショニング(あるいはエージング)と呼ぶ操作がある。この操作は電子銃に限らず一般的に多くの高電圧機器の運転前に行われる操作であり、どの電圧までコンディショニングを行えば運転電圧で長期間放電が発生しない状況にできるかの判断のほとんどは経験的に決められている。一般的に、電源や機器のコスト、過剰な放電に伴う故障のリスクなどの総合的な判断から運転電圧に対して数割程度高い電圧でコンディショニングが行われていることが多い。

ここでは、超高真空中における直流放電現象が電子刺激脱離と深く関係していることを、これまでに報告されている実験結果から導き出した放電メカニズムと今回のcERL DC-gunのコンディショニングの実験結果から説明する[5]。

### 2. 超高真空中の放電現象

#### 2.1 これまでの解釈に対する疑問

真空中の放電と言えばパッシェンの法則がまずは思い浮かぶ。圧力 $p$ と電極間ギャップ $d$ の積を横軸とし、放電電圧 $V$ を縦軸に取った良く知られたパッシェン曲線はほとんどのガス種に対して $p \times d \sim 1$  [Pa m]付近で最小値を取り、高真空より良い真空では電極間距離に対して電子の平均自由行程が十分長くなるため、電極間の空間にあるガス分子の雪崩的な電離によって発生する放電は起きなくなる。故に超高真空など非常に良い真空状態での放電は、電極表面の状態(粗さ、ダストや汚れなど)で決まる電界放出、そして微小突起先端のジュール加熱による蒸発によるもの、あるいは電極表面に付着した微小なダストのチャージアップそして対向電極への加速衝撃によって発生する、イオンや電子によって引き起こされるもの(クランプ説)で起きると考えられてきた。

一方で、コンディショニング工程ではその多くは微小放電を繰り返しながら放電電圧を徐々に上昇させる。Fig.1はいくつかのDC-gunについてその一例を示した実験結果であるが、放電回数に対してほぼ連続的に放電電圧が上昇していることが分かる。また右図から放電電圧と保持時間の間にも一定の傾向があることが見て取れる。

この一般的な連続的に放電電圧が上昇する傾向を、これまでの解釈だけで説明しようとする、放電の起点となる突起やダストが放電によって都合よく変化あるいは消失する、ダストのサイズがある決まった分布をもっている、2次電子放出係数が徐々に減少するような不自然な過程が必要となる。

#### 2.2 放電電圧の連続的な上昇のメカニズム

コンディショニングによって放電電圧がまるで前の放電電圧を記憶しているかのように徐々に上昇する現象を自然に理解する上で、2つの論文がヒントになった。まず一つ目に、古田氏が行った電界放出暗電流に関する基礎的な実験[9]がある。

