

発光ナノシート積層膜の作製とEL発光素子への応用

大学院自然科学研究科 前期課程・JST, CREST 園田優樹
九州大学 大学院工学研究院 准教授 伊田進太郎
大学院自然科学研究科 教授・JST, CREST 松本泰道

1. 目的

発光体に電圧をかけることで発光現象を生じるエレクトロルミネッセンス(EL)を利用した無機ELは、次世代ディスプレイの有力候補として研究されている。無機EL用の蛍光体に求められる条件として、1 MV/cm程度の電界強度が形成できる半絶縁性材料であることがあげられる。この条件を満たす可能性がある発光材料として発光ナノシートがあげられる。ナノシートとは、層状化合物の単層剥離によって得られる二次元平面結晶であり、約1 nmの厚さ、数μmの幅を持ち二次元異方性を有する極薄の単結晶である。これまでの研究で、希土類イオンをナノシートのホスト層にドープすることによりナノシート自身がフォトルミネッセンス(PL)を示すことが分かっている。このような発光ナノシートを積層させた超薄膜は、低電圧駆動型無機EL素子の発光層として期待できる。本研究では、電気泳動法により発光ナノシート薄膜を作製し、超薄膜型無機ELへの可能性を検討した。

2. 方法

出発物質としてペロブスカイト型層状酸化物($KCa_{1.9}Eu_{0.1}Nb_{2.9}Ti_{0.1}O_{10}$)を固相法により作製した。 K_2CO_3 、 $CaCO_3$ 、 Eu_2O_3 、 Nb_2O_5 、 TiO_2 を化学量論比で混合し、1150°Cで5 h焼成した。得られた層状酸化物を2M HNO_3 中で1週間攪拌し、プロトン交換を行った。得られたプロトン体($HCa_{1.9}Eu_{0.1}Nb_{2.9}Ti_{0.1}O_{10}$)の8倍モルのTBAOH溶液中で剥離を行い $Ca_{1.9}Eu_{0.1}Nb_{2.9}Ti_{0.1}O_{10}$ ナノシートを得た。このとき分散しきれなかったナノシートの沈殿物を回収し、75°Cの空気中で乾燥し剥離沈殿物とした。この沈殿物をメタノールで30 min超音波処理し、電気泳動を行い薄膜を作製した。特性評価は、XRD、SEM、AFM、PLで行った。

3. 結果および検討

発光材料は、XRDの結果より層状酸化物であることが確認でき、SEMの結果から $3 \times 2 \mu m$ の板状構造を持った酸化物であることが分かった(Fig.1)。AFMの結果から幅 $0.5 \sim 3 \mu m$ 、厚さ約2.6 nmのナノシートを確認した。層状酸化物からドープした Eu^{3+} イオンに由来する赤色発光が示された。ナノシートに剥離後も赤色発光が確認されたため、ナノシート自身による発光であることが確認された。剥離沈殿物をメタノールで分散し、電気泳動を行うことで層状構造を持った薄膜を作製した(Fig.1)。膜厚は電圧と印加時間に依存し、数100 nm～数μmの薄膜を作製出来た。

この薄膜からもナノシートと同様に赤色発光が確認された。発光ナノシートと同様に $Ti_{1.73}O_4$ ナノシートを作製し、電気泳動を行うことで、発光層を絶縁層である $Ti_{1.73}O_4$ 層ではさんだ二重絶縁構造をもつ薄膜を作製した。電気泳動膜に上部電極をとりつけELの評価を行ったが、ELは確認されなかった。約70 Vの電圧を印加したところでショートした。今後は、LBL法、LB法により数10 nmの薄膜を作製し、数Vで駆動できるELの開発を目指す。

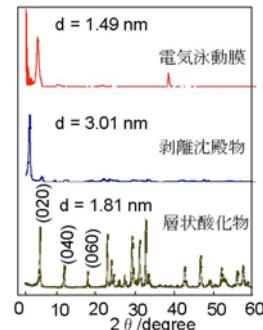


Fig. 1 層状酸化物、剥離沈殿物、電気泳動膜のXRD