

令和 5 年 6 月 23 日現在

機関番号：57501

研究種目：若手研究

研究期間：2021～2022

課題番号：21K14215

研究課題名（和文）セルロースナノファイバーを基軸とした発光性ナノシートの創製と機能性デバイス開発

研究課題名（英文）Fabrication of luminescent nanosheets using cellulose nanofibers toward development of functional electroluminescent device

研究代表者

常安 翔太（Tsuneyasu, Shota）

大分工業高等専門学校・電気電子工学科・助教

研究者番号：40825395

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、潜在的に素子構造の自由度に優れた分散型電界発光（EL）素子が構築可能な蛍光体粒子とセルロース繊維を複合化した発光性シートを作製し、発光層が再利用可能なステッカー型面発光デバイスを開発した。また、表面粗さがEL特性に与える影響を実験的に評価し、その結果をもとに数値シミュレーションを行い、EL特性の低下は実質的な膜厚の増加によって引き起こされていることが明らかとなった。さらに、高輝度化に伴う高温化を抑制するため、分散型ELを構成する基材への切り紙加工および伝熱異方性フィルムの導入により低温駆動を達成した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

我々とあらゆる情報をシームレスにつなぐ超スマート社会の実現に向け、各種電子デバイスに関する研究開発が活発化している。従来の電子デバイスは、各部材の劣化度に関わらず全て廃棄する前提でデバイス設計されており、世界的に気運が高まる持続可能な社会の達成に向けた喫緊の課題である。これに対し本研究は、これまでに蓄積した知見をもとに「発光層の再利用」という革新的な機能性の付与に成功しており、広範な分野に波及効果が期待される。

研究成果の概要（英文）：In this study, we developed a sticker-type surface-emitting device with a reusable light-emitting layer consisting of phosphor particles and cellulose fibers. To clarify the effects of surface roughness, the effect of surface roughness on electroluminescent (EL) properties was experimentally evaluated, and numerical simulations based on this experimental result revealed that the decrease in EL properties was caused by an increase in the effective film thickness. The intrinsic improvement of the luminance is the key to develop a versatile light-emitting devices. However, increasing applied voltage resulted in higher temperatures, resulting in low luminance. To solve this issue, the EL device on either an anisotropic in-plane heat conductive nanocomposite films or a kirigami-processed process which can improve a heat dissipation were introduced, achieving a low temperature driven EL device.

研究分野：電子デバイス、機能性デバイス

キーワード：ペーパーエレクトロニクス 面発光デバイス 分散型EL セルロースナノファイバー 伝熱特性解析  
機能性デバイス ディスプレイ

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

### 1. 研究開始当初の背景

我々とあらゆる情報をシームレスにつなぐ超スマート社会の実現に向け、各種電子デバイスに関する研究開発が活発化している。研究代表者は、独自のデバイス設計・相互作用解析手法により、電気化学発光デバイス内の異分子間相互作用を利用することで、高速駆動化・高輝度化・長寿命化が実現できることを世界で初めて実証した。また、本デバイス設計・解析手法を潜在的に素子構造の自由度に優れた分散型電界発光 (EL) デバイスへと展開し、セルロース製の「紙」基板上での高輝度化手法を提案するだけでなく、世界最高の折り曲げ耐久性を実現した。さらに、熱刺激によって可逆な着消色変化を示すサーモクロミック材料と蛍光体間のエネルギー移動を制御することで、熱刺激によって可逆的な発光色のチューニングが可能な分散型 EL デバイスの開発に成功した。これらデバイス設計・解析を通して、電極の不活性化が輝度劣化の一因であることが分かってきた。分散型 EL を含め従来の電子デバイスは、各部材の劣化度に関わらず全て廃棄する前提でデバイス設計・実装されており、世界的に気運が高まる持続可能な社会の達成に向けた喫緊の課題である。一方で、分散型 EL を汎用性の高い面発光デバイスへと展開するためには、高輝度化が必要となる。しかしながら、分散型 EL の高輝度化を目指して印加電圧を増加させると高温となり、強誘電層の誘電率が低下し電界強度が低下するため、逆に低輝度化してしまうことが課題となっている。

