

究では、材料科学とデバイス作製のスペシャリストの国際的な連携によって、天然物由来の C-QDs からの EL デバイス試作および発光観測に成功しました。

研究内容

天然物由来の C-QDs は、炭素源として植物の種（フェネグreek*³種子）から、当研究グループが先行研究（関連論文参照）で開発した熱分解法によって得ました。EL デバイスは、CSIRO の平井博士らの先行研究で開発されたデバイス作製技術によって透明電極（ITO）、キャリア輸送層（PVK および BP4mPy）、発光層（天然物由来の C-QDs をエタノールに分散してスピコートすることによって作製）から成る積層構造として構築されました（図2）。試作デバイスから、ブルー・グリーンの発光状態（スペクトル波長 507nm、CIE 表色系*⁴色度(0.241, 0.285)）が肉眼でも十分に観察できました（図3 a、b）。

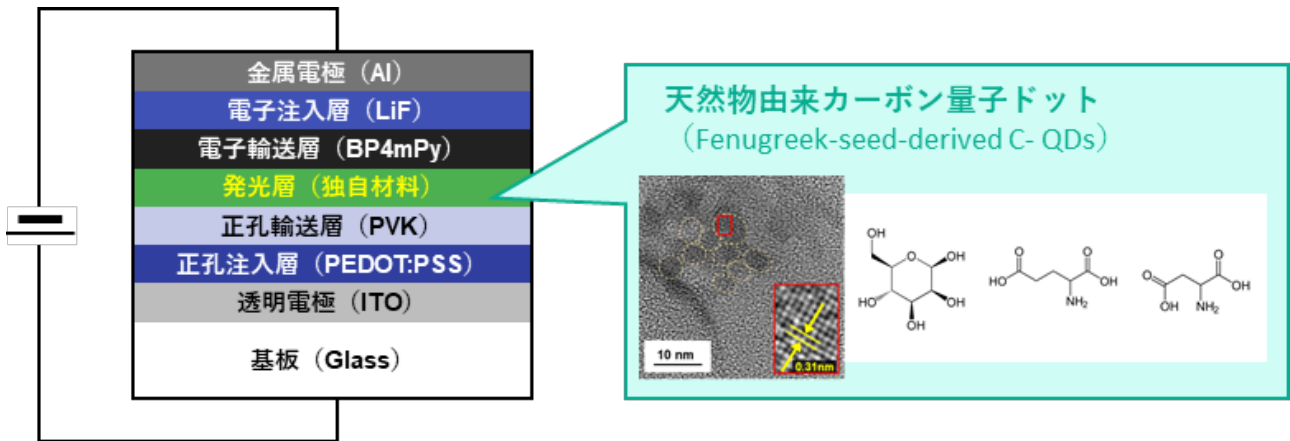


図2 EL デバイスの構成要素 デバイス断面図/発光層の構成成分（TEM 観察写真）

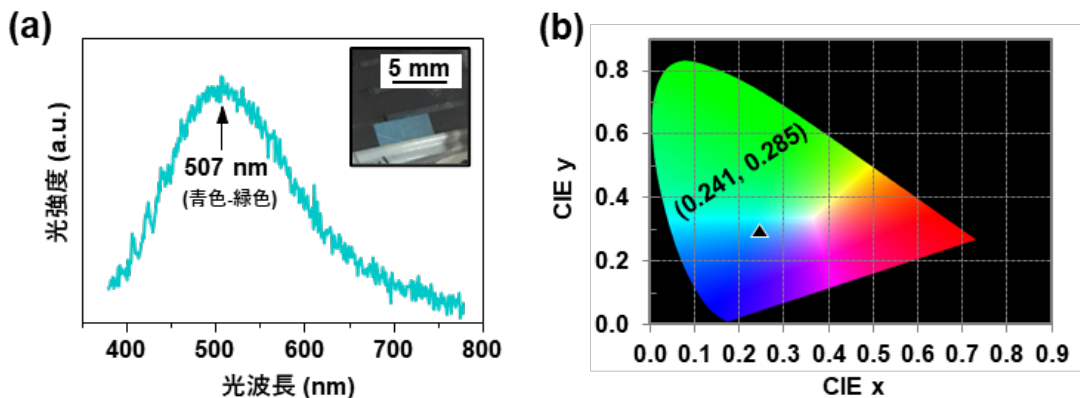


図3 観察された EL (a) EL スペクトル（挿入図：デバイス発光の写真）(b) CIE 表色系における色度図

また、固体状態で観測された EL は、本研究で作製された C-QDs の天然物由来のアミノ基などの表面官能基や塩化カリウムなどのミネラルに起因して発生していることを明らかにしました（図4）。

