

令和2年度学内公募研究（実用化型）
〔研究紹介〕

電子線励起による省エネかつ高出力紫外線発光デバイスの 研究開発

下位 法弘¹⁾

Development of energy-saving and high-power UV light-emitting planar devices by electron beam excitation

Norihiro Shimoi¹⁾

Abstract

Irradiation with far-ultraviolet rays such as UV-C with a wavelength range of 280 nm or less has been proposed as a method to inactivate coronaviruses and sterilize germs and bacteria that are rampant on the earth. However, the use of lamps sealing with mercury gas, the light source currently used, has been banned for environmental reasons. In order to create a device that can emit UV-C with high output power and energy saving, we have developed a flat panel device that emits UV-C with higher efficiency and energy saving than conventional lighting emission diodes (LEDs) by directly injecting field-emission electron beams emitted from highly crystalline single-walled carbon nanotubes into an AlGa_N/Al_N superlattice structure using the cathodoluminescence (CL) mechanism. By applying a voltage to the fabricated light-emitting device to stimulate FE-induced electron emission, we succeeded in emitting about 250 nm UV-C at an input power of about 4.1 mW. The output power of far-ultraviolet light was found to be about 16 mW/cm² at an input power of 4.1 mW, while that of LED was about 50 mW/cm² at an input power of 200 mW. We will develop a basic structure of a flat panel UV-C light emitting device that emits light more efficiently and energy-savingly than conventional LEDs.

1. はじめに

近年、遠紫外線（UV-C）による細菌、ウイルスの殺菌、不活性化を目的とした需要が高まっている。300nm以下の波長で不活性作用があることが知られており、約265nmでその効果はピークとなる[1]。このことから、新型コロナウイルス（COVID-19）にもUV-Cによる不活性化が期待される。最近やウイルスの除去を目的として使用されていたデバイスとして、従来は水銀ランプやUV発光LEDなどがある。これらデバイスは細菌・ウイルスの殺菌・不活性化に使用されているが、同時に問題点も介在した。水銀ランプは

1) 工学部電気電子工学科
Department of Electrical and Electronic Engineering.

高い発光効率を有するが、水銀を使用しているため環境への負荷や健康被害が大きく、更に世界的に水銀の使用が禁止されており今後の使用は殆ど不可能である。UV 発光 LED は水銀ランプほど環境や人体への影響はないが UV-C の出力が弱い。

そこで、これら 2 つに代わる遠紫外線出力のデバイスとして、高結晶性単層カーボンナノチューブ (HC-SWCNT) を電子放出源に用い、AlGaIn/AIn 超格子発光層と組み合わせ、カソードルミネセンス型発光デバイスの構築を検討した (図 1 参照)。このデバイスは電界電子放出 (Field Emission; FE) 現象を利用している。FE とは、物体表面に強い電界を加えることでポテンシャル障壁を薄くし、量子力学的トンネル効果によって表面を抜けた電子が外部へ放出される現象である。我々は FE を利用した発光デバイスを開発しており、可視光域における輝度効率について 70 lm/W を達成した [2]。この成果は LED とほぼ同等の輝度効率を持ち、更に発光寿命も 5000 時間を超えることから、本研究でも安定した電子放出が期待できる。また、UV-C を放射する AlGaIn/AIn 超格子発光層は、窒化アルミニウムガリウム (AlGaIn) と窒化アルミニウム (AlN) を各々厚さ 20nm で 20 層重ねた多重量子井戸型構造を持つ。この素子に電子線を照射すると電子-ホール対が形成→再結合することで UV-C が射出される。HC-SWCNT を積層した薄膜を保持するための基板をカソード素子、AlGaIn/AIn 超格子発光層をアノード素子に用いて、UV-C 輻射型発光デバイスを作製した。この発光デバイスの発光効率を向上させるパラメータとして、

