

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 6 月 12 日現在

機関番号：82626

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K13414

研究課題名(和文)有機デバイス開発のための低照射線量逆光電子分光法の研究

研究課題名(英文) Study on low irradiation inverse photoemission spectroscopy for organic device development

研究代表者

小川 博嗣 (Ogawa, Hiroshi)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・分析計測標準研究部門・主任研究員

研究者番号：60356699

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：逆光電子分光法(IPES)は、有機デバイスの動作において重要な因子である空準位の情報を精密に測定できる手法である。しかし、IPESは感度が非常に低いため、測定試料に大量の電子線を照射する必要があり、測定上の大きな課題となっている。この問題を解決するため、逆光電子過程により放出される光子の集光効率を向上させることができる集光光学系および電子線照射用の電子光学系を新規にデザインした。その結果、従来に比べ高感度化が実現できるIPES計測システムを構築することができた。

研究成果の概要(英文)：Inverse photoemission spectroscopy (IPES) is a technique used to study precisely information of unoccupied electronic structure, which is an important factor in the operation of organic devices. However, since IPES has a very low sensitivity, it is necessary to irradiate a large amount of electron beam to the measurement sample, which is a major problem in measurement. In order to solve this problem, we have novelly designed an optical system which can improve the light collection efficiency of photons emitted in the inverse photoemission process and an electron optical system for electron beam irradiation. As a result, we have been able to construct an IPES measurement system that can achieve higher sensitivity than before.

研究分野：ビーム物理

キーワード：逆光電子分光 低速電子ビーム

### 1. 研究開始当初の背景

有機デバイス開発では、デバイス動作の性能を左右する有機材料中の電子および正孔の伝導準位の正確な測定が必要とされている。しかしながら、電子伝導を担う空準位に関しては精密に測定する有効な手段がなく、研究に遅れが生じていた。この状況の中、逆光電子分光法(IPES)の電子源に低エネルギー電子ビームを用いた手法が最近開発され[1]、空準位の状態密度と電子親和力を精密に決定できる唯一の方法として注目されている。

しかし、一般的にIPESは感度が非常に低いため、測定試料に大量の電子線を照射する必要がある。そのため、特に有機材料に適用する場合、試料のチャージアップや損傷の問題が起きやすく、IPESの測定試料の適用範囲を拡張するためには、電子線の更なる低照射線量が求められている。

### 2. 研究の目的

上記の課題を解決するため、本研究では、逆光電子過程により放出される光子の集光効率を向上させることができる集光光学系および電子線照射用の電子光学系を新規にデザインすることにより、IPESの高感度化を実現する。これにより測定の効率と信頼性を大幅に向上させたIPES装置の開発を目的としている。

### 3. 研究の方法

IPESは、測定試料に電子線を照射し、その電子が空準位に緩和する際の発光を観測することで空準位の情報を得る手法である。逆光電子過程の断面積が非常に小さいため、試料から放出された微弱光を可能な限り大きな立体角で集光して検出器にガイドできるかが感度向上の鍵となる。

そのため、IPESの過去の研究では、集光効率を高めるための様々な装置開発が行われてきているが、低エネルギー電子光学系と試料から放出された光子の検出系(集光レンズ)との干渉が最大の問題となっていた。具体的には、集光レンズのNA(開口数)を増大させるためにレンズを測定試料に最大限近づける必要があるが、低速電子光学系との干渉を防ぎつつ、低速電子ビームを十分な電流量で試料に収束して照射するシステムの実現性に課題があった。つまり、電子ビーム照射系と試料に干渉せずに設置できる集光光学系の配置に制限があり、集光効率の増大に対して限界があった。

そこで、本研究では、試料からの集光効率を従来よりも増大できる新規な光学系を以下の手順で設計および開発を行った。なお、設計はSIMIONコード等を用いた電子軌道計算に基づき実施した。

