

令和 4 年 6 月 3 日現在

機関番号：16301

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2019～2021

課題番号：19K04491

研究課題名（和文）ナノファイバーによる散乱構造の制御と発光デバイスへの展開

研究課題名（英文）Control of scattering of nanofibers and its application to light emitting devices

研究代表者

尾崎 良太郎 (Ozaki, Ryotaro)

愛媛大学・理工学研究科（工学系）・准教授

研究者番号：90535361

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：ナノファイバーはナノ材料のひとつであり、繊維径が数十～数百ナノメートルの極細繊維である。フィルタ応用のみならず医療や電気・電子分野まで幅広く研究開発が進んでいる。本研究では、ナノファイバーを用いて発光材料のフォトルミネッセンス効果の増強を調べた。スペクトルの時間変化、角度依存性、全光束の測定から、高分子薄膜では20%程度の発光増強効果が得られることが分かった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

LEDは、白熱電球に比べて1/10まで低消費電力になり、エネルギー効率向上に大きな変革を与えた。発光効率の改善は、実用上も非常に重要な問題である。発光素子の発光効率は、材料開発以外にも表面形状の工夫によっても改善することができる。本研究では、ナノファイバーを発光素子の表面に形成することで発光効率がどのように変化するかを詳細に調べ、ナノファイバーの光学応用の知見を得た。

研究成果の概要（英文）：Nanofiber is a nanostructured material whose diameter is several tens to several hundreds of nanometers. Applications of nanofibers are not limited to conventional filter cloths and medical filters, and research is progressing widely in the fields of optics and electronics. In this study, we have demonstrated that a dye-doped polymer film covered with electrospun nanofibers exhibits luminescence enhancement.

研究分野：電気電子材料

キーワード：ナノファイバー エレクトロスピニング 発光増強

1. 研究開始当初の背景

ナノ構造を利用した材料の技術開発は、世界的に競われている。光学分野における誘電体ナノ構造の代表格としては、フォトニック結晶が挙げられる。フォトニック結晶では、光の閉じ込め効果による低閾値レーザーに始まり、微小光導波路、スーパープリズム効果などの新奇な光学現象が広く研究されている。一方、誘電体だけではなく、金属にも注目が集まり、プラズモニクス(金属ナノ構造)として、金属ナノ構造による負の屈折率、電場増強効果、表面プラズモンフィルタ、プラズモニック導波路などの研究が活発に行われている。それらナノ構造は、微細加工技術によるトップダウン方式もしくは、自己組織的なボトムアップ方式で作製され、ナノスケールで整然と並び、配列が制御された構造を有しているのが特徴である。フォトニック結晶やプラズモニックデバイスでは、ナノ構造体の不完全性や、配置ズレなどの不均一性は、散乱を導き、マクロで見たときの特性を低下させるため、散乱が少ないものが望まれている。散乱は、数学的な取り扱いも難しいだけでなく、ランダム性を有することから、統計的な取り扱いも加味する必要もあり、計算科学では比較的難しい分野である。例えば、均質な周期構造では単位格子のみを調べることで、全体を知ることができるが、不均一な構造の場合、その特性を明らかにすることは非常に難しい。これまでの多くの研究では、ナノ構造によって光の透過や反射などの光伝搬を制御する際に、いかに光散乱を抑止するかということが重要であった。

2. 研究の目的

本研究の目的は、ナノ構造を用いて、光散乱を作り出し、それを制御することで新たな光学応用の展開を目指すことである。光散乱を制御するためのナノ構造としては、これまで我々が研究してきたナノファイバーを用いる。ナノファイバーはナノ材料のひとつであり、繊維径が数十~数百ナノメートルの極細繊維である。現在は衣類・フィルタ応用のみならずメディカルや電気・電子分野まで幅広く研究開発が進んでいる。従来のマイクロファイバーに比べて高比表面積、高空隙率、微細孔径などの特徴がある。更に、ファイバーの配向制御が可能であり、配向性の高いものやランダム配向のものを容易に得ることができる。ナノファイバーの分野は繊維・高分子の研究者が多く、材料面からの研究が主であるため、光学応用については世界的にもほとんど研究されておらず、学術的独自性も高い。

