

発光デバイス導入を鑑みた超音波ビーズミル法による 赤色発光ペロブスカイトナノ結晶の作製

Preparation of red-emissive perovskite nanocrystals by ultrasound-assisted beads milling and application for light-emitting diodes

山形大院理工¹, 山形大院有機シス², 山形大有機材料シスセ³, 伊勢化学⁴, 千葉ヨウ素イノセ⁵,
○榎本 純哉¹, 梅本 和輝¹, 千葉 貴之^{2,3}, 浅倉 聡^{1,4,5}, 増原 陽人^{1,3}
Grad. Sch. of Sci. and Eng., Yamagata Univ.¹, Grad. Sch. of Org. Mat. Sci., Yamagata Univ.², FROM,
Yamagata Univ.³, Ise Chem. Corp.⁴, CIRIC, Chiba Univ.⁵ ○Junya Enomoto¹, Kazuki Umemoto¹,
Takayuki Chiba^{2,3}, Satoshi Asakura^{1,4,5}, Akito Masuhara^{1,3}

E-mail: tya44954@st.yamagata-u.ac.jp

【研究背景】第五世代移動通信システムの普及による遠隔医療の実現に向けて、医療用ディスプレイのさらなる広色域化が求められている。この広色域化を実現する発光材料として、高い発光量子収率・色純度等の優れた光学特性を有したペロブスカイトナノ結晶 (PeNCs) が有望視されている。しかしながら、これまでに報告されてきた LARP 法¹⁾等のボトムアップ手法による PeNCs の作製では、分散液中に PeNCs が可溶性極性溶媒を含む点で課題を有し、これが著しい光学特性の低下をまねいている。一方で、湿式ボールミル法²⁾等のトップダウン手法による PeNCs の作製も精力的に進められているが、未だそのサイズ単分散化は達成されておらず、サイズの不均一性がもたらす光学特性・成膜性の低下により、PeNCs の発光デバイスへの導入は未踏となっている。

本研究では、上記課題を克服する作製手法として、ビーズによる粉碎と超音波による PeNCs の合成を組み合わせた新規トップダウン手法である「超音波ビーズミル法」を開発 (Fig. 1) した。本手法は、極性溶媒フリーな合成法である上、系内に照射された超音波により、PeNCs の高分散性を維持した状態で粉碎可能な為、単純な粉碎法では不可能な「PeNCs の凝集が抑制」出来る点で実用性は高い。本手法により、既存手法と同等以上の光学特性を有する赤色発光 PeNCs ($\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$) の合成を達成したので報告する。

【実験手順】分散媒 (トルエン) に PeNCs 前駆体 (PbI_2 、MAI)、配位子 (オレイン酸、オクチルアミン) を加えた系へ、ジルコニアビーズを投入し、そこに直接、超音波を照射した。反応系内において、「超音波キャビテーションによる前駆体から PeNCs への直接合成」と「ビーズの振動・衝突による PeNCs の粉碎」を同時に進行させる。それにより、赤色発光 PeNCs 分散液を作製し、その特性を評価した。

【実験結果】粉碎 (超音波照射) 時間の増加に伴い、分散液は深赤色を呈し、UV 照射下において PeNCs 由来の赤色発光が明瞭に確認出来た。また、超音波照射時間 60 min の時に、最大の発光量子収率 58%が確認でき、本手法における最適な粉碎時間を見出した。さらに、作製した PeNCs 分散液の吸収・発光スペクトル (Fig. 2 (a)) より、発光波長 725 nm、半値全幅 74.7 nm の単一ピークの発光が確認でき、TEM 像 (Fig. 2 (b)) からは、粒径 5 nm 以下のサイズ・形状共にほぼ単分散な PeNCs を確認した。以上より、本手法が PeNCs の作製において有用であることを確認した。

その他粉碎条件が、作製した PeNCs の各種特性に与える影響等の詳細は、当日報告する。

【参考文献】1) L. Protesescu *et al.*, *Nano Lett.*, **2015**, 15, 3692.

2) M. Jeon *et al.*, *ACS Sustainable Chem. Eng.*, **2019**, 7, 19369.

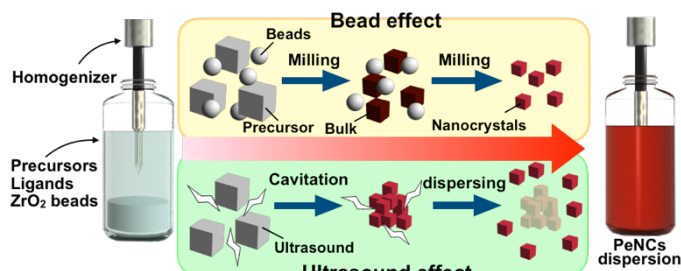


Fig. 1 Schematic illustration of Ultrasound-assisted beads milling preparing for PeNCs.

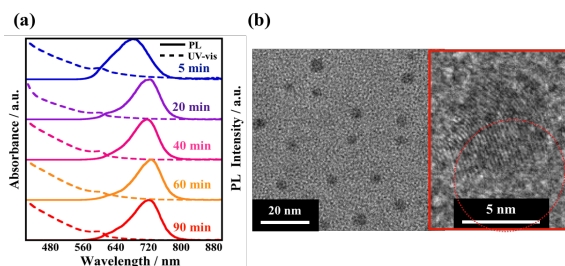


Fig. 2 (a) UV-vis / PL spectra and (b) TEM images of PeNCs dispersion.