(1) 熱カソード型低速電子銃を設計し、低エネルギーでも十分な電流が得られる静電レ

ンズの電極数および形状の最適な構造を設計する。次にIPES装置の高感度化に重要な試料への電子照射系および集光光学系の設計を行う。

(2) 低速電子銃から出力された電子ビームが測定試料への電子照射系の電子軌道にマッチングがとれるように電子銃と電子照射系の中間に設けた低速電子輸送系を設計する。

(3) (2)の電子軌道計算をもとに、(1)の電子照射系および電子銃の構造および印加電場パラメータ等にフィードバックをかけて再構成することにより、IPES装置全システムの最適化を行う。

(4) 上記の設計をもとに低速電子銃、低速電子輸送系、照射系および集光光学系から構成されるIPES装置を構築する。

### 4. 研究成果

(1) 既存の低速電子銃をモデルとした電子銃の初期設計を実施した。まず、図1に示すコンパクトで低エネルギーでも高い電流を出力可能な特徴を持つErdman-Zipf型電子銃[2]の印加電圧の最適化を行った。電子ビームエネルギーが5eV以下の低エネルギー領域で各電極の印加電圧のパラメータを掃引し、熱カソードから出力された電子ビームの輸送効率が最大になるパラメータを探索した。図2に計算結果の一例を示す。

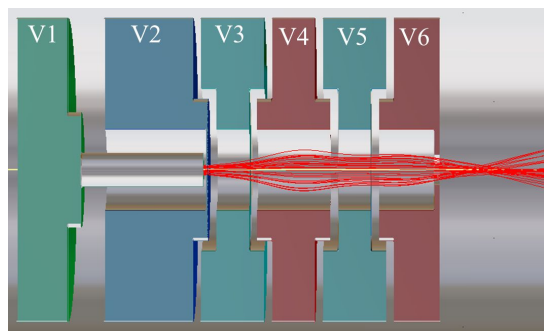
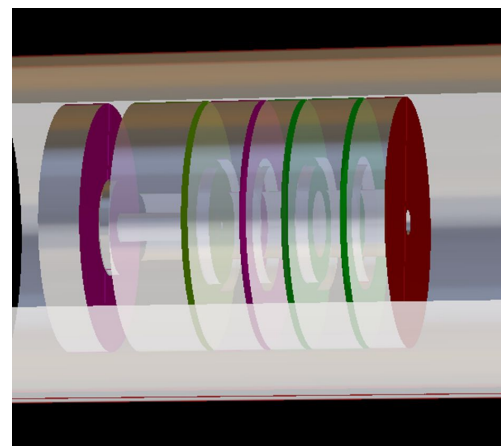


図1: Erdman-Zipf型電子銃(上)と電子軌道計算例(下)

計算の結果、Erdman-Zipf 型電子銃で推奨されている印加電圧のパラメータ[2]と異なる電圧の組み合わせで電子ビーム輸送効率を高くすることができるパラメータが存在することが分かった。

(2) 試料への電子照射系および低エネルギー電子輸送系の軌道計算を行い、電子ビーム輸送効率および試料上で収束した電子ビーム

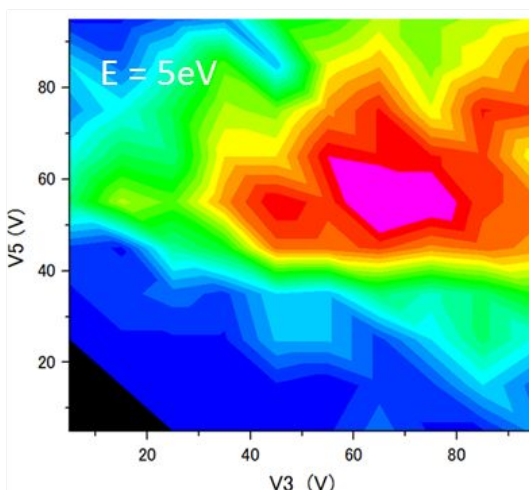
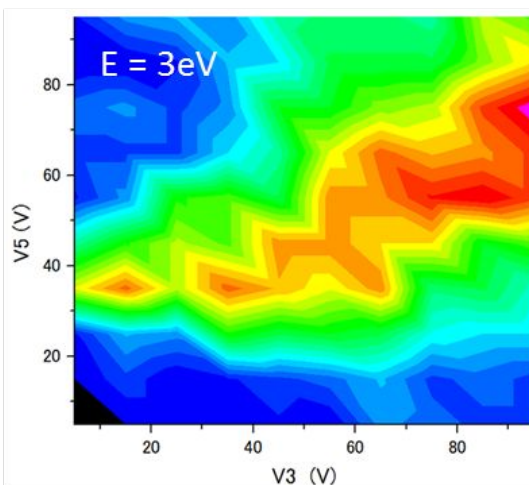
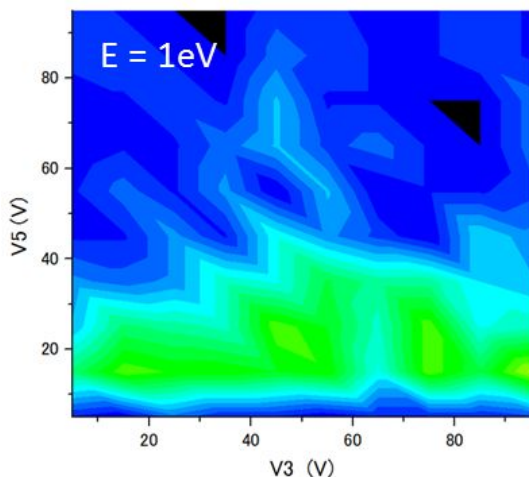