### 2. 研究の目的

これらを鑑み、本研究では図1の概念図のように蛍光体粒子とセルロース繊維を複合化した発光性シートを作製し、発光層の再利用が可能なステッカー型面発光デバイス開発を目指した。また、高輝度化に伴う高温化を抑制するため、分散型 EL を構成する基材に着目し、低温駆動化を実現することもあわせて目的とした。

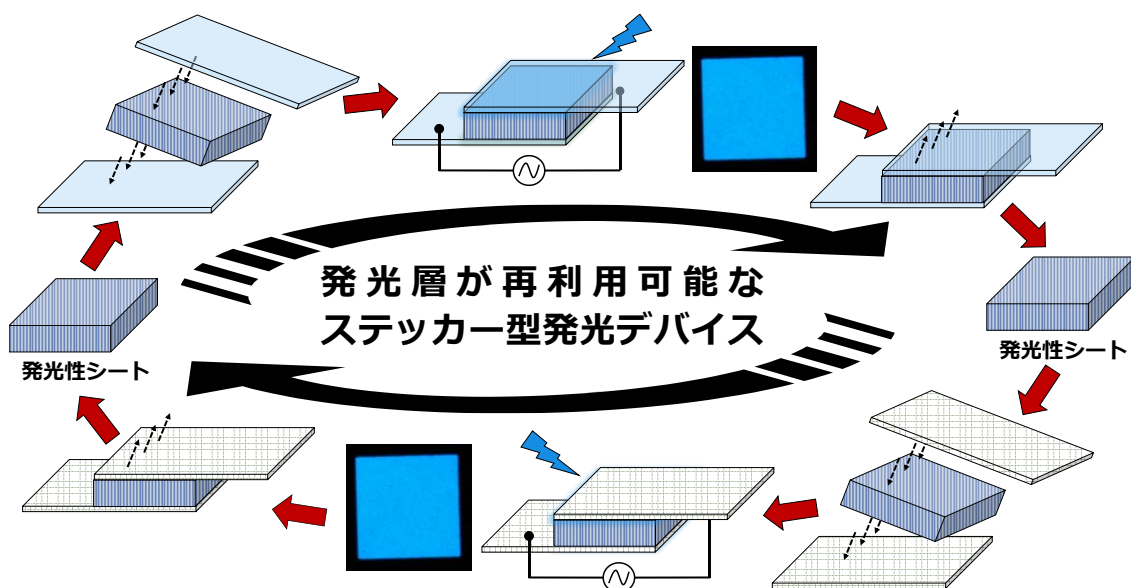


図1 本研究で目指すステッカー型面発光デバイスの概念図

### 3. 研究の方法

研究目的を実現するため、以下について検討した。

- (1) 発光性シートの作製とステッカー型面発光デバイスの構築
- (2) 基材の表面粗さに依存した EL 特性低下メカニズムの解明
- (3) 高輝度化に向けた低温駆動の実現

### 4. 研究成果

- (1) 発光性シートの作製とステッカー型面発光デバイスの構築

蛍光体粒子とセルロース繊維から構成される発光性シートを作製し、電極間に挟み込むことで分散型 EL を構築した。本素子への交流電圧印加により、面発光が得られた (図2(左))。次に、本シートを電極間から物理的に取り出し、新たな電極を用いて再び分散型 EL を構築し、同交流電圧を印加することで、同様の面発光が観測された (図2(右))。現在、論文投稿に向けて準備を進めている。

