

## 有機・無機ハイブリッド混色発光デバイスに関する研究

村山正樹\*, 宮尾あゆみ\*\*, 久保雅敬\*\*

### Study on Organic/Inorganic Hybrid Mixed Color Luminescence Devices

Masaki MURAYAMA, Ayumi MIYAO and Masataka KUBO

#### 1. はじめに

有機電子材料によるディスプレイ, 太陽電池, FED などの素子は, 軽量・フレキシブルな“柔軟かいエレクトロニクス”として期待されている<sup>1)</sup>. しかしながら, 有機電子材料は有機物であるがゆえに, 一般的に温度や湿度, 酸素等により劣化しやすく, その安定性が課題となっている.

有機電子材料は, 低分子系と高分子系に大別できる. このうち高分子系は溶液プロセスに適するため, 低コストで大面積にコーティングでき, またインクジェット等によるパターン印刷も可能という利点を有する<sup>2)</sup>. 更に, 重合度や末端基を調整することで, 発光色や溶解性などの特性をある程度自由に制御できる強みも併せ持つ.

有機電子材料のうち有機 EL 材料は, 高効率な発光デバイスとして期待されており, ディスプレイとしての応用だけでなく, 照明への利用も有望である. ディスプレイのフルカラー化のためには, 色純度と発光効率の高い RGB の 3 色の発光材料が必要であるのと同様に, 白色照明においても高い演色性を得るために 3 色の材料が必要であり, しかもそれらを適切に混合することが求められる.

我々はこれまでに, RGB の 3 色に相当する高分子発光材料を開発し<sup>3)</sup>, それらを無機母材中に封じ込めることでその安定性を高める研究を行ってきた. この有機・無機ハイブリッド化において, 高分子発光材料を無機母材中に高度に分散する技術は, 異なる色の発光材料の混合による混色にも

利用できると考えられる.

本研究では, 混色した発光デバイスの作製を試み, 白色発光が得られたので報告する.

#### 2. 研究方法

##### 2. 1 材料

演色性の面からは, RGB3 色の高分子発光材料を無機母材 1 層中に分散させることが好ましい<sup>3)</sup>が, ここではまず混色における基本的な特性を把握するため, 青色と黄色の 2 色混合を検討した. そのために開発した高分子発光材料を図 1 に示す.

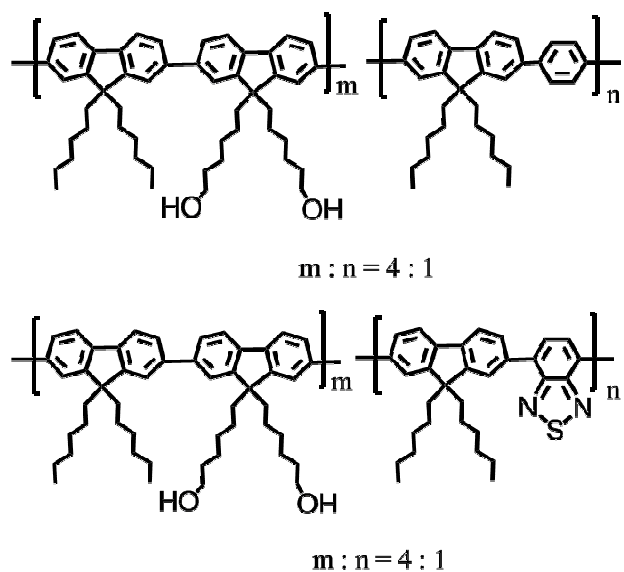


図 1 開発した高分子発光材料. 上) 青色発光, 下) 黄色発光

\* 電子・機械研究課

\*\* 三重大学大学院工学研究科

無機母材の前駆体としては、 $\text{SiO}_2$ の元となるパーヒドロポリシラザン（以下 PHPS）と、 $\text{TiO}_2$ の元となるチタン酸テトライソプロポキッド（以下 TTIP）を使用した。溶媒は、キシレン、エタノールおよびテトラヒドロフラン（以下 THF）を用いた。