\*masahiro@post.kek.jp

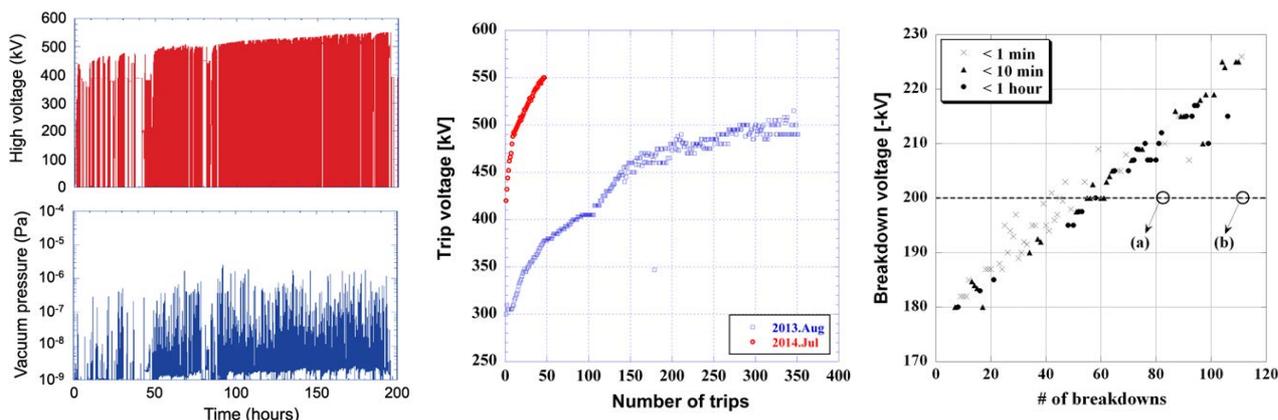


Figure 1: Typical HV conditioning results of DC guns: the cERL gun [6] (left), the 2nd 500kV gun [7] (center), and the 200 kV polarized electron gun [8] (right).

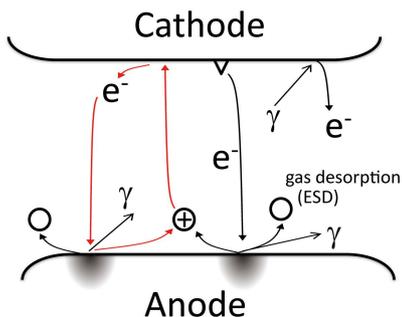


Figure 2: Discharge model based on the interplay between ESD ion and secondary electron.

Fowler-Nordheim の式で与えられる電界放出暗電流は、表面の電界強度に依存し、電極間の加速電圧には依存しないが、現実には同じ電界強度でも電極間ギャップが大きい（つまり加速電圧が大きい）ほど暗電流が大きくなる傾向がある。古田氏の論文では電極間ギャップを変えながらいくつかの電極材料に対して詳細に暗電流測定を実施した結果がまとめられている。観測する暗電流は電界放出によって発生した電子とその衝撃によって発生する2次荷電粒子を合わせたものであり、ギャップを広げることで2次荷電粒子の寄与が増大することを示した。この論文では電極間ギャップは高々数 mm の領域の測定であり、現実の DC-gun などでは1桁以上ギャップは大きい。そのため、多くの真空高電圧機器で観測される暗電流はほぼ2次荷電粒子に依るものではないかと考えるきっかけとなった。

2つ目は暗電流の主成分となる2次荷電粒子の源に対するヒントであり、Malyshev 氏らが発表した電子刺激脱離 (ESD) の照射電子エネルギーに対する依存性に関する論文である [10]。ESD とは、ある物質に電子が衝突した際に物質のごく表面に吸着あるいは吸蔵している分子が入射した電子あるいはそれによって発生した多数の2次的な電子や光子からエネルギーを得て真空中へ脱出する現象である。入射する電子の数、エネルギー、照射履歴によって放出される分子数も変化

し、ESD の効率 ( $\eta$ ) は、照射電子の積算量 (Dose) の増大によって減少、照射電子のエネルギーの増大によって増加する。つまり、 $\eta$  は照射電子のエネルギー  $E$  と照射電子の Dose の関数として表される。

この2つのヒントから、コンディショニングによって放電電圧が連続的に増加するメカニズムは、下記のように理解することができる。まず、超高真空ギャップ間の放電回路について Fig.2 に示す。暗電流の主成分が2次的な荷電粒子であるならば放電時その主成分は2次的荷電粒子であると考え、Fig.2 中の赤矢印で示された回路に注目する。(図中の X 線 ( $\gamma$ ) の発生とそれによる2次電子放出の現象は、赤矢印で示した回路の電流値よりも一桁以上小さいことが予測されたため、以下ではその効果を含めずに話を進める。)

