### 科学研究費助成事業

研究成果報告書

E

今和 6 年 4月 6 日現在 機関番号: 17102 研究種目: 基盤研究(B)(一般) 研究期間: 2021~2023 課題番号: 21H02015 研究課題名(和文)電子スピン選択的な励起子解離による革新的有機光電変換素子の創製 研究課題名(英文)Electron Spin-Selective spontaneous exciton dissociation in organic semiconductor solid-state films 研究代表者 中野谷 — (Nakanotani, Hajime) 九州大学・工学研究院・准教授 研究者番号:90633412

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 13,600,000円

研究成果の概要(和文):本研究では、極性有機半導体膜中における自発的な励起子解離現象に焦点をあて励起 子解離現象における励起スピン状態の役割に関して研究を行い、三重項励起状態からの励起子解離が有利に進行 することを明らかとした。また、電荷再結合確率を極力小さくすることで、電子寿命は室温で約1カ月以上とい う極めて長い寿命を有することを見出すと共に、空間情報も保持可能であることを明らかとした。本研究で得た 学術的知見は、高効率かつ超長寿命な電荷分離状態を実現する新たなCT性分子および素子の設計指針を示すだけ でなく、受光-電荷保持-発光という物理現象の制御された新奇デバイスの創出に繋がると期待できる。

研究成果の学術的意義や社会的意義 本研究では、励起子解離により生成した電荷(電子)は、有機薄膜中で1ヶ月間以上に渡って極めて安定に保持 されているという事実を初めて見出した。またさらに、長時間保持されている電荷は、有機薄膜中で空間的にも 保持されていることを実験的に確認した。これらの事実は、従来不安定であると考えられていた有機薄膜中の電 荷(ラジカル状態)は、有機分子の極性によって誘起される自発配向分極の形成により、その有機薄膜界面で安 定に保持可能であるということを意味し、光電変換素子の高性能化だけでなく撮像素子やメモリ素子など、将来 の10T社会構築に必須となる様々なデバイスに応用できる可能性があり、得られた学術的意義は大きい。

研究成果の概要(英文): In this study, we focus on spontaneous exciton dissociation in polar organic semiconductor solid-state thin films and investigate the role of excited spin states in exciton dissociation events. We found that the exciton dissociation from the triplet excited state proceeds more favorably than that from the singlet excited state. Furthermore, minimizing the recombination probability between holes and electrons as much as possible found that the electron lifetime has an extremely long lifetime of over one month, even at room temperature, and that spatial information can also be retained. These experimental results revealed by this research not only provide design guidelines for opt-electric organic devices that realize highly efficient and ultra-long-lived charge-separated states but also lead to the creation of novel devices that control the physical phenomena of light absorb, charge accumulation, and light emission, thereby opening up further possibilities for organic electronics.

研究分野: 有機光エレクトロニクス

キーワード: 自発配向分極 有機半導体 分子配向 巨大表面電位 励起子解離

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

有機光電変換素子(Organic solar cell: OSC)の変換効率は近年著しく向上している。特に、低 照度環境下における OSC の変換効率は 26%にも達し、シリコン系またはペロブスカイト系光電 変換素子の効率に匹敵する。一方、照度の増加とともに OSC の変換効率は著しく低下してしま う。これは、OSC 内部で生成する電荷密度の増加にともない逆電子移動(電荷再結合)確率が増 える結果、有機光電変換素子内部でのエネルギー損失(電荷損失)が大きくなるためと理解され、 OSC の抱える最も重大な問題となっている。

一般的な有機分子では、最高被占軌道(HOMO)と最低空軌道(LUMO)間の大きな交換積分 エネルギーの存在により、励起三重項準位(<sup>3</sup>LE)は励起一重項準位(<sup>1</sup>LE)よりも約1eV程度 小さく、電子ドナー(D)と電子アクセプター(A)分子間での電荷移動型(Charge-transfer: CT) 励起状態を利用する OSC の場合、各分子の<sup>3</sup>LE は、D/A 界面で形成される CT 励起子の励起三 重項エネルギー(<sup>3</sup>CT)よりも小さくなる。その結果、逆電子移動(電荷再結合)過程が発生す ると、スピン統計則により<sup>3</sup>CT が直接電気的に生成し、D または A 分子の<sup>3</sup>LE へと遷移してし まう。同じ電場強度では、<sup>3</sup>LE からの励起子解離効率は<sup>3</sup>CT からの励起子解離と比較して著しく 小さい。そのため、再び電荷分離に寄与することはできないと予想される。すなわち、従来の常 識に基づけば「逆電子移動による励起三重項状態の生成は極力回避すべきイベント」という結論 に至る。電荷再結合を抑制するため、D:A ブレンド膜中の層分離構造形成や、薄膜結晶性向上に よる高速電荷輸送などの手法により、その解決がこれまでに模索されてきた。しかし、いずれの 手法を用いても電荷再結合を完全に排除できず、本質的な解決には至っていない。

