

令和 6 年 6 月 20 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21H01910

研究課題名（和文）広帯域で発光色をチューニングできる重金属フリー量子ドット発光ダイオードの開発

研究課題名（英文）Development of heavy-metal-free quantum dot light emitting diodes with tunable emission properties in a broad wavelength range

研究代表者

白幡 直人（SHIRAHATA, NAOTO）

国立研究開発法人物質・材料研究機構・ナノアーキテククス材料研究センター・グループリーダー

研究者番号：80421428

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,600,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、RoHS指令に準拠する半導体の量子ドット(QD)を活性層に具備する発光ダイオード(QLED)を創製することを目的とした。可視蛍光体として、Si、InP、Cs₂Ag_{1-x}NaxIn₆、短波赤外蛍光体としてInSb、Si及びCsSnX₃のQDsを合成対象とした。Si系では、QLEDの活性層における粒子間距離を狭小化しELの外部量子収率12%を達成した。InP系ではコヒーレントコア/シェル化できることをIII-V族系半導体で初めて見出し、PLQY>70%とPL-FWHM<35nmの両立を実現した。このように構造と発光の相関を解明することによってQLEDに最適な発光層の構築に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

我が国の成長戦略「グリーン社会の実現」に貢献する次世代空間映像技術を材料面で支える光源が求められている。2023年ノーベル化学賞を受賞したコロイダルQDに特徴的な狭帯化された発光スペクトルはデバイスの活性層に最適である。しかしQDの構成元素であるCd、Pb、HgがRoHSやJIGに準拠しない。このような閉塞感を打破するために、本研究課題では、従来発光層として検討されてこなかったSiをはじめ、III-V族化合物半導体、非鉛系ペロブスカイト等の半導体結晶をQD化する合成方法を開発、発光の学理探求を通じて蛍光量子収率の増強に成功、環境QDを研究対象の軸に据えた新しい学術基盤開拓へ向け第一歩となった。

研究成果の概要（英文）：The objective of this study was to create light emitting diodes (QLEDs) with semiconductor quantum dots (QDs) in the active layer that comply with the RoHS directive. Si, InP, Cs₂Ag_{1-x}NaxIn₆ as visible phosphors, and InSb, Si, and CsSnX₃ as shortwave IR phosphors were synthesized. In the Si system, the external quantum yield of 12% for EL was achieved by narrowing the distance between particles in the active layer of QLEDs. InP-based semiconductors, we discovered for the first time in III-V semiconductors that coherent core/shell structures are possible, and achieved both PLQY>70% and PL-FWHM<35nm. By elucidating the correlation between structure and luminescence, we succeeded in constructing the optimum luminescent layer for QLEDs.

研究分野：ナノ材料科学

キーワード：ナノ結晶 半導体量子ドット 蛍光体 ペロブスカイト結晶 オプトエレクトロニクス 発光ダイオード
フォトディテクター 配位子工学

様式 C - 19、F - 19 - 1 (共通)

1. 研究開始当初の背景

ホログラフィー等の空間映像技術が新市場としてディスプレイ技術に参入を始めた。近い将来我々の生活空間に「突如映像が現れる」時代が到来すると期待される。それを材料面で支える μ -LEDや超小型レーザーには、高性能仕様(例:素子サイズ: $50\ \mu\text{m}^2$, スペクトル半値幅 $< 40\text{nm}$, 応答速度: nsec)が要求される。既存素子ではそれを満足できない。例えば、固体LEDでは深緑色に欠け、応答も遅く(msec)、動作電圧も発光色で異なる(3.3~1.7V)問題がある。紫外光を吸収し発光する商用蛍光体をUV-LEDに被覆すれば緑色を得られるが、量子ドット(Quantum Dots, QDs)に比べ発光特性が低い(JPCL 2011, 2, 1268)。OLEDは有機物特有の低キャリア移動度のため応答速度が要求値より低い(APL 2002, 81, 493)。QDのLED(QLED)は要求を満足するが、QDの構成元素(CdやPb)は、Restriction of Hazardous Substances (RoHS)に指定され、デバイス素子への使用量が厳しく制限されている。そのため、QDの民生用機器への波及が阻まれてきた。その打開としてRoHS指令に準拠した構成要素から成る環境半導体や非鉛系ペロブスカイト化合物のQD合成研究が進められているが、現状の発光特性はカドミウムや鉛系のQDに比べ著しく劣る。QDのナノ構造や化学組成の最適化を通じてこの問題を解決する試みに注目が集まっており激しい開発競争が繰り広げられている。

