

Electron beam is widely used in scientific and industrial applications, such as an electron microscope, electron beam lithography exposure, and driving high-power x-ray. Recently, high-speed operation has become a common issue in electron beam applications, for instance, in electron microscopy and X-ray non-destructive inspection, high-speed imaging is required. To realize such high-speed operation, it is necessary to develop an electron source capable of efficiently generating an electron beam with higher brightness and higher current. As a candidate for a new electron source, we have focused on iridium-cerium (Ir-Ce) alloys, which have low work function, and have been studying their potential use as an electron source. The Ir-Ce alloy with few internal defects was successfully produced by a two-step process of plasma arc melting and discharge plasma sintering. Experimental photoemission results ($h\nu = 4.66$ eV) of Ir-Ce alloys indicated a quantum efficiency of up to 0.05 %. Maintenance-free operation for more one year was achieved in a high energy electron accelerator, leading its practical use as a photoemitter in the scientific application. The Ir-Ce alloys have been found to have excellent emission properties as a thermionic cathode, which encourage us to develop thermionic electron guns using the Ir-Ce alloys for applications, for instance, to high intensity X-ray sources.

Keywords: electron source, iridium-cerium alloy, photocathode, thermionic cathode

Development of high-efficiency electron sources and their applications to accelerators and X-ray sources
Daisuke SATOH* (National Institute of Advanced Industrial Science and Technology),
〒305-8568 茨城県つくば市梅園 1-1-1
TEL: 029-861-8218, FAX: 029-861-5683,
E-mail: dai-satou@aist.go.jp

1 はじめに

電子源とは、真空中に電子を取り出すために用いられる物質(主に金属)のことを指し、この電子源から放出した電子集団を電界によって加速し、ビーム状にして取り出す装置を電子銃という。電子源は、電子ビームを利用する装置には必要不可欠な要素であり、たとえば、電子顕微鏡などの顕微計測機器、電子ビーム描画装置などの微細加工装置、さらにはX線非破壊検査装置などの産業機器や高エネルギー電子加速器などの学術用途の先端機器に搭載されている。

電子ビームの応用が多岐にわたる背景には、電子の持つ特異な性質に関係している。たとえば、電子は負の電荷をもち質量が非常に小さいことから、外部電界によって容易に高エネルギー化することが可能である。その結果、光に比べて波長が極めて短い電子波が得られ、光学顕微鏡を上回る高倍率な顕微観察が可能である。また、加速器を用いることで電子をさらに高エネルギー化してX線や陽電子線、中性子線といったさまざまな二次放射線を発生することが可能である。

筆者が所属する産業技術総合研究所では、これらの放射線発生装置の開発とそれらを用いたさまざまな先端計測を行っている¹⁻³⁾。その他にも、電子は物質中での散乱距離が短いため、物質の表面近傍を局所的に加熱・励起することができ、電子ビームを用いた溶解・蒸着・露光の技術が確立されている。

電子ビームは、電子の存在が確認されて100年余りの間で、学術的にも産業的にも欠かせない重要なツールとなってきた。近年、電子ビームを利用する先端機器においては、処理の高速化が共通の課題となっている。たとえば、半導体製造の現場では、これまで以上に高集積密度の大規模集積回路(LSI)を従来と同等の速度で製造することが求められており、その製造・検査を担う電子ビーム露光装置や測長電子顕微鏡は処理の高速化が不可欠である^{4,5)}。また、X線による非破壊検査や先端計測においては、製造ラインを流れてくる製品内部のインライン検査や実際に機械動作する製

Table 1. Main properties of single crystalline LaB₆ (100), CeB₆ (100), and Ir-Ce alloy⁶⁻⁹. Evaporation rates of LaB₆ (100) and CeB₆ (100) are reference values quoted from the AP Tech catalog¹⁰.

