



令和2年12月1日

報道機関 各位

東北大学 多元物質科学研究所

### 光り方を決めるのは光る頻度か光らない頻度か？ ～酸化亜鉛結晶の発光効率と発光寿命の相関を明示～

#### 【発表のポイント】

- 酸化亜鉛結晶の発光量子効率\*1 と発光寿命\*2 の関係を実験的に明示
- 外部からの励起頻度が高くなると、主に光らない（非輻射再結合\*3）過程が減速し、発光量子効率が上昇することを発見
- 発光効率や点欠陥濃度の測定精度向上により、様々な半導体デバイスの省エネ化に寄与

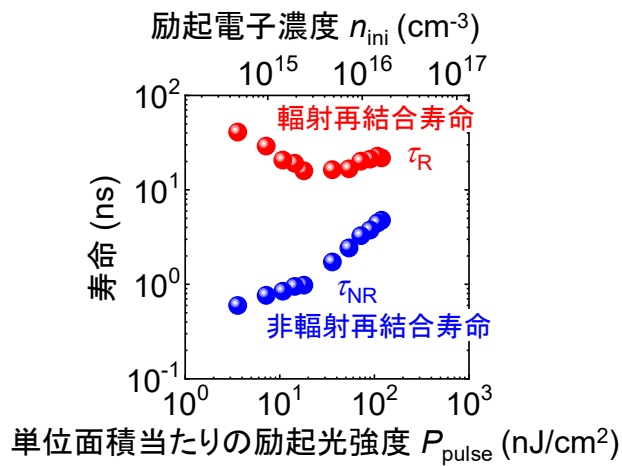
#### 【概要】

電気エネルギーと光エネルギーとを相互に変換する発光ダイオードや半導体レーザー、太陽電池などの光電相互変換デバイスを効率化するにあたり、効率を左右するのは光る（輻射再結合\*3）過程の頻度増加なのか、光らない（非輻射再結合）過程の頻度減少なのかが問題となりますが、両者を切り分けて測定することは容易ではありませんでした。東北大学多元物質科学研究所 小島 一信 准教授、秩父 重英 教授は、水熱合成法にて作製された高純度酸化亜鉛結晶の発光量子効率と発光寿命の関係を実験的に調べた結果、発光量子効率の変化は主として光らない過程（発熱過程）の頻度減少に起因していることを明らかにしました。

本研究は、電子デバイスや光デバイスの製造に用いられる半導体結晶の発光・非発光再結合過程の頻度を定量的に明らかにするものであり、半導体デバイスのさらなる省エネ化や高性能化の指針となるものです。

本研究成果は、本成果は応用物理学会と日本物理学会との協同内部組織である物理系学術誌刊行センター（PCPAP）の科学誌Applied Physics Express誌にて11月24日にオンライン公開されました。

本研究の一部は、文科省の「人・環境と物質をつなぐイノベーション創出ダイナミック・アライアンス」および新学術領域研究「特異構造の結晶科学」の助成を受けています。



【参考画像 1】 外部からの励起頻度を変化させたときの、光る（輻射再結合）過程と光らない（非輻射再結合）過程の頻度の逆数（再結合寿命）の振る舞い。

【問い合わせ先】

（研究に関すること）

東北大学多元物質科学研究所

准教授 小島 一信（こじま かずのぶ）

教授 秩父 重英（ちちぶ しげふさ）

電話： 022-217-5363

E-mail： kkojima@tohoku.ac.jp

（報道に関すること）

東北大学多元物質科学研究所 広報情報室

電話： 022-217-5198

E-mail： press.tagen@grp.tohoku.ac.jp

## 【詳細な説明】

### 1. 背景

価値観の多様化や経済格差の鮮明化に加えて新型コロナウイルス感染症の問題など、先を見通すことが困難になりつつある現代において、持続可能な社会を実現して安心・安全な生活環境を構築することは、多くの人が願うところであると考えられます。このためには、限りあるエネルギー資源の高効率な利活用技術の開発が一つの方策と言えます。特に照明や通信、太陽光発電などの光応用分野においては、電気エネルギーを光エネルギーに変換する発光ダイオード（LED）や半導体レーザー、また逆に、光エネルギーを電気エネルギーに変換する太陽電池のような光電相互変換デバイスの高効率化が不可欠です。これら半導体デバイスは、用途に応じて様々な材料を用いて製造されます。

