

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 3 年 6 月 24 日現在

機関番号：82626

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K05267

研究課題名(和文)オペランド計測技術の新規開発による有機EL発光機構の直接解明

研究課題名(英文)Direct investigation on organic EL mechanism by operand transient spectroscopy

研究代表者

細貝 拓也 (Hosokai, Takuya)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・計量標準総合センター・主任研究員

研究者番号：90613513

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)：有機ELの駆動中における電荷キャリアおよび励起子のダイナミクスを明らかにするため、電界励起の過渡吸収分光法および二重共鳴和周波発生(SFG)法の装置開発を行った。過渡吸収分光法は試料の作製が期間内に間に合わなかったものの、SFGは三重項-三重項アニヒレーション(TTA)を発光機構のベースとする有機EL素子に適用することで、発光層と電子ブロック層界面での電荷蓄積、およびAl電極から注入された電子の挙動を確認することができた。関連して熱活性型遅延蛍光材料、室温燐光材料、エキサイプレックス材料などの先端光材料の発光機構を過渡吸収分光法を用いて明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

高度情報化社会および省エネルギー社会を実現するためには、既存のSiをベースとするデバイスの高性能化だけでなく、全く新しい形のデバイスの作製が不可欠です。有機ELに代表される、有機半導体を用いたデバイスはその可能性を秘めていますが、未だに多くの動作機構の詳細が分かっておりません。本研究では、有機半導体をベースとする各種の有機デバイスの動作を直接調べるための計測技術の開発を行いました。有機ELや有機トランジスタ中の電荷キャリアの流れを可視化も含めて評価することができており、今後は本技術が各種有機デバイスの高性能化に寄与していくことが期待されます。

研究成果の概要(英文)：In order to study both the charge carrier and exciton dynamics under OLED device operation, we have developed operand transient absorption spectroscopy and sum-frequency generation (SFG) spectroscopy. For OLED devices based on triplet-triplet annihilation (TTA), we confirmed the behavior of injection at the interface between the light emitting layer and the electron block layer, and charge carrier dynamics after the injection from the electron Al electrode. The light emitting mechanism of advanced light materials, such as thermally activated delayed fluorescent materials, room-temperature phosphorescent materials, and exciplex thin films, was studied by the transient absorption method.

研究分野：光化学、有機半導体物性

キーワード：時間分解分光 過渡吸収分光法 和周波分光法 電界励起 有機デバイス デバイス駆動ダイナミクス

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

有機化合物の励起状態マネジメントは、現代光化学の先端課題である。特に、励起一重項状態と励起三重項状態の異なるスピン軌道間的高速遷移は、本来、古典力学では禁制であり、量子力学においてのみ説明される摂動論の残されたテーマとも言える。さらに、このテーマは三重項励起子がスピン統計学的に 75 %の確率で、電荷再結合して生成する、有機 EL 素子の発光効率の向上のための緊迫課題でもある。

有機 EL の『電界励起』は、溶液中や固体薄膜の『光励起』の状況とは異なり、数十ナノメートル程度の狭空間(発光層)の高密度励起によって、励起子とポーラロン(荷電粒子)の衝突が頻繁に発生する(図 1)。これが、有機 EL の発光にとって重要な三重項から一重項へのスピン反転を伴う遅延蛍光過程と競合することで、デバイス発光効率を著しく低下させる[例えば K. Masui, et al., *Org. Electron.*, 14, 2721(2013)]。

このような種々の励起子やポーラロンの素反応は、これまで溶液や固体薄膜の分光研究や有機 EL の素子特性のモデリングによって研究されてきた。しかし、未だにそれらが実際の有機 EL 素子の駆動中に複合化した状態で観察された例はない。つまり、有機 EL の本質とも言える素子駆動中の発光機構は未だ明らかになっておらず、いわばデバイス光化学の長年の「問い」として延々と残されている。

有機 EL 素子の駆動中における反応機構を解析できなかった原因は、これを行う分析手法、つまりデバイスの素反応を直接検出する分析技術が確立されていなかったためである。昨今、本研究分担者の宮前は、イリジウム金属錯体を発光層に用いた有機 EL 素子の駆動中に、オペラント和周波発生(SFG)分光法(図 2(a))を用いて反応機構を計測することで、有機 EL 素子内に生成したポーラロン( $\text{Alq}_3^+$ と  $\text{NPD}^+$ )を実時間で検出できることを初めて報告した(図 2(b))[T. Miyamae, et al., *Appl. Phys. Express*, 10, 102101(2017).]。

一方、これまで本研究代表者の細貝は、超高速過渡吸収分光法を用いた熱活性化遅延蛍光(TADF)材料の励起状態ダイナミクスの研究を進めており、高効率な TADF 材料が特異な分子内電荷非局在化励起状態を形成することで高速のスピン変換を実現していることを見出した[T. Hosokai, et al., *Science Advances*, 3, e1603282(2017).]。