	LaB ₆ (100)	CeB ₆ (100)	Ir-Ce alloy
Work function (eV)	2.7	2.62	2.57
Melting point (K)	2483	2463	2173–2523
Evaporation rate (g/(cm ² · s))	2.3 × 10 ⁻⁹ at 1800 K	1.7 × 10 ⁻⁹ at 1800 K	1.6 × 10 ⁻⁹ at 2100 K

品内部の動作状態を非破壊かつ高速に検査・計測するニーズが高まっている。

多種多様な電子ビーム利用の新たなニーズに対応する共通の方法は、電子源の高効率化・高輝度化・大電流化である。しかしながら、これらの電子放出特性は電子源材料固有の物性値（たとえば仕事関数）に大きく依存するため、市販の電子源性能を上回る新たな電子源材料の開拓が必要である。そこで筆者は、新たな電子源材料の候補としてイリジウム-セリウム (Ir-Ce) 合金という物質に着目し、その材料の開発から高強度 X 線源や高エネルギー加速器への実装を目指した電子銃の開発を行い、その利用可能性を研究している。本記事では、これらの開発状況について述べる。

2 Ir-Ce 合金

Ir-Ce 合金中に含まれる Ir-Ce 化合物は、特にイリジウムとセリウムの原子数比が Ir : Ce = 2 : 1 以上のイリジウムリッチの組成において非常に高い融点 (2173 K–2523 K) を持つことが知られている⁶。また、セリウムを約 13 % 含む Ir-Ce 合金は、仕事関数が 2.57 eV と報告されている⁷。Ir-Ce 合金の物理特性に関して、市販の高性能電子源として知られる単結晶 LaB₆ と単結晶 CeB₆ との比較を Table 1 に示す。特筆すべき点は、Ir-Ce 合金が非常に低い仕事関数を持つことである。仕事関数が低いと物質中から電子を取り出すために必要な外部エネルギーが少なくて済むため、電子放出の種類（熱電子放出、光電子放出、電界電子放出）によらず、高効率に大電流の電子ビームを生成できる可能性がある。しかしながら、この材料に関する研究実施例は非常に少なく、そもそも電子源に最適な合金組成も明らかになっていない。

3 Ir-Ce 合金の製作

Ir-Ce 合金の製作においては、プラズマアーク溶解法を用いて合金化を行った。プラズマアーク溶解法の

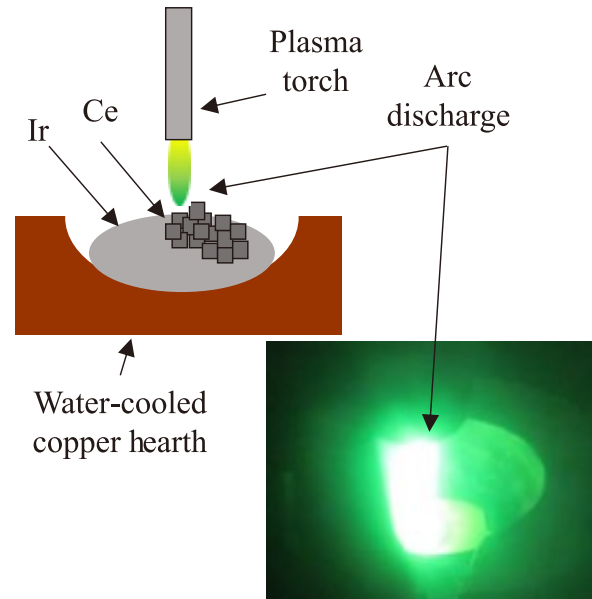


Figure 1. Schematic diagram of plasma arc melting of Ir-Ce alloy. Photograph of plasma arc melting furnace during melting of Ir-Ce alloy.

