

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 12 日現在

機関番号：32708

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24560424

研究課題名(和文)透明から鏡へのクロミズムと透明有機ELによるハイブリッドスマートウィンドウの構築

研究課題名(英文) Fabrication of hybrid smart window by combination of a transparent organic light-emitting diode and a glare-tunable transparent electrochromic device from the transparent state to the mirror state.

研究代表者

内田 孝幸 (UCHIDA, TAKAYUKI)

東京工芸大学・工学部・教授

研究者番号：80203537

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：非発光時にガラスと同様に透明な特徴を有する透明有機EL素子と透明エレクトロクロミック素子を組合せ新奇な調光可能な透明電気化学素子を作製した。この素子は(1)透明、(2)鏡、(3)黒、(4)両面発光、(5)鏡を伴う片面発光、(6)黒を伴う片面発光の、6状態にすることが出来た。結果として我々は透明、ミラーを含む6状態、黒などを表示可能な多機能スマートウィンドウ作製した。これらの結果はスマートウィンドウの多彩な可能性を示した。

研究成果の概要(英文)：We fabricated a novel device assembled by coupling a transparent organic light-emitting diode (TOLED) and a glare-tunable transparent electrochemical device. This device could be operated in six different states, namely, (1) transparent, (2) mirror, (3) black, (4) dual emission, (5) single-side emission with mirror, and (6) single-side emission with black. We have fabricated multi-functional smart window with 6 states including transparent, mirror, black. These results showed the possibilities for wide variety of smart windows.

研究分野：透明電子デバイス

キーワード：透明有機EL素子 透明エレクトロクロミック素子 プラズモン 仕事関数 電子注入 銀ナノ粒子

1. 研究開始当初の背景

近年、環境問題とエネルギー問題が大きく取り上げられており、特に環境負荷の少ない、いわゆるエコロジーな技術の推進が求められている。環境負荷の少ない点で自然エネルギーを有効に用いる太陽電池、風力、水力発電等とそれに伴う、エネルギー貯蔵、2次電池等の技術が急速に進められている。これらの中で、消費エネルギーは暖房、冷房に用いられる空調がそのエネルギー多くを占めている。極めて簡単にいえば、冬を暖かくして、夏を涼しくする、スマートな技術が求められている。室内における熱の流入、流出のそのほとんどは、窓を通して行われており、最近では、比較的温暖な地域でも断熱性の高いペアガラスを用いた、窓の採用や、単板ガラス窓に後付けで、もう一枚窓を設けるような施工も多くなされるようになっており、エコポイントの推進力と伴って無駄な暖房、冷房コストの削減が推進されている。

申請者は1996年から報告が始まり開発が進んでいる、(A)ミラーが透明になるエレクトロクロミズムに今回注目し、これらを用いることで窓ガラスにおける熱の流入・流出をコントロールし、環境負荷の少ない窓を検討・構築する。

さらに、我々がこれまでに研究・開発を行ってきた、(B)非発光時に透明な特徴を有する「透明有機EL素子」の特徴を加え、ハイブリッド化した、情報表示、照明機能を含んだスマートウィンドウを提案する。

2. 研究の目的

申請者らはこれまで、非発光時に透明になる特徴を有する「透明有機EL」の作製について精力的に研究を行ってきた。この素子の特徴に、最近開発が進んでいる「透明からミラー」に変化するエレクトロクロミズムを融合させ、「透明」な状態から、「ミラー」と「発光素子(画像表示、情報表示、照明)」の状態に変化し得る、スマートウィンドウの構築とその技術的知見の確立を目的とする。これによって、暑い時期では、オフィスビルの窓材がミラーに変化することで、冷房負荷を大幅に低減することが可能であり、かつ、照明デバイスに変化できる特徴から省スペースである、省エネ・省スペースの新規な特徴を有するデバイスを構築、学術的知見の提供と共に、これらの可能性を提示する。

3. 研究の方法

(1)透明有機EL素子の作製評価は申請者らが検討してきたテーマであり、封止した評価用試料を再現よく作製が可能である。上記のエレクトロクロミック素子と併せて、まず最初にハイブリッドスマートウィンドウの試作素子を作製・評価し、当初コンセプトを論文等にまとめる。