ESD によって発生するガス分子のうち、ある一定の割合でイオンが発生すると仮定し、電子1個あたりのイオン発生率を  $\eta_i$  とする。そして、イオンはカソード電極に向けて加速・衝撃し、一定の割合で2次電子を発生させる。この割合を  $\gamma$  とする。この  $\eta_i, \gamma$  の積が1を超えたときに指数関数的に電流が増加することで放電が発生し、放電によって電極間の電圧が低下するにしたがって、その積が1を下回った時に放電は終息することになる。コンディショニングで起こす放電は、繰り返す毎に放電発生場所の電子照射量 (Dose) を増やすこととなり、同じエネルギーの電子照射に対する  $\eta$  およびそれと連動する  $\eta_i$  を減少させる。つまり、放電の条件 ( $\eta_i \times \gamma > 1$ ) を成立させるためには、その1度前の放電電圧よりも高い電圧が必要になる。これが連続的に放電電圧が上昇するメカニズムであると推測した [7]。これを図に示すと Fig.3 のようになる。左図は縦軸が  $\eta_i$ 、横軸が Dose に対応するグラフであり、文献 [10] で示されているような ESD curve と同様の曲線をエネルギー別で示している。イオン衝撃によって発生する2次電子の生成効率  $\gamma$  は  $\eta$  と比べればイオンのエネルギーに対して大きく変化しない [11] ため、放電成立閾値 ( $\eta_i \times \gamma = 1$ ) は、放電回数程度の範囲では図中のように一定値の直線で示される。右図は縦軸が放電電圧、横軸が放電回数に対応するグラフである。両図

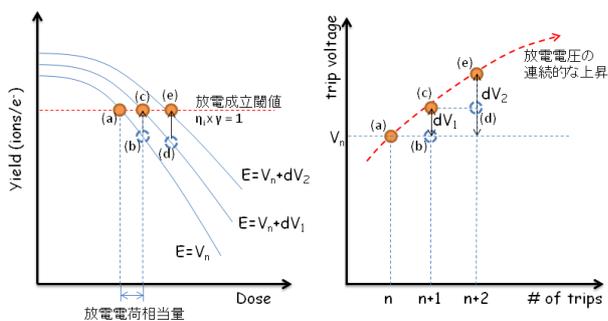


Figure 3: A mechanism of discharge voltage continuously increase. Figures of electron dose vs ESD-ion yield (left) and number of discharge vs discharge voltage (right) are linked as the symbols from (a) to (e) that correspond with the same time each other.

中の (a) から (e) の記号はそれぞれ同じ時点に対応し、上記のコンディショニング過程は図中の (a) から順に進む対応となっている。

著者らはこのメカニズムに注目し、今回実施した cERL DC-gun のコンディショニング過程の電圧、真空、放射線について詳細に分析を行った。

### 3. 装置の概要

コンディショニングの試験を実施した DC-gun の装置に関する詳細については、論文 [4, 6, 12, 13, 14] に記載されている。この章では測定および試験結果の評価に関係する部分に焦点を絞って装置の概要について述べる。

#### 3.1 高電圧系

電子銃の直流高電圧電源 (HVPS) には 12 段の Cockcroft-Walton (C-W) 回路を使用している。コンディショニング時の放電電荷量は、放電時の電圧降下量と電源の静電容量および電極構造が持つ浮遊容量によって決まる。C-W 回路の各段には 2.4 nF のコンデンサが接続されている。この 12 段直列のコンデンサスタックが 3 つ並列となって C-W 高電圧電源を構成している。これに加え、C フィルターの容量 0.2 nF、電子銃カソード電極の浮遊容量約 0.1 nF を加えると、合計で約 0.9 nF となる。コンディショニングは、大きな放電エネルギーによって電極表面やセラミック管本体に損傷をできるだけ与えないように、HVPS 出力部とセラミック管の間には 100 MΩ の抵抗を接続した状態で実施している。本稿で述べる電圧は HVPS 出力部の電圧のことを指し、カソード電極の電圧は、セラミック管の分圧抵抗 5 GΩ と上記保護抵抗の接続の関係から HVPS 出力電圧の 50/51 の値となる。

#### 3.2 真空系

コンディショニングを行う前に超高真空環境をつくるため、セラミック加速管を含む電子銃 chamber は約 150 °C で 50 時間のベーキングを実施する。ベーキング中は 1000 L/s (窒素に対する排気速度) のターボ分子ポンプ (TMP) で排気を行い、終盤に電子銃 chamber のカソー