SFG 分光法は、ポーラロンが素子中を移動していく、注入・蓄積・放出・再結合などの各素反応の検出に極めて高い選択性を有している。一方、超高速過渡吸収分光法は、SFG 分光法では検出することが困難な励起子ダイナミクスを高い時間分解能で追跡することが可能である。すなわち、宮前らの励起源をパルス電圧とした計測技術を、細貝が持つ過渡吸収分光法にさらに取り入れることで、有機 EL 素子内に生成したポーラロンだけではなく、励起子の両方の動的挙動を初めて直接観測できるようになると大いに期待できる。

### 2. 研究の目的

本研究では、パルス電圧を励起源とする過渡吸収分光技術を独自開発し、有機 EL オペラント分光計測の独自研究を展開することで、励起子とポーラロンが複雑に相互作用して機能する有機 EL 発光機構、すなわち複合デバイス光化学反応の本質解明を目的とする。これによって、有機 EL 素子の動作機構の本質解明はもとより、レアメタルフリーな次世代高効率発光材料として期待されている TADF 材料の開発にも貢献する。

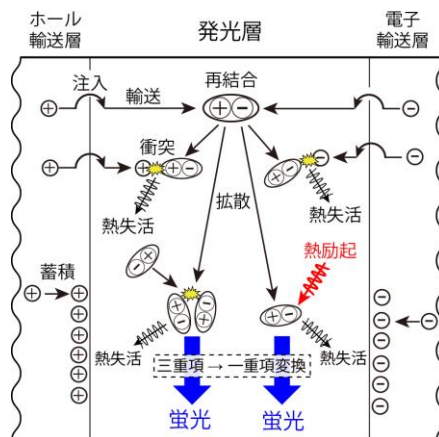


図 1 有機 EL 素子駆動中の様々な素反応の模式図。

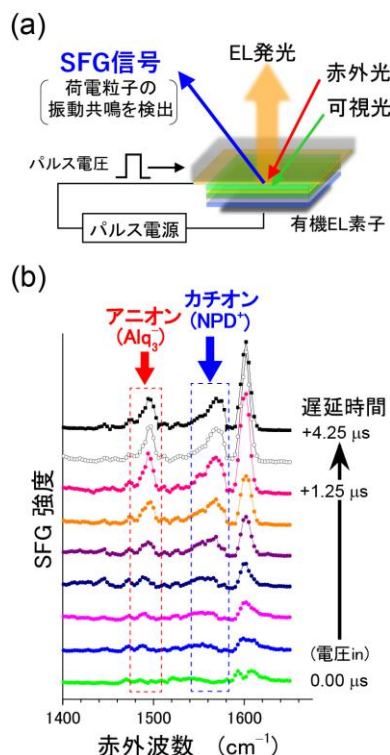


図 2(a)オペラント SFG 分光法の測定模式図。(b)時間分解 SFG スペクトル。

### 3. 研究の方法

本研究では、有機 EL 素子の駆動中に二種類のオペランド分光法を適用することで、電荷注入によって素子中に流れるポーラロンや励起子を同定した上で、その生成および消滅の反応時定数の直接評価を目指す。その具体的方法の申請時の構想を下記に記す。

ポーラロンの同定は SFG 分光の赤外振動吸収によって行う。一方、励起子の同定は過渡吸収分光法の紫外-可視光領域の吸収変化によって行う。八尋(連携研究者)によって作製・特性評価される封止済みの有機 EL 素子を産総研に送付し、素子駆動中のオペランド SFG 分光測定を宮前(分担者)、オペランド過渡吸収分光測定を細貝(代表者)がそれぞれ行う。オペランド SFG 分光装置は宮前によって既に開発されており、その根幹技術を代表者が所有する過渡吸収分光装置に組み込む。装置構成の概略図を図 3(a)に示す。

