

SuperKEKB 電子入射器のためのイリジウム・セリウム光陰極の高性能化 IMPROVEMENT OF PHOTOEMISSION PROPERTIES OF IRIDIUM CERIUM COMPOUND FOR SUPERKEKB INJECTOR LINAC

佐藤大輔^{#,A)}, 張叡^{A)}, 周翔宇^{A)}, 西田麻耶^{A)}, 夏井拓也^{A)}, 吉田光宏^{A)}, 古川和朗^{A)}, 菅原仁^{B)}
Daisuke Satoh^{#,A)}, Rui Zhang^{A)}, Xiangyu Zhou^{A)}, Maya Nishida^{A)}, Takuya Natsui^{A)}, Mitsuhiro Yoshida^{A)},
Kazuro Furukawa^{A)}, Hitoshi Sugawara^{B)}

^{A)} High Energy Accelerator Research Organization

^{B)} Kobe University

Abstract

A multi-crystalline iridium cerium (IrCe) compound is used as a photoemitter of a high charge and low emittance RF gun in the SuperKEKB injector linac. The quantum efficiency (QE) of an Ir₇Ce₂ photocathode installed in the RF gun is approximately 10⁻⁴, which could be maintain for two years without cathode maintenance such as laser cleaning. In our group, several kinds of iridium cerium compound were newly developed by use of new production approach in order to improve the QE and make the QE distribution uniform. In this paper, we present the latest results of our investigation on iridium cerium compound as a photocathode material for the SuperKEKB photoinjector.

1. はじめに

現在、高エネルギー加速器研究機構 (KEK) では、SuperKEKB / Belle II 実験 に向け、加速器全体のアップグレードが行われている。本実験においては、ビームエネルギー 4 GeV の陽電子と 7 GeV の電子を衝突させ、B 中間子を含む物理反応を大量に観測することによって、標準理論を越えた新たな物理現象を捉えることを目標としている[1]。その目的を達成するのに必要とされるルミノシティは、 $8 \times 10^{35} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ であり、ルミノシティ性能としては KEKB 加速器で達成された世界最高ルミノシティの 40 倍に相当する。このような非常に高いルミノシティを達成するために、SuperKEKB 加速器では低エミッタンス化によるダイナミックアパーチャーの減少とビーム寿命の減少が起こる。これに対応するため、SuperKEKB 電子-陽電子入射器では、両ビームの高電荷・低エミッタンス化が求められる。表 1 には、電子-陽電子入射器における電子・陽電子ビームの要求性能をそれぞれ表している。

Table 1: Required Electron and Positron Beam Parameters for KEKB and SuperKEKB

| Beam parameters | KEKB (e ⁺ / e ⁻) | SuperKEKB (e ⁺ / e ⁻) |
|---------------------|--|---|
| Beam energy (GeV) | 3.5 / 8.0 | 4.0 / 7.0 |
| Bunch charge (nC) | 1.0 / 1.0 | 4.0 / 5.0 |
| Emittance (mm-mrad) | 2100 / 300 | 20 / 20 |

表 1 に示すようなビームパラメータを実現するため、陽電子ビームに関して言えば、フラックスコンセントレータ[2]を導入することによって陽電子捕獲効率を上げて高

[#] daisuke.satoh@kek.jp

電荷ビームを生成し、低エミッタンス化に向けては新たにダンピングリングの建設が進められている。また、電子ビームに関しては、これまで KEKB 加速器で使用してきた熱陰極型 DC 電子銃について見直し、新たに光陰極型 S-band 高周波電子銃を開発し、営業運転する方針となった。これまで、KEK 電子入射部グループでは Disk and Washer (DAW) 型や擬似進行波型、Cut Disk Structure (CDS) 型といった軸外結合型空洞からなる様々な高周波電子銃を開発し、コミッションングを継続している[3, 4]。

