

ゲル浸透クロマトグラフィー洗浄およびアルキルアンモニウム塩界面層によるペロブスカイト量子ドットLEDの高効率化

Highly Efficient Perovskite Quantum-Dot Light-Emitting Device by Gel permeation chromatography as new purification process and Interfacial Engineering using Alkyl Ammonium Salt Layer

○江部日南子¹、千葉貴之^{1,2,3}、高橋佳人¹、佐藤純¹、大久哲^{1,2,3}、城戸淳二^{1,2,3}

(1. 山形大院有機、2. 山形大有機エレ研セ、3. 山形大有機材料セ)

○Hinako Ebe¹, Takayuki Chiba^{1,2,3}, Yoshihito Takahashi¹, Jun Sato¹, Satoru Ohisa^{1,2,3}, Junji Kido^{1,2,3}

(1. Grad. Schl. of Org. Mater. Sci., Yamagata Univ., 2. Research Center for Organic Electronics,

3. Frontier Center for Organic Materials)

Email: t-chiba@yz.yamagata-u.ac.jp

【緒言】全無機型ペロブスカイト量子ドット(ペロブスカイト QD, CsPbX₃, X = Cl, Br, or I)は、シャープな発光スペクトルと溶液状態での高い発光量子収率(80%以上)を示し、ハロゲンアニオン組成制御による全可視領域の発光波長を再現することができる (1,2)。ペロブスカイト QD の洗浄には、良溶媒と貧溶媒による再沈殿法が用いられるが、極性貧溶媒(誘電率 20~30)によりアニオン・カチオン欠陥を生成し、発光特性の低下が問題とされている。本研究では、無極性溶媒のトルエン(誘電率 2.2)を用いたゲル浸透クロマトグラフィー(GPC)による洗浄を適応し、洗浄時のアニオン・カチオン欠陥の抑制を試みた。さらに、アルキルアンモニウム塩のオレイルアミン臭素(OAM-Br)を下層に用いることで、薄膜状態でのアニオン・カチオン欠陥の補填を試みた。

【実験方法】ホットインジェクション法によりペロブスカイト QD (CsPbBr₃)の合成を行った (1)。合成した CsPbBr₃ をトルエンに分散させた後、GPC 法により不純物(合成溶媒および過剰なアルキル配位子配位子)を除去し、洗浄を行った。得られたペロブスカイト QD を OAM-Br 層上に成膜し、デバイスへの応用を試みた [ITO / PEDOT:PSS, Nafion (40nm) / Poly-TPD (20nm) / OAM-Br / ペロブスカイト QD / TPBi (50nm) / Liq (1nm) / Al (100nm)]。

【結果・考察】Figure 1 から従来の再沈殿法および GPC 法により洗浄したペロブスカイト QD の ¹H-NMR スペクトルを示す。再沈殿法により洗浄した試料において、不純物の合成溶媒(オクタデセン, ODE)や過剰なアルキル配位子(オレイン酸 OA, オレイルアミン OAM)が残留していたが、GPC 法による洗浄において不純物が完全に除去されていることを確認した。また、洗浄したペロブスカイト QD をデバイスに応用したところ、GPC 法により洗浄した試料において発光開始電圧の低電圧化(3.8 V から 3.0 V)と OAM-Br を用いた界面処理による最大輝度の大幅な向上が確認された(Figure 2(a))。さらに、GPC 法および界面層導入により最大外部量子効率が 0.15% から 4.27% まで大幅な高効率化を達成した (Figure 2(b))。

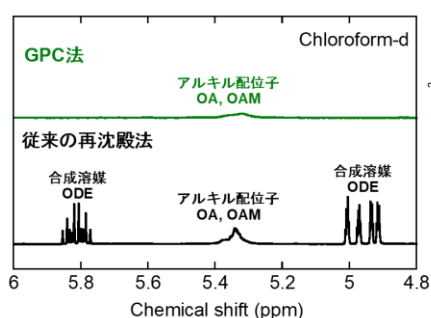


Fig. 1. 洗浄したペロブスカイトQDの¹H-NMR

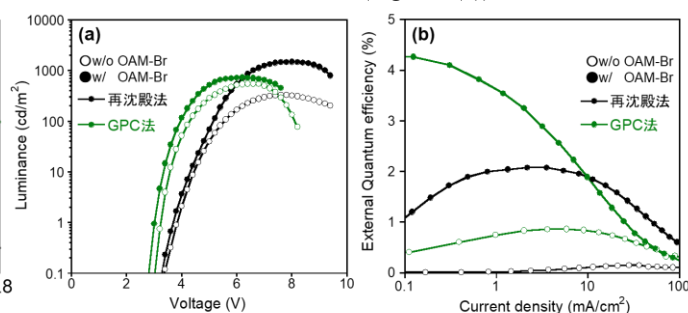


Fig. 2. CsPbBr₃ QD-LEDのデバイス特性(a)輝度-電圧特性, (b)外部量子効率-電流密度特性

【結論】本研究では、洗浄時のアニオン・カチオン欠陥の生成を抑制するため、無極性溶媒のトルエンを用いた GPC 法により、不純物を完全に除去した。また、アルキルアンモニウム塩による界面層により、薄膜状態でのアニオン・カチオン欠陥の補填を試みた。得られた試料をデバイスに応用したところ、低電圧化 (3.8 V から 3.0 V) と外部量子効率 (0.15% から 4.27%) の向上に成功した。

【参考文献】(1) L. Protesescu, S. Yakunin, M. I. Bodnarchuk, F. Krieg, R. Caputo, C. H. Hendon, R. X. Yang, A. Walsh, and M. V. Kovalenko, *Nano Lett.*, **15**, 3692 (2015). (2) J. D. Roo, M. Ibáñez, P. Geiregat, G. Nedelcu, W. Walravens, J. Maes, J. C. Martins, I. V. Driessche, M. V. Kovalenko, and Z. Hens, *Adv. Mater.*, **28**, 8718 (2016).