2. 研究の目的

本研究では、優れた蛍光特性を示す環境QDを合成し、それらを発光層に具備するQLEDのプロトタイプを作製、そのエレクトロルミネッセンス(EL)特性から「外部電極からのキャリア注入に最適なQD構造」を明らかにし、合成系へ情報をフィードバック、QDの調製条件を最適化することで、環境対応型QLEDの活性層に資するQDを開発することを目的とした。

3. 研究の方法

本研究期間では、当該の実現に向けIII-V族、IV族、I-III-V族の半導体とペロブスカイト[Cs_2MNX_6 型($M = \text{Cu}, \text{Ag}, \text{Na}; N = \text{Sb}, \text{In}, X = \text{Cl}, \text{Br}, \text{I}$)]及び CsSnI_3 型のQDを合成対象とした。合成は、有機金属プレカーサーを所定の温度に熱した有機溶媒中へインジェクションすることで均一核形成させたのち急冷することで行われた。その後、遠心分離法やHPLC法を併用することでQDを精製し、適当な有機溶媒に分散させコロイダルインクとした。合成物質の構造分析は次のように行った。粉末X線回折法(XRD)により結晶相の同定、Raman分光装置により非晶質相の同定、光電子分光分析法(XPS)により結晶を構成する原子の結合状態の分析、ICP発光分光分析装置(ICP-OEM)によりマクロスコピックな化学組成分析、高分解能透過型電子顕微鏡(HR-TEM)によりQDの形状と結晶性及び粒度分布の分析、HR-TEMに取り付けられたエネルギー分散X線分光法(EDS)によりナノスコピックな化学組成分析を行った。合成QD表面に結合させた有機単分子膜の分析には、フーリエ変換赤外分光光度計(FTIR)や核磁気共鳴分析(NMR)熱重量分析を利用した表面単分子膜密度の評価、及びXPSにて行った。合成QDの光学特性の評価には、蛍光分光光度計(PL)、紫外-可視-近赤外分光光度計(UV-VIS-NIR)、時間分解蛍光分光光度計、絶対PL量子収率測定装置を使い評価し、また、PLスペクトルは、検体をクライオスタットに封入することで、4-300Kの計測温度領域内で温度依存性も分析した。合成QDを活性層に具備するデバイスは、QLEDに加え、フォトダイオードも作製した。また、ホール輸送層を介させないマルチレイヤー成膜をしたElectron-onlyデバイス、電子輸送層を介させないマルチレイヤー成膜をしたHole-onlyデバイスを作製することで、活性層内のキャリア移動度を評価した。デバイスはITO電極が成膜されたソーダガラス基板上に電子輸送層と正孔輸送層でサンドイッチされたQD活性層が成膜された縦型マルチレイヤー構造を有しており逆末端の電極にはアルミニウムが使用された。デバイスのEL発光を評価するために、上部のAlカソードへの接触はAgペーストで行った。オーシャン옵ティクスUSB2000ファイバー分光器を用いてELスペクトルを測定した。QLEDの測光輝度(cd/m^2)を決定するために、まず、ダイオードの出力パワーを、QLEDのITO/ガラス側に一定の距離を向けたシリコン光検出器で測定した。

4. 研究成果

(1) III-V族系コヒーレントコア/シェルQD構造の創製

InPはIII-V族半導体QDの中で可視光帯の発光を連続的に制御できる。しかしながらInP QD単独ではPLQY=1.4%と低い。これはQD表面に生成するIn由来の欠陥が無輻射失活のチャンネルとして働くからである。欠陥生成を抑制するには「コア/シェル」化が必須となる。互いに異種