(2)透明エレクトロクロミック素子は、透

明⇄鏡の変化が特徴の一つであり、鏡時にはディスプレイの背景以外に、遮熱窓としての機能が期待できる。このため、この利点を明確にするために、透明EC素子を窓に用いた、1/50縮尺の模型を作製し、ソーラーシミュレーターの光による室内の温度上昇の抑制について検討しその有効性を検証する。また、その成果を、学会発表や論文等にまとめる。

(3)透明エレクトロクロミック素子の多色表示の検討。透明EC素子の、黒表示は、単に銀鏡反応などに類似する銀の金属の電着によって表示色が決まる訳ではなく、銀ナノ粒子の多彩なプラズモン吸収によって生じている。これらの現象は、銀を代表とする金属ナノ粒子のプラズモンの現象によって生じていることを明らかにし、それによって多彩な色が表示できる事を示す。具体的には、透明EC素子の銀ナノ粒子のナノ粒子の大きさや発生密度を制御するため、2段階電圧印加法や、パルス幅変調(PWM)電圧印加法を適切に使い、色表示に必要な青、緑、赤ならびにシアン、マゼンタ、イエローの色を表示できる事を示す。また、これらの成果を、学会発表や論文等にまとめる。

4. 研究成果

(1)本申請の研究は非発光時に透明な特徴を有する「透明有機EL」と透明から鏡に変化する、「エレクトロクロミック素子」の組み合わせによって、多彩な表示や状態を可能にするものである。申請者らはすでに、透明有機EL素子の研究には実績があるため、本年度は透明から鏡になる素子について検討を行った。

申請の当初、この透明から鏡に変化する素子をMgNi系膜の無機膜を用いる予定であったが、近年、鏡⇄透明⇄黒の3つの状態をバイアス電圧の変化だけで実現できる報告がなされたため、この方法を利用することとして素子の作製を行った。その結果、この既存の報告にあったITOナノ粒子のコーティング電極を用いる方法だけでなく、スプレーCVD法によってITOの結晶成長を促進したITO電極においても、鏡⇄透明⇄黒に変化するスマートウィンドウの作製ならびに評価が出来た。

上述の素子と今回のために新しく構築した評価装置を用いて申請者らは、これらの結果をディスプレイの国際会議の主たる一つであるIDW/AD'12や応用物理学会学術講演会(H25春)において発表を行うと共に、論文(APEX: Applied Physics Express)にまとめ掲載に至った。また、IDW/AD'12の発表では、電子ペーパーの部門(EP)でポスターアワードを受賞した。このように、申請者らのグループにおいて、「透明⇄鏡に変化するスマートウィンドウ」の作製、評価が可能となり、当研究室の有する既存の「透明有機EL」の作製技術を組み合わせることが可能となった。

