



Title	Effects of isoelectronic impurities on the light emission of thin-film electroluminescent devices
Author(s)	孫, 相豪
Citation	大阪大学, 1993, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/38225">https://hdl.handle.net/11094/38225</a>
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、<a href=" <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed</a> ">大阪大学の博士論文について</a>をご参照ください。

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

氏名	孫相豪
博士の専攻分野の名称	博士(理学)
学位記番号	第10789号
学位授与年月日	平成5年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 基礎工学研究科物理系専攻
学位論文名	<b>Effects of isoelectronic impurities on the light emission of thin-film electroluminescent devices</b> (薄膜エレクトロルミネッセンス素子の光放射における等電子不純物の効果に関する研究)
論文審査委員	(主査) 教授 浜川 圭弘 (副査) 教授 蒲生 健次 教授 奥山 雅則

## 論文内容の要旨

## (目的)

薄膜エレクトロルミネッセンス素子の平面表示素子への応用には、幾つかの解決しなければならない問題点がある。その中で素子の発光機構の究明と青色発光材の開発は、もっとも重要な課題である。本研究は薄膜EL素子の励起、緩和機構を明らかにする同時に等電子不純物の共添加による青色発光EL素子の開発を目的としたものである。

## (方法ならびに成績)

薄膜EL素子の光放射を説明する解析関数について理論的に考察した。界面準位からの電子タンネリング放射、トラップの正孔捕獲および衝突励起機構とエネルギー伝達機構などのキャリアダイナミクスに基づいて、薄膜EL素子の光放射の前プロセスを記述し、エネルギー伝達の寄与を調べた。エネルギー伝達機構による光放射は、母材の物質変数と素子の駆動条件に依存し、この効果によって、ZnS : Mn素子には約1.8倍、ZnS : Tb素子には、約3倍の輝度が増加することが分かった。Tb<sup>3+</sup>、Ce<sup>3+</sup>およびTm<sup>3+</sup>イオンを発光中心として用いたZnS系薄膜EL素子にO、TeおよびLiなどの等電子不純物を共添加する際、引き起こされる素子の光放射の変化について実験を行った。薄膜結晶性と等電子不純物の共添加状態は、それぞれX-線回析パターンとAuger-電子分光法で分析した。一方、光放射におけるこれらの不純物の役目に関する情報は、カソードルミーとエレクトロルミースペクトルの測定から得た。その結果、ZnS : Tb素子においてOの共添加は、薄膜の結晶性を改善し、同時にSイオン欠陥を減らし、非輻射エネルギー損失を抑えることによって、輝度を改善することが確認できた。次にZnS : Ce素子においてTeの共添加が発光中心回りの結晶場の変化を引き起こし、素子の発光ピーク強度を変えることを見い出した。一方ZnS : Tm素子にLiの共添加は、薄膜の結晶性がやや悪くなることにもかかわらず、素子の輝度を増加させることができた。この現象はLiイオンによるTm<sup>3+</sup>イオン回りの結晶場あるいは格子振動モードの変化に関係するものと見られる。ZnS : Ce、TeとZnS : Tm、Li素子は、高温(300 °C)、O雰囲気で作成した場合、輝度がさらに改善された。ZnS : Tb素子と同じく、OがSイオン欠陥を減らし、非輻射エネルギー損失を抑えることによって輝度が改善されることが分かった。酸素共添加によるこれらの薄膜EL素子の発光特性の変化は、Sイオン欠陥を通じて起きるAuger形非輻射エネルギー伝達というモデルによって説明できた。等電子不純物の効果をより定量的に分析するため、等電子不純物のキャリアバインディングエネルギーを理論的に算定した。短距離不純物ポテンシャルを結晶イオン化エネルギーに基づいて検討し、数値変分近似によってバインディングエネルギーを求めた。ZnS中の酸素のバインディングエネルギーは、0.569 eVで、実験値

に近い値が得られた。

## (総括)

薄膜EL素子の動作原理原理の究明と青色発光素子の開発に関連し、理論的接近と実験的分析を行った。薄膜EL素子の光放射に関する励起、緩和プロセスを衝突励起機構とエネルギー伝達機構を含め、解析関数として示した結果、エネルギー伝達機構による光放射は、様々な母材の物質変数と素子の駆動条件に依存し、エネルギー伝達効果はZnS:Mm素子には約1.8倍、ZnS:Tmbには、約3倍の輝度増加をもたらす、Li、Te、および酸素などの等電子不純物の共添加によって、結晶場あるいは格子運動モードの変化が引き起こされること、あるいは、S欠陥の現象と共に非輻射エネルギー損失が抑えられ、結果的に薄膜EL素子の輝度が改善できた。酸素の共添加による薄膜EL素子の発光特性の変化は、S欠陥を通じて起きるAuge形非輻射エネルギー伝達機構に基づいて説明できた。II-VI半導体における等電子不純物のキャリアパインジングエネルギーを短距離不純物ポテンシャルの結晶イオン化エネルギーに基づいて分析し、数値変分近似法によって求めた。

## 論文審査の結果の要旨

近年、情報化社会の巨大化とともに、その出力装置として使われる画像表示デバイスにも、より視認性のよい画像表示が要請され、現在活躍中のCRT(陰極線管)や液晶表示デバイスに変わって自発光型の平面表示デバイスの技術開発が望まれている。

TFEL(薄膜エレクトロルミネッセンス)素子は、能動(自発光)型フラットパネルディスプレイデバイスとして、次世代の画像情報技術の分野から期待されている。ところが、現在のところ、赤色および緑色のTFELデバイスが実用化の域にあるが、青色発光については今一步輝度が低く、その改善が強く望まれている。こうした状況に鑑み、本研究は青色TFEL素子の高輝度化を目指して行なってきた一連の基礎研究をまとめたものである。

本論文では、まず青色発光をするワイドバンドギャップ半導体の場合、真性ELの発光機構として、高電界で加速された電子の衝突励起のほかに、禁止帯幅の深い準位にいる局在状態を媒介として、発光中心の励起準位へのエネルギー伝達という過程が考えられることを提案し、その可能性について理論的に検討し、実際には等電子不純物の共添加によってエネルギー伝達に寄与する準位として作用することを理論的に導きだした。

継いで、こうした理論的提案を実験的に確認する目的でZnS:Tb<sup>3+</sup>、Ce<sup>3+</sup>およびTm<sup>3+</sup>イオンを発光中心としたTFEL素子を試作し、これに等電子不純物として、O、Te、Liを共添加した場合について一連の実験データを取り揃え、その解析を行なった。その結果、ZnS:Tb素子にOの共添加は、母在ZnS膜の結晶性を改善し、同時にS欠陥を補償することから、非輻射再結合損失を抑制する効果が見いだされ、輝度が増加することが判明した。またZnS:CeにTeを添加した場合、Teの導入によって結晶場の変化を引き起こし、発光ピークや強度が大きく変化することが確認できましたが発光強度の改善は見られなかった。一方、ZnS:Tm素子にLiを共添加した場合には輝度にして約2倍の改善に成功した。

最後に酸素添加によるS欠陥の補償効果を従来のZnS:Mn(橙色)、ZnS:Tb(緑色)素子に適用し、Mnドープ橙色素子では1.8倍、緑色Tbドープ素子では約3倍の輝度改善を実現し、実用技術への要素技術を確立した。

以上述べたように、本研究の成果は次世代画像表示デバイスの本命技術とされているTFEL素子の技術の進歩に貢献するところが大であり、博士(理学)の学位論文として価値あるものと認める。