半導体のコアとシェルを接合する点で、格子整合性を制御するには3つの方法があるが、本研究では初めて、コヒーレントコア/シェル形成が共有結合性の強いIII-V族半導体QDでも起こることを初めて実証した。具体的には、InP QDのナノ粒子をコアとして硫化亜鉛(ZnS)シェルで包含する際に、結晶粒子径が2.64 nmのコアQD表面へZnSを3単分子層(0.81nm)成長させると、InP/ZnS コア/シェル構造が得られ、格子定数は0.56 nmとなった。この構造を形成するためにInPのバルク結晶であるジंकブレンド構造と比較すると、図1に示すようにコアQDの格子はバルクに比べて等方的に4.1%圧縮された。逆に、シェルの格子は4.1%膨張した。結果として、コア/シェル構造は異種半導体で構成されているにも関わらず、あたかも単結晶のように同一の格子定数を有する構造が得られた。コアQDは格子圧縮に伴いバンドギャップが増大するので、シェルがない単体のQDと比較して、光吸収とフォトルミネッセンス(PL)スペクトルがブルーシフトした。また、PL量子収率は70%で、PLバンド幅が36nmと狭かった。これはコアとシェルの結合界面において格子整合性が高いことを示唆している。コヒーレントコア/シェル構造を有するコロイダルQDに関する研究の歴史は浅く、これまでイオン性の高い化合物半導体であるCdTeやCdSeといったII-VI族系コアでのみ実現している。本研究はIII-V族系でもコヒーレント化が起こることを初めて実験的に示した。

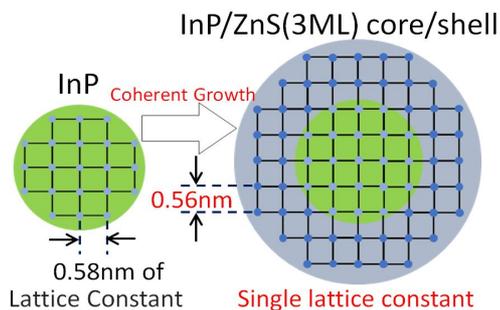


図1. コヒーレント InP/ZnS コア/シェル構造を有するナノ粒子

(2) Cs₂Ag(Na)InCl₆へのBiイオンドーピング効果

鉛フリーのダブルペロブスカイトナノ結晶粒子のなかで、ダブルペロブスカイト構造は、ABX₃(例:A=Cs⁺; B=Sn²⁺, Ge²⁺; X=Cl, Br, I)の一般化学式を持つ無機ハライドペロブスカイト構造に比べて、物理的に安定していることから光学的な応用が期待されている。本研究では、Cs₂Ag_{0.65}Na_{0.35}InCl₆ナノ結晶粒子中に不純物ドーピングしたビスマス(Bi³⁺)イオンに起因する光吸収ピークを活用したフォトダイオードを作製する視点から、光励起キャリアの長寿命化について調べた。Cs₂Ag_{0.65}Na_{0.35}InCl₆を湿式合成し、ドーパント濃度を変化させたところ、2%ドーピングにより、PLQYは最大33.2%まで増大した。この増大する理由を明らかにするためにサンプル温度を変えながらXRDによる結晶層の変化を調べ、PLスペクトル計測を行った。結晶相は5-300Kの温度範囲では変化がなかった。そして、PL強度は、20Kから300Kまで温度を段階的に増大させると減少するが、ノンドーピング体で減少度が大きいことが分かった。このことから、不純物ドーピングにより結晶中に含まれる無輻射失活のチャンネルが減少しPLQYの増加をもたらすと考えた。次に、STEM-EDSによりナノ結晶粒子の化学組成を分析したところ、ノンドーピング体においてはIn³⁺欠損しており、一方、ドーピングによりIn³⁺空孔をBi³⁺が占有したことで、欠陥密度が減少したと考えられた。ドーピングにより結晶格子の歪みも緩和されたことで、ドーピングにより半値幅の狭いPLスペクトルが得られたことと整合した。

(3) InSb QDにおける原子キャッピングが及ぼすキャリア移動度への影響

InSbは狭バンドギャップ半導体であるため一般に赤外分光器に利用されている。QD化することができれば、近赤外～中赤外波長域における広帯域を連続的に制御できる蛍光体になりうる。従来、InSbはTMS系のSbやInの前駆体から合成されていた。TMSの反応性は均一核生成に都合よく、室温下でもエキシトンピークが現れるなどの優れた光学特性をもたらしたが、合成プロセスの汎用性や大量生産性の観点からは、湿気や酸素に対して超嫌気性であるTMSではなく、大気中に設置されたシュレンク管でも取り扱える有機金属前駆体を用いた合成法の開発が求められる。