ド-アノード電極間の周囲に設置された 400 L/s の NEG ポンプ 20 台、および周囲の ICF152 フランジに接続した 2000 L/s の NEG ポンプ 3 台の計 14000 L/s (水素に対する排気速度) の NEG を活性化し、ベーキング後は TMP はゲートバルブによって切り離されて NEG ポンプおよび電子銃 chamber に設置されている 400 L/s (窒素に対する排気速度) のイオンポンプ 1 台で排気し、最終的に圧力は約  $1 \times 10^{-9}$  Pa の状態となる。コンディショニング時は放電により発生したガスを効率的に排気するために NEG および IP の排気に加えて TMP による排気も行っている。

真空の測定には電子銃 chamber に設置されているエクストラクターゲージと TMP の排気口に設置されている B-A ゲージ (Pfiffer 製 PBR260) を用いている。放電時に発生するガスは数秒程度の短時間でその大部分が排気されることから、コンディショニング時の圧力測定は主に応答性の早い B-A ゲージのデータを使用した。(ただし測定下限は約  $2.8 \times 10^{-8}$  Pa)

#### 3.3 制御・計測関係

過大または異常な放電の発生時に素早く高電圧を停止させるために、真空および放射線がある閾値を超えた場合、高電圧印可を停止するインターロックが動作する。放射線モニターには、電子銃 chamber の真下の床面に電離箱 (Fluke Biomedical 製:451B)、電子銃 chamber 側面に半導体検出器 (日立アロカメディカル製:MAR-781) を設置している。後で述べる実験結果では、それぞれの名称について前者を RADMON-1、後者を RADMON-2 と呼ぶことにする。コンディショニング中の代表的なインターロック閾値として、圧力は  $1 \times 10^{-5}$  Pa、放射線は 1 mSv/h を採用した。各機器のモニターおよび制御には EPICS を利用し、モニター値は最大 10 Hz で保存される。

### 4. 実験結果

以下では、主に 2015 年 11 月~12 月に実施したコンディショニングの結果についてまとめる。

#### 4.1 放電停止電圧の存在とその変化

今回実施したコンディショニング時の電圧、真空、放射線 (RADMON-1、RADMON-2) の変化について代表的な一コマを Fig.4 に示す。放電発生時にインターロック閾値を超えた場合は、電子銃の HV 電源は停止するが、閾値未満の場合は HVPS は出力状態のままであり、放電停止後に電圧は設定電圧まで再び戻る設定となっている。グラフ上の矢印で示した電圧は放電発生時に電圧が降下した極小値を示している。放電が起きるタイミングと同期して真空および放射線のモニター値が上昇している。Fig.4 の 3 つのグラフから、放電が停止する極小値が約 480 kV と約 500 kV の 2 パターンあり、それに対応する放射線変化の様子を見ると、RADMON-2 の出力について極小値 500 kV パターンの場合はほとんど反応していないことが読み取れる。これらから、この 2 パターンの放電は異なる場所で発生している可能性を示唆している。

以下では、放電が発生した時の印可電圧を「放電開始電圧」と呼び、放電が停止して再び電圧が戻り始め

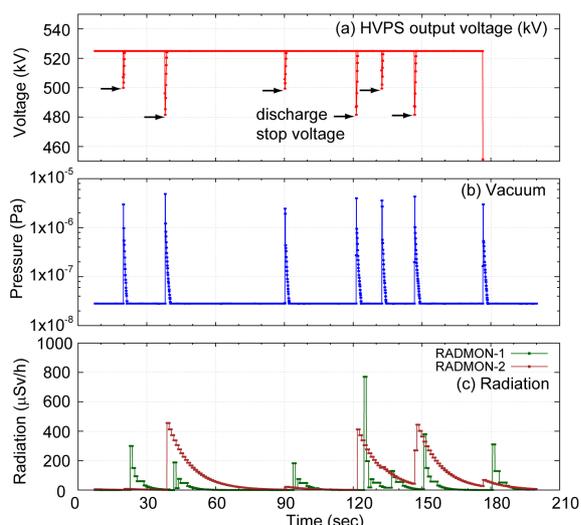


Figure 4: (a) Typical HVPS output voltage. (b) pressure in gun chamber measured by VACMON-2, and (c) signals of radiation from RADMON-1 and RADMON-2.