これまでに我々は、ナノファイバーを発光材料の表面に形成することで、発光強度が増大することを見出していった。発光増強のメカニズムは不明であったため、増強効果の特性を調べるために、時間変化や角度依存性などの詳細を調べ、メカニズムの解明をひとつの目的とした。

上述のナノファイバーによる発光増強は、ナノファイバーをLEDの発光層表面に形成することでも同様の効果が得られるはずであるので、既存のLED照明装置に直接応用することができるかを調べた。

3. 研究の方法

ナノファイバーはエレクトロスピンニング法(電界紡糸法)で作製した。この方法では、シリンジに高分子溶液を充填して針先に電圧を印加するだけで得られるので、高価な微細加工技術を必要としない。また、材料には一般的な高分子を用いることができるので極めて安価に作製できる。電極を固定した状態では、紡糸面積は直径10cm程度であるが、電極を移動させることで大面積化も容易に実現できる。図1には配向ナノファイバーとランダムナノファイバーと示している。

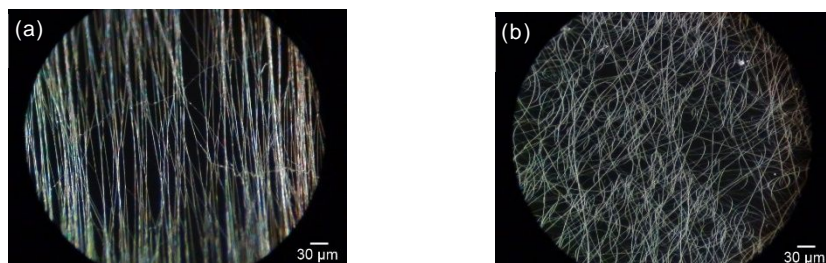


図1 ナノファイバーの顕微鏡像 (a) 一方向配向, (b) ランダム配向

(1) ナノファイバーを利用した高分子薄膜の発光増強特性

ナノファイバーの有無での発光強度の変化を調べるために、ナノファイバーをサンプルに形成しながら発光測定を行った。高分子薄膜の発光強度が急激に下がらないように、あらかじめ、20分間UVライト(365nm)を照射して、測定時間内では発光強度が変化しないようにした。ナノファイバー形成による発光の変化を直接的に観測するため、UVライト(375nm)を45度の角度から高分子薄膜に照射して、ナノファイバーを射出する前後の発光スペクトルの時間変化を測定し

た(図2) サンプルの発光変化を比較するために赤色 LED を参照光として用いた。

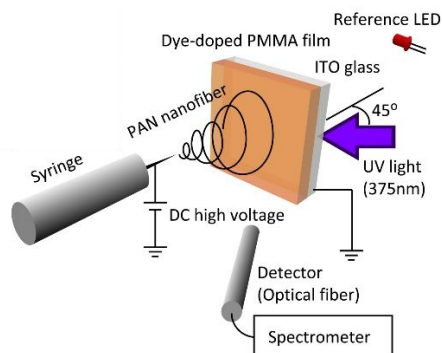


図2 ナノファイバー形成中の発光強度変化測定

(2) ナノファイバーを積層させたLED素子の発光増強特性

ナノファイバーを用いた発光増強がLED素子でも実現可能かどうかを調べるため、LED電球とLEDチップの表面にエレクトロスピンニング法でナノファイバーを表面に形成し、(1)と同様の測定を行った。