- ・電子源の電子放出低消費電力化
- ・外部量子効率 (=発光層に入射する電子数に対する外部に放出される光子数の割合) 向上

に着目しており、以下の項目について得られた研究成果を報告する。

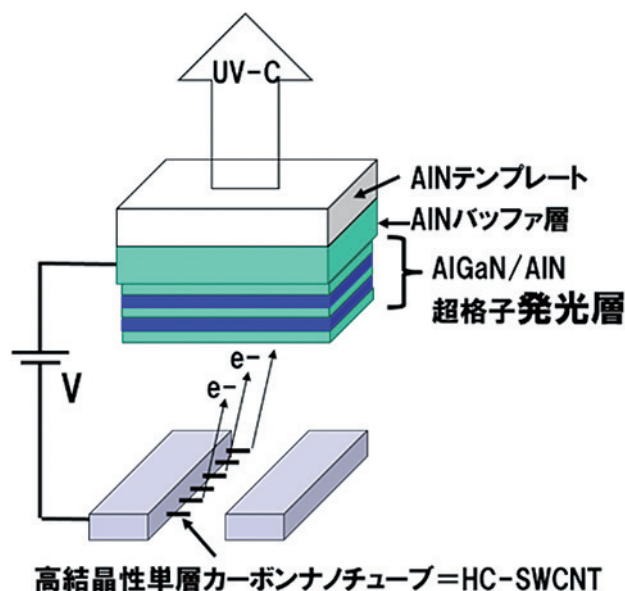


図 1. HC-SWCNT を用いた電子源と AlGaIn/AIn 超格子発光層の概要

2. 実験方法

2.1 カソード素子の作製

FE 用電子放出源として HC-SWCNT を用いたカソードを作製する。HC-SWCNT 2.5mg, 酢酸プチル 3.5mL, ITO 前駆体溶液 (ITO-05C: 高純度化学製) 3.5mL, エチルセルロー

ス 0.6g を混ぜ、超音波洗浄機およびホモジナイザーで HC-SWCNT が均一に分散した塗料を作製し、グラファイト板に静電塗布方法で塗布する。塗布後、乾燥・焼成を行い HC-SWCNT から電子が放出しやすいように塗膜およびグラファイト板表面を表面全域に溝状に削ってカソードを作製した。カソード概観を図 2 に示す。

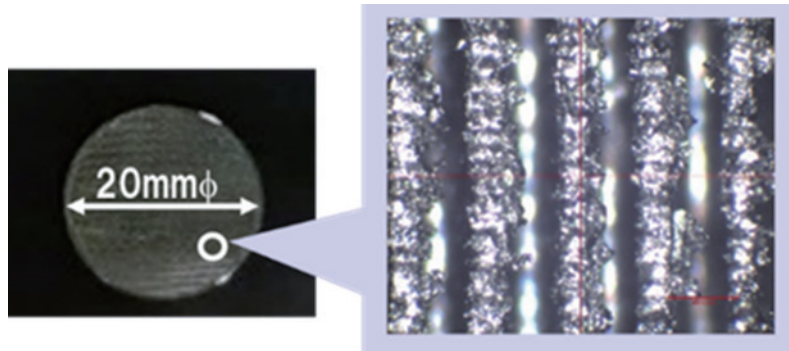


図 2 HC-SWCNT 薄膜とグラファイト素子（左）及び素子表面の拡大図（右）

我々が今までの研究開発で形成した電子源は、均一な膜厚を持つ薄膜の形成を優先しシリコンウェハなど平滑な基板に塗布していたが、より低い電界強度で電子を大量に放出するためには、HC-SWCNT 薄膜を含めた基板表面の凹凸を大きくする必要がある。そこで、本研究では基板表面の凹凸を人工的に形成するためにグラファイト板に HC-SWCNT 薄膜を形成した。グラファイト板に HC-SWCNT 薄膜を形成した後、HC-SWCNT から電子が放出しやすいように塗膜およびグラファイト板表面を表面全域に溝状（溝幅 $50\mu\text{m}$ 、溝の間隔 $100\mu\text{m}$ ）に切削した電子放出源を作製した。電子源概観を図 2、電流 - 電圧 (IV) 特性を図 3 に示す。図 3 の FE 特性において、シリコンウェハ基板による電子源と本研究