#### 2. 研究の目的

<sup>3</sup>CT 準位よりも大きな<sup>3</sup>LE 準位を有する分子系の探索が、有機 EL に関する研究分野で近年精 力的に行われ、極めて小さな励起スピン状態間のエネルギー差( $\Delta E_{ST}$ )が実現できることが明ら かとなっている。このような分子系では、<sup>3</sup>CT が CT 励起一重項状態(<sup>1</sup>CT) へと逆項間交差 (<sup>3</sup>CT→<sup>1</sup>CT) できる。そのため、<sup>3</sup>CT をほぼ 100%の効率で一重項励起状態からの遅延蛍光とし て取り出すことができる。このような蛍光は、熱活性化遅延蛍光(TADF)と呼称される。有機 分子系で形成される CT 励起子は、有機光半導体デバイスの動作原理の根幹をなす中間励起状態 であると近年強く認識されつつあり、CT 励起子の解離過程おける励起スピン状態の役割を理解 することは極めて重要である。しかし、多種多様な  $\pi$  共役系有機機能性材料の合成・評価が日進 月歩で行われる一方で、CT 励起子の解離過程における <sup>3</sup>CT 励起状態の本質的な役割を解明した 研究はこれまでに皆無である。これは、従来 OSC 用に用いられてきた分子系における <sup>3</sup>LE が <sup>3</sup>CT よりも小さいためと推測される。本研究の目的は、CT 励起子の解離過程における <sup>3</sup>CT 励起状態 の本質的な役割を解明することで、"逆電子移動損失ゼロ"という革新的な OSC 動作原理を実現 することである。



図 1: OSC における逆電子移動過程と本研究で実現する再結合損失ゼロな OSC の概要

### 3.研究の方法

ある種の有機半導体薄膜が巨大な表面電位を示すことが明らかとなっている。これは有機分子 の自発配向分極による現象であり、アルミニウム錯体薄膜における巨大表面電位発現の発見(E. Ito et al., J. Appl. Phys., 2002)以降、主に有機 EL 分野において基礎的な研究がなされている。し かし、主にその研究対象は自発配向分極が電荷注入特性などの電気特性に及ぼす影響について の興味が中心的課題であった。これまでに我々の研究グループでは、有機薄膜自身が形成する自 発配向分極(spontaneous orientation polarization: SOP)により、光励起により生成した励起子が自 発的に解離すること、さらに解離して生成した電荷が再び膜中で逆電子移動を起こし、長時間に 渡ってエレクトロルミネッセンス(EL)を示すという事実を見出している。これはすなわち、逆 電子移動過程を EL としてプローブできる事実を意味する。そこで本研究では、有機極性薄膜中 における励起子解離現象と EL 発光現象を精密かつ詳細に解析することで、CT 励起子の解離過 程における <sup>3</sup>CT 励起状態の本質的な役割を解明することを目指した。

#### 4. 研究成果

#### 1) 励起子の励起電子スピン選択的な解離

本実験では代表的な TADF 分子である 4CzIPN ( $\Delta E_{ST} = 0.01 \text{ eV}$ ) と 4CzTPN ( $\Delta E_{ST} = 0.06 \text{ eV}$ ) を 発光分子として用いた。4CzIPN と 4CzTPN は互いに構造異性体の関係であるが、4CzIPN は $\mu$ D=3.8 の永久双極子モーメントを有する極性分子であり、4CzTPN はその分子構造の対称性により非極 性である。ホスト材料としては、4CzIPN (T<sub>1</sub>=2.48 eV)および 4CzTPN (T<sub>1</sub>=2.28 eV)よりも高い T<sub>1</sub> を有する CBP (T<sub>1</sub>=2.55 eV)を三重項活性ホストとして用いた。また、励起三重項状態の励起子解 離過程に対する影響を検討するため、4CzIPN および 4CzTPN のよりも低い T<sub>1</sub>を有するアントラ セン誘導体 (AND) を、三重項不活性ホストして用いた。これらの材料を含む共蒸着固体膜、及 び ITO/T2T/EML/CBP/AI からなる非電荷注入型デバイスの TRPL 特性を評価することにより、励 起子解離現象の電界依存性を測定した。