概念図を Fig. 1 に示す。プラズマアーク溶解法とは、プラズマトーチ内の電極と溶解する金属間でアーク放電を起こし、この放電によって局所集中的に金属を高温に加熱して溶解する方法である。この溶解法は、イリジウムなどの高融点金属の溶解やイリジウムとセリウムのように蒸気圧が大きく異なる元素で構成される合金をコンタミネーションフリーで溶解する目的に適しているため採用した。プラズマアーク溶解の後に、合金内部に含まれる鑄巣やブローホール、割れなどの欠陥を解消するため、一度、不活性雰囲気下で微粒粉末に粉碎ののちに、放電プラズマ焼結による二次焼結を実施した。放電プラズマ焼結の概念図を Fig. 2 に示す。放電プラズマ焼結では、グラファイト製ダイス内に Ir-Ce 合金粉末を入れ、一軸に機械的な圧力を加え

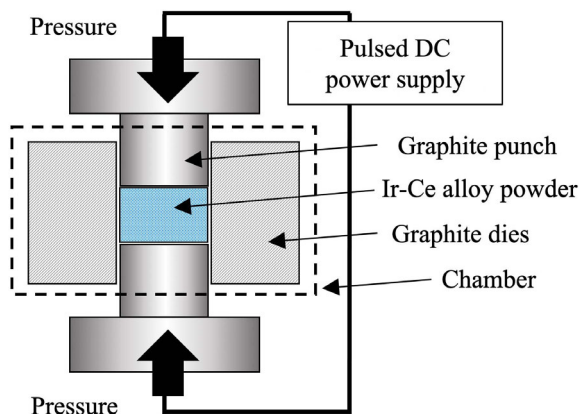


Figure 2. Schematic diagram of spark plasma sintering (SPS) of Ir-Ce alloy.

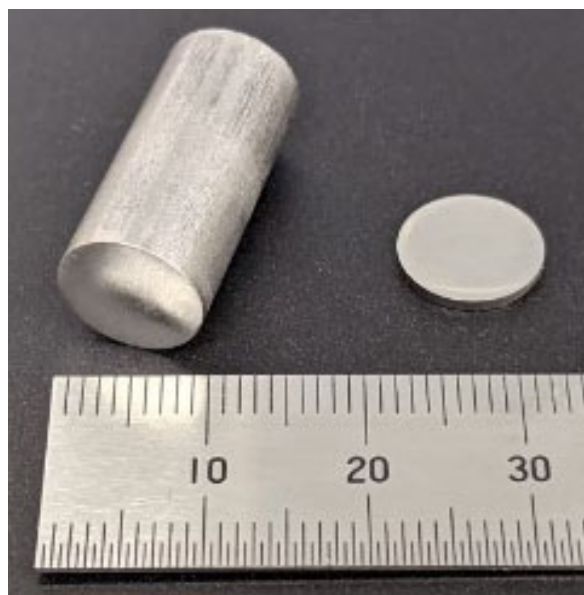


Figure 3. Photographs of Ir-Ce alloy ingot sintered by SPS (left) and machined into a thin plate shape (right).

ながら、パルス通電加熱を行うことで焼結を行った。その結果、内部欠陥が少ない良質な Ir-Ce 合金の製作に成功した¹¹⁾。本製造法によって製作したインゴットと、インゴットから薄板形状に機械加工した Ir-Ce 合金を Fig. 3 に示す。本製造技術に関しては特許取得にいたった¹¹⁾。

4 光電子源の利用と加速器応用

4.1 Ir-Ce 合金光電子源

光電子源は、電子源にレーザー光を照射し、外部光電効果によって電子ビームを生成する。この電子源は、レーザー光の照射条件を変更することで、電流やパルス長などの電子ビームの初期パラメータを自在に制御でき、非常に高いピーク電流の電子ビームを高輝度で生成できるといった利点を有する。そのため、光電子源は、特に短パルス電子ビームを使用する高エネルギー電子加速器や超高速電子線回折などの先端計測装置に多く採用されている。