光陰極型高周波電子銃を用いて、高輝度電子ビームを長期安定的に生成するためには、光陰極材料の選定が非常に重要となる。一般に、光陰極材料は大きく分けると二つのタイプに大別される。まず、Cs₂Te や K₂CsSb、GaAs に代表される半導体光陰極材料は、量子効率 (QE) が 1% 以上と非常に高いのが特徴[5, 6]で、マルチバンチ運転や大電流生成用の電子銃で多く採用されている[5, 6]。しかし、寿命が非常に短く、優れた光電子放出特性を維持するために、常に陰極を超高真空 (< 10⁻⁸ Pa [5]) 環境で維持し続ける必要があるなど、取り扱いが難しい。また、Cs や K といった活性な物質による空洞汚染の危険性も考慮する必要がある。一方、銅やマグネシウムといった純金属光陰極材料は、寿命が非常に長い (~ 1 年) という特徴がある。しかし、その量子効率は、半導体光陰極材料の性能と比較すると非常に低い (QE ~ 10⁻⁴) うえに、この量子効率を引き出すためには、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といった様々な表面処理が必要となる[7]。SuperKEKB 電子入射器では、まず電子ビームを長期安定的に供給できることを最重要視しており、少なくとも半年から 1 年以上は光陰極のメンテナンスフリーで営業運転に利用できるように材料が必須となる。具体的な光陰極材料への要求性能としては、①量子効率が 10⁻⁴ 程度、②寿命は 10⁶ Pa 環境下で 1 年以上、さらには③表面が汚染されにくいなどが挙げられる。これらの要求性能を満たすべく、

我々は銅やマグネシウム、LaB₆ 等の一般的な光陰極材料の性能評価に加えて、これまで光陰極として利用されてこなかったイリジウム・セリウム (IrCe) 化合物という金属化合物に着目し、光陰極としての利用可能性を検証してきた。本稿では、これまで行ってきたイリジウム・セリウム光陰極の性能評価や当該光陰極材料の高量子効率化や表面組成の均一化に向けた材料開発の現状について報告する。

2. 従来の多結晶 IrCe 光陰極材料

2.1 多結晶 IrCe の特徴

IrCe 化合物は、大気中で安定かつ非常に高い融点 (1900 - 2250°C [8]) を持つ金属化合物材料である。その中でも、Ir₅Ce 化合物は、低仕事関数 (2.57 eV [9]) を持ち、高温状態での蒸発速度が遅く、さらにはイオン衝撃に対して高い耐久性を持つことから、EBIS (Electron Beam Ion Source) 用熱陰極などでの運用実績がある。さらには、表面汚染に対して高い耐久性を持つこと等も分かっている[9]。以上のような特徴から、当該物質を光陰極として利用した場合、ある程度量子効率が高く、寿命も長寿命で、比較的低い真空環境下でも表面が汚染されにくく、メンテナンスフリーで長期運用できるのではないかと考え、光陰極としての利用可能性を検証してきた。

2.2 KEK での多結晶 IrCe 光陰極に関する成果

IrCe 化合物は、商用では手に入らないため (株) コベルコ科研との産学連携で材料開発から着手した。開発した当該材料の組成としては、主に先行研究で熱陰極として用いられてきた Ir₅Ce 組成と、それより僅かにセリウムリッチな Ir₇Ce₂ 組成のものである。そして、製造方法としては、まず、①一次溶解プロセスによって純イリジウムと純セリウムを溶解し混ぜ合わせ、インゴットを製作する。その後、そのインゴットを微粒粉に粉碎した後、ホットプレス法や放電プラズマ焼結法を用いた②再焼結プロセスによって粉末を成形再焼結することで、内部欠陥が少なく加工性に優れた IrCe 化合物インゴットの製作に成功した[10]。