図2：Erdman-Zipf 型電子銃の印加電圧の最適化計算例（電子ビームエネルギー1eV(上)、3eV(中)、5eV(下)）

径が最小になる様に電子銃も含めた IPES 装置全体の最適化を実施した。

その結果、上述の電子銃と異なる形状で最適な電子銃の構造をシミュレーションにより決定し、低速電子輸送系および電子照射系も含めた印加電圧等の最適パラメータを探ることができた。なお、当該設計においては、低速電子ビームが電流の増加とともに受ける空間電荷効果によるエミッタンス増大の影響も考慮して行った。

(3) 本提案の主眼である IPES 装置の高感度化において重要な試料から放出された光子の検出では、試料への電子照射系との干渉を最小限に抑え、高い NA (開口数) で光子を検出できる集光光学系を設計し、最適化することができた。

(4) 上記の IPES 装置の基本設計に基づき、IPES 装置の熱カソード型電子銃が起因の迷光の低減法や掃引する電子エネルギーに依存しない電子ビーム軌道の安定化など IPES 計測における信頼度向上のための改良も行った。これらの改良に伴う電子ビームの空間電荷効果によるエミッタンス増大を抑えるとともに電子照射系との干渉を最小限にしつつ高い開口数で試料から放出される光子を検出可能な IPES システムの設計上の課題を解決し、IPES 装置（熱電子銃、低速電子輸送系、電子照射系、集光光学系等）およびロードロックで測定試料が搬送できる真空蒸着源を備えた試料準備室を製作した。上記の成果をもとに従来に比べ高感度化が実現できる IPES 計測システムを構築することができた。（特許出願準備中）

#### <引用文献>

H. Yoshida et al., Chem. Phys. Lett. 539-540 (2012) 180.  
P.W. Erdman et al., Rev. Sci. Instrum. 53 (1982) 225.

#### 5. 主な発表論文等

〔学会発表〕(計 1 件)  
小川博嗣、低エネルギー電子銃の最適化設計、第 13 回日本加速器学会年会、2016 年 8 月 8 日、幕張メッセ国際会議場、千葉県千葉市

#### 6. 研究組織

(1) 研究代表者  
小川 博嗣 (OGAWA, Hiroshi)  
国立研究開発法人 産業技術総合研究所・分析計測標準研究部門・主任研究員  
研究者番号：60356699

(2) 研究分担者  
清 紀弘 (SEI, Norihiro)  
国立研究開発法人 産業技術総合研究所・分析計測標準研究部門・主任研究員

研究者番号：20357312

加藤 英俊 (KATO, Hidetoshi)  
国立研究開発法人 産業技術総合研究所・  
分析計測標準研究部門・主任研究員  
研究者番号：60583747

池浦 広美 (IKEURA, Hiromi)  
国立研究開発法人 産業技術総合研究所・  
分析計測標準研究部門・主任研究員  
研究者番号：90357319