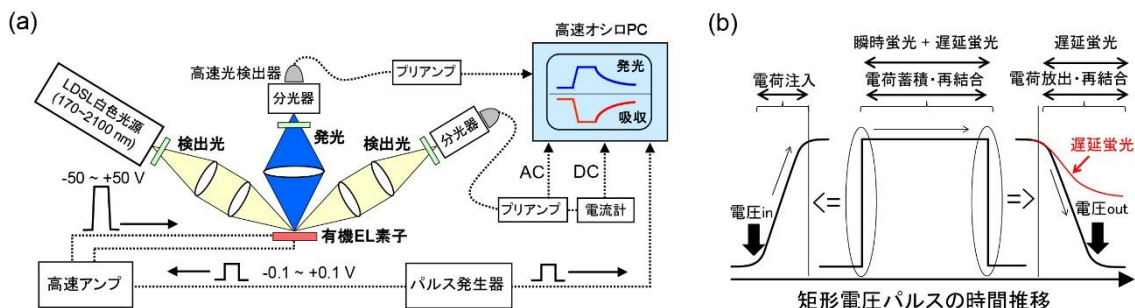


図 3(a)オペランド過渡吸収分光法の装置概略図。 (b)オペランド SFG と過渡吸収分光法で担当する計測時間領域の模式図。

装置は主に、パルス発生器と高速アンプ、検出光となる集光型のレーザ励起(LDSL)定常白色光源と、検出光と発光を波長選別して、その時間プロファイルを測定する分光器と高速光検出器、そして信号モニター用の高速オシロ PC からなる。この実験では、高速オシロ PC でタイミングをモニタリングしながら、立ち上がり幅が 3 ns の矩形の電圧パルスを最大 50 V まで増幅・変調しながら試料に電圧を印加する。電荷キャリアが注入されるこの早い立ち上がり時間(図 3(b))は、ポーラロンの検出に長けているオペランド SFG 分光法で計測する。その後、矩形パルスの定常発光のプラトー領域における電荷蓄積・再結合は、オペランド SFG 分光法により同定し、励起子の生成・発光の動的挙動はオペランド過渡吸収分光法により検出する。また、短形パルスが通り過ぎて、遅延蛍光のみが放出されている時間の電荷放出・励起子消滅も同様に二つの分光法でそれぞれ検出する。なお、経験的に有機 EL(発光材料)の強烈な発光は、微小計測である過渡吸収の信号変化にとって無視できない擾乱となるため、これを極力排除するべく検出光は集光(スポット径 <math>< 1 \text{ mm}</math>)しつつ斜めの入射・反射条件とする(図 3(a))。検出光はプリアンプを通して AC(変調電圧)成分と DC(オフセット電圧)成分に分け、高速オシロ PC 上で演算することで吸収量変化を算出する。また、時間プロファイルを各波長で計測することで、時間分解過渡吸収スペクトルを再構成する。

以上の二種類の時間分解計測を通して、発光層への電荷注入・輸送・蓄積・放出および励起子の生成・消滅の各過程における反応活性種を同定・時定数解析することで、発光機構の描像を速度論的に分子レベルで確立する。この知見を、実際に素子へ注入されたキャリアの数とデバイス発光効率の絶対値と比較することで、合理的な素子特性の理解に基づく、有機 EL 素子駆動中の発光機構の統一的な解明を達成する。

### 4. 研究成果

オペランド過渡吸収分光計測システムは、出力 75W の集光キセノンランプ光源(Unisoku、特注仕様)をプローブ光源、応答速度 10 MHz の高速パイポワー電源(NF 回路ブロック、HSA4101)で中継したデジタル遅延パルス発生器(Stanford Research Systems、DG535)を励起源とした計測システムを構築した。なお、励起光源は申請時に LDSL 定常白色光源をプローブ光として用いることを想定していたが、交付予算が足りなかったために安価な上記ランプ光源で代用した(結果的に、光の定常輝度は二つの光源で同等であることを確認した)。計測プログラムは、従来から所持している LabVIEW をベースとした過渡吸収分光法のものを用いて作成した。高速パイポワー電源を通さずにデジタル遅延パルス発生器の矩形波を 4 GHz オシロスコープによって観測したところ、立ち上がり 3 ns の電圧パルスを確認することができた。電圧印可による過渡発光の同時計測を行うシステムも素子近傍に構築した。市販のシリコンフォトダイオードを用いて検出した光を応答速度 100 MHz の高速高電圧アンプを通して信号増幅し、上記のオペランド過渡吸収分光計測システムと同様のデジタルオシロスコープに信号入力することで、立ち上がりおよび立ち下りの時間が約 400 ps の計測を実現した。目的とする装置の開発は図 3(a)の構成に示す通りに概ね終了し、実際の素子を計測する段階まで到達した。本研究の期間中は共同研究者による素子の作製が予想した通りに進まず、また新型コロナによる研究活動の制限も加わり、

現在も作製中にある。この素子の作製期間を活用して、上記の過渡発光分光装置の高度化や本課題に関連した有機デバイスまたは有機材料の過渡分光計測を実施した。過渡発光分光装置については、オシロスコープによる計測をベースに、リミッターアンプを用いた回路技術を開発することで、オシロスコープによる計測の問題（小さな信号ダイナミックレンジ）を解決し、さらに時間相関単一光子計数法との比較において、過渡発光プロファイルの取得を 900 倍ほど高速化することに成功した(図 4)。この成果をもとに(社)応用物理学会の第 68 回春季学術講演会で発表を行い、Poster Award を受賞した[講演番号：16a-P01-2「時間分解発光スペクトルの高速計測装置の開発」]。