開発した IrCe 化合物についてはそれぞれ、量子効率測定を行った。その結果、波長 266nm の紫外線に対して、Ir₅Ce は $QE = 1.54 \times 10^{-4}$ 、Ir₇Ce₂ については、 $QE = 1.49 \times 10^{-4}$ [10] となり、両材料ともに SuperKEKB 電子入射器で求められる要求性能を満たすことがわかった。さらに、KEK 電子入射器にて擬似進行波型高周波電子銃に Ir₇Ce₂ 光陰極をインストールし、約 2 年間に及ぶコミショニングを行ってきた。その結果、カソード交換と定期的な表面処理を行うことなく、量子効率にして $8 \times 10^{-5} \sim 1.0 \times 10^{-4}$ の範囲で約 2 年間維持することに成功した [10]。

2.3 改善点

SuperKEKB 電子入射器では、5nC/bunch という高電荷量の電子ビームを 20 mm-mrad 以下の低エミッタンスで生成・加速する必要がある。しかし、1 バンチあたりの電荷量が 5nC にもなると、空間電荷効果によるビームの発散効果が非常に大きくなる。そのため、我々の高周波電子銃では、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を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が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。

このようなスキームで高電荷・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。図 1 には、擬似進行波型高周波電子銃にインストールするために加工・研磨した Ir₇Ce₂ 光陰極の量子効率空間分布の測定結果を示している。今回、測定した高周波電子銃用 Ir₇Ce₂ 光陰極の形状は直径 8mm の円柱形状のもので、本測定ではその陰極の中心から約 3.5 mm × 3.5 mm の領域に対して測定を行った。なお本測定では、オフラインでの測定であり、レーザークリーニング等の表面処理は行っていない。

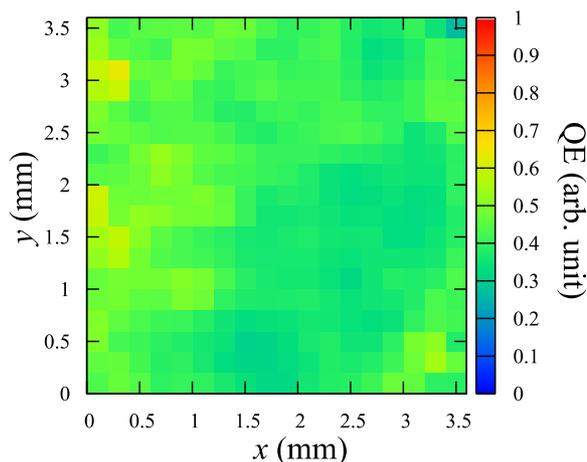


Figure 1: QE-map of Ir₇Ce₂ photocathode.

図 1 について、測定領域全体で見ると量子効率は 0.5 程度 (任意単位) で平均的に分布しているが、局所的には、この値の半分程度の量子効率しかない領域が数か所存在しているのが見受けられる。

この原因を明らかにするため、図 1 の測定サンプルを切り出したインゴットから別のサンプルを切り出し、サンプル表面における①結晶粒界等の組織観察と②SEM-EDX 分析による元素分析、③X 線回折による結晶相の同定等を行った。図 2 には Ir₇Ce₂ 表面の反射電子像を示している。図 2 を見ると、(1) に代表されるような長さ 1mm 以上の細長い線状の結晶と、その周りに (2) のような微細で複雑な形状を持つ結晶相が見られる。この反射電子像と SEM-EDX 分析の結果を照らし合わせ、各結晶相を同定する図 2(1) のような細長い線状の結晶は純 Ir₇Ce₂ 結晶相で、図 2(2) の結晶相は、(1) に対して純イリジウムが原子数濃度で 4%程度多く析出したイリジウムリッチの結晶相であるということがわかった。これらの分析結果を総合すると、高周波電子銃用 Ir₇Ce₂ 光陰極表面内で局所的に量子効率が低くなっている箇所は、図 2 (2)