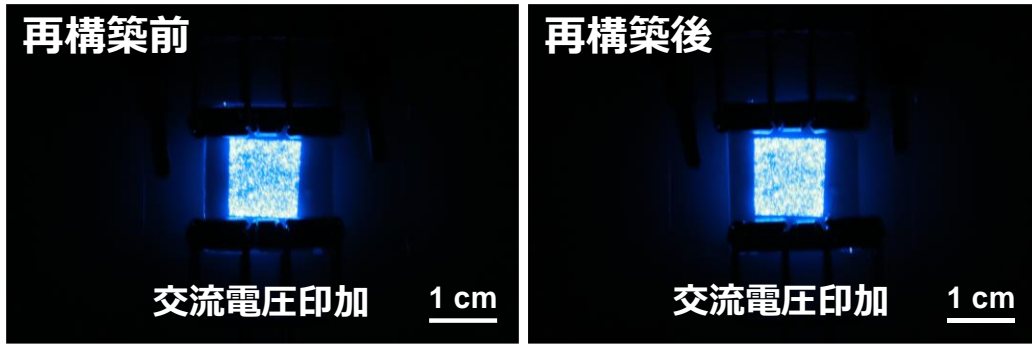


図2 発光性シートを用いた分散型 EL の発光外観

(2) 基材の表面粗さに依存した EL 特性低下メカニズムの解明

上述(1)の検討を通して発光性シートの表面粗さと面発光輝度の不均一が対応していることが分かった。表面粗さが EL 特性に対して与える影響を明らかにするため、様々な粒子サイズの研磨剤から構成される研磨紙上に分散型 EL を構築し、交流電圧印加時における電流密度および輝度を測定し、それらと粒子サイズの関係をプロットしたところ(図3)、研磨剤の粒子サイズ増加に伴い、電流密度および輝度は指数関数的に減少していることが分かった。このことから、基板の表面粗さは、電流密度だけでなく輝度も支配していることが実験的に明らかとなった。この EL 特性低下メカニズムを解明するため、有限要素法による数値計算を行った。その結果、この EL 特性低下は実質的な膜厚の増加によって引き起こされていることが判明した。

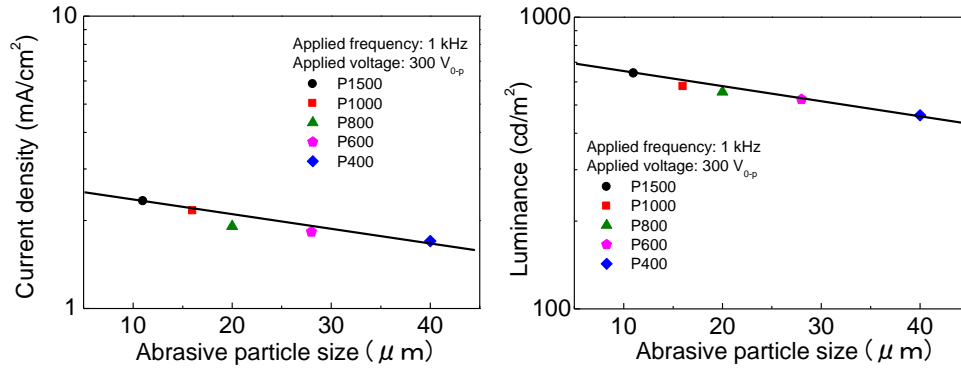


図3 研磨紙の粒子サイズと EL 特性の関係

(3) 高輝度化に向けた低温駆動の実現

①切り紙構造による低温駆動化

ホヤ殻由来のセルロースナノファイバー(CNF)フィルム上に、スクリーン印刷法にて分散型 EL を形成し、網飾り状の切り紙加工前後における発光時の温度変化をサーモグラフィにて観測した。切り紙加工のない分散型 EL に交流電圧を印加すると、強く発熱し、無風状態で 73.5°C まで昇温した。この素子に対して、網飾り切り紙を形成したところ、延伸展開しても発光し続け、さらに 3.0 m/s の空気対流によって体温と同程度の約 35°C まで冷却されていることを確認した(図4(a))。この高い放熱効果によって、強誘電体層(チタン酸バリウム)の熱劣化が抑制されることで、さらなる高電圧印加による高輝度化が期待される。さらに、切り紙の延伸・展開調整によって分散型 EL による光の照射角度が可逆的に制御できることを実証した(図4(b))。