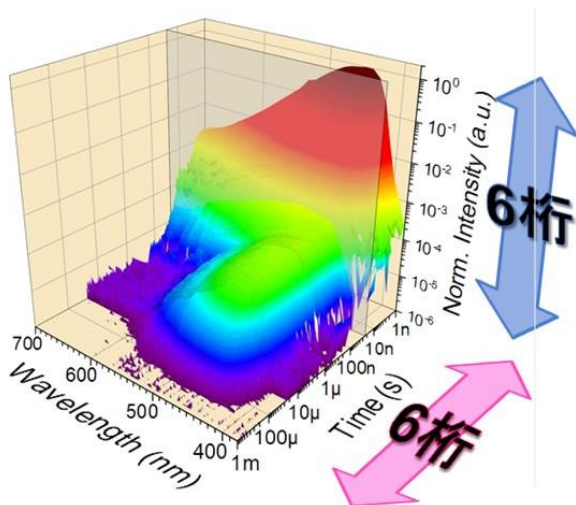


図 4 TADF 材料の 3 次元時間分解発光スペクトル。信号軸および時間軸ともに 6 桁のダイナミックレンジの条件において、計測時間は 14 分程度。

また、本装置の相補的な手法となる時間分解光電子顕微鏡を用いた有機 EL 材料の励起電子ダイナミクスやエキサイプレックスの励起子解離過程、さらに室温燐光材料の励起状態ダイナミクスや大気暴露による薄膜の結晶化の解明を行い、それぞれで論文発表の成果を得た。特に、高効率熱活性型遅延蛍光(TADF)材料の励起状態ダイナミクスの解明においては、液体窒素による溶液試料の低温環境下における過渡吸収スペクトルの計測が可能装置を開発することで、室温と 183 K における 1,2,3,5-Tetrakis(carbazol-9-yl)-4,6-dicyanobenzene, 2,4,5,6-Tetrakis(9H-carbazol-9-yl) isophthalonitrile (4CzIPN) のトルエン溶液の過渡吸収スペクトルを紫外(400 nm)域から近赤外域(1600 nm)の範囲で行い、温度に依存した過渡吸収バンドの変化を見出した(図 5(a))。4CzIPN の振動励起による分子の幾何構造変化と励起準位のエネルギーとの関係を理論計算によって見積もったところ、4CzIPN には最低励起三重項状態(T1)の近傍に高次の T 準位である T2 が存在し、これらのエネルギー差は分子振動による構造変化でほぼゼロとなることを見いだされた。つまり、T1 と T2 は熱平衡状態においてそれぞれに温度係数で決まる状態密度比が存在し、低温状態においては T1 の状態密度が増えるとともに T2 の状態密度が減少することが予想される。過渡吸収スペクトルの温度変化は吸収バンドの帰属からもこの熱平衡状態における状態密度分布の考え方を指示していると考えられる。その他、4CzIPN に類似の分子構造を示す分子群の一連の光学特性のデータを併せることで、4CzIPN の高効率 TADF 発光機構の上記にある T2 を介した逆項間交差の機構を提案することができた(図 5(b))。本件は高 IF 英学術雑誌である Nature Materials に 2019 年に報告した。

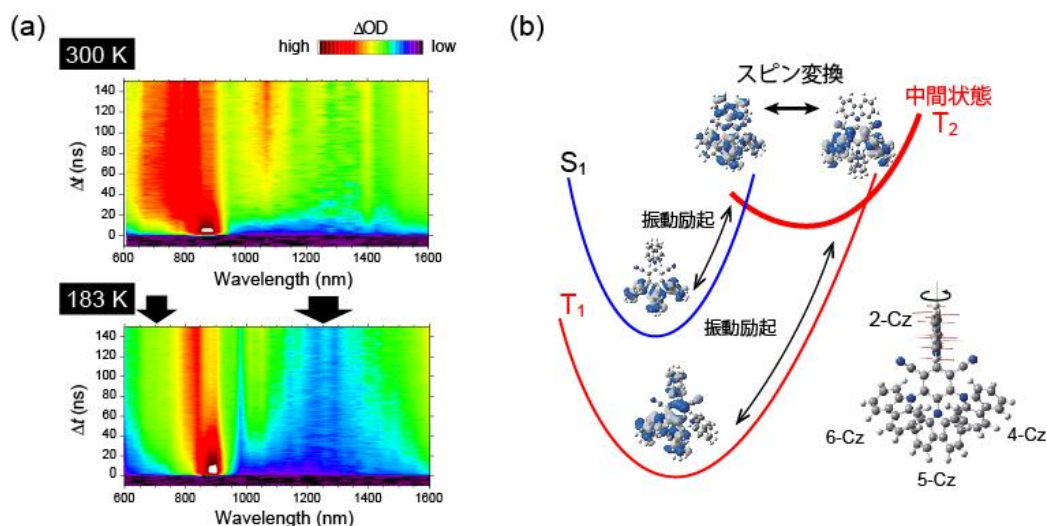


図 5 (a)トルエン溶液中の 4CzIPN の過渡吸収スペクトルの温度依存性：(上図) 300 K、(下図) 183 K。温度依存性を計測したところ、1200 nm 近傍の吸収バンドが低温で減少した。(b)4CzIPN の励起状態のポテンシャルエネルギー曲線と波動関数分布。右下には立体構造変化の計算に用いた振動モードを示す。