本研究では、臭化物前駆体を用いたホットインジェクションを提案し、InSb単相が得られる反応温度域及びIn/Sb前駆体比といった合成条件を明らかにした。一定の反応温度で保持時間を15 min, 30 min, 45 minと変化させると、図2(a)に示す

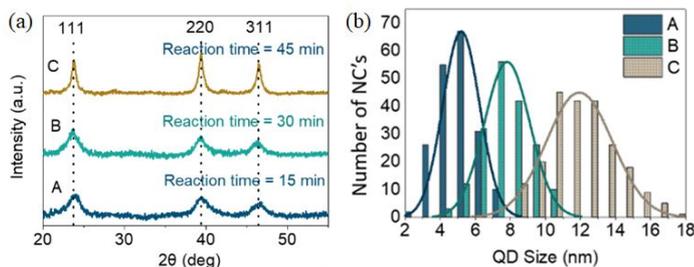


図2. 代表的なInSb QDsの(a)XRDパターンと(b)HR-TEMより見積もった粒度分布。

ように、反応時間増大に伴い各回折線ピークがシャープになった。それらのサンプルを HR-TEM で観察したところ、球状のナノ粒子で、格子縞が観察された。粒度分布を見積もったところ、図 2(b) に示すように、反応時間によって平均粒子径が制御できており、これら粒度分布から大きく逸脱したような粒子は観察されなかった。バースト核生成においてホットインジェクションの特長が現れた結果であった。しかしながら PLQY は 1% 未満であった。光励起キャリアの閉じ込め効果を検証するために、InSb QD を活性層にしたフォトダイオードを作製し、短波赤外光照射下におけるフォトダイオード特性を測定したところ、優れた I-V 特性が得られ、InSb QD 層が光起電力モードで SWIR 光を効率良く検出していることが分かった(図 3 参照)。光励起キャリアの InSb コアへの閉じ込めは強くないので、PLQY 増強にはシェル形成が必要と結論した。当該のフォトダイオードの光検出特性をさらに向上させるため、合成時に使用した配位子を原子キャッピング材へ置き換え、さらに QD の表面電位がゼロになるような原子キャッピング材に交換したところ、フォトダイオード特性は向上した。例示すると、オレイルアミンリガンドを硫化ナトリウムイオンに置き換えると CQD 間の粒子間距離が 5.0 ± 0.5 nm から 1.5 ± 0.5 nm へと短縮した。その結果、膜内の電子移動度が 0.02 cm^2/Vs へと正孔移動度が 0.018 cm^2/Vs へと大幅に向上し、SWIR 光に対して高い光応答速度、低い暗電流密度 ($\sim \text{nA}/\text{cm}^2$)、高い外部量子効率 (EQE=18.5%) が得られた。

