

## 論 文 要 旨

2019 年 9 月 13 日

※報告番号	甲第 258 号	氏 名	小泉 洋
主論文題名			
発光デバイスにおける発光層・材料の性能向上に関する研究			
内容の要旨			
<p>本研究は、発光デバイスにおける発光層・材料の性能向上に関するものである。発光デバイスは、発光材料を直接励起し発光を得るデバイスで、発光層の膜厚や膜形状に依存して光学特性が変化することが知られている。近年、デバイスの高精細化にともない、素子ごとの光学特性のばらつきが問題となっており、これを均一化する技術の重要性が高まっている。本研究では、発光デバイスとして、白色 LED (White-Light-emitting diode) と有機 EL (Electroluminescence) を検討した。白色 LED では、使用されている蛍光体の発光特性の焼成温度依存性、有機 EL では、発光特性の発光層膜厚依存性のメカニズムを解明し、それに基づき、小型化・高効率化さらには均一化に取り組んだ。</p> <p>白色 LED においては、窒化ガリウム (GaN)-LED からの青色光を励起源として発光する蛍光体に注目し、二律背反する小粒径化と発光効率の向上を両立できる製法を検討した。対象の蛍光体には、一般的に照明用の白色 LED に用いられるガーネット構造をもつ酸化物系蛍光体である <math>\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}^{3+}</math> (LuAG: Ce) を用いた。</p> <p>従来、固相法により 1550 °C 程度の焼成温度で合成するが、粒子径が中心粒径で 20 <math>\mu\text{m}</math> 程度に大粒径化するため、その解決に 1430 °C の低温合成により小粒径化できることを見出したが、発光効率の低下をとまなう問題を確認した。</p> <p>本研究では、蛍光体の固相合成過程に注目し、発光効率の低下要因の解明に取り組んだ。その結果、1430 °C の低温合成では、固相拡散が不十分であることがわかり、結晶欠陥と Al と Ba の化合物が副生していることを確認し、発光に影響を及ぼしていることを示した。発光効率向上に向けての製法の改善は、前駆体の 1 つである Al 組成比を増加すると、粒子径は中心粒径で 10 <math>\mu\text{m}</math> 以下に小形化でき、合わせて発光効率を向上できた。また、試作した白色 LED でも同様に発光効率の向上を確認した。本研究において、化学量論比通りに合成した中心粒径 10 <math>\mu\text{m}</math> の蛍光体粒子よりも、小粒径化が図かれ発光効率を向上できることを示せた。得られた結果から、小粒径化と発光効率の向上を両立できる蛍光体の製法を確立でき、実用化の見通しが得られ工学的な意義を示せた。</p> <p>さらなる小粒径化には、液中レーザーアブレーション法によるナノ粒子蛍光体の合成を試みた。ナノ粒子蛍光体の合成には、LuAG: Ce と同様にガーネット構造を持つ <math>\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}^{3+}</math> (YAG: Ce) を用いた。</p> <p>従来、レーザーアブレーション法は、液中に沈降させた蛍光体をターゲットにしてレーザを</p>			

照射する、沈降法によるナノ粒子合成が一般的である。しかしながら、この方法では、発光効率が向上しない問題があった。

本研究では、液中に投入した蛍光体を攪拌しながらレーザを照射する懸濁法を試みた。その結果、懸濁法は沈降法よりも結晶性を向上でき、さらに蛍光寿命においても改善が見られ、発光効率の向上を確認できた。ただし、ナノ粒子の発光効率は、ターゲットのマイクロ粒子よりも低下することを確認した。物理分析により低下要因を調査したところ、発光中心である  $Ce^{3+}$  の濃度低下を確認し、原因を液中レーザアブレーション法によるナノ粒子の合成過程の急速な加熱冷却の影響であることを考察した。したがって、液中レーザアブレーション法によるナノ粒子蛍光体の合成は、実用化に向けて課題を残す結果となった。ただし、懸濁法において、液中の分散性を保て、発光効率を向上できるナノ粒子を試作できたことは学術的な意義が高く、今後のナノ粒子蛍光体開発において多くの知見を得ることができた。

有機 EL においては、高分子材料を用いたインクジェット法によるディスプレイ全体の成膜技術に取り組んだ。

これまでに、インクジェット法による有機 EL の成膜については、ディスプレイ全体に成膜した素子ごとの発光特性の均一化を試みた報告はない。

本研究では、TFT (Thin-film-transistor) 基板に設けられた全ての素子に発光材料を滴下し、素子ごとの発光特性の均一化に取り組んだ。有機 EL 材料には、青色発光材料であるポリフルオレン (PFO: Poly(9,9-dioctylfluorenyl)-2,7-diyl) を用いた。

従来、ディスプレイ全体に成膜した素子には、インクジェットの塗布周期に依存して色度に変化する問題を確認した。その原因が、発光層の膜厚やモフォロジーに関係があり、それが発光材料の溶媒乾燥速度に依存性を示した。

改善のため、発光材料を滴下する際に溶媒ミストを基板に噴射し、乾燥速度を制御した。その結果、ディスプレイ面内の素子の膜厚とモフォロジーさらには、色度も均一化できることを確認した。この取り組みにより、ディスプレイ全体の発光特性の均一化に向けて技術を確認でき、実用化の見通しを得た。残る課題は、発光材料の長寿命化で材料開発の動向に注目していく。

以上述べた通り、本研究のオリジナリティである、固相法による LuAG: Ce 蛍光体における Al 組成比の効果、懸濁法を用いたレーザアブレーション法によるナノ粒子蛍光体の発光効率の向上、インクジェット法による有機 EL ディスプレイ全体の均一成膜技術は、発光デバイスの特性向上において有効性を確認できた。また、固相法による LuAG: Ce 蛍光体における Al 組成比の効果については、発光効率を高めた小粒径の蛍光体を提供でき、さらに、インクジェット法による有機 EL ディスプレイの成膜技術においては、ディスプレイ全体の色度の均一化が図れ、実用化に向けての見通しが得られ、工学的な意義を示せた。これらの技術は、高集積化が進む半導体デバイスの分野への技術展開も期待できる。