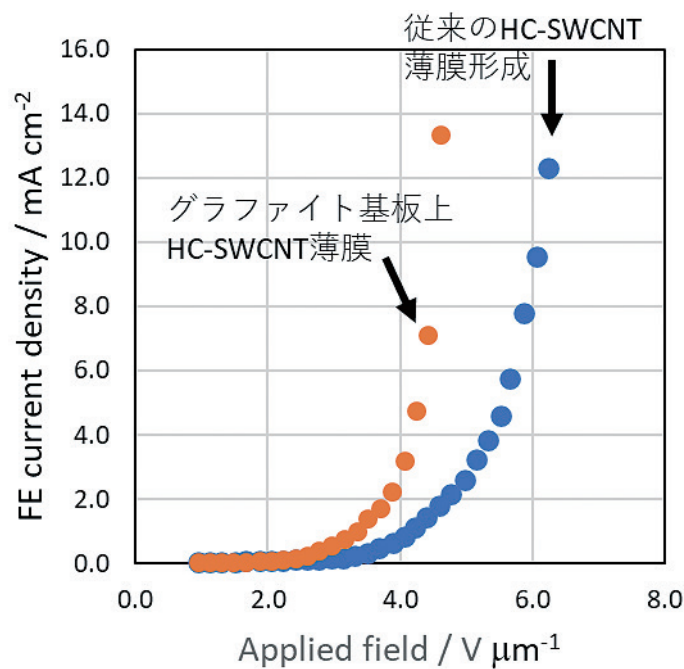


図 3 HC-SWCNT 薄膜とグラファイト素子と従来のプロセスによる素子の IV 比較

で作製した電子源の特性を比較し、グラファイト基板表面の凹凸加工により、より低い電界強度で多量の電子線放出に成功した。

2.2 真空管発光デバイスの作製

作製したHC-SWCNT 薄膜グラファイト板（電子放出源素子）と AlGaIn/ AlN 超格子発光層（DOWA ホールディングス社製）を組み合わせ、ホリゾン(株)の試作協力の下、真空管状の発光デバイスを作製した。図4に真空管状発光デバイスの外観を表す。このデバイスの電流-電圧（IV）特性を評価した後、発光測定を行った。IV 特性結果を図5に示す。管球試作で経た加熱工程の前後でIV 特性の劣化は確認されなかった。さらに、デバイスの改良設計により紫外線発光面積を $0.4 \rightarrow 2.1\text{cm}^2$ まで大面積化することに成功した。UV-C 発光デバイスとして、単一素子から紫外線を射出するデバイスとしては世界初の大型化である。



図4 真空管状発光デバイスの外観

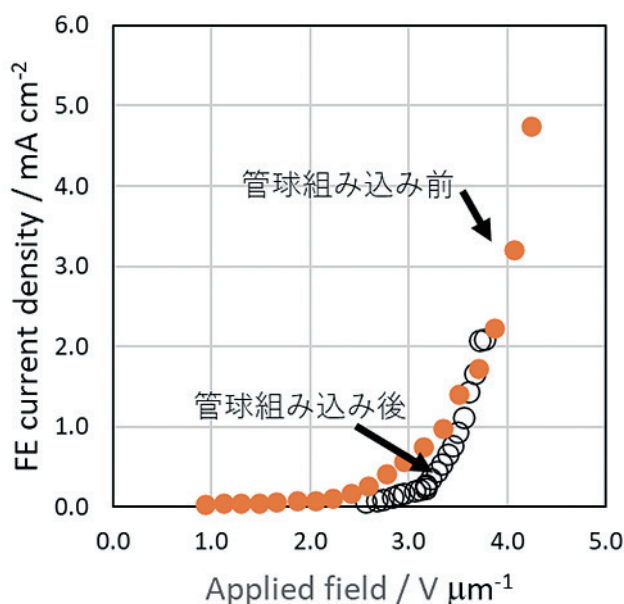


図5 真空管発光デバイスの管球化前後におけるIV 特性の比較

3. 実験結果と考察

3.1 発光特性評価

本研究で試作した真空管状発光デバイスの発光測定スペクトルを図6に示す。発光デバイスに投入した電力を0.5, 1.1, 4.1mWに変化させた場合のスペクトルより、中心値256nmのUV-C発光に成功した。投入電力は「電子放出のために印加した実効電圧値×FE電流値（実効値）」より算出され、投入電力4.1mWの場合、約16 mW/cm²のUV-C紫外線出力を観測した。これは、市販UV-LEDの投入電力200mW－出力約0.4W/cm²と比べた場合、発光効率が2倍程度向上していることが確認できた。本研究により、携帯可能な管球化によるカソードルミネセンス型遠紫外線発光デバイスの基礎構築に成功し、実用化に大きく前進したと考える。