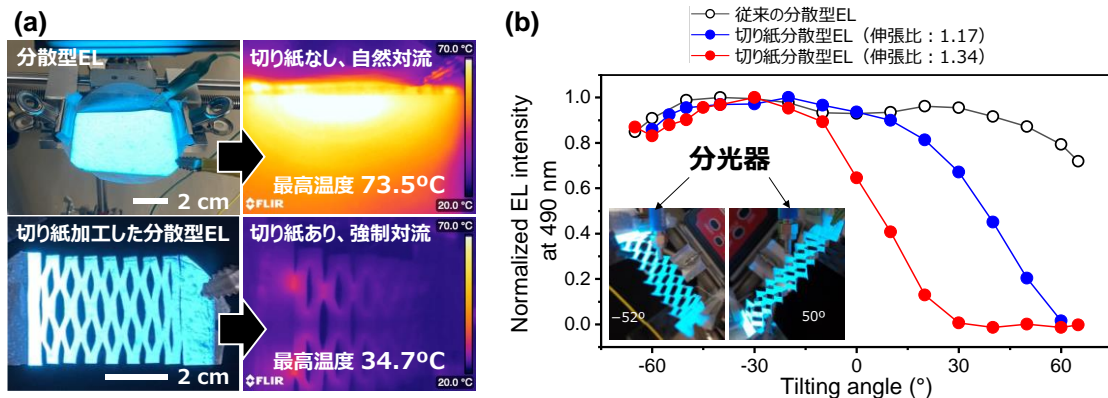


図4 (a) 切り紙と対流の有無による分散型 EL の写真とサーモグラフィ画像、(b) 各伸張比における最大 EL 強度

## ②面内熱拡散異方性の実現

近接する発熱デバイス間の熱干渉を避けながら、熱拡散して冷却するためには、熱流方向を指定可能な面内伝熱異方性のあるフィルム基材が重要となる。これに対し、液相 3 次元パターンニング法により、CNF 中で炭素 (CF) 繊維を一軸配向した複合フィルムを開発した (図 5 (a))。このフィルムは、柔軟かつ表面抵抗率が高く、CF の配向方向に  $7.8 \text{ W/mK}$ 、配向直交方向に  $1.8 \text{ W/mK}$  を示し、面内熱拡散異方性が 433%もの高い性能を示した。本フィルム上に分散型 EL を形成し (図 5 (b))、顕著な熱拡散異方性による効率的な冷却の実証に成功した (図 5 (c))。さらに、グラファイトスプレーにより擬似的な熱源を形成し、白色光源の照射によって生じた熱を別方向へと拡散放熱することにも成功した (図 5 (d))。

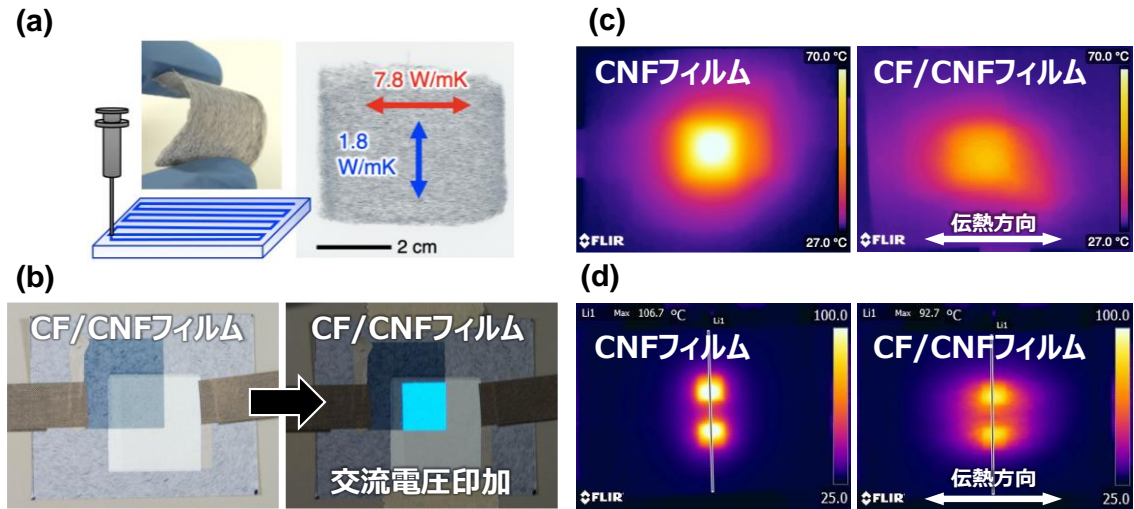


図 5 (a) 使用したパターンニングプログラムと CF/CNF フィルムの写真、(b) CF/CNF フィルム上に形成した分散型 EL の外観、(c) CNF または CF/CNF フィルム上に構築した分散型 EL のサーモグラフィ画像、(d) 両フィルム上に 2 つの擬似的な熱源を形成し、白色光の照射によって生じた温度分布画像