## 2. 2 作製法

有機・無機ハイブリッド化は、以下の手順で行った。上述の混合溶液を、石英基板上にスキージした。これを大気雰囲気下、 $80^\circ\text{C}$ で 12h 加熱することにより、溶媒を揮発させるとともに母材を析出させた。得られたハイブリッド発光膜は、デンケーター中、暗所にて保存した。

## 2. 3 評価法

発光は、365nm の UV 光を照射した時の PL を目視で評価した。

## 3. 結果と考察

### 3. 1 溶媒の選択

青色および黄色の高分子発光材料を、PHPS-キシレン前駆体溶液に分散した混合溶液から作製した高分子/ $\text{SiO}_2$ ハイブリッド膜は、発光強度が弱くわずかに光る程度であった。

この原因として、高分子発光材料のキシレン溶媒に対する溶解度の低さが挙げられる。開発した高分子発光材料はどちらもキシレンに可溶であるが、その溶解度は膜内に十分な量の高分子を分散するには至らず、そのために発光が弱いと考えられた。

現に、発光に充分と思われる量を無理に溶媒に添加して膜を作製してみると、図 2 の様に発光するものの発光部位が点在している様子が見て取れ

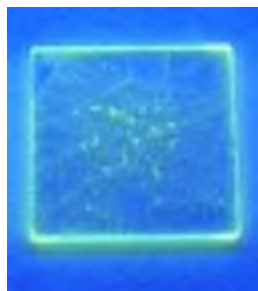


図 2 PHPS-キシレン溶液から作製したハイブリッド膜の発光 ( $\lambda_{\text{ex}} = 365 \text{ nm}$ )

る。このことは、溶解し切れなかった高分子が凝集していることを示しており、均質な発光のためにはより溶解度の高い溶媒を選択する必要がある。

開発した高分子発光材料は、THF には易溶であり、より簡単に高濃度に溶ける。そこで、高分子材料を少量の THF に溶かしておき、そこに PHPS-キシレン溶液を添加することを試みた。しかし、PHPS はキシレン中で急激に反応し、発泡（おそらく水素ガス）してゲル化してしまった。ゲルはそれ以上他の溶媒を用いても溶解せず、基板にスキージすることはできなかった。

高分子材料はエタノール溶媒に対しても溶解度が低いものの、高分子-THF 溶液を TTIP-エタノールに混合する際には上述のような急激な反応は起こらなかった。そこで、以下の実験では全て、高分子材料を少量の THF に溶かしておき、これを TTIP-エタノール溶液に添加した混合溶液を用いた。

### 3. 2 混色方法の選択

混色方法としては、理想的には上述のように各色のポリマーを混合した溶液をスキージし、1 層で白色の膜ができることが望ましい（図 3 左）。



図 3 混色方法。

左) 1 層中へ各色の高分子発光材料を混合分散。

右) 単色のハイブリッド膜を積層

そこで、青色ならびに黄色の高分子発光材料を同時に THF に溶かし、これを TTIP-エタノール溶液に添加した混合溶液からハイブリッド膜を作製したところ、できた膜は図 4 左の様に殆ど発光しなかった。比較のため青色高分子のみから同様に作製したハイブリッド膜は図 4 右の様にきれいに光ることから、1 層中への高分子発光材料の混合により消光が起こってしまったものと考えられる。

### 3. 3 積層膜の白色化

そこで次に、図 3 右の様に単色の高分子をハイブリッド化した膜を積層することによる混色を検

討した。

単純に青色ハイブリッド層と黄色ハイブリッド層を積層しただけでは、図 5 上の様に白色にはならなかったが、混合溶液濃度や積層回数・積層順を最適化することによって、最終的に図 5 下の様なきれいな白色面発光を得ることができた。

