

青色エレクトロルミネセント素子の研究

メタデータ	言語: ja 出版者: 静岡大学大学院電子科学研究科 公開日: 2008-04-17 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: 中鉢, 善樹 メールアドレス: 所属:
URL	http://hdl.handle.net/10297/1712

氏名・（本籍）	中 鉢 善 樹（宮城県）
学 位 の 種 類	博 士（工 学）
学 位 記 番 号	工博乙第 47 号
学位授与の日付	平成 5 年 3 月 24 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 2 項該当
学位論文題目	青色エレクトロルミネセント素子の研究

論文審査委員	（委員長）		
	教 授	畑 中 義 式	
	教 授	藤 安 洋	教 授 福 田 安 生
	助教授	中 村 高 遠	助教授 中 西 洋一郎

論 文 内 容 の 要 旨

近年の情報機器の発達により、過去には見られなかった大量の情報を、個人レベルに伝達することが可能となった。映像は大量の情報を短時間に伝達可能な点でマンマシンインターフェースの中でも中核機能である。加えて表示素子を含む情報機器の小型軽量化は、機動性の高い情報取得を可能とする。エレクトロルミネセント（EL）素子の発光は、CRT と同程度の表示品位を期待することが出来、しかも全固体素子であるため、薄型化、軽量化、堅牢化が可能であり、理想的な平面表示素子を実現出来る。しかしながら、現在実用化されている EL 素子は、黄橙色単色発光素子のみである。平面表示素子の市場を現在ほぼ独占している液晶市場を、今後 EL ディスプレイが凌駕するためにはフルカラー化の実現が必須である。フルカラー EL 素子実現を大きく阻害している要因は、安定な青色発光 EL 素子の実現である。現在、高輝度青色発光材料として SrS : Ce 蛍光膜が精力的に研究されているが、発光特性並びに安定性の上で多くの問題を抱えている。本研究では、SrS : CeCl₃ EL 素子におけるこれらの問題を、蛍光膜絶縁膜の作製条件、素子の動作特性、素子の発光機構ならびに劣化機構等の物性的側面より検討した。

SrS を含むアルカリ土類硫化物において優れた EL 特性を有する蛍光膜の作製には、高い基板温度や高温での熱処理、更には硫黄の共蒸着等が必要である。これらは、基板材料に制限を生じ、第一絶縁膜の電気特性の劣化を引き起こし発光特性に影響を及ぼす。これらの問題を解決するため、本研究では従来の EB 蒸着法に対して各蒸発源を独立に制御する MSD 法、H₂S ガスソースを使用する改良 MSD 法、イオンの運動エネルギーを利用し基板温度の低下が期待できる ICB 法による膜の作成を提案した。特に、改良 MSD 法の使用により、硫黄の使用に付随する多くの問題が解決可能となり、耐

環境性、結晶性の優れた蛍光体薄膜が得られた。又、ガスソースの使用は真空装置の維持を容易にし、量産化に最適である。

絶縁膜は EL 素子の重要な構成要素である。ここでは AlN と Ta_2O_5 を検討した。AlN は熱的に安定であるが、誘電率が低く、 Ta_2O_5 は高誘電率を有するが、 600°C 以上の加熱により電気的特性が劣化することが判明した。更に、 Ta_2O_5 成膜時 ITO が還元される膜の黒化現象が観察され、これを解決するための新しい Ta_2O_5 成膜プロセスを提案した。又、スパッタで作成した Ta_2O_5 膜が酸素過剰であることを RBS 測定で観測した。絶縁膜の結晶性ならびに電気的特性を検討、特に Ta_2O_5 膜の電気伝導機構が Modified Pool Frenkel 効果によることを示した。最終的に、第一絶縁膜に AlN を、第二絶縁膜に Ta_2O_5 を使用することにより安定で比較的長寿命の二重絶縁構造型青色発光 EL 素子を実現出来た。

SrSEL 素子の発光機構に関しては従来いくつかのモデルが提案されていた。ここでは浅い準位の形成、界面準位の分布形状の仮定、並びに Ce 発光中心のイオン化による空間電荷の形成を重要な要素とする発光機構を提案した。蛍光層絶縁層界面には浅い準位と深い準位の二種の界面準位が存在する。浅い準位は、絶縁膜からの酸素拡散により誘起された欠陥により、深い準位は Ce の発光中心により引き起こされる。酸化膜絶縁膜の使用により浅い準位の形成が促進され、しきい値電界の減少が観察される。他方、正の空間電荷は発光中心のイオン化により生じる。当モデルにより、輝度電圧特性、移動電荷量特性、発光波形等の特性を統一的に説明することが可能となった。