に代表されるような純イリジウム相が原因となっていることが推定される。

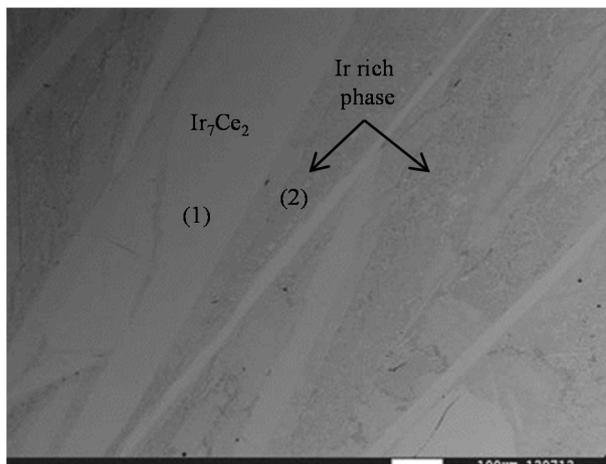


Figure 2: SEM image of Ir₇Ce₂ sample.

2018 年秋から予定されている SuperKEKB Phase-3 コミッションングでは、表 1 に示した要求性能での電子ビーム生成が求められており、それに向けて IrCe 光陰極における量子効率の空間分布の問題を解決する必要がある。また、Phase-3 コミッションングでは電子ビームの時間構造制御のため、これまで以上の高強度のレーザーパルスを生成する必要があり、レーザーシステムへの負担が増大する。そのため、IrCe 光陰極の量子効率の向上が強く望まれている。

以上のように、現在、運転に利用している IrCe 光陰極は、材料自体、まだまだ改善の余地がある。

3. 新たな IrCe 光陰極材料の開発

3.1 IrCe 光陰極の高性能化に向けた取り組み

KEK 電子入射部グループでは、IrCe 光陰極のさらなる高量子効率化と量子効率の空間分布の均一化を目指して、新たな IrCe 化合物材料の開発に着手した。具体的には、イリジウムとセリウムの組成比を見直した。これまで(株)コベルコ科研と共同で開発してきた IrCe 化合物は、主に Ir₅Ce と Ir₇Ce₂ の 2 種類であるが、共に単晶で結晶化することはなく、必ず純イリジウム相を含んでしまい、目的とする量子効率の空間分布の均一化は困難であると考えた。そこで、今回は、これまでの組成よりもセリウムリッチで高融点を持つ、Ir₃Ce 相と Ir₂Ce 相をターゲットとして開発に着手した。

3.2 材料開発

これまで、(株)コベルコ科研では、大型の溶解炉を用いて数百グラム単位で IrCe 化合物を溶解・製造を行ってきた。しかし、この方法では一度の溶解量が非常に多いため、高融点のイリジウムは十分に溶け切らず、セリウムと反応できなかったものが、図 2(2)に示すような純イリジウム相として残ってしまったという仮説が考えられる。そのため、IrCe 化合物の溶解方法についても再検討した。

今回、新たな IrCe 化合物の溶解に取り組むにあつ

て神戸大学・菅原仁教授にご協力頂き、小型のテトラアーク炉を用いて多結晶 IrCe 化合物の溶解試験を行った。使用したテトラアーク炉では、数グラム程度の原材料から溶解することが可能で、上記の仮説で述べたようなイリジウムの溶け残りが生じるようなケースを回避しやすい。また、非常に少量の原材料から溶解できるため、今回のような組成比の異なる IrCe 化合物を複数製作するような場合、非常に製造コストを抑えることができるという利点もある。今回、このテトラアーク炉を用いて、Ir₅Ce、Ir₇Ce₂、Ir₃Ce、Ir₂Ce という 4 種類の組成比が異なる多結晶 IrCe 化合物を製作した。

図 3 は、テトラアーク炉を用いて試作したサンプルの一例として Ir₂Ce 化合物を示している。今回、各組成のサンプルは、溶解後の重量がおよそ 2 グラムとなるように原材料重量を調整して溶解した。



Figure 3: Photo of Ir₂Ce ingot.