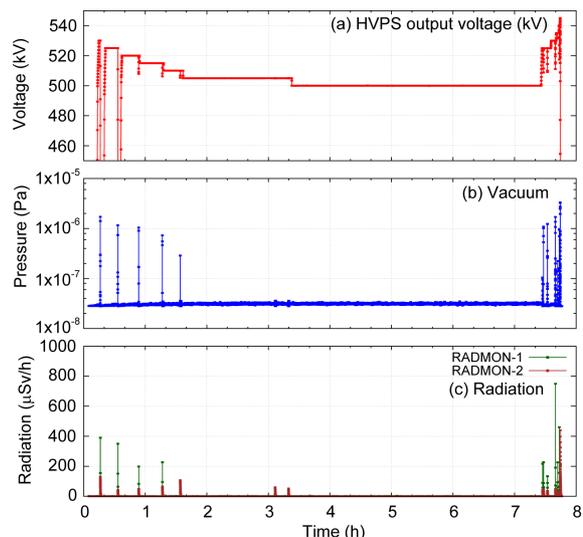


Figure 6: High voltage hold-off test for various voltages.

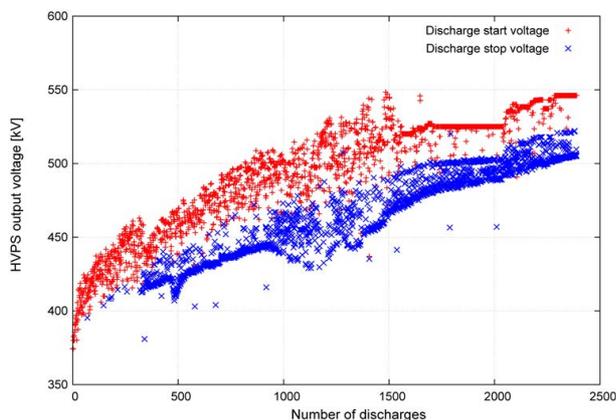


Figure 5: Discharge start and stop voltages as a function of the number of discharges.

る時の極小値の電圧を「放電停止電圧」と呼ぶことにする。放電が発生した回数と、放電開始電圧と停止電圧の関係を Fig.5 に示す。先ほど示したコンディショニングの一例である Fig.4 は放電回数 1732 回目から 1738 回目のデータに対応している。

放電開始電圧および停止電圧が共に放電を繰り返す度に徐々に増加し、放電回数 2300 回程度で放電開始電圧が 540 kV、放電停止電圧が 500 kV まで到達している様子が見取れる。この結果で特に注目すべき点は、放電停止電圧の最小値がほぼ連続的に変化・増加している点であり、2.2 節で述べたメカニズムに従って改善されていると推測することができる。

#### 4.2 高電圧保持時間と放電停止電圧の関係

コンディショニング終了後、高電圧の保持時間の確認試験を実施した。最初は 530 kV で保持を試みたが、保持開始数分で放電が発生し、インターロックで高電圧が停止したため、放電が発生しない電圧まで 5 kV ずつ

電圧を下げながら保持を試みた。結果を Fig.6 に示す。コンディショニング終了時の放電停止電圧は約 505 kV であったが、この HV 保持試験では印可電圧 505 kV 以上では放電が確認されている。放電停止電圧の下限值以下となる 500 kV 印可の状態では 4 時間の保持では放電は確認されなかった。500 kV の 4 時間保持確認後に再び電圧を上げていくと、数十分以下の時間スケールで放電が発生していることわかる。この結果は、放電停止電圧の下限值がその装置の最も低い放電成立条件の閾値と対応していることを示しており、2.2 節で述べた放電の終息現象をまさに捉えていると同時に、閾値以下となる電圧では放電が長時間発生しないことを保証している。これは実用上、非常に有用な情報であり、放電停止電圧の下限值が目的の運転電圧以上になるようにコンディショニングを行えば良いという明確な指標を与えてくれる。