SrSEL 素子における深刻な問題はその急速な輝度の劣化であるが、その原因は不明であった。本研究では EL 駆動に伴う界面準位変化の可能性を提示、劣化に伴う輝度、移動電荷量、効率の低下、発光波形の変化など多くの観測結果が統一的に説明可能なことを示した。具体的には、高エネルギー電子の効果により、蛍光層絶縁層界面に存在する歪みなどが緩和され、浅い準位の消滅により、界面準位が深くなるものである。界面の安定化は長寿命素子の実現を可能にすると思われる。

最後に EL 素子の優れた視認性を示すため、 $\text{ZnS}:\text{MnE}$ 素子を用いた 7 セグメントカウンタ、 $\text{SrS}:\text{Ce,PrEL}$ 素子を使用した三原色発光 EL 素子、並びにマルチカラー EL 素子の原理試作を行なった。

以上の結果は、従来の研究で明確ではなかった $\text{SrS}:\text{CeEL}$ 素子の動作原理ならびに劣化の機構を明かにし、今後の実用化研究に向けての布石となると考える。本研究の成果を基に、フルカラー EL 素子の飛躍的な利用拡大が実現することを期待するものである。

論文審査結果の要旨

本研究はフルカラー固体表示素子のため現在最も実現の困難な青色発光エレクトロルミネセント (EL) 素子の開発を意図したものである。

本論文は全8章から成っており、第1章においてEL素子の歴史的背景が述べられ、青色発光薄膜EL素子の開発の重要性を位置付けている。最近、青色発光の可能なSrS:CeEL素子が研究されているが、発光特性及び動作特性における不安定性が指摘され、実用化の妨げとなっている。本論文ではこの点に注目し、安定性の良いSrS:CeEL素子の製作法の開発及び発光機構の解明が目的とされている。

第2章では発光用蛍光体層SrS:Ceの作製法について述べ、特に各蒸発源を独立に制御するMSD法並びに蒸着中にH₂Sガスを導入して蒸着膜を反応させながらSrS:Ce膜を作製する改良MSD法について述べられている。さらにイオンのエネルギーを利用するICB法の併用も薄膜生成の低温化に役立つことも付記されている。この研究の中で改良MSD法を使用することにより化学量論的で且つ結晶性の優れた高輝度化が可能な蛍光体薄膜が得られることを見いだした点に特徴がある。

第3章では、EL素子作製のためには良質の高誘電率の絶縁膜が不可欠であり、本論文ではAlNとTa₂O₅薄膜の二重絶縁膜を用いるため、その作製法とその特徴について述べられている。

第4章ではEL素子のデバイスとしての基本的原理に基づいた特性の測定、評価の方法について第5章における議論の基礎が与えられている。

第5章では、SrS:Ceの電界発光の機構について新しい知見が示されている。SrS:Ceの発光は従来幾つかのモデルが提案されているが、本論文では蛍光体層と絶縁膜との界面における浅い準位の形成、界面準位の分布形状の絶縁膜依存性、及びCe発光中心のイオン化による空間電荷の形成を重要な要素とする発光機構が提案され、実験結果との対応が矛盾なく説明できることが示された。

SrS:CeEL素子は劣化の問題を解決することが重要な課題であり、この点について第6章で述べられ、特に上記発光機構における浅い準位の変化が問題となること及び素子の防湿気密技術の向上が重要であることが示された。最後に、EL素子のフルカラー化に向け、開発された青色を含む三色のEL素子の試作例について第7章で述べられ、第8章では全体の結論が与えられている。

以上要するに、本論文は安定な青色発光EL素子としてSrS:Ce蛍光体薄膜を用いた素子をH₂Sガスの反応性MSD蒸着法を使用することにより再現性良く製作が可能となったことについて述べ、また発光機構及び劣化機構の解釈にも新しいモデルを提供し、青色発光素子開発に有用な知見を与えている。よって、本論文は博士の学位を授与するに十分な内容を有するものと認める。