4. 研究成果

(1) ナノファイバーを利用した高分子薄膜の発光増強特性

高分子薄膜上にナノファイバーを形成した際の発光スペクトルの時間変化を図3に示す。ここでは、針電極に高電圧を印加して、ナノファイバーを射出しはじめた時間を0秒としている。初期のナノファイバーが付いていない状態での発光スペクトルと比較すると、時間とともに発光スペクトルが増強されていることが分かる。図3(b)には、発光ピークである590nmの発光強度の時間変化を示している。電圧印加時間はグレーにしている2分間である。ナノファイバー射出前は一定であった発光強度が、ナノファイバー射出によって急激に増加していることがわかる。図中の写真は、ナノファイバー形成前後の試料の写真である。参照用の赤色LEDと比較してもわかるように、サンプルの発光強度が強くなっていることが分かる明確な観測結果を得ることができた。

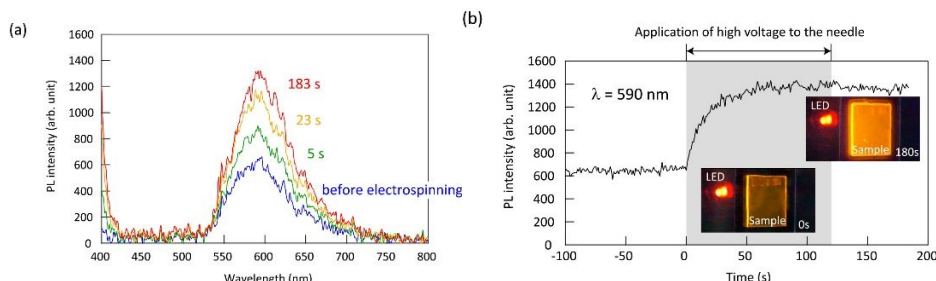


図3 ナノファイバー形成中の発光強度変化測定 (a) 発光スペクトル, (b) ピーク強度

図3の結果は、ナノファイバーの散乱による発光の指向性の変化が、影響したものである可能性もあるため、それらを確認するために図4(a)のように角度依存性を測定した。図4(b)は試料の発光強度の角度依存性である。0度より60度の方が、発光強度が強いのは、試料内部で発光するものの全反射によって表に出ることができない光がサンプル中を導波して側面から出てきたものを測定しているからである。図3(b)でもサンプルの側面が強く光っていることが見て取れるがその影響である。図4(c)は試料の発光増強度の角度依存性である。広範囲に渡って光が増強しているが、0度付近が最も高い1.6倍程度の増強を示し、平均では1.27倍程度となった。試料から発光する全光量を調べるために、積分球を用いて発光の総変化量を調べた。積分球を用いて測定した発光スペクトルを図4(d)に示す。ファイバーなしよりもファイバーありの方が増強しており、約1.23倍の増強効果を得た。

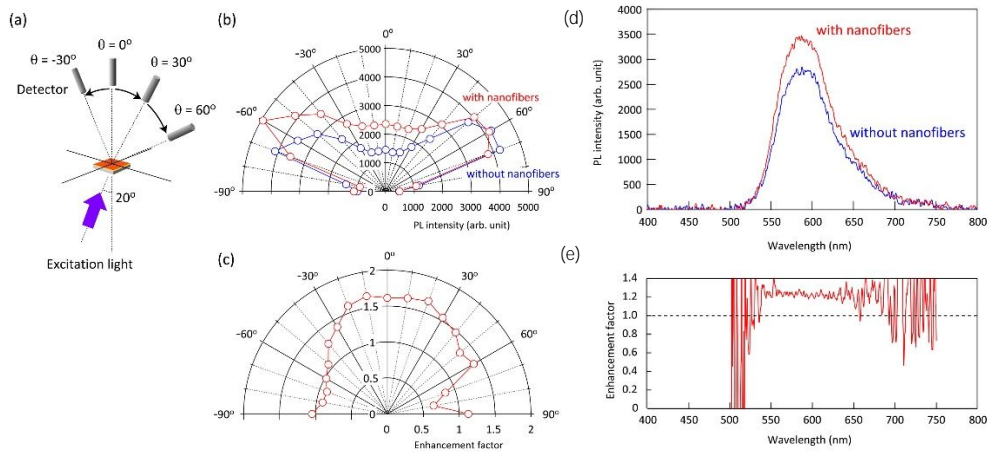


図4 (a) 発光強度の角度依存性の測定系, (b) 発光強度の角度依存性, (c) 発光増強度の角度依存性, (d) 積分球を用いたスペクトル測定, (e) 積分球で測定した増強比