一般に、光電子源においては、入射光子数に対する放出電子数の割合で定義される量子効率や連続使用可能な時間、表面のロバスト性（電子やイオンの衝撃耐性）が重要である。代表的な光電子源をいくつか例示すると、Cs₂Te などの薄膜光電子源は 10⁻⁷ Pa 以下の超高真空環境では 10 % 以上の量子効率を有しているが、この高い量子効率は約 100 時間で 1/3 以下に減少してしまい¹²⁾、年単位の長期連続使用という面では課題がある。一方で無酸素銅などの純金属の量子効率は 0.01 % 程度と非常に低いが、5000 時間以上の使用実績が報告されており、長期連続使用という面では大きな利点がある。Ir-Ce 合金においては、波長 266 nm の紫外光における量子効率が最大で 0.05 % 以上¹³⁾で、電子銃のテストベンチにて 1 年以上のメンテナンスフリーでの連続使用実績がある¹⁴⁾。

高エネルギー電子加速器では、長期安定性が非常に重要視され、光電子源には無酸素銅が数多く採用されている¹⁵⁻¹⁷⁾。Ir-Ce 合金は、1 年以上の連続使用実績に加えて無酸素銅の約 5 倍もの量子効率を有していることから、長期安定性を維持しつつも高いピーク電流量の電子ビームを供給できるという点で優位性がある。そのため、高エネルギー電子加速器を用いた未発見の素粒子現象の検出を目的とした国際プロジェクト (SuperKEKB) の光電子源に採用された。

4.2 高エネルギー加速器用電子銃の開発

高エネルギー電子加速器を用いた素粒子物理実験では、素粒子現象の発生頻度がビーム電流に比例するため、長期間の電子源性能が測定時間に直接影響する。そこで、Ir-Ce 合金の量子効率を常に最大化する実用電子銃の開発を行ってきた。

光電子源は、長寿命のものでも表面汚染のために 1 か月で数 % は量子効率が減少してしまう。また、光

電子源を用いた加速器用電子銃の多くは、高周波電子銃（高周波電界によって電子ビームを引き出す電子銃）であり、表面洗浄技術が非常に重要である。これは静電型の電子銃にはない高周波電界による不純物イオンの逆スパッタなどの量子効率を下げる現象が発生するためである。これまでの高周波電子銃では、電子放出表面を洗浄する方法として、レーザークリーニング法¹⁷⁾ やイオンスパッタ法¹⁸⁾ が用いられていたが、洗浄過程での表面損傷の発生や曲率を持つ電子放出面を均一に表面洗浄することが困難といった技術的な課題がある。高温加熱は、両者の問題が解消されるが、一般に光電子源を用いた高周波電子銃において光電子源を高温加熱するには、1) 電子源の効率的な加熱、2) 電子源の断熱、3) 高周波漏洩の防止が必要であり、その複雑さからこれまで採用されてこなかった。

そこで筆者は、(1) 背面電子ビーム加熱方式という高温加熱による表面洗浄機構、(2) チョーク構造という高周波遮蔽構造を搭載した新たな電子銃を開発した¹⁹⁾。本電子銃の基本構造を Fig. 4 に示す。この電子銃では、背面電子ビーム加熱方式といって光電子源以外にもう一つ別の熱電子銃を内部に搭載し、熱電子ビームを生成・加速し、光電子源に照射することで光電子源のみを選択的に加熱することができる。この機構によって直径 8 mm の光電子源を電子銃に設置したまま、均一に 1000 °C 以上に加熱することが可能となった¹⁹⁾。光電子源と高周波空洞は断熱のために非接触としなければならないが、その際にこの間隙から高周波が漏洩する危険性がある。この問題を解決するために、電子源の脇にチョーク構造という高周波空洞における共振周波数の 1/4 波長に相当するラジアル線路を設けた。この構造を設けることで、空洞から漏れ出てきた高周波のうち、直接通過する高周波 (Fig. 4 中の赤矢印) とラジアル線路を伝搬して反射して帰ってきた高周波 (Fig. 4 中の青矢印) の位相がちょうど反転し、仮想終端することで高周波の漏洩を防止することができる。この 2 点のアイデアによって光電子源を電子銃内に搭載したまま効果的に表面を加熱することが可能となり、その表面処理の効果によって従来の電子銃システムの約 2 倍以上の量子効率での運転が可能となった¹⁹⁾。