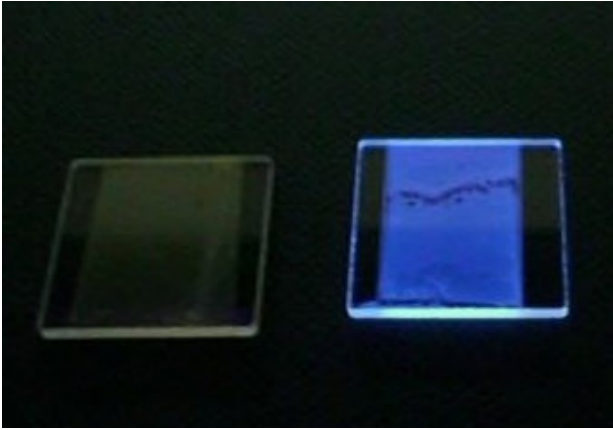


図 4 左) 青色+黄色 1 層混色ハイブリッド膜。  
右) 青色単色ハイブリッド膜 ( $\lambda_{ex} = 365 \text{ nm}$ )

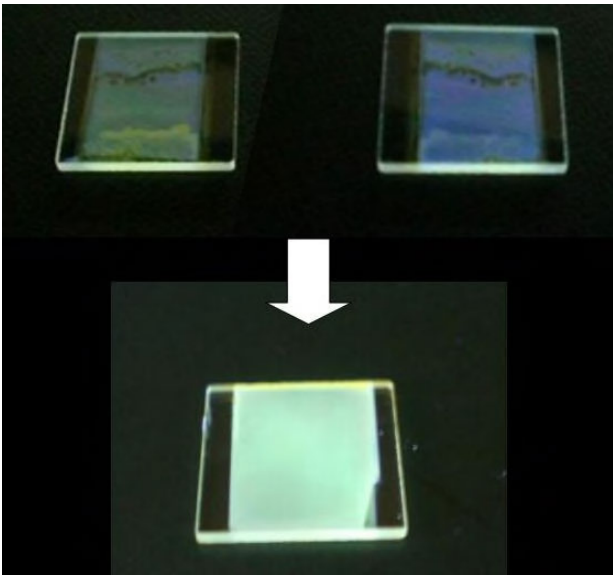


図 5 積層膜の最適化による白色面発光  
( $\lambda_{ex} = 365 \text{ nm}$ )

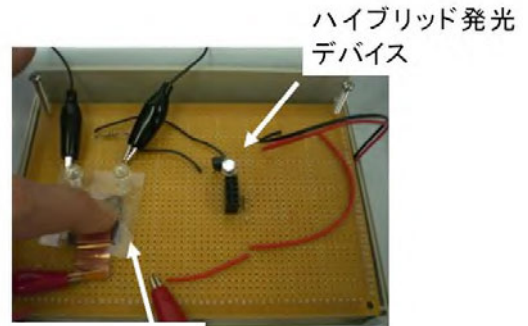
#### 4. おわりに

有機・無機ハイブリッド発光体の混色を検討し、青色と黄色の混色、および単色膜の積層という単純化された方法によってではあるが、均質な白色

面発光体を作製することができた。

工業研究所では、発光体と同様にディスプレイ関連の基幹部材である透明電極についても研究しており<sup>4)</sup>、タッチパネルに適用が可能な程度に導電性のある電極が得られている。

本研究で作製した白色発光体を UV-LED 上に実装し、透明電極タッチパネルと併せたデバイスを試作した(図 6)。今後は、研究成果であるこの試作品を PR していく予定である。



透明導電タッチパネル

図 6 白色化 LED と透明電極タッチパネルで試作したデバイス

#### 参考文献

- 1) 科学技術振興機構 研究開発戦略センター 戦略プログラム：“「柔らかい」エレクトロニクス基盤技術の研究開発”。CRDS-FY2006-SP-05 (2006)
- 2) 大森 裕：“有機エレクトロニクス概論”。応用物理, 76, p522-526 (2007)
- 3) 村山正樹ほか：“有機・無機ハイブリッド白色発光体に関する研究”。三重県科学技術振興センター工業研究部研究報告, 31, p131-133 (2007)
- 4) 村山正樹ほか：“酸化亜鉛材料とゾル-ゲル法による低コスト透明導電膜の研究”。三重県科学技術振興センター工業研究部研究報告, 32, p62-68 (2008)

(本研究は法人県民税の超過課税を財源としています)