3.3 粉末 X 線回折法による結晶構造解析

今回製作した各サンプルは、その一部をカットし、メノウ製の乳鉢と乳棒を用いてサンプルを粉末化した後、粉末 X 線回折法を用いて各溶解物の結晶構造解析を行った。本測定には、デスクトップ X 線回折装置 MiniFlex II (Rigaku 社製)を用いて行った。

図 4 は、各 IrCe サンプルにおける、粉末 X 線回折パターンの測定結果(青線)と結晶構造から想定される粉末 X 線回折パターンのシミュレーション結果(赤線)の比較を示している。代表的なものとして図 4(a)では Ir₇Ce₂ サンプル、図 4(b)では Ir₂Ce サンプルに対する結果をそれぞれ示している。

まず、図 4(a)の Ir₇Ce₂ サンプルの結果について考察すると、Ir₇Ce₂ の結晶構造から推定される回折パターンがおおよそ得られており、Ir₇Ce₂ の結晶相が作られていることが推定される。しかし、不純物由来の回折パターンもいくつか得られている。入射角度 30.8°、43.0°、46.4° に明らかなピークがあり、これは、不純物として Ir₃Ce の結晶相が混入している可能性がある。同様に、入射角度 20.3°、41.3° にわずかながらピークがあり、これは、不純物として Ir₂Ce の結晶相も僅かに混入している可能性がある。その他、Ir₅Ce サンプルに関しては、不純物として純イリジウム相が多く析出し、Ir₃Ce サンプルに関しては、不純物として Ir₂Ce が多く混入しているという測定結果が得られた。つまり、Ir₅Ce、Ir₇Ce₂、Ir₃Ce に関しては、何らかの不純物組成を含む多結晶体となっていることがわかった。次に図 4(b)の Ir₂Ce サンプルの結果について考察すると、測定結果と Ir₂Ce の結晶構造から推定される回折パターンがすべて一致しており、不純物の

ピークも見られなかった。

以上の結果より、最も不純物組成の混入が少ない組成は Ir_2Ce であり、量子効率の空間分布の均一化に向けて有力な組成であると考えられる。

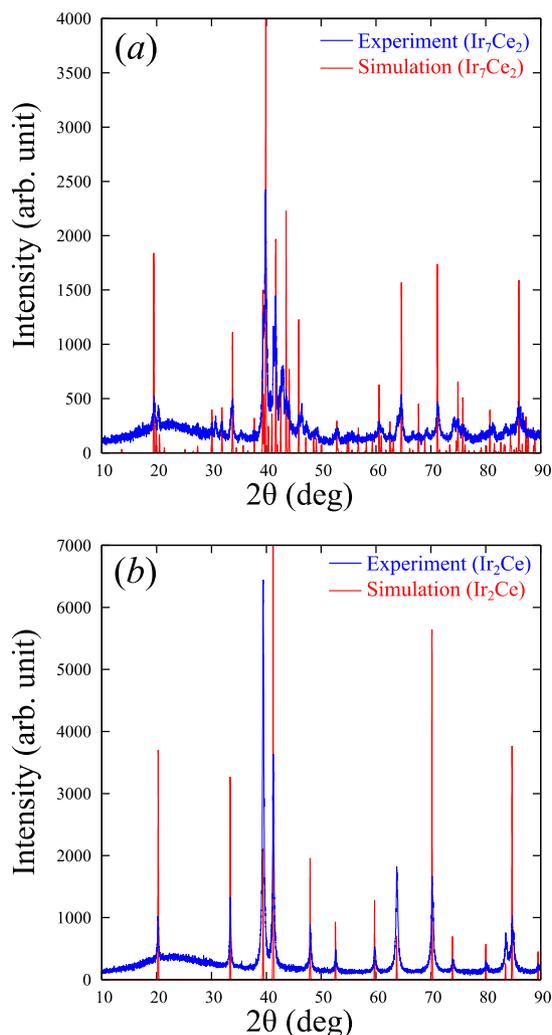


Figure 4: Comparisons between an experimental result from an XRPD analysis of IrCe samples and a simulated powder pattern. (a) Ir_7Ce_2 sample, (b) Ir_2Ce sample.