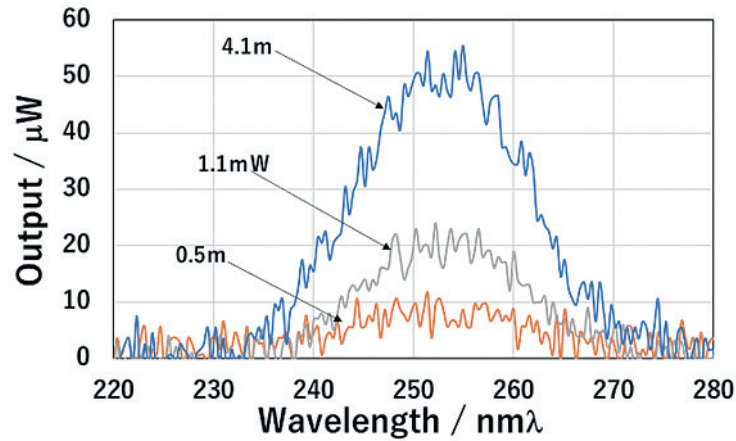


図6 真空管発光デバイスの発光特性

3.2 UV-C光取り出し効率 シミュレーション

AlGaIn/AIn超格子発光層内部で生成したUV-C紫外線を効率よく外界に射出するために、図7左図のAlNテンプレート/AlNバッファ層の直上にフッ化マグネシウム(MgF₂)およびフッ化カルシウム(CaF₂)の多層膜(図7右上図の赤枠内参照)積層による遠紫外線透過率シミュレーションを行った。AlNテンプレートと外界の屈折率差を緩和するために式(1)–(3)に表される光学インピーダンスを計算し、紫外領域の透過率を改善する構造の探索を試みた。

$$\begin{bmatrix} E_0 \\ H_0 \end{bmatrix} = \prod_{j=1}^l \begin{bmatrix} \cos \Delta_j & (i \sin \Delta_j)/n_j \\ in_j \sin \Delta_j & \cos \Delta_j \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_j \\ H_j \end{bmatrix} \quad (1)$$

$$\Delta_j = \frac{2\pi}{\lambda} N_j d_j \cos \theta_j \quad (2)$$

$$T = \frac{4\eta_0 \operatorname{Re}(\eta_m)}{|\eta_0 B + C|} \quad \begin{bmatrix} B \\ C \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} E_0/E_j \\ H_0/E_j \end{bmatrix} \quad (3)$$

光学薄膜としてレンズの反射防止膜に使用されている MgF_2 (屈折率 = 1.383), CaF_2 (屈折率 = 1.433) を用い, 図7右図赤枠内の構造条件で計算した透過率の結果を図8に示す。図8より, 紫外線取り出し効率 (= 透過率) を 88.6% → 98.9% まで改善する多層膜構造を見出すことに成功した。