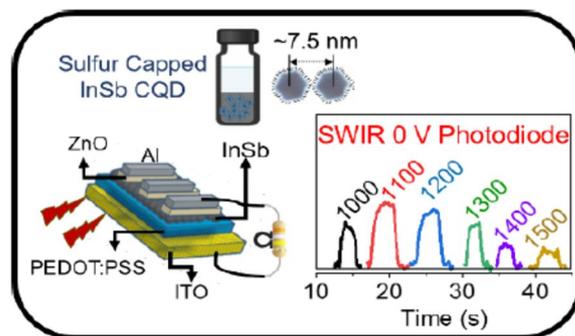


図 3. InSb QD を活性層に具備するフォトダイオードの模式図と光起電力モードに基づく SWIR 光に対する光応答特性の照射光波長依存性

(4) Si QD を光活性層に具備する赤発光 QLED の創製と 10% を超える外部量子収率の達成

ダイヤモンド立方晶 Si は、マイクロエレクトロニクス産業の要となる材料である。Si ナノ構造の室温 PL は、Canham によって初めて報告された。この先駆的研究に触発され、研究者たちは様々な合成アプローチを開発し、合成された Si ナノ結晶は、オプトエレクトロニクス用途の発光・吸収層として使用されてきた。Si-QLED では、産業応用のベンチマークである外部量子収率 20% の達成が望まれている。しかしながら、従来研究では 3~6% 程度にとどまっている。ここでは、赤色発光 Si-QLED の外部量子収率を増強するために、ポスト電気アニーリングと名付けた新しい方法を報告した。われわれの条件では、5V の電圧を 9 時間印加した後、エレクトロルミネッセンス (EL) 光の外部量子効率 (EQE) は 12.2% まで向上した。5V の定電圧を一定時間デバイスに印加は一例であり、電圧印加の方法はこれに限定されるものではなかった。同様の時間、0V から 5V の間の電圧を繰り返し印加することによっても、外部量子収率は最大 ~12% まで向上した。透過型電子顕微鏡による詳細な研究から、発光層において隣接する SiQD 間の粒子間距離が短くなり、QDs 層への電荷キャリア注入が促進され、光電流密度と外部量子収率が向上した議論した。発光素子としての劣化を防ぐためには、素子の抵抗が最も低く、輝度が最大となる位置で製造後の処理を終了させることが重要であった。このプロセスを産業界で利用するのは難しいが、今回の発見は、光学活性層における隣接する SiQD 間の粒子間距離を短くすること、QD の充填密度を改善することが達成されれば外部量子収率を大きく増強できることを示唆した結果である。とくに、環境半導体として最も有名な Si を活性層にもつ Si-QLED において、従来 3~6% で停滞していた外部量子収率が二桁へ増強できることを明らかにした点は特筆に値する。