#### 4.3 放電と圧力上昇の関係

では、2.2 節で述べた放電のメカニズムが本当に起きているのであれば、放電現象と ESD の間に明確な関係性があるはずである。HV 保持試験時の電圧降下  $\delta V$  と圧力上昇  $\delta P$  の関係について Fig.7 に示す。3.1 節で述べたように HVPS およびカソード電極の持つ容量と  $\delta V$  の積から横軸は放電電荷量に対応し、圧力上昇のピーク値  $\delta P$  と chamber の容積  $V$  の積がガス放出量  $Q$  に対応する。この結果を示したグラフからガス放出量は放電電荷量ときれいな比例関係があることが分かり、その傾きは ESD の効率  $\eta$  に対応する。

### 5. 考察

2.2 節で示した放電メカニズムは実際のコンディショニングで得られた実験結果を矛盾無く説明できることが示された。以下では定量的な考察を試みる。

#### 5.1 文献値からの推測

ESD の効率  $\eta$  は文献 [15] に依れば、数十～5 keV の領域では衝撃する電子のエネルギーに比例する関係が

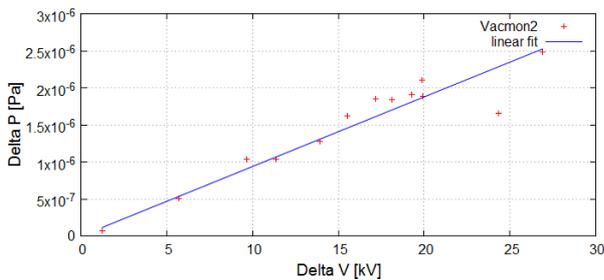


Figure 7: Maximum pressure changes as a function of voltage difference between discharge start and stop voltage.

得られている。より高いエネルギーに対しても同様に比例の関係が続くと仮定した場合、コンディショニングされていない金属表面に対する  $\eta$  は 500 keV では数 100 程度の大きさとなる。このうち、イオンとして放出される割合は、文献 [16] に依れば 1% 程度である。したがって、コンディショニング初期状態で 500 keV の入射電子 1 個に対して 1 ~ 数個のイオンがアノードで発生すると推測される。

発生したイオンが加速されカソード電極を叩くときに発生する 2 次電子についてその効率  $\gamma$  は、文献 [11] を参考にすると、アルミや銅に対する値から proton のエネルギー 500 keV の領域では電極材料のチタンに対する  $\gamma$  は 1.2 程度であると推定する。

これらの推定から、初期状態で  $\eta_i$  と  $\gamma$  の積は 1 より大きいことが見積もられた。つまり、 $\eta_i$  と  $\gamma$  の積が 1 となる電圧から最初の放電が始まり、その後放電を繰り返すコンディショニングを行うことで現在の 500 kV 相当に到達するシナリオは上記の文献に基づく推定では矛盾はない。

## 5.2 発生イオン数の実験結果からの推定

実験で得られたデータを用いて放電の過程で発生するイオン数を見積もることができる。方法は 2 つあり、一つは放電時の電圧変化量  $\delta V$  と電極構造を含む HVPS の静電容量から放電電荷量を見積る手法、もう一つは放電時の排気曲線と排気速度から計算される発生ガス分子数を求め、そのうち前節で仮定した割合からイオン数を求める方法がある。

前者について実験結果を用い計算すると、放電によって 43 kV の電圧降下が発生した時、放電電荷量は 39  $\mu\text{Coulomb}$  となり、 $\gamma = 1.2$  の場合では、電荷の内訳は電子が  $1.3 \times 10^{14}$  個、1 価イオンが  $1.1 \times 10^{14}$  個となる。一方、後者の方法でイオン数を見積もると、43kV の電圧降下が発生した同じ放電時の排気曲線データより、ガス放出量は  $3.0 \times 10^{-6} [\text{Pam}^3]$  であった。これは水素分子数で  $7.4 \times 10^{14}$  個となり、その 1% がイオンとして放出する見積りとなる。