今後、この個別の素子の特性向上を図ると共に、当初目的としていた個別の素子を張り合わせた、新奇な発光機能を有する、スマートウィンドウの実現の道筋を明確にした。

図1に透明EC素子の変化を示す写真の一例を示す。



図1 透明エレクトロクロミック素子の表示の一例

また、図2に本申請のテーマかつ題目であった「透明から鏡へのクロミズムと透明有機ELによるハイブリッドスマートウィンドウ」の写真の一例を示す。

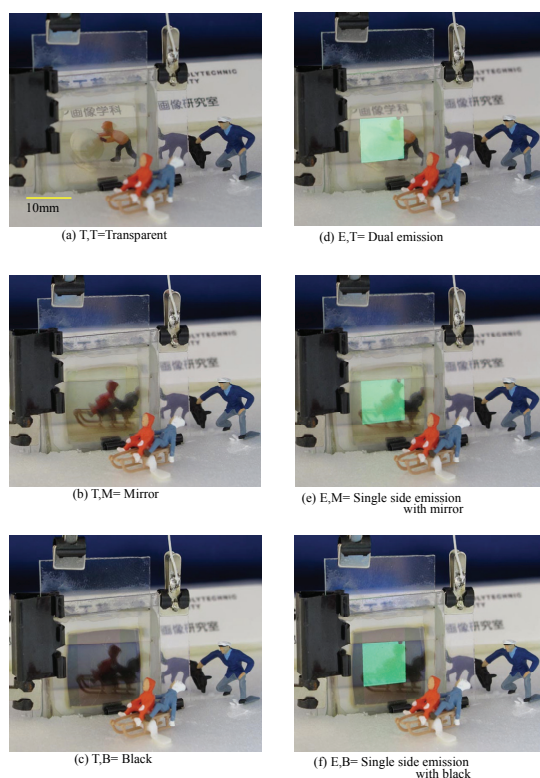


図2 透明有機EL素子と透明エレクトロクロミック素子の各表示状態と素子全体の表示状態を示す写真

このように、ガラスのように透明な状態から多彩に変化するデバイスの構築を示した。これによってスマートウィンドウの多彩な機能の可能性を明らかにした。これらに関連する内容は、日経産業新聞 先端技術面 (2014年5月22日) や、同誌が発行している英字媒体「Nikkei Asian Review」の2014年6月19日号の「Tech & Science」にて "New multistate display can be sign, mirror or window"

としても掲載されました。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 12件)

- ① 山田勝実、山田裕美子、櫻井克栄、松崎龍矢、内田孝幸、「透過性金ナノロッドアレイ膜の作成」、日本写真学会誌、査読有、75巻、2012、340-343.
- ② Y. Sawada, H. Ohkubo, Y. Seki, K.M. Lin, K. Sano, S.Seki, T.Uchida, Y.Hoshi, "Zinc Oxide Films Doped with Aluminum, Gallium or Tin Prepared by Dip Coating Process Using Ethanol Solution", Key Engineering Materials, 査読有, 512 - 515巻、2012、1503-1506.
DOI:10.4028/www.scientific.net/KEM.512-515.1503.
- ③ R.Onodera, Y.Seki, S.Seki, K.Yamada, Y.Sawada, and T.Uchida, "Smart Windows, Switchable between Transparent, Mirror, and Black States, Fabricated Using Rough and Smooth Indium Tin Oxide Films Deposited by Spray Chemical Vapor Deposition", Appl. Phys. Express (APEX), 査読有, Vol.6, 2013、026503-1-3.
DOI: 10.7567/APEX.6.026503.
- ④ 野口侑佑、内田孝幸、佐藤利文、「有機色素分散型 EL 素子の発光輝度における有機色素濃度依存性」、日本写真学会誌、査読有、76巻、2013、75-79.
- ⑤ 内田孝幸、柴崎正明、勝山祐作、松崎龍矢、「透明有機EL素子と電気化学素子で構成された6状態スイッチャブルスマートウィンドウの作製と評価」、日本写真学会誌、査読有、76巻、2013、50-54.
- ⑥ T.Uchida, M.Shibasaki, T.Matsuzaki, Y. Nagata, "Glare-Tunable Transparent Electrochemical Smart Window Coupled with Transparent Organic Light Emitting Diode", Applied Physics Express (APEX), Vol. 6, 査読有, 2013, 041604-1~4.
DOI: 10.7567/APEX.6.041604
- ⑦ 谷忠昭、飯野裕明、内田孝幸、半那純一、「電極/液晶性有機半導体界面の電子構造V、電極の仕事関数の変化の分析」、日本写真学会誌、査読有、76巻、2013、318-323.
- ⑧ 内田孝幸、「透明、鏡、黒ならびに発光状態を有するスイッチャブルスマートウィンドウ」、月刊、コンバーテック、487、査読無、2013、64-67.
- ⑨ 内田孝幸、「ナノ粒子を用いた薄膜の導電性ならびに光透過/反射/吸収の変化とデバイスへの応用」、日本写真学会誌、第76巻6号、査読無(解説)、2013、473-480.