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Ryuha Miyako, Kaito Toda, Takayuki Uchida, Toshifumi Satoh, Shota Tsuneyasu	4. 巻 33
2. 論文標題 Phthalate-based electrochromic device using a cellulose substrate enabling a form of reflective representation as designed	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Bulletin of the Society of Photography and Imaging of Japan	6. 最初と最後の頁 7~9
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.11454/ephotogrst.33.1_7	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Uetani Kojiro, Takahashi Kosuke, Watanabe Rikuya, Tsuneyasu Shota, Satoh Toshifumi	4. 巻 14
2. 論文標題 Thermal Diffusion Films with In-Plane Anisotropy by Aligning Carbon Fibers in a Cellulose Nanofiber Matrix	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 ACS Applied Materials & Interfaces	6. 最初と最後の頁 33903~33911
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acsami.2c09332	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 常安 翔太、佐藤 利文	4. 巻 59
2. 論文標題 分散型電界発光デバイスの最新動向	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 日本印刷学会誌	6. 最初と最後の頁 131~135
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.11413/nig.59.131	査読の有無 無
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 Uetani Kojiro, Kasuya Keitaro, Wang Jiahao, Huang Yintong, Watanabe Rikuya, Tsuneyasu Shota, Satoh Toshifumi, Koga Hiroataka, Nogi Masaya	4. 巻 13
2. 論文標題 Kirigami-processed cellulose nanofiber films for smart heat dissipation by convection	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 NPG Asia Materials	6. 最初と最後の頁 62
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41427-021-00329-5	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計10件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 Rikuya Watanabe, Kojiro Uetani, Shota Tsuneyasu, Nobuyuki Nakayama, Toshifumi Satoh
2. 発表標題 Correlation between EL Characteristics and Substrate Surface Roughness in Top-Emission Powder EL Devices
3. 学会等名 The 29th International Display Workshops (IDW'22) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 常安翔太、渡部陸矢、上谷幸治郎、佐藤利文
2. 発表標題 放熱性能改善に基づく分散型電界発光デバイスの高機能化
3. 学会等名 画像関連学会連合会第8回秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 常安翔太
2. 発表標題 スリット加工を用いた分散型ELデバイスの伝熱特性解析
3. 学会等名 第3期物質・デバイス領域共同研究拠点キックオフシンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 都隆羽、常安翔太、佐藤利文
2. 発表標題 セルロース基板中におけるフタル酸エステル誘導体のエレクトロクロミック特性評価
3. 学会等名 2022年度日本写真学会年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 渡部陸矢、竹田直樹、春谷慶太郎、高橋宏輔、上谷幸治郎、常安翔太、佐藤利文
2. 発表標題 基板の透過率および表面粗さが分散型 E L の特性に与える影響
3. 学会等名 第127回日本画像学会研究討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 上谷幸治郎、春谷慶太郎、Wang Jiahao、Huang Yintong、渡部陸矢、常安翔太、佐藤利文、古賀大尚、能木雅也
2. 発表標題 セルロースナノファイバーフィルムの切り紙加工による熱放散
3. 学会等名 第28回セルロース学会年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Rikuya Watanabe、Naoki Takeda、Keitaro Kasuya、Kosuke Takahashi、Kojiro Uetani、Shota Tsuneyasu、Toshifumi Satoh
2. 発表標題 High Luminance Bottom-Emission Type Powder EL Device with High Transparent Substrate
3. 学会等名 International Conference on Advanced Imaging 2021 (ICAI 2021) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 常安翔太
2. 発表標題 多機能デジタルサイネージ実現に向けた分散型電界発光デバイス開発
3. 学会等名 第12回九州パワーアカデミー研究部会シンポジウム (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 渡部陸矢、高橋宏輔、上谷幸治郎、常安翔太、佐藤利文
2. 発表標題 トップエミッション分散型ELにおける基材の表面粗さとEL特性の関係評価
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 渡部陸矢、上谷幸治郎、常安翔太、中山信行、佐藤利文
2. 発表標題 トップエミッション型分散型ELデバイスの基板表面粗さがEL特性に及ぼす影響
3. 学会等名 第129回日本画像学会研究討論会
4. 発表年 2022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

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