(2) ナノファイバーを積層させたLED素子の発光増強特性

高分子薄膜で成功したナノファイバーによる発光増強をLED素子にも適用可能であるかどうかを調べた。図5(a)は市販のLED電球を分解したものであり、中央のLEDチップ以外は絶縁テープで覆った。写真から、表面にナノファイバーが付いて白くなっている様子が確認できる。上述の実験と同様に発光強度も測定したが、ごくわずかな増加のみで、高分子薄膜のときのような明確な増加は観測されなかった。市販のLED電球を利用する都合上、配線などが実験の展開の障害となったので、LED電球からLEDチップに変更して実験を行った。しかしながら、LED電球と同様にLEDチップにおいても、明確な発光増強は観測できなかった。

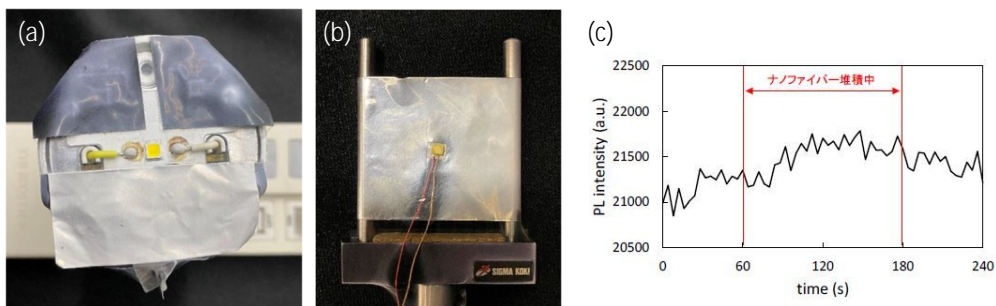


図5 ナノファイバーを形成した試料((a) LED電球, (b) LEDチップ), LED電球の発光強度の時間変化

(3) 関連する研究成果

エレクトロスピンニング法やエレクトロスプレー法では、条件によって溶液が射出されず、放電が発生する。これらは、エレクトロスピンニングやエレクトロスプレーにとっては望ましくないものであるが、これらを応用した有害物質の放電処理についても研究を行った。図6は、二本針電極系でのシミュレーション結果である。その他、液晶材料のエレクトロスピンニングやエレクトロスプレーの研究等も実施した。

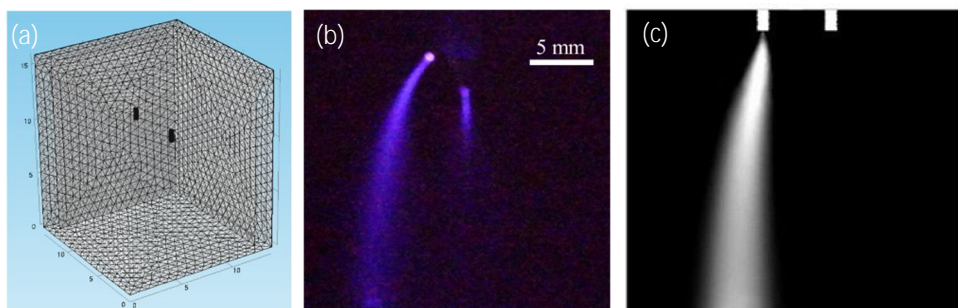


図6 針先からの放電シミュレーション (a) 計算メッシュ, (b) 放電光, (c) シミュレーション

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Nakano Yuya, Kawanishi Fusuke, Fujioka Shohei, Ozaki Ryotaro, Kadowaki Kazunori	4. 巻 60
2. 論文標題 Photoluminescence enhancement of dye-doped polymer films covered with electrospun nanofibers	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 100904(1-4)
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1347-4065/ac231a	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13件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 4件）