- ⑩ 手嶋里帆、小山大貴、柴崎正明、市川正人、内田孝幸、「銀イオンを用いた透明エレクトロクロミック素子の窓への応用と熱遮蔽効果の検討」、日本写真学会誌、査読有、77巻、2014、257-263。
- ⑪ M.H.Wang, H.Lei, Y.Sawada, Y.Hoshi, T.Uchida, Z.X. Hou, “Recent Progress in Gasochromics of Nano-Structured WO₃ Film and its Applications”, Advanced Materials Research, Volumes 941-944, 査読有、2014、1298-1301.
DOI:10.4028/www.scientific.net/AMR.941-944.1298.
- ⑫ Y.Seki, S.Seki, Y.Hoshi, T.Uchida and Y.Sawada, “Characteristics of vanadium-doped indium oxide thin films for organic light-emitting diodes fabricated by spray chemical vapor deposition”, Japanese Journal of Applied Physics, Vol.54 査読有、2015、041101-1~4.
DOI: 10.7567/JJAP.54.041101
- 〔学会発表〕(計 27 件)
- ① 柴崎正明、櫻井克栄、松崎龍矢、内田孝幸、「透明有機 EL 素子の熱分布と輝度分布の測定と検討」、平成 24 年度日本写真学会年次大会、2012 年 05 月 30 日、千葉大学
- ② 松崎龍矢、櫻井克栄、柴崎正明、内田孝幸、「酸化チタン、酸化モリブデンを用いた逆積み有機 EL 素子の検討」、平成 24 年度日本写真学会年次大会、2012 年 05 月 30 日、千葉大学
- ③ 星 陽一、小林信一、内田孝幸、清水英彦、「ITO 陽極表面の酸素プラズマ処理条件による有機 EL 素子の動作特性の変化」、第 73 回応用物理学会学術講演会、2012 年 09 月 13 日、愛媛大学、松山大学
- ④ 内田孝幸、小野寺涼、関成之、松崎龍矢、澤田豊、山田勝実、「透明と鏡に変化するスイッチャブルスマートウィンドウの検討」、2012 年度日本写真学会秋季研究発表会、2012 年 11 月 30 日、京都工芸繊維大学
- ⑤ R. Onodera, Y. Seki, S. Seki, K. Yamada, Y.Sawada, T. Uchida, “Rough and Smooth ITO Films Fabricated by Spray CVD for Transparent-Mirror-Black Three-Way Electrochemical Smart Window”, The 19th International Workshops in conjunction with Asia Display, 2012 年 12 月 05 日、京都国際会議場
- ⑥ T. Matsuzaki, Y. Seki, Y. Yasuda, Y. Sawada, Y.Hoshi, T. Uchida, ” Luminance Enhancements in OLEDs Using a TiO₂ Electron Injection Buffer”, The 19th International Workshops in conjunction with Asia Display, 2012 年 12 月 05 日、京都国際会議場
- ⑦ M. Shibasaki, T. Tamura, M. Inui, Y. Azuma, T.Satoh, T. Uchida,” Study of Luminance and Thermal Distribution in OLEDs”, The 19th International Workshops in conjunction with Asia Display, 2012 年 12 月 05 日、京都国際会議場
- ⑧ 柴崎正明、勝山祐作、松崎龍矢、内田孝幸、「透明有機 EL と電気化学素子を組み合わせたスイッチャブル・スマートウィンドウの作製と検討」、第 60 回応用物理学会春季学術講演、2013 年 03 月 28 日、神奈川工科大学
- ⑨ 原田笑里、柴崎正明、松崎龍矢、五井野巧、勝山祐作、山田勝実、内田孝幸、「透明有機 EL 素子と電気化学素子で構成された 6 状態スイッチャブルスマートウィンドウの作製と評価」、平成 25 年度日本写真学会年次大会、2013 年 05 月 27 日、千葉大学
- ⑩ 増田美菜子、柴崎正明、松崎龍矢、小山大貴、勝山祐作、内田孝幸、「透明有機 EL を連結し調光可能な透明電気化学素子により構成された 6 状態スマートウィンドウ」、平成 25 年度日本写真学会年次大会、2013 年 05 月 27 日、千葉大学
- ⑪ 柴崎正明、吉野曜介、松崎龍矢、内田孝幸、「蒸着だけで作製する多層構造透明導電膜とそれを応用した有機 EL 素子」、平成 25 年度日本写真学会年次大会、2013 年 05 月 27 日、千葉大学
- ⑫ 内田孝幸、「透明⇄鏡⇄黒ならびに発光状態を有するスイッチャブルスマートウィンドウ」、新技術説明会(TAMA TLO)、2013 年 06 月 17、JST 東京本部別館ホール(市ヶ谷)
- ⑬ 内田孝幸、「ナノ粒子を用いた薄膜の導電性ならびに光透過/反射/吸収の変化とデバイスへの応用」、第 10 回日本写真学会光機能性材料セミナー、2013 年 06 月 17 日、士フイルム(株) 東京ミッドタウン本社 2 階会議室
- ⑭ 谷忠昭、内田孝幸、「銀ナノ粒子の安定性—銀塩写真からプラズモニクスへ」、2013 年第 74 回応用物理学会秋季学術講演会、2013 年 09 月 17 日、同志社大学
- ⑮ 星陽一、小林信一、内田孝幸、清水英彦、「有機 EL 素子上部電極膜作製のためのスパッタ成膜法の検討」、2013 年第 74 回応用物理学会秋季学術講演会、2013 年 09 月 17 日、同志社大学
- ⑯ 内田孝幸、齋藤和貴、市川正人、櫻井圭介、「銀イオンをパルスで電着させた透明エレクトロクロミズム素子の多色表示への検討」、2013 年日本写真学会秋季研究発表会、2013 年 11 月 28 日、京都工芸繊維大学
- ⑰ 手嶋里帆、小山大貴、柴崎正明、内田孝幸、「銀イオンを用いた透明エレクトロクロミズム素子の窓への応用と熱遮蔽効果