電界誘起二重共鳴 SFG 分光を用いた研究では三重項-三重項アニヒレーション(TTA)材料を含む青色発光有機 EL 素子、および P 型有機半導体 DPh-BTBT を用いた電界効果トランジスタについて検討を行った。前者については、TTA プロセスに注目し、電界誘起二重共鳴 SFG 分光での内部の電荷挙動の解析を進めた。後者では SFG による素子内部の局所イメージングを行った。有機 EL 素子について、電圧印加して素子を駆動させた状態で SFG 測定を行ったところ、発光層と電子ブロック層界面に電荷蓄積が起こっていることが確認できた。さらに、時間分解測定から、Al 電極から注入された電子が電子輸送層/発光層界面に到達し、発光層を突き抜けて電子ブロック層に到達する挙動を確認することができた。さらに電子輸送材料を変えたことによる界面電荷蓄積の明確な差を確認することができた。TTA 過程を効率的に誘起するには 3 重項状態の分子が過剰に存在することが必要であるが、今回 SFG で確認された電荷蓄積は TTA 過程が発光層/電子ブロック層界面に起こっていることを示している結果である(図 6)。DPh-BTBT のトランジスタにおいては、トランジスタを駆動すると、SFG 分光ではスペクトル上の絶縁有機単分子膜由来、有機半導体層界面由来の SFG 信号強度がそれぞれ上昇した。この起源を解明するため、局所 SFG イメージングによる解析を行ったところ、素子駆動時に電荷蓄積が金電極直下に偏在している様子が明らかとなった。また、金電極直下の金属/有機半導体界面での電荷挙動はソース、ドレイン電極で異なっている様子を鮮明にとらえることができた(図 7)。

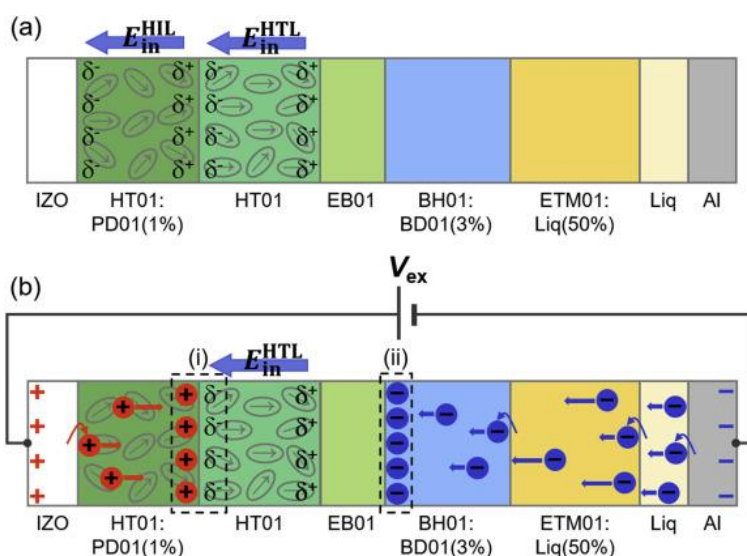


図 6 多層青色 OLED におけるキャリア挙動の模式図。(a) 開回路および (b) 順方向バイアス電圧を加えた動作条件。領域 (i) では、陽極から注入された正孔が蓄積され、HTL の双極子モーメント秩序によって形成された界面分極電荷がキャンセルされる。領域 (ii) では、注入された電子が EBL/EML 界面に蓄積する。

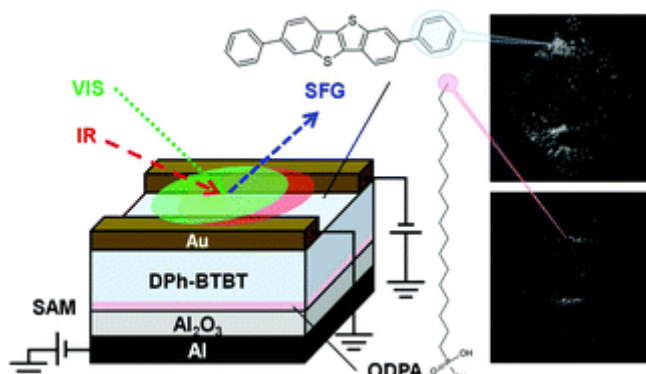


図 7 トップコンタクト-ボトムゲート型の有機電界効果トランジスタの素子構造(左)、および素子駆動時の電場の状況の可視化(右)。ゲート電極に電圧を印加すると、ソース、ドレイン電極近傍の絶縁膜/有機半導体界面の SFG 信号が増強する。この信号増強は、上部電極から電荷注入された際に、下部の絶縁体界面で局所的な電場の歪みが生じていることによると考えられる。またソース、ドレイン電極と有機半導体界面からの SFG 信号が OFET 駆動時に変化するが、両電極での電場形成の違いを反映していることが示唆された。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計18件（うち査読付論文 16件 / うち国際共著 5件 / うちオープンアクセス 4件）