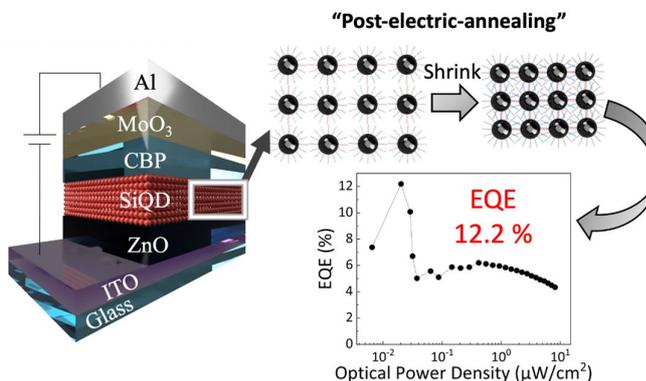


図 4. Si-QLED の模式図とポストアニーリング後に計測された EL 外部量子収率の電流密度依存性

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計27件（うち査読付論文 27件/うち国際共著 5件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Wang Lu-Ming, Chen Jia-Kai, Zhang Bin-Bin, Liu Qi, Zhou Yang, Shu Jie, Wang Zuoshan, Shirahata Naoto, Song Bo, Mohammed Omar F., Bakr Osman M., Sun Hong-Tao	4. 巻 13
2. 論文標題 Phosphatidylcholine-mediated regulation of growth kinetics for colloidal synthesis of cesium tin halide nanocrystals	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nanoscale	6. 最初と最後の頁 16726 ~ 16733
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d1nr04618g	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Liu Qi, Yin Jun, Zhang Bin-Bin, Chen Jia-Kai, Zhou Yang, Zhang Lu-Min, Wang Lu-Ming, Zhao Qing, Hou Jingshan, Shu Jie, Song Bo, Shirahata Naoto, Bakr Osman M., Mohammed Omar F., Sun Hong-Tao	4. 巻 143
2. 論文標題 Theory-Guided Synthesis of Highly Luminescent Colloidal Cesium Tin Halide Perovskite Nanocrystals	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of the American Chemical Society	6. 最初と最後の頁 5470 ~ 5480
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/jacs.1c01049	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Chen Jia-Kai, Zhao Qing, Shirahata Naoto, Yin Jun, Bakr Osman M., Mohammed Omar F., Sun Hong-Tao	4. 巻 3
2. 論文標題 Shining Light on the Structure of Lead Halide Perovskite Nanocrystals	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ACS Materials Letters	6. 最初と最後の頁 845 ~ 861
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsmaterialslett.1c00197	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Ozbilgin Irem Nur Gamze, Yamazaki Tomohiko, Watanabe Junpei, Sun Hong-Tao, Hanagata Nobutaka, Shirahata Naoto	4. 巻 38
2. 論文標題 Water-Soluble Silicon Quantum Dots toward Fluorescence-Guided Photothermal Nanotherapy	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Langmuir	6. 最初と最後の頁 5188 ~ 5196
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.langmuir.1c02326	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Watanabe Junpei, Yamada Hiroyuki, Sun Hong-Tao, Moronaga Taku, Ishii Yasushi, Shirahata Naoto	4. 巻 4
2. 論文標題 Silicon Quantum Dots for Light-Emitting Diodes Extending to the NIR-II Window	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ACS Applied Nano Materials	6. 最初と最後の頁 11651 ~ 11660
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsnm.1c02223	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Chen Jia-Kai, Shirahata Naoto, Sun Hong-Tao	4. 巻 15
2. 論文標題 Metal-free scintillators excite X-ray community	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nature Photonics	6. 最初と最後の頁 171 ~ 172
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41566-020-00751-1	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Liu Qi, Feng Zhao Yang, Li Hong, Zhao Qing, Shirahata Naoto, Kuroiwa Yoshihiro, Moriyoshi Chikako, Duan Chang Kui, Sun Hong Tao	4. 巻 9
2. 論文標題 Non Rare Earth UVC Persistent Phosphors Enabled by Bismuth Doping	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Advanced Optical Materials	6. 最初と最後の頁 2002065 ~ 2002065
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/adom.202002065	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Chen Jia-Kai, Zhang Bin-Bin, Liu Qi, Shirahata Naoto, Mohammed Omar F., Bakr Osman M., Sun Hong-Tao	4. 巻 3
2. 論文標題 Advances and Challenges in Tin Halide Perovskite Nanocrystals	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ACS Materials Letters	6. 最初と最後の頁 1541 ~ 1557
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsmaterialslett.1c00444	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ozbilgin Irem Nur Gamze, Ghosh Batu, Yamada Hiroyuki, Shirahata Naoto	4. 巻 125
2. 論文標題 Size-Dependent Photothermal Performance of Silicon Quantum Dots	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 3421 ~ 3431
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.0c10027	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Bloyet Clarisse, Sciortino Flavien, Matsushita Yoshitaka, Karr Paul A., Liyanage Anuradha, Jevasuwan Wipakorn, Fukata Naoki, Maji Subrata, Hynek Jan, D'Souza Francis, Shrestha Lok Kumar, Ariga Katsuhiko, Yamazaki Tomohiko, Shirahata Naoto, Hill Jonathan P., Payne Daniel T.	4. 巻 144
2. 論文標題 Photosensitizer Encryption with Aggregation Enhanced Singlet Oxygen Production	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of the American Chemical Society	6. 最初と最後の頁 10830 ~ 10843
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/jacs.2c02596	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Nemoto Kazuhiro, Watanabe Junpei, Sun Hong-Tao, Shirahata Naoto	4. 巻 14
2. 論文標題 Coherent InP/ZnS core@shell quantum dots with narrow-band green emissions	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Nanoscale	6. 最初と最後の頁 9900 ~ 9909
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D2NR02071H	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Huang Xiaoyu, Matsushita Yoshitaka, Sun Hong-Tao, Shirahata Naoto	4. 巻 4
2. 論文標題 Impact of bismuth-doping on enhanced radiative recombination in lead-free double-perovskite nanocrystals	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Nanoscale Advances	6. 最初と最後の頁 3091 ~ 3100
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D2NA00238H	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Wu Bingjie, Luo C. J., Palaniappan Ashwin, Jiang Xinyue, Gultekinoglu Merve, Ulubayram Kezban, Bayram Cem, Harker Anthony, Shirahata Naoto, Khan Aaqib H., Dalvi Sameer V., Edirisinghe Mohan	4. 巻 38
2. 論文標題 Generating Lifetime-Enhanced Microbubbles by Decorating Shells with Silicon Quantum Nano-Dots Using a 3-Series T-Junction Microfluidic Device	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Langmuir	6. 最初と最後の頁 10917 ~ 10933