前者の見積りは後者の 15 倍程度となっているが、考えられる原因として、(1)ESD によるイオン生成効率について高電界中のイオン生成効率に関する文献は無く、実際は 1% よりも高い可能性がある、(2)ESD で発生する質量数の大きなイオン ( $\text{CO}^+$  など) の寄与により 2 次電子放出率がより高くなる可能性がある、(3)今回測定した圧力はガス放出源と真空計の間に多数の NEG が

配置されている影響を含んだものである、ことなどが挙げられる。正確な推定には、これらの不確実性が小さくなる実験系で評価する必要がある。

## 6. まとめ

cERL DC-gun のコンディショニング結果から、超高真空中で発生する直流の放電現象は電子刺激脱離と密接に関係があり、アノードの電子刺激脱離で発生する分子の一部がイオンとして放出される効率 ( $\eta_i$ ) と、カソードのイオン衝撃で発生する 2 次電子生成効率 ( $\gamma$ ) の積が放電発生条件を決めている明確な手がかりを得た。ESD を介する放電、コンディショニング進行のメカニズムは、得られた実験結果を矛盾なく説明し、放電停止電圧の下限値は、長期間安定に電圧を保持できる電圧の閾値を与え、同様の高電圧機器のコンディショニング工程について明確な指標として使えると言える。

## 謝辞

電子銃の真空作業およびコンディショニング操作において、加速器第 7 研究系 宮島司 准教授、内山隆司 技師、NAT 沼田直人氏、浅川智幸氏、東日技研 路川徹也氏、亀田吉郎氏、三菱電機 飯島寛昭氏のご協力を頂きました。また、量研機構 羽島良一 上席研究員および ERL 推進室 河田洋 教授、加速器第 7 研究系 小林幸則 教授より全般のご支援を頂きました。本研究の一部は、科研費 15H03594, 16K05385 により実施されました。

## 参考文献

- [1] C. Gulliford *et al.*, Appl. Phys. Lett. **106**, 094101 (2015).
- [2] L. Cultrera *et al.*, Appl. Phys. Lett. **103**, 103504 (2013).
- [3] 坂中章悟 他, "コンパクト ERL におけるビーム電流約 1mA の運転", WEOM15, in these proceedings.
- [4] 西森信行 他, "コンパクト ERL 電子銃の高性能化", WOP048, in these proceedings.
- [5] M. Yamamoto and N. Nishimori, Appl. Phys. Lett. **109**, 014103 (2016).
- [6] N. Nishimori *et al.*, Phys. Rev. ST Accel. Beams **17**, 053401 (2014).
- [7] 山本将博 他, "500kV DC 電子銃 2 号機の高電圧印加試験", 第 11 回日本加速器学会プロシーディングス, SAP036, (2014).
- [8] 山本将博 他, "NEA GaAs 型フォトカソードを用いた低エミッタンス電子源開発の現状", 第 4 回日本加速器学会プロシーディングス, FO16, (2007).
- [9] F. Furuta *et al.*, Nucl. Instr. and Meth. A **538**, 33 (2005).
- [10] O. B. Malyshev, R. M. A. Jones, B. T. Hogan, and A. Hannah, J. Vac. Sci. Technol. A **31**, 031601 (2013).
- [11] R. A. Baragiola, Nucl. Instr. and Meth. B **78**, 223 (1993).
- [12] R. Nagai *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **81**, 033304 (2010).
- [13] N. Nishimori *et al.*, Appl. Phys. Lett. **102**, 234103 (2013).
- [14] 西森信行 他, "コンパクト ERL 電子銃の現状とアップグレード計画", WEP037, 第 12 回日本加速器学会年会プロシーディングス (2015).
- [15] O. B. Malyshev, A. P. Smith, R. Valizadeh, and A. Hannah, Vacuum **85**, 1063 (2011).
- [16] Theodore E. Madey and John T. Yates, Jr., J. Vac. Sci. Technol. **8**, 525 (1971).