1. 著者名 細貝拓也	4. 巻 32
2. 論文標題 熱活性化遅延蛍光材料のスピン反転メカニズム	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 応用物理学会 有機分子・バイオエレクトロニクス(M&BE)分科会誌	6. 最初と最後の頁 61-64
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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 Hosokai Takuya, Nakanishi Taiyo, Honda Akinori, Akaike Kouki, Tsuruta Ryohei, Itoh Hiroshi, Nakanotani Hajime, Nakayama Yasuo	4. 巻 124
2. 論文標題 H <sub>2</sub> O-Induced Crystallization of Organic Luminescent Thin Films by Direct Film Storage in a High Vacuum	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 24919 ~ 24929
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.0c08968	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 Katakami Chiaki, Kamo Shogo, Torii Ayame, Hara Nobuyuki, Imai Yoshitane, Taniguchi Tohru, Monde Kenji, Okabayashi Yusuke, Hosokai Takuya, Kuramochi Kouji, Tsubaki Kazunori	4. 巻 83
2. 論文標題 Synthesis and Photochemical Properties of Axially Chiral Bis(dinaphthofuran)	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 The Journal of Organic Chemistry	6. 最初と最後の頁 14610 ~ 14616
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.joc.8b02424	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 Hosokai T., Nakanotani H., Santou S., Noda H., Nakayama Y., Adachi C.	4. 巻 252
2. 論文標題 TADF activation by solvent freezing: The role of nonradiative triplet decay and spin-orbit coupling in carbazole benzonitrile derivatives	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Synthetic Metals	6. 最初と最後の頁 62 ~ 68
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.synthmet.2019.04.005	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 Yamada Shigeyuki, Nishizawa Akito, Morita Masato, Hosokai Takuya, Okabayashi Yusuke, Agou Tomohiro, Hosoya Takaaki, Kubota Toshio, Konno Tsutomu	4. 巻 17
2. 論文標題 Synthesis and characterization of bent fluorine-containing donor-acceptor molecules as intense luminophores with large Stokes shifts	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Organic & Biomolecular Chemistry	6. 最初と最後の頁 6911 ~ 6919
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C9OB01300H	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 Noda Hiroki, Chen Xian-Kai, Nakanotani Hajime, Hosokai Takuya, Miyajima Momoka, Notsuka Naoto, Kashima Yuuki, Br?das Jean-Luc, Adachi Chihaya	4. 巻 18
2. 論文標題 Critical role of intermediate electronic states for spin-flip processes in charge-transfer-type organic molecules with multiple donors and acceptors	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nature Materials	6. 最初と最後の頁 1084 ~ 1090
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41563-019-0465-6	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 Yamada Shigeyuki, Higashida Takuya, Wang Yizhou, Morita Masato, Hosokai Takuya, Maduwantha Kaveendra, Koswattage Kaveenga Rasika, Konno Tsutomu	4. 巻 16
2. 論文標題 Development of fluorinated benzils and bisbenzils as room-temperature phosphorescent molecules	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Beilstein Journal of Organic Chemistry	6. 最初と最後の頁 1154 ~ 1162
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3762/bjoc.16.102	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 該当する

1. 著者名 Ueda Yuuhi, Nakanotani Hajime, Hosokai Takuya, Tanaka Yuya, Hamada Hokuto, Ishii Hisao, Santo Shuhei, Adachi Chihaya	4. 巻 8
2. 論文標題 Role of Spontaneous Orientational Polarization in Organic Donor-Acceptor Blends for Exciton Binding	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Advanced Optical Materials	6. 最初と最後の頁 2000896 ~ 2000896
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/adom.202000896	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 Maduwantha Kaveendra, Yamada Shigeyuki, Koswattage Kaveenga Rasika, Konno Tsutomu, Hosokai Takuya	4. 巻 13
2. 論文標題 Excited-State Dynamics of Room-Temperature Phosphorescent Organic Materials Based on Monobenzil and Bisbenzil Frameworks	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Materials	6. 最初と最後の頁 3904 ~ 3904
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/ma13173904	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 該当する

1. 著者名 Yamada Shigeyuki, Higashida Takuya, Wang Yizhou, Morita Masato, Hosokai Takuya, Maduwantha Kaveendra, Koswattage Kaveenga Rasika, Konno Tsutomu	4. 巻 16
2. 論文標題 Development of fluorinated benzils and bisbenzils as room-temperature phosphorescent molecules	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Beilstein Journal of Organic Chemistry	6. 最初と最後の頁 1154 ~ 1162
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3762/bjoc.16.102	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 Iwasawa Masato, Tsuruta Ryohei, Nakayama Yasuo, Sasaki Masahiro, Hosokai Takuya, Lee Sunghee, Fukumoto Keiki, Yamada Yoichi	4. 巻 124
2. 論文標題 Exciton Dissociation and Electron Transfer at a Well-Defined Organic Interface of an Epitaxial C60 Layer on a Pentacene Single Crystal	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 13572 ~ 13579
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.0c02796	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 Ueda Yuuhi, Nakanotani Hajime, Hosokai Takuya, Tanaka Yuya, Hamada Hokuto, Ishii Hisao, Santo Shuhei, Adachi Chihaya	4. 巻 8
2. 論文標題 Role of Spontaneous Orientational Polarization in Organic Donor?Acceptor Blends for Exciton Binding	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Advanced Optical Materials	6. 最初と最後の頁 2000896 ~ 2000896
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/adom.202000896	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 Maduwantha Kaveendra, Yamada Shigeyuki, Koswattage Kaveenga Rasika, Konno Tsutomu, Hosokai Takuya	4. 巻 13
2. 論文標題 Excited-State Dynamics of Room-Temperature Phosphorescent Organic Materials Based on Monobenzil and Bisbenzil Frameworks	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Materials	6. 最初と最後の頁 3904 ~ 3904
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/ma13173904	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 該当する