3.4 量子効率測定

製作した Ir_5Ce 、 Ir_7Ce_2 、 Ir_3Ce 、 Ir_2Ce の各サンプルに対して量子効率測定を実施した。図 5 には、量子効率測定システム概念図を示している。まず、各測定サンプルの電子放出面を研磨し、脱脂洗浄したものを真空容器に入れる。真空容器は約 150°C でベーキングし、真空容器内の圧力が 1×10^{-6} Pa 程度の環境下で測定を実施した。測定の際は、光陰極に約 -5kV の高電圧を印加し、対面の陽極で光電子を補足した後、オシロスコープ (DPO3034, Tektronix 社製) を用いて光電子の信号を検出した。光陰極駆動用レーザーには、パルス幅が約 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。また、光陰極へのレーザーの入射角度は、 45° で、P 偏光の光を照射して量子効率を測定した。

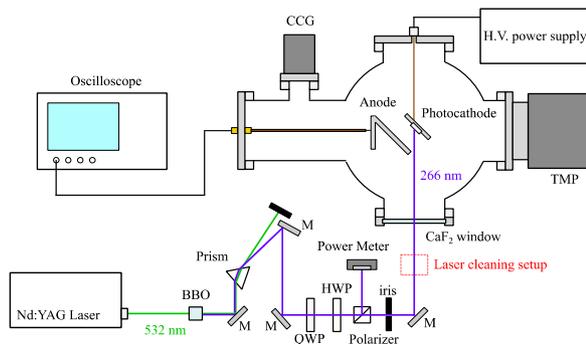


Figure 5: Schematic drawing of the experimental configuration used to measure the QE. TMP; turbo molecular pump, CCG; cold cathode gauge, BBO; beta barium borate, QWP; quarter-wave plate, HWP; half-wave plate, M; mirror.

量子効率測定の前には、陰極表面のレーザークリーニングを実施した。レーザークリーニングの際は、 CaF_2 製レーザー入射窓の直前に配置した紫外線用凸レンズ ($f = 200$ mm) を用いて紫外線レーザー光を陰極表面に集光し、陰極表面をアブレーションさせることで表面の洗浄を行った。

各 IrCe 化合物に対する量子効率測定の結果を表 2 に示す。表 2 を見ると IrCe 化合物の組成比においてセリウムリッチになるほど量子効率が高くなる傾向にあり、 Ir_5Ce と Ir_2Ce の量子効率を比較すると、約 2 倍以上 Ir_2Ce の量子効率の方が高い。また、従来の Ir_5Ce 、 Ir_7Ce_2 サンプルの量子効率と今回製作した Ir_5Ce 、 Ir_7Ce_2 サンプルの量子効率をそれぞれ比較すると、今回製作したサンプルの量子効率の方が、それぞれ約 20% (Ir_5Ce) と約 50% (Ir_7Ce_2) も高くなり、量子効率が改善された。

以上の結果より、今回製作したイリジウムとセリウムの組成比が異なる 4 つのサンプル (Ir_5Ce 、 Ir_7Ce_2 、 Ir_3Ce 、 Ir_2Ce) の中で、 Ir_2Ce が最も高量子効率となる組成であるということが実験により明らかとなった。

Table 2: QE of IrCe Samples

| Material | QE@266nm |
|--------------------------|-----------------------|
| Ir_5Ce | 1.87×10^{-4} |
| Ir_7Ce_2 | 2.24×10^{-4} |
| Ir_3Ce | 2.89×10^{-4} |
| Ir_2Ce | 3.87×10^{-4} |