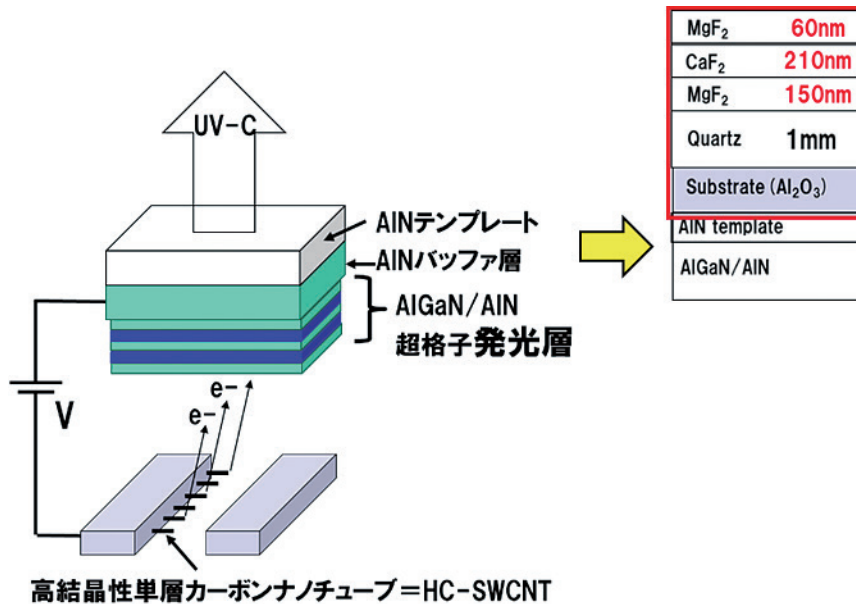


図7. 光取り出し効率向上のための光学薄膜設計概要 (上図赤枠が光学薄膜を示す)

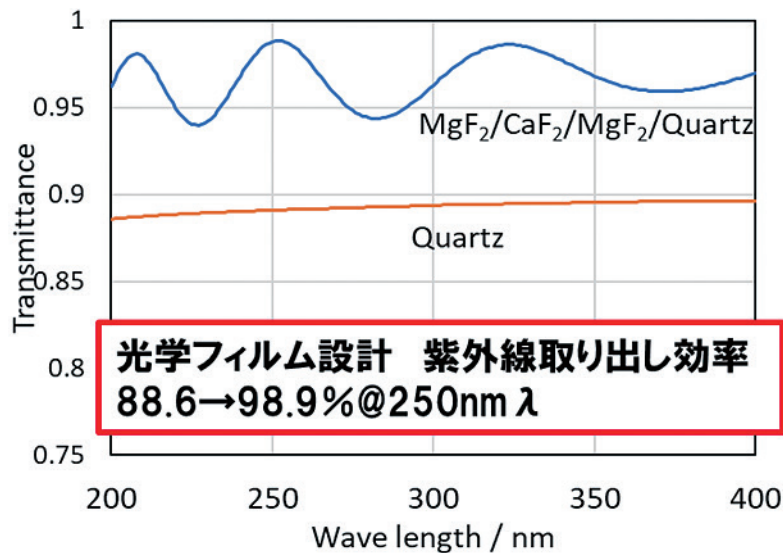


図8. 光学薄膜シミュレーションによる紫外域透過率特性

本成果を基に実際の光学薄膜を作製し, 実装による遠紫外線透過率測定を 2021 年度に実施する。

4. まとめ

HC-SWCNTを分散制御することにより、グラファイト板にHC-SWCNTを積層したカソード素子の作製に成功した。HC-SWCNT薄膜およびグラファイト板の表面を削り、HC-SWCNTからの電子放出が活性化させることにより、HC-SWCNTに電界がかかりやすくなる。結果、面状に電子放出することが確認できた。

上述のカソード素子とAlGaN/AlN超格子発光層を組み合わせ、FE特性を利用したUV-C発光の真空管状発光デバイスを作製した。作製した発光デバイスに電圧を印加してFEによる電子放出を促し、約4.1mWの投入電力で250nm前後の波長域を持つUV-Cを輻射することに成功した（図5および6）。遠紫外線の出力量はLEDと比較した場合、LEDが投入電力200mWで出力約50mW/cm²であるのに対し、本研究で作製した発光デバイスは投入電力4.1mWで出力約16mW/cm²であることがわかった。LEDよりも低電力で高出力であるため、省エネルギーでかつ面状にUV-Cを射出でき、新型コロナウイルスを不活性化するデバイスとして実用化が期待できると考えられる。

参考文献

- [1] 岩崎電気株式会社「セラルクス，FECセラルクスエースの高効率化・長寿命化技術」
<https://www.iwasaki.co.jp/tech-rep/technical/94/> 2021年2月4日.
- [2] Norihiro Shimoi et al., Carbon 65, pp.228-235 (2013).