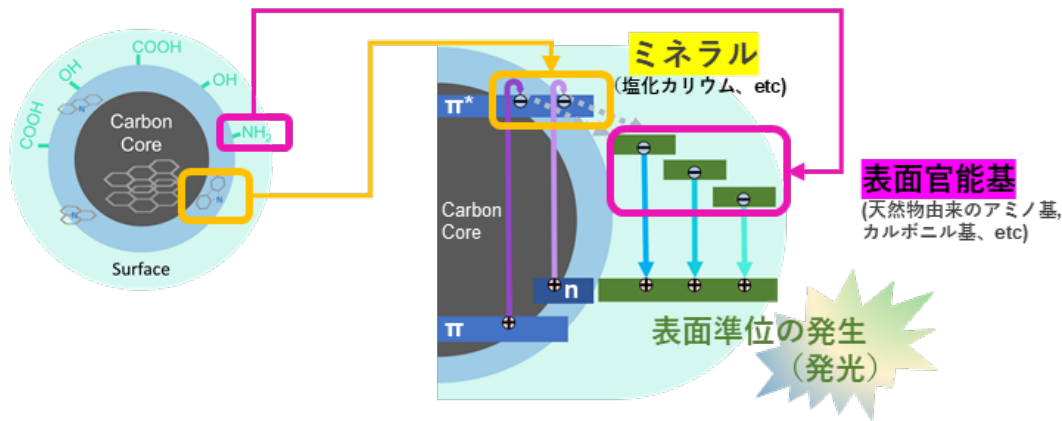
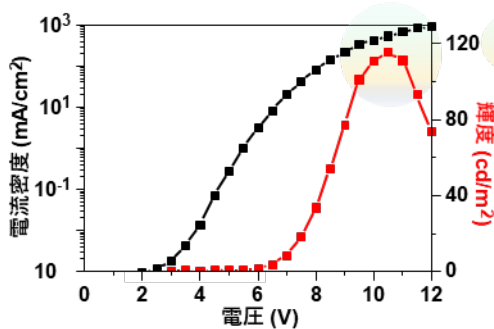


図4 ELデバイス内での天然物由来 C-QDs の構造と発光メカニズム

ELの発光性能を示す電圧-電流-輝度 (V-I-L) 曲線 (図5)を確認したところ、最大EL輝度は 115.4 cd/m² であり、数少ない人工物由来の高性能な C-QDs と同程度の強度を示しました。電流および発光の開始電圧の差が見られましたが、電子と正孔 (ホール) のキャリア注入のための障壁によるものと考えられました。



高性能EL (人工物由来) と同程度の明るさ

図5 EL性能を示した電圧-電流-輝度 (V-I-L) 曲線 (黒: 電流密度、赤: 輝度)

以上の結果から、天然物由来の C-QDs が EL デバイスとして実用化できる環境調和型材料であること、他の天然物においても同様に応用できる可能性があることがわかりました。デバイス構成 (構成要素、構造等) の最適化を行い、性能向上と実用化検討を目指します。

今後の展開

- ・ 発光性能の向上に向けてデバイスの構成要素の最適化
- ・ C-QDs の表面改質による deep-blue 発光素子の開発
- ・ 他の天然物からの C-QDs および EL デバイスの作製

研究費

本研究は、池谷科学技術振興財団 (0291078-A)、科学研究費補助金 (17K06797, 21K04654)、科学技術振興機構 (JST) さきがけ (JPMJPR1995) の支援を受けて実施されました。

論文情報

タイトル： Blue-Green Electroluminescent Carbon Dots Derived from Fenugreek Seeds for Display and Lighting Applications

著者： Urushihara, Natsuko; Hirai, Tadahiko; Dager, Akansha; Nakamura, Yuta; Nishi, Yuma; Inoue, Ken; Suzuki, Ryo; Tanimura, Makoto; Shinozaki, Kazuteru; Tachibana, Masaru

掲載雑誌： ACS Applied Nano Materials

DOI： 10.1021/acsnm.1c02977

用語説明

*1 カーボン量子ドット (C-QDs)：

直径 2 ~10 nm の新型の炭素系ナノ材料であり、その強い量子閉じ込め効果および安定した蛍光性能等の一連の優れた性能により、化学、物理、材料および生物等の各領域で広く関心が寄せられている。既存のカドミウムなどの重金属からなる量子ドットに比べ、C-QDs には低毒性および生体相溶性という優れた特性があるため、環境調和性やバイオ領域での発展が期待されている。

*2 エレクトロルミネセンス (Electroluminescence：EL)：

電界発光とも呼ばれ、主に半導体中において、電界を印加することによって得られるルミネセンス（発光）を指す。一般的には製品名としても知られている「LED」の方が馴染みがあるかもしれない。電界によって電子と正孔を注入し、その再結合によって発光をさせるものである。

*3 フェネグreek：

クローバーに似た薬草で、地中海地域、南ヨーロッパおよび西アジアが原産。その種子は料理や薬に使用されてきた。香辛料の原料や食物、飲料およびタバコの香料として、また、抽出物（エキス）は石鹸や化粧品にも用いられる。

*4 CIE 表色系：

国際照明委員会 CIE(Commission Internationale de l'Eclairage)により国際的に定められた色の表示法で、赤、緑、青の 3 つの原色光を適当な比率で混合すれば試料光と等しい色にできるという原理に基づいて、混色したときの三原色の混合量で色を表示する。光の分光分布から色の特性を数値で表した色度を平面座標の点として表示した図形を CIE 色度図という。

関連論文

[1] Akansha Dager, Takashi Uchida, Toru Maekawa & Masaru Tachibana, Synthesis and characterization of Mono-disperse Carbon Quantum Dots from Fennel Seeds: Photoluminescence analysis using Machine Learning, Scientific Reports 9 1404 (2019), <https://doi.org/10.1038/s41598-019-50397-5>

[2] Akansha Dager, Ankur Baliyan, Shunji Kurosu, Toru Maekawa & Masaru Tachibana, Ultrafast synthesis of carbon quantum dots from fenugreek seeds using microwave plasma enhanced decomposition: application of C-QDs to grow fluorescent protein crystals, Scientific Reports 10, 12333 (2020), <https://doi.org/10.1038/s41598-020-69264-9>

関連特許

発明の名称：炭素量子ドット及び炭素量子ドットの製造方法

発明者：橘 勝、ダカール アカンシャ

出願人：公立大学法人横浜市立大学

出願番号：特願 2019-090961 (2019-05-13 出願)

特願 2019-195216 (2019-10-28 出願)

研究者情報

横浜市立大学 橘研究室 HP

URL：<http://nanomate.sci.yokohama-cu.ac.jp/>