- の検討」、2013 年日本写真学会秋季研究発表会、2013 年 11 月 28 日、京都工芸繊維大学
- ⑱ M. Shibasaki, T. Matuzaki, K. Sakurai, T. Uchida,” Optical and Electrical Properties of MoO₃/Ag/MoO₃ Multilayer as Transparent Anode in Inverted Top-Emitting Organic Light Emitting Devices by Using Multistep Vacuum Deposition”, The 20th International Display Workshops (IDW'13), 2013 年 12 月 5 日, 札幌コンベンションセンター
- ⑲ M. Oikawa, R. Onodera, S. Seki, K. Yamada, E. Harada, Y. Sawada, T. Mizuno, T. Uchida,” Transparent -Mirror -Black Three -Way Electrochromic Smart Window Composed of a Pair of ITO Coated Flexible Plastic Films”, The 20th International Display Workshops (IDW'13), 2013 年 12 月 5 日, 札幌コンベンションセンター
手嶋里帆, 柴崎正明, 市川正人, 星陽一, 内田孝幸、「アルカリ金属ならびにスパッタプロセスを用いずに作製した透明有機 EL 素子」、第 61 回応用物理学会春季学術講演会、2014 年 03 月 18 日、青山学院大学、相模原
- ⑳ T.Uchida, M.Shibasaki, T. Matsuzaki, M.Ichikawa, K.Saitoh, and Y.Hoshi “Glare-Tunable Electrochemical Smart Window Coupled with Transparent Organic Light Emitting Diode having 6 states”, TOEO8, The 166th Committee on Photonic & Electronic Oxide, Japan Society for the Promotion of Science (JSPS), 2013 年 5 月 14 日, International Conference Center, Waseda University
- ㉑ R.Onodera, Y.Seki, S.Sato, S.Seki, K.Pak, K.Yamada, Y.Sawada and T.Uchida, “Fabrication of Electrochemical Device Using Silver Electro-deposition: Influence of Substrate Temperature on Rough ITO Films Prepared by Spray CVD”, TOEO8, The 166th Committee on Photonic & Electronic Oxide, 2013 年 5 月 14 日, International Conference Center, Waseda University
- ㉒ Y.Hoshi, S.Kobayashi, T.Uchida, Y.Sawada and H.Shimizu, “Control of Work Function of ITO Anode Films in OLED”, TOEO8, The 166th Committee on Photonic & Electronic Oxide, 2013 年 5 月 14 日, International Conference Center, Waseda University
- ㉓ 市川正人、平泉桃子、岩田優一、小林天明、手嶋里帆、谷忠昭、内田孝幸、「銀粒子を用いた透明 EC 素子の PWM 制御のパルス電圧駆動」、第 74 回応用物理学会学術講演会、2014 年 09 月 19 日、北海道大学札幌キャンパス
谷忠昭、内田孝幸、「大気中の貴金属ナ