1. 著者名 Hosokai Takuya, Nakanishi Taiyo, Honda Akinori, Akaike Kouki, Tsuruta Ryohei, Itoh Hiroshi, Nakanotani Hajime, Nakayama Yasuo	4. 巻 124
2. 論文標題 H2O-Induced Crystallization of Organic Luminescent Thin Films by Direct Film Storage in a High Vacuum	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 24919 ~ 24929
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.0c08968	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 Katagiri Chiho, Akaike Kouki, Miyamae Takayuki	4. 巻 86
2. 論文標題 Relationship between the surface structure of the gate insulator and the performance of organic thin-film transistors	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Organic Electronics	6. 最初と最後の頁 105928 ~ 105928
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.orgel.2020.105928	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 Katagiri Chiho, Miyamae Takayuki, Li Hao, Yang Fangyuan, Baldelli Steven	4. 巻 23
2. 論文標題 Direct imaging of electric field behavior in 2,7-diphenyl[1]benzothieno[3,2-b][1]benzothiophene organic field-effect transistors by sum-frequency generation imaging microscopy	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 4944 ~ 4950
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D0CP06407F	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 細貝拓也	4. 巻 32
2. 論文標題 熱活性化遅延蛍光材料のスピン反転メカニズム	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 応用物理学会 有機分子・バイオエレクトロニクス(M&BE)分科会誌	6. 最初と最後の頁 61~64
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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 T. Sato, T. Miyamae, H. Ohata, T. Tsutsui	4. 巻 74
2. 論文標題 Direct observations of the charge behavior of a high-efficiency blue organic light-emitting diode under operating conditions using electric-field-induced doubly resonant sum-frequency-generation vibrational spectroscopy	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Organic Electronics,	6. 最初と最後の頁 118-125
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.orgel.2019.07.008	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33件(うち招待講演 7件/うち国際学会 5件)

1. 発表者名 野田大貴、中野谷一、細貝 拓也、宮島桃香、飯塚直人、安達千波矢
2. 発表標題 項間交差過程における中間遷移状態の解明
3. 学会等名 有機EL 討論会第26回例会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 山頭 周平、縄田尚則、野田大貴、中山泰生、中野谷一、安達千波矢、細貝拓也
2. 発表標題 TADF材料の発光特性にあたる溶媒・温度の影響
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 山頭周平、中野谷一、野田大貴、中山泰生、安達千波矢、細貝拓也
2. 発表標題 室温でTADF不活性な有機分子の光学特性における温度変調効果
3. 学会等名 第27回有機EL討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 中西大耀、本田暁紀、井藤浩志、中山泰生、細貝 拓也
2. 発表標題 有機分子薄膜の真空その場発光計測
3. 学会等名 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 中西 大耀、鶴田諒平、本田 暁紀、井藤 浩志、中山泰生、細貝 拓也
2. 発表標題 水によって結晶化するIr(ppy) <sub>3</sub> 薄膜の結晶化条件の探索
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 中西大耀、本田暁紀、赤池幸紀、鶴田諒平、岩澤柁人、山田洋一、井藤浩志、中野谷一、中山泰生、細貝 拓也
2. 発表標題 真空その場発光測定によるIr(ppy) <sub>3</sub> 薄膜の結晶化観察
3. 学会等名 有機EL討論会(2020年)第31回例会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 古郡美紀、永宗靖、中山泰生、細貝 拓也
2. 発表標題 時間分解発光スペクトルの高速計測装置の開発
3. 学会等名 第68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 中西大耀、岩澤 征人、山田洋一、中山泰生、細貝拓也
2. 発表標題 Ir(ppy)3薄膜の発光寿命におよぼすガス曝露の影響
3. 学会等名 第68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 深見優介、岩澤 征人、細貝 拓也、中野谷一、福本恵紀、山田洋一
2. 発表標題 時間分解光電子顕微鏡を用いた4CzIPN単一膜のTADF過程における光励起電子ダイナミクスの直接計測
3. 学会等名 第68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 上田雄飛、中野谷一、細貝 拓也、田中有弥、石井久夫、瀧田北斗、山頭周平、安達千波矢
2. 発表標題 有機Donor:Acceptor混合薄膜中における自発的励起子解離現象
3. 学会等名 第68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 細貝拓也、永宗靖
2. 発表標題 アナログ計測技術を用いた超高感度広帯域過渡発光計測装置の開発
3. 学会等名 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 S. Santou, Y. Nakayama, T. Hosokai
2. 発表標題 A study of influencing factors of TADF emission in organic molecule
3. 学会等名 7th International Conference of Sabaragamuwa University of Sri Lanka (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 細貝拓也
2. 発表標題 高効率TADF分子の分光学的アプローチによる逆系間交差過程の研究
3. 学会等名 2018年光化学討論会 (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 細貝拓也
2. 発表標題 Spin-flip mechanism of highly efficient thermally activated delayed fluorescence molecules
3. 学会等名 ナノ構造・物性 - ナノ機能・応用部会合同シンポジウム (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 細貝拓也
2. 発表標題 次世代有機発光材料の光化学：三重項スピン活用のパラダイムシフト
3. 学会等名 2019年日本表面真空学会学術講演会（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 細貝拓也
2. 発表標題 熱活性化遅延蛍光材料のスピン反転メカニズム
3. 学会等名 M&BE研究会「ここまで進んだ有機分子・バイオエレクトロニクス研究」
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 T. Hosokai
2. 発表標題 Investigation of TADF molecules towards a high speed thermal spin up-conversion
3. 学会等名 International Workshop " Photofunctional Materials Using Spin Degrees of Freedom: Interplay among synthesis, measurement, and theory." (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Hosokai
2. 発表標題 Emission Mechanism of Next Generation Organic Light-Emitting Materials
3. 学会等名 7th International Conference of Sabaragamuwa University of Sri Lanka (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 宮前 孝行
2. 発表標題 和周波分光による有機界面のオペランド計測
3. 学会等名 レーザー学会第41回年次大会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 片桐 千帆, 宮前 孝行, Hao Li, Fangyang Yang, Steven Baldelli
2. 発表標題 和周波分光イメージングによるDPh-BTBT薄膜トランジスタの電界挙動
3. 学会等名 2020年応用物理学会秋季講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 片桐 千帆, 赤池 幸紀, 宮前 孝行
2. 発表標題 有機薄膜トランジスタにおけるSAM絶縁膜の表面構造が素子特性に与える影響
3. 学会等名 第69回高分子討論会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 上田雄飛、中野谷一、九州先端科学技術研究所、細貝拓也、田中有弥、石井久夫、瀧田北斗、山頭周平、安達千波矢
2. 発表標題 有機Donor:Acceptor混合薄膜中における自発的励起子解離現象
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 深見優介、岩澤 征人、細貝 拓也、中野谷一、福本恵紀、山田洋一
2. 発表標題 時間分解光電子顕微鏡を用いた4CzIPN単一膜のTADF過程における光励起電子ダイナミクスの直接計測
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 中西大耀、岩澤 征人、山田洋一、中山泰生、細貝拓也
2. 発表標題 Ir(ppy)3薄膜の発光寿命におよぼすガス曝露の影響
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 古郡美紀、永宗靖、中山泰生、細貝拓也
2. 発表標題 時間分解発光スペクトルの高速計測装置の開発
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 中西大耀、鶴田諒平、本田暁紀、井藤浩志、中山泰生、細貝拓也
2. 発表標題 水によって結晶化するIr(ppy)3薄膜の結晶化条件の探索
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年