5 熱電子源の利用と X 線源応用

熱電子源とは、高温に加熱することで真空中に電子を放出する電子源であり、走査型電子顕微鏡や X 線源など産業機器に最も利用されている電子源である。

Ir-Ce 合金の熱電子源としての利用においては、Table 1 に示すように低仕事関数に加えて、蒸発速度が非常に小さいことも大きな利点である。Table 1 に示す蒸発速度に関して比較すると、1800 K での LaB₆、CeB₆ における蒸発速度が、2100 K での Ir-Ce 合金における蒸発速度とほぼ同程度の値となっている。蒸発速度は温度に比例して指数関数的に大きくなるため、同じ温度で比較すると Ir-Ce 合金の蒸発速度は極端に小さいと考えられる。そのため、電子源単体で見ると長寿命となることや、LaB₆ より高温で利用することで大電流密度での電子ビームを生成できる可能性があり、熱電子源としても有用であると考えられる。現在、ヒーター

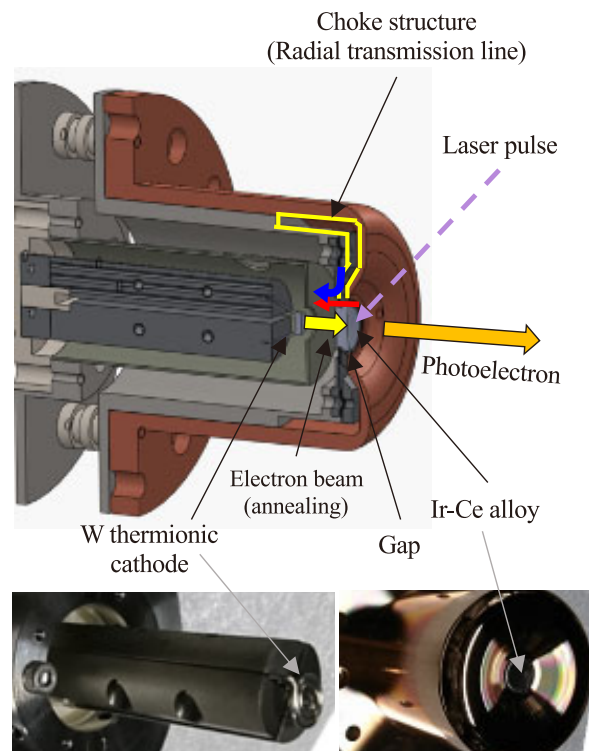


Figure 4. Conceptual illustration of new electron gun system using Ir-Ce alloy as a photocathode. This electron gun can efficiently and selectively heat the photocathode by the back electron beam heating structure, which increases the quantum efficiency. The choke structure provides a virtual termination near the gap and prevents leakage of microwave. Photograph of the tungsten thermionic cathode for annealing the photocathode (left) and the Ir-Ce alloy photocathode mounted on copper cathode plug (right).

