



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	Chemical Synthesis of Luminescent Silicon Quantum Dots for Light-Emitting Diodes [an abstract of dissertation and a summary of dissertation review]
Author(s)	山田, 博之
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(理学)
Dissertation Number	甲第15406号
Issue Date	2023-03-23
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/89843
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/
Type	doctoral thesis
File Information	YAMADA_Hiroyuki_review.pdf, 審査の要旨



学位論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称 博士（理学） 氏名 山田 博之

審査担当者	主査	教授	村越 敬
	副査	教授	長谷川 靖哉
	副査	客員教授	打越 哲郎
	副査	客員教授	野口 秀典
	副査	客員教授	白幡 直人

学位論文題名

Chemical Synthesis of Luminescent Silicon Quantum Dots for Light-Emitting Diodes
(シリコン量子ドット蛍光体の化学合成と発光ダイオードへの応用)

シリコン量子ドット (Silicon Quantum Dots, SiQDs) は、ダイヤモンド構造を有する Si 結晶をバルクの励起子ボア半径より小さなサイズに微小化した粒子を指す。SiQD は、光励起キャリアの量子閉じ込め効果に基づき高い蛍光量子収率を示し、発光波長は粒子径に依存し 535 - 1050 nm の広帯域で変調可能となる。蛍光量子収率のさらなる増強は、1-アルケンのヒドロシリル化を行うことで達せられる。また、有機終端により SiQD は有機溶媒に分散可能となりスピンコート法で成膜可能となるため、光電極や発光ダイオードといったオプトエレクトロニクスデバイス創製に向けた研究開発も行われている。SiQDs を発光層にもつ発光ダイオード (Silicon Quantum Dots Light-Emitting Diodes, Si-QLEDs) に関わる論文は 2009 年に近赤外発光 Si-QLEDs、2011 年に可視赤発光 Si-QLEDs が報告され、発光波長は 850-625 nm の狭い範囲に限定されていた。発光色の拡張やエレクトロルミネッセンス (Electroluminescence, EL) 光の外部量子収率増強は積年の課題とされている。

本論文は、EL 特性に優れた Si-QLEDs を作製するために必要となる最適な要素技術、特に蛍光量子収率の高い SiQD、安定性の高いデバイス構造及び EL の外部量子収率を増強するためのキャリア輸送層を明らかにするために、QD 或いは QLED 構造とルミネッセンス特性の相関について議論することを目的としたものである。

第一章では、QLEDs に関してデバイス作製方法と EL 特性について述べた。特に、Si-QLEDs については既報のデバイス構造と EL 特性の相関を掘り下げて検証することで、Si-QLEDs における現状の課題点を明らかにし、本研究目的を明確にした。

第二章では、熱不均化反応によるダイヤモンド構造型 SiQD の合成と光物性評価を行った。その結果 SiQD のフォトルミネッセンス (Photoluminescence, PL) ピーク波長は、熱不均化反応時の焼成温度とフッ酸エッチング時間の両方に相関があることを明らかにした。またトリエトキシシラン (Triethoxysilane, TES) の加水分解時の酸性溶液の注入スピードを制御することで、PL 量子収率 (PL Quantum Yield, PLQY) が最大 2 倍増強された。

第三章では、順構造型 Si-QLEDs と逆構造型 Si-QLEDs (Si-iQLEDs) の作製と評価を行った。その結果、順構造型デバイスでは高電圧駆動下において EL スペクトルピークの大幅なブルーシフトが観測された。一方、逆構造型デバイスでは高電圧駆動下においても EL ピークのブルーシフトはなかった。さらに、順構造に比べて逆構造を有するデバイスでは同駆動条件下において 10 倍長寿命であった。

第四章では、Si-iQLED の EL ピーク波長及びスペクトル形状の制御を行った。従来報告されていた Si-QLEDs の最短発光波長は 625 nm で、EQE も 0.0006 第五章では、キャリア輸送層の制御と粒子間距離制御を行った。キャリアバランス制御のため、電子輸送ブロッキング層を挟んだ Si-iQLEDs では、EQE が 7.44 第六章では、結論が要約されるとともに本研究が提示した Si-iQLEDs の光デバイスとしての有用性と将来性について、総括と展望が記載されている。

これを要するに、著者は、蛍光量子収率の高い SiQD を化学合成するために必要な前駆体合成条件の最適化と QD 精製法に加え、当該の SiQD を活性層に具備する電流注入型発光ダイオードからの発光の外部量子収率増強について、キャリアバランスをチューニングし、活性層内のキャリア移動度を増大するためのデバイス構造について新知見を得たものであり、重金属フリー発光ダイオード創製に向けた研究に対して貢献するところ大なるものがある。よって著者は、北海道大学博士（理学）の学位を授与される資格あるものと認める。