- ノ粒子の電子構造と安定性へのゼラチン被膜の効果」、第 74 回応用物理学会学術講演会、2014 年 09 月 19 日、北海道大学札幌キャンパス
- ㉔ 星陽一、濱口大地、小林信一、内田孝幸、清水英彦、「上部電極膜のスパッタ成膜条件が有機 EL 素子の動作特性に及ぼす影響」、第 74 回応用物理学会学術講演会、2014 年 09 月 19 日、北海道大学札幌キャンパス
- ㉕ M. Ichikawa, R. Tejima, T. Tani, T. Uchida, “Reversible Change of Primary Colors CMYK, RBand Green on Silver Nanoparticles by Pulse Width Modulation via Localized Surface Plasmon Resonance”, International Display Workshops'14 (IDW'14), 2014 年 12 月 4 日, 新潟 朱鷺メッセ国際会議場
- ㉖ R. Tejima, M. Ichikawa, Y. Hoshi, T. Uchida,”Inverted Transparent Organic Light-Emitting Diodes (i-TOLEDs) Comprising Metal Oxide Compounds as Electron-Injection Layer without Alkali Metal”, International Display Workshops'14 (IDW'14), 2014 年 12 月 4 日, 新潟 朱鷺メッセ国際会議場

〔図書〕(計 3 件)

- ① 南内嗣、内田孝幸 (著者合計 54 名)、「透明導電膜の新展開 IV —多様な材料・形成技術の可能性—」、シーエムシー出版、2012、282 ページ中、218-230 を担当
- ② 内田孝幸 (著者合計 30 名)、「環境調和型新材料シリーズ、ディスプレイ材料」、日刊工業新聞社、編者 公益社団法人 日本セラミックス協会、240 ページ、144-15 と口絵 4 を担当。
- ③ 内田孝幸、渡邊政嘉、有本建男、名井陽、八代嘉美、水谷文雄、民谷栄一、田中賢、田口哲志、南内嗣、岡田至崇、岩室憲幸、佐藤登、篠原真毅、小紫公也、高橋俊輔、福住俊一、幾島賢治、岡田重人、車敬愛、全 86 名、「10 年後の市場・技術予測とそこから読み解く必然の研究開発テーマ」、技術情報協会、433 ページ。8 章有機 EL、375-379 を担当。

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 1 件)

名称：表示装置の製造方法
 発明者：内田孝幸、澤田 豊、山田 勝実
 権利者：学校法人東京工芸大学
 種類：公開特許公報 (A)
 番号：特開 2014-109688 (P2014-109688A)
 出願年月日：平成 24 年 12 月 3 日 (2012. 12. 3)
 国内外の別：国内

○取得状況（計 1件）

名称：画像表示装置および有機エレクトロルミネッセンス素子

発明者：内田孝幸、若菜誠、鈴木秀雄、野田尚宏

権利者：学校法人東京工芸大学、日産化学工業株式会社

種類：

番号：出願番号 2010-550558、登録番号 5682956

出願年月日：2010年2月12日

取得年月日：2015年1月23日

国内外の別：国内

〔その他〕

ホームページ等

電子画像研究室（内田研）

http://www.mega.t-kougei.ac.jp/denga_me/

6. 研究組織

(1) 研究代表者

内田 孝幸 (UCHIDA, Takayuki)

東京工芸大学・工学部・教授

研究者番号：8 0 2 0 3 5 3 7

(2) 研究分担者

星 陽一 (HOSHI, Yoichi)

東京工芸大学・工学部・教授

研究者番号：2 0 1 0 8 2 2 8

山田 勝実 (YAMADA, Katsumi)

東京工芸大学・工学部・教授

研究者番号：7 0 2 7 7 9 4 5

(3) 連携研究者

なし