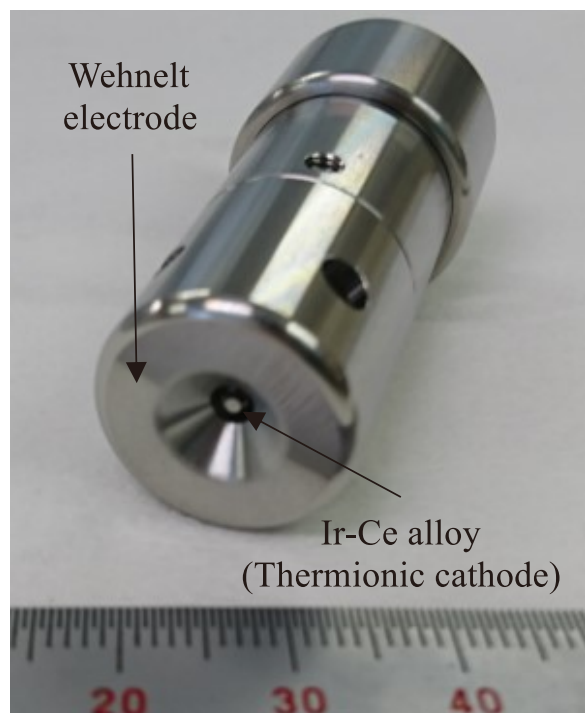


Figure 5. Thermionic electron gun for high-intensity short pulse X-ray source equipped with Ir-Ce alloy.

構造・電子銃構造を検討しながら熱電子放出特性の評価を行っている。現状では、高性能電子源として市販化されている単結晶 LaB_6 と同等の熱電子放出特性が得られつつある。

熱電子放出特性の評価と並行して、高強度パルス X 線源に向けた電子銃 (Fig. 5) の開発に取り組んでおり、すでに 100 mA 以上のビーム電流量でミリ秒以下のパルス X 線の発生に成功している。現在、生産ラインにおけるインライン高速非破壊検査などに向けて、さらなる電子銃の大電流化と X 線源の小型化に取り組んでいる。

6 おわりに

電子ビーム利用の新たなニーズに対応するため、電子源の高効率化・高輝度化・大電流化を目指して、Ir-Ce 合金という物質に着目して、電子源としての利用可能性を研究してきた。Ir-Ce 合金は、プラズマアーク溶解などで一次溶解したのち、微粒粉末に粉碎後、放電プラズマ焼結による二次焼結を行うことで内部欠陥が少ないインゴットが得られた。Ir-Ce 合金は、光電子源と

熱電子源としての利用を開始し、それぞれの電子放出の特徴を生かして、高エネルギー加速器や高強度 X 線源への実装を進めてきた。今後は、電子源のさらなる高効率化に向けて、Ir-Ce 合金材料の改良や単結晶化を進めながら、電子顕微鏡や金属 3 次元プリンタといったさまざまな電子ビーム利用装置への搭載を目指した研究開発を進めていく。

〈謝 辞〉

本研究は、高エネルギー加速器研究機構の関係者の方々、神戸大学の菅原 仁教授、株式会社コベルコ科研の関係者の方々に多大なご協力いただき、ここまで推進することができました。ここに感謝申し上げます。

〈参 考 文 献〉

- 1) R. Kuroda, H. Toyokawa, M. Yasumoto, H. Ikeura-Sekiguchi, M. Koike, K. Yamada, T. Yanagida, T. Nakajyo, F. Sakai, K. Mori, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A-Accel. Spectrom. Dect. Assoc. Equip., 637 (2011) S183.
- 2) K. Sato, N. Oshima, Rev. Sci. Instrum., 91 (2020) 083907.
- 3) B. E. O'Rourke, T. Fujiwara, K. Furukawa, M. Furusaka, N. Hayashizaki, H. Kato, K. Kino, R. Kuroda, K. Michishio, T. Muroga, K. Nigorikawa, T. Obina, H. Ogawa, N. Oshima, D. Satoh, N. Sei, T. Shishido, R. Suzuki, M. Tanaka, Y. Tomota, H. Toyokawa, A. Watazu, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B-Beam Interact. Mater. Atoms, 464 (2020) 41.
- 4) 土肥 隆, 第 16 回真空ナノエレクトロニクスシンポジウム予稿集, 126 (2019) 31.
- 5) 永井 佐利, 第 16 回真空ナノエレクトロニクスシンポジウム予稿集, 126 (2019) 127.
- 6) T. B. Massalski, H. Okamoto, P. R. Subramanian, L. Kacprzak, Binary Alloy Phase Diagrams, second ed., ASM International, Ohio, 1990.
- 7) G. I. Kuznetsov, J. Phys.: Conf. Ser. 2 (2004) 35.
- 8) J. M. Lafferty, J. Appl. Phys., 22 (1951) 299.
- 9) P. R. Davis, M. A. Gesley, G. A. Schwind, L. W. Swanson, J. J. Hutta, Appl. Surf. Sci., 37 (1989) 38.
- 10) Applied Physics Technologies Inc., LaB6 & CeBix Cathodes, http://www.a-p-tech.com/pdfs/LaB6&CeBix_web.pdf
- 11) 吉田 光宏, 佐藤 大輔, 工藤 史晃, 古賀 健治, 草道 龍