4. 高周波電子銃での運用に向けて

現在、KEK 電子入射器では、既存のビームラインに加えて、新たに製作した高周波電子銃を試験するための斜め入射のビームラインを新設している[4]。

新設のビームラインには、2つの45度ベンドマグネットを備え、アクロマティックにしてビームを既存のビームラインに合流させるオプティクスとなっている。そして、本ビームラインには、Cut Disk Structure (CDS)型高周波電子銃が設置されており、今秋からの本格的な運用に向けて準備を進めている。

この高周波電子銃には、今回、製作した多結晶 Ir_2Ce 光陰極を搭載している。図 6 には、CDS 型高周波電子銃に搭載したカソードロッドを示している。このカソードロッドの先端には、直径 6 mm の Ir_2Ce 光陰極が冷やしバメによって固定されている。

今秋からの試験運転では、オフラインでの量子効率測定で示されたような高い量子効率を得られ、 Ir_7Ce_2 光陰極同様に長期安定的に運用できるのかについて検証していく予定である。



Figure 6: Cathode rod for a CDS type RF gun.

5. まとめ

IrCe 光陰極のさらなる高量子効率化と量子効率の空間分布の均一化を目指して、イリジウムとセリウムの組成比が異なる4種類の IrCe 化合物材料の開発を行った。その結果、 Ir_2Ce という組成のサンプルは、不純物組成が混入する割合が非常に小さく、良質な多結晶体となることが明らかになった。さらに量子効率についても、4種類の組成の中で最高の量子効率を示すということも明らかになった。今後は、 Ir_2Ce サンプルにおける量子効率の空間分布測定と高周波電子銃での長期的な運用の可能性について検証していく。

参考文献

- [1] Y. Ohnishi *et al.*, "Accelerator design at SuperKEKB", Prog. Theor. Exp. Phys., 2013, 2013, 03A011.
- [2] T. Kamitani *et al.*, "Present status of the positron source upgrade for SuperKEKB", Proceedings of the 12th Annual Meeting of PASJ, Tsuruga, Aug. 5-7, 2015, pp.1064 - 1068.
- [3] T. Natsui *et al.*, "Development of high charge low emittance DAW type RF gun for SuperKEKB", Proceedings of the 8th Annual Meeting of PASJ, Tsukuba, Aug. 1-3, 2011, pp.1272

- 1274.

- [4] T. Natsui *et al.*, "Commissioning of RF gun for SuperKEKB", Proceedings of the 13th Annual Meeting of PASJ, Chiba, Aug. 8-10, 2016, pp.524 - 526.
- [5] C. Hessler *et al.*, "Study of the performance of Cs_2Te cathodes in the PHIN rf photoinjector using long pulse trains", Proceedings of IPAC2016, Busan, May 8-13, 2016, pp. 3960 - 3963.
- [6] R. R. Mammei *et al.*, "Charge lifetime measurements at high average current using a K_2CsSb photocathode inside a dc high voltage photogun", PRSTAB, 16, 033401 (2013).
- [7] T. Nakajyo *et al.*, "Quantum Efficiencies of Mg Photocathode under Illumination with 3rd and 4th Harmonics $\text{Nd}:\text{LiYF}_4$ Laser Light in RF Gun", Jpn. J. Appl. Phys. 2003, 42, pp.1470 - 1474.
- [8] T. B. Massalski *et al.*, Binary Alloy Phase Diagrams. 2nd ed. Vol 2. ASM International, Ohio, 1990.
- [9] G.I. Kuznetsov, "IrCe Cathodes For EBIS", Journal of Physics: Conference Series 2, 35 (2004).
- [10] D. Satoh *et al.*, "Research and development of iridium cerium photocathode for SuperKEKB injector linac", Energy Procedia (accepted).