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.langmuir.2c00126	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Shirahata Naoto	4. 巻 12
2. 論文標題 Effect of the surface coverage of an alkyl carboxylic acid monolayer on waterborne and cellular uptake behaviors for silicon quantum dots	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 17211 ~ 17211
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-022-21698-z	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yamada Hiroyuki, Watanabe Junpei, Nemoto Kazuhiro, Sun Hong-Tao, Shirahata Naoto	4. 巻 12
2. 論文標題 Postproduction Approach to Enhance the External Quantum Efficiency for Red Light-Emitting Diodes Based on Silicon Nanocrystals	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Nanomaterials	6. 最初と最後の頁 4314 ~ 4314
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/nano12234314	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Nemoto Kazuhiro, Watanabe Junpei, Yamada Hiroyuki, Sun Hong-Tao, Shirahata Naoto	4. 巻 5
2. 論文標題 Impact of coherent core/shell architecture on fast response in InP-based quantum dot photodiodes	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Nanoscale Advances	6. 最初と最後の頁 907 ~ 915
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D2NA00734G	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Chinnathambi Shanmugavel, Shirahata Naoto, Kumar Mahima, Karthikeyan Subramani, Abe Katsuhiko, Thangavel Vaijayanthi, Pandian Ganesh N.	4. 巻 13
2. 論文標題 Nano-bio interaction between human immunoglobulin G and nontoxic, near-infrared emitting water-borne silicon quantum dot micelles	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 RSC Advances	6. 最初と最後の頁 6051 ~ 6064
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d3ra00552f	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Nagarajan Usharani, Chandra Sourov, Yamazaki Tomohiko, Shirahata Naoto, Winnik Françoise M.	4. 巻 39
2. 論文標題 Analysis of Silicon Quantum Dots and Serum Proteins Interactions Using Asymmetrical Flow Field-Flow Fractionation	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Langmuir	6. 最初と最後の頁 7557 ~ 7565
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.langmuir.3c00109	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Zhang Bin-Bin, Chen Jia-Kai, Zhang Cong, Shirahata Naoto, Sun Hong-Tao	4. 巻 5
2. 論文標題 Mechanistic Insight into the Precursor Chemistry of Cesium Tin Iodide Perovskite Nanocrystals	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 ACS Materials Letters	6. 最初と最後の頁 1954 ~ 1961
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsmaterialslett.3c00413	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Li Xia, Yamazaki Tomohiko, Ebara Mitsuhiro, Shirahata Naoto, Hanagata Nobutaka	4. 巻 67
2. 論文標題 Nanoengineered coordination polymers boost cancer immunotherapy	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Materials Today	6. 最初と最後の頁 127 ~ 150
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.matod.2023.06.001	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Sun Hong-Tao, Shirahata Naoto	4. 巻 17
2. 論文標題 Metal?organic framework scintillators detect radioactive gases	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Nature Photonics	6. 最初と最後の頁 646 ~ 647
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41566-023-01256-3	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Chatterjee Subhashri, Nemoto Kazuhiro, Ghosh Batu, Sun Hong-Tao, Shirahata Naoto	4. 巻 6
2. 論文標題 Solution-Processed InSb Quantum Dot Photodiodes for Short-Wave Infrared Sensing	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 ACS Applied Nano Materials	6. 最初と最後の頁 15540 ~ 15550
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsnm.3c02221	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Huang Xiaoyu, Yamada Hiroyuki, Sun Hong-Tao, Shirahata Naoto	4. 巻 6
2. 論文標題 Solution-Processed UV Photodiodes Based on Cs ₂ Ag _{0.35} Na _{0.65} InCl ₆ Perovskite Nanocrystals	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 ACS Applied Nano Materials	6. 最初と最後の頁 20389 ~ 20397
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsnm.3c04427	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Huang Xiaoyu, Sun Hong-Tao, Shirahata Naoto	4. 巻 35
2. 論文標題 Highly efficient, self-powered UV photodiodes based on leadfree perovskite nanocrystals through interfacial engineering	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Nanotechnology	6. 最初と最後の頁 035701 ~ 035701
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-6528/ad0303	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Li Xia, Hattori Shinya, Ebara Mitsuhiro, Shirahata Naoto, Hanagata Nobutaka	4. 巻 14
2. 論文標題 A facile approach to preparing personalized cancer vaccines using iron-based metal organic framework	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Frontiers in Immunology	6. 最初と最後の頁 1328379 ~ 1328379
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3389/fimmu.2023.1328379	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Shirahata Naoto	4. 巻 41
2. 論文標題 Recent Progress in Controlled Nanostructure of Colloidal Nanocrystal Powders for Efficient Light Emission	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 KONA Powder and Particle Journal	6. 最初と最後の頁 172 ~ 182
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.14356/kona.2024001	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Chatterjee Subhashri, Nemoto Kazuhiro, Sun Hong-Tao, Shirahata Naoto	4. 巻 9
2. 論文標題 Rational ligand design for enhanced carrier mobility in self-powered SWIR photodiodes based on colloidal InSb quantum dots	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Nanoscale Horizons	6. 最初と最後の頁 817 ~ 827
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D4NH00038B	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計16件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 3件）