- 彦, 電子ビーム生成用カソード部材およびその製造方法, JP6285254B2, February, 9, 2018.
- 12) N. Terunuma, A. Murata, M. Fukuda, K. Hirano, Y. Kamiya, T. Kii, M. Kuriki, R. Kuroda, H. Ohgaki, K. Sakaue, M. Takano, T. Takatomi, J. Urakawa, M. Washio, Y. Yamazaki, J. Yang, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A-Accel. Spectrom. Dect. Assoc. Equip., A 613 (2010) 1.
 - 13) D. Satoh, T. Shibuya, H. Ogawa, M. Tanaka, H. Ikeura-Sekiguchi, R. Kuroda, M. Yoshida, H. Sugawara, H. Toyokawa, Jpn. J. Appl. Phys., 58 (2019) SIIB10.
 - 14) D. Satoh, T. Shibuya, N. Hayashizaki, R. Zhang, X. Zhou, T. Natsui, M. Yoshida, Energy Procedia, 131 (2017) 326.
 - 15) P. R. Bolton, J. E. Clendenin, D. H. Dowell, M. Ferrario, A. S. Fisher, S. M. Gierman, R. E. Kirby, P. Krejcik, C. G. Limborg, G. A. Mulhollan, D. Nguyen, D. T. Palmer, J. B. Rosenzweig, J. F. Schmerge, L. Serafini, X.-J. Wang, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A-Accel. Spectrom. Dect. Assoc. Equip., 483 (2002) 296.
 - 16) J. Scifo, D. Alesini, M. P. Anania, M. Bellaveglia, S. Bellucci, A. Biagioni, F. Bisesto, F. Cardelli, E. Chiadroni, A. Cianchi, G. Costa, D. Di Giovenale, G. Di Pirro, R. Di Raddo, D. H. Dowell, M. Ferrario, A. Giribono, A. Lorusso, F. Micciulla, A. Mostacci, D. Passeri, A. Perrone, L. Piersanti, R. Pompili, V. Shpakov, A. Stella, M. Trov, F. Villa, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A-Accel. Spectrom. Dect. Assoc. Equip., 909 (2018) 233.
 - 17) F. Zhou, A. Brachmann, F.-J. Decker, P. Emma, S. Gilevich, R. Iverson, P. Stefan, J. Turner, Phys. Rev. Spec. Top.-Accel. Beams, 15 (2012) 090703.
 - 18) D. H. Dowell, F. K. King, R. E. Kirby, J. F. Schmerge, J. M. Smedley, Phys. Rev. Spec. Top.-Accel. Beams, 9 (2006) 063502.
 - 19) D. Satoh, T. Shibuya, H. Ogawa, M. Tanaka, R. Kuroda, M. Yoshida, H. Toyokawa, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B-Beam Interact. Mater. Atoms, 462 (2020) 32.

〈著者略歴〉

佐藤 大輔：産業技術総合研究所 計量標準総合センター 分析計測標準研究部門 研究員, 博士 (工学)。2018 年産総研入所。現在, 電子源および高周波電子加速の研究に携わっている。