1. 発表者名 Ryotaro Ozaki and Kazunori Kadowaki
2. 発表標題 Photoluminescence Enhancement of organic dye in thin film by metal layer and electrospun nanofibers
3. 学会等名 17th International Symposium on the Science and Technology of Lighting (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Ryohei Ishimaru, Hideki, Motomura, Shinji Yudate, Ryotaro Ozaki, and Kadowaki Kazunori
2. 発表標題 Calculation of Electro spray Profile in Multi-Electrode System for Plasma Treatment
3. 学会等名 2021 IEEE International Conference on the Properties and Applications of Dielectric Materials (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Ryotaro Ozaki, Masashige Manabe, and Kadowaki Kazunori
2. 発表標題 Comparison of Characteristics between Electro-splayed Cholesteric Droplets and Cholesteric Cell
3. 学会等名 Optics of Liquid Crystals 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 尾崎 良太郎, 中野 佑哉, 弓達 新治, 門脇 一則
2. 発表標題 ナノファイバーによる色素ドープ薄膜の励起効率の改善
3. 学会等名 2021年 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 尾崎 良太郎, 眞鍋 雅成, 弓達 新治, 門脇 一則
2. 発表標題 エレクトロスプレー法で作製した撥水性基板上的コレステリック液晶ドロップレットの相転移挙動のサイズ依存性
3. 学会等名 2021年日本液晶学会討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 石丸 遼平, 本村 英樹, 弓達 新治, 尾崎 良太郎, 門脇 一則
2. 発表標題 静電噴霧を利用した放電廃液処理におけるスプレーと放電の形状の計算
3. 学会等名 令和3年度 電気・電子・情報関係学会四国支部連合大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 中野 佑哉, 弓達 新治, 尾崎 良太郎, 門脇 一則
2. 発表標題 ナノファイバーによる発光増強効果の入射角依存性の測定
3. 学会等名 令和3年度 電気・電子・情報関係学会四国支部連合大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 石丸 遼平, 本村 英樹, 弓達 新治, 尾崎 良太郎, 門脇 一則
2. 発表標題 エレクトロスプレーと放電を利用した水処理のための液滴分布シミュレーション
3. 学会等名 令和3年 電気学会 基礎・材料・共通部門大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 石丸 遼平, 本村 英樹, 弓達 新治, 尾崎 良太郎, 門脇 一則
2. 発表標題 有限要素法を用いたエレクトロスプレーのミスト形状計算に関する研究
3. 学会等名 令和2年度 電気・電子・情報関係学会四国支部連合大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 中野 佑哉, 弓達 新治, 尾崎 良太郎, 門脇 一則
2. 発表標題 ナノファイバーによる発光増強効果の時間変化及び全光束の測定
3. 学会等名 令和2年度 電気・電子・情報関係学会四国支部連合大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 眞鍋 雅成, 弓達 新治, 尾崎 良太郎, 門脇 一則
2. 発表標題 エレクトロスプレーで作製したコレステリック液晶ドロップレットのテクスチャーのサイズ依存性
3. 学会等名 2020年 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Ryotaro Ozaki, Irfan Danial M. Rahdi, Masashige Manabe, Shinji Yudate, Kazunori Kadowaki
2. 発表標題 Temperature dependence of molecular orientation of electro-sprayed cholesteric liquid crystal droplets on glass substrate
3. 学会等名 10th International conference on Molecular Electronics and Bioelectronics (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 河西 風助, 弓達 新治, 尾崎 良太郎, 門脇 一則
2. 発表標題 高分子ナノファイバーを堆積させた発光膜の全光束測定
3. 学会等名 令和元年度 電気関係学会四国支部連合大会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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
研究 分 担 者	門脇 一則 (Kadowaki Kazunori) (60291506)	愛媛大学・理工学研究科(工学系)・教授 (16301)	

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
---------	---------