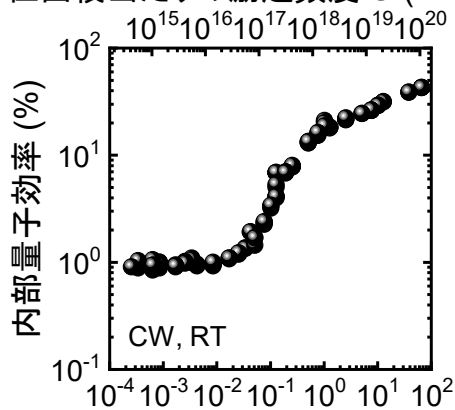
これまで小島准教授らは、半導体結晶の高精度な発光効率の計測手法である全方位フォトルミネセンス（ODPL）法\*4を提案し、積分球\*5を核とする分光技術を駆使した半導体ウェハの高速・高感度検査手法の確立や、極低温下における発光量子効率測定を実現させてきました。しかし、光る（輻射再結合）過程と光らない（非輻射再結合）過程の競合によって決定される発光量子効率が、どちらの過程により支配されているかを切り分けて測定することは容易ではありませんでした。

### 2. 研究手法と成果

本研究では、直接遷移型半導体\*6と呼ばれる酸化亜鉛（ZnO）結晶に着目しました。ZnO結晶は、外部から励起を受けると特有の光を放出します。この時、結晶欠陥の少ない結晶ほど強く発光するため、発光量もしくは発光効率を指標とすることによって結晶の品質管理が可能となります。光計測は一般に瞬時かつ感度が高いという利点がありますが、一方で計測者の技量によってその強度が簡単に揺らぐため、再現性に乏しいことが知られています。このため小島准教授らは、積分球と呼ばれる装置内に試料を配置して、結晶から放出される光を全方位に渡って集めることにより発光量や効率を絶対測定する方法に着目し、評価技術の改善に取り組んできました。

特に本研究では、水熱合成法にて作製された高純度なZnO結晶を対象に、ODPL法による内部量子効率測定（参考画像2）と時間分解フォトルミネセンス法による発光寿命測定を併用することにより、光る（輻射再結合）過程と光らない（非輻射再結合）過程の頻度の逆数（再結合寿命）を切り分けて測定することを試みました。その結果、参考画像1に示す通り、外部からの励起頻度を非常に低い状態から徐々に高めると、光らない（非輻射再結合）過程の頻度の低下（非輻射再結合寿命の増加）が、光る（輻射再結合）過程の頻度の増加（輻射再結合寿命の減少）よりも顕著に生じていることが分かりました。

単位面積当たりの励起頻度  $G$  ( $\text{sec}^{-1}\text{cm}^{-2}$ )



単位面積当たりの励起光強度  $P_{cw}$  ( $\text{W cm}^{-2}$ )

【参考画像 2】 発光効率（内部量子効率）と外部からの励起頻度の関係。

本研究は、電子デバイスや光デバイスの製造に用いられる半導体結晶の発光・非発光再結合過程の頻度を定量的に明らかにするものであり、半導体デバイスのさらなる省エネ化や高性能化の指針となるものです。そのため、ZnOを含めた様々な半導体材料によって作製されるトランジスタやLED、半導体レーザ、太陽電池など、多様な半導体デバイスの開発・製造を加速させるものと期待されます。

### 3. 今後の展望

ODPL 法は、直接遷移型半導体であれば無機材料だけでなく有機材料にも適用が可能であるため、ZnO以外の様々な光材料についても検証を行いたいと考えています。

#### 【論文情報】

タイトル: Correlation between the internal quantum efficiency and photoluminescence lifetime of the near-band-edge emission in a ZnO single crystal grown by hydrothermal method

著者名: K. Kojima and S. F. Chichibu

雑誌名: Applied Physics Express

DOI: 10.35848/1882-0786/abcd73

#### 【用語解説】

##### \*1. 発光量子効率

対象となる発光材料に（本研究では励起レーザによって）入射・吸収された光子数に対する、発光に利用された光子数の割合のこと。

##### \*2. 発光寿命

外部からの刺激によって励起された結晶から、光子が放出される頻度の逆数。

\*3. 非輻射再結合、輻射再結合

結晶内に光励起された電子・正孔ペアが、光子を生成して（光って）消滅することを輻射再結合と呼ぶ。反対に、光子を生成せずに（光らずに）消滅することを非輻射再結合と呼ぶ。

\*4. 全方位フォトルミネセンス（ODPL）法

積分球を使った分光法の一つ。基礎吸収端エネルギー以上の光の放出方向が決まっていることを利用し、結晶の発光効率を再現性良く測定できる。

\*5. 積分球

内壁が硫酸バリウムやスペクトラロンといった拡散反射率の極めて高い（つまり、真っ白な）材料にて覆われた球状の装置。硫酸バリウムは、胃のレントゲンで造影剤としても用いられる。

\*6. 直接遷移型半導体

光を強く放出し、かつ、基礎吸収端エネルギーよりも大きなエネルギーの光を強く吸収する性質を持つ半導体のこと。