1. 発表者名 中西大耀、本田暁紀、赤池幸紀、鶴田諒平、岩澤柁人、山田洋一、井藤浩志、中野谷一、中山泰生、細貝拓也
2. 発表標題 真空その場発光測定によるIr(ppy) <sub>3</sub> 薄膜の結晶化観察
3. 学会等名 有機EL討論会(2020年)第31回例会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 細貝拓也
2. 発表標題 熱活性化遅延蛍光材料のスピンの反転メカニズム
3. 学会等名 M&BE研究会「ここまで進んだ有機分子・バイオエレクトロニクス研究」
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Takayuki MIYAMAE
2. 発表標題 Direct Probing Carrier Behavior in Highly-Efficient OLEDs by Electric-Field-Induced Doubly-Resonant SFG Spectroscopy
3. 学会等名 8th Sum Frequency Generation symposium (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 T. Miyamae, T. Sato, H. Ohata, T. Tsutsui
2. 発表標題 Probing Carrier Behavior in Highly-Efficient Fluorescent Blue OLEDs by Electric-Field-Induced Sum-Frequency Generation
3. 学会等名 12th International Conference of Electroluminescence and Optoelectronic Devices (ICEL2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 佐藤友哉、宮前孝行、大畑浩、筒井哲夫
2. 発表標題 電界誘起SFG分光による高効率青色発光有機EL素子の解析(1) 電荷挙動解析と素子駆動機構
3. 学会等名 有機EL討論会第27回例会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 宮前孝行、大畑浩、筒井哲夫
2. 発表標題 駆動中有機EL内部のキャリア挙動解析：高効率青色発光素子に対する電界誘起2重共鳴SFG分光の適用
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 佐藤友哉、大畑浩、筒井哲夫
2. 発表標題 オペランド時間分解電界誘起2重共鳴SFGによる青色発光有機EL素子駆動時の電荷挙動
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
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	宮前 孝行  (Miyamae Takayuki)  (80358134)	千葉大学・大学院工学研究院・教授    (12501)	

6. 研究組織（つづき）

	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
研究協力者	八尋 正幸  (Yahiro Masayuki)  (40432877)		

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			
スリランカ	Sabaragamuwa University of Sri Lanka			