1. 発表者名 白幡直人
2. 発表標題 制御されたナノ構造に基づく発光特性の強靱化と素子創製
3. 学会等名 粉体粉末冶金協会2021年度秋季大会（第128回講演大会）（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 根本一宏, 白幡直人
2. 発表標題 シェル成長を制御したInP/ZnSコア/シェル構造半導体量子ドットの狭い半値全幅フォトルミネッセンス
3. 学会等名 第72回コロイドおよび界面化学討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Xiaoyu Huang, 白幡直人
2. 発表標題 鉛フリーハライドダブルペロブスカイトナノ結晶の合成と光学特性
3. 学会等名 日本セラミックス協会第34回秋季シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山田博之, 白幡直人
2. 発表標題 高輝度かつ発光波長可変なコロイダルシリコン量子ドット発光ダイオード
3. 学会等名 日本セラミックス協会第34回秋季シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 渡邊純平, 石井靖, 白幡直人
2. 発表標題 シリコン量子ドットを発光層に具備する近赤外発光ダイオードの作製と評価
3. 学会等名 日本セラミックス協会第15回関西支部学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 白幡直人, HUANG, Xiaoyu
2. 発表標題 非鉛系ダブルペロブスカイトナノ結晶粒子の合成と発光特性
3. 学会等名 日本化学会第103春季年会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 根本一宏, 白幡直人
2. 発表標題 コヒーレントコアシェル構造を有する InP/ZnS ナノ結晶の合成と応用
3. 学会等名 日本化学会第103春季年会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 根本一宏, 白幡直人
2. 発表標題 コヒーレントコアシェル構造を有する III-V 族系化合物半導体ナノ粒子の合成とフォトダイオードへの応用
3. 学会等名 粉体粉末冶金協会2023年度春季大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 根本一宏, 白幡直人
2. 発表標題 InP/ZnS コアシェル構造制御に基づくオプトエレクトロニクス素子性能増強
3. 学会等名 日本セラミックス協会第36回秋季シンポジウム
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Xiaoyu Huang, 白幡直人
2. 発表標題 ダブルペロブスカイトナノ粒子の合成とフォトダイオード創製
3. 学会等名 日本セラミックス協会第36回秋季シンポジウム
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 白幡直人
2. 発表標題 チューナブル発光/受光材料
3. 学会等名 NIMS材料技術展示会2023
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Xiaoyu Huang, 白幡直人
2. 発表標題 非鉛ペロブスカイト粒子の合成とフォトダイオードの創製
3. 学会等名 粉体粉末冶金協会2023年度秋季大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 白幡直人, Subhashri Chatterjee
2. 発表標題 インジウムアンチモン量子ドットの湿式合成と短波長赤外フォトダイオードへの応用
3. 学会等名 日本化学会 第104春季年会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Subhashri Chatterjee, Naoto Shirahata
2. 発表標題 InSb Quantum Dots for SWIR Photodiode
3. 学会等名 International Conference on Powder and Powder Metallurgy 2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Binbin Zhang, Jiakai Chen, Cong Zhang, Naoto Shirahata, Hong-Tao Sun
2. 発表標題 Mechanistic Insight into the Precursor Chemistry of Cesium Tin Iodide Perovskite Nanocrystals
3. 学会等名 International Conference on Powder and Powder Metallurgy 2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Naoto Shirahata
2. 発表標題 Solution Processed Nanocrystals for Bioapplications
3. 学会等名 2023 Japan-Taiwan Nanomaterial and Biomedicine Workshop (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 量子ドットおよびその製造方法、緑色の蛍光体、可視化染料並びに顔料	発明者 白幡直人、根本一宏	権利者 物質・材料研究 機構
産業財産権の種類、番号 特許、2021-142116	出願年 2021年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

SAMURAI
https://samurai.nims.go.jp/profiles/shirahata_naoto?locale=ja

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
サウジアラビア	KAUST			
中国	Soochow University	Shanghai Institute of Technology	USTC	
英国	University College Londo			