図 2a に 4CzIPN および 4CzTPN を CBP ホ スト中に 50 wt%ドープした共蒸着膜での過 渡 PL (TRPL) 特性を示す。CBP:4CzIPN ドー プ膜においては、光照射 off 後から 2 ms まで の時間域において長寿命発光成分が観察さ れた。一方で、CBP:4CzTPN ドープ膜におい て長寿命発光成分は観察されなかった。図2b に各発光層の DCM 特性を示す。CBP:4CzIPN ドープ膜においては-2 V 付近より電荷の注 入が起こり、σ<sub>int</sub>=-1.79 mC m<sup>-2</sup>の電荷蓄積が 観測された。一方で CBP:4CzTPN ドープ膜で は、0V以下での電荷注入および蓄積は観測さ れなかった。これらの結果より、CBP:4CzIPN ドープ膜中において観測される長時間発光 現象は、膜中に生成した SOP によって促進さ れた自発的励起子解離現象に基づくもので あると結論できる。

この励起子解離現象は、OPV 等において観 測されるものと同様に、外部電圧の印加によっ



図 2: 4CzIPN, 4CzTPN:CBP 共蒸着薄膜の(a) TrPL 特性、(b)変位電流特性、(c)TrPL の外部電場印加 特性

ても誘起される。図 2c に、非電荷注入型デバイスに対して光励起中に 200 μs の負バイアスを印 加した結果を示す。CBP:4CzIPN および CBP:4CzTPN 共蒸着薄膜において、定常状態での PL 強 度減衰が観測された。これは外部電圧印加によって、励起子が解離していることを示している。



図 3: 4CzIPN:CBP 共蒸着薄膜および 4CzIPN 単層薄膜における TrPL の外部電場印加特性

さらに光励起 off 後の TRPL 曲線は、CBP:4CzTPN 共蒸着薄膜においても長寿命発光成分が観察 された。これは、外部電圧によって生成した電荷においても同様に、再結合発光として長寿命発 光が生じていることを示している。いずれの材料においても、生成した電荷は少なくともミリ秒 オーダーの寿命で存在していることから、三重項活性なホスト中では、電荷が安定に保持される ことを裏付けている。ここで励起子解離過程におけるスピン状態の影響について議論するため、 CBP:4CzIPN 50wt%ドープ膜と 4CzIPN neat 膜における蛍光寿命の電界依存性を比較することに より、励起子解離過程に対する電子スピン状態の影響について検討を実施した。図 3a に、 CBP:4CzIPN 50wt%膜の非電荷注入デバイスを用いて測定した TRPL 結果を示す。-10 V の電圧 印加によって遅延蛍光成分のみが減衰し、瞬時蛍光成分は全く変化しなかった。一方、4CzIPN neat 膜においては、図 3b に示す通り、瞬時蛍光および遅延蛍光成分は電圧印加により変化しな かった。これらの結果は、励起状態形成後の電荷分離過程は、励起スピン三重項状態を介して選 択的に起こることを示している。また、非常に速い発光遷移と競合する励起スピン一重項状態か らの励起子解離効率は著しく低いことを同時に意味している。CBP:4CzIPN 50wt%膜における <sup>3</sup>CT<sub>1</sub>の寿命(τ<sub>d</sub>=2.3 μs)は、<sup>1</sup>CT<sub>1</sub>の寿命(τ<sub>p</sub>=30 ns)よりも2桁ほど長く、さらに4CzIPN 分子の △Est が非常に小さいために、励起スピン三重項状態からの励起子解離が優先的に生じていると 考察できる。4CzIPN neat 膜において励起子解離効率が減少した原因としては、共蒸着薄膜中に おける励起子解離過程と励起スピン三重項状態からの非発光遷移過程の競合によるものと考え られる。特に 4CzIPN のドープ濃度を 50 wt%から 100 wt% (neat)へ高めると、分子間距離の減少 によって DET の速度定数(kper)は少なくとも 2.2 倍に増大するため、DET 過程による励起子消滅 過程の寄与が大幅に大きくなると考えられる。以上の結果より、TADF 分子のように AEsr の小 さな分子系では三重項励起子からの励起子解離が優先的に生じていると結論でき、電荷再結合 後も再び電荷生成に寄与できる本分子系を光電変換素子の活性材料として利用することで、エ ネルギー損失のない理想的な系が構築できると期待される。

#### 2) 励起子解離によって生成された電荷の長時間保持

上記した研究を通し、励起子解離を経て生成された電荷は、有機極性薄膜中で安定に存在していると予想される。そこで電荷の保持時間について検討を行うため、ITO/HAT-CN/TAPC/mCBP:TPA-DCPP 50 wt%/T2T/Al からなるデバイス(図4a)を作製し、電荷保持特性評価を行った。発光体として用いた TPA-DCPP は、非常に大きなダイポールモーメントを有し、光照射によって自発的な励起子解離が観測される TADF 分子である。本素子では、順バイアス印加時には EL 発光が生じず、内部に電子が蓄積した場合のみホール注入によってパルス EL が観察される。そのため、光照射から任意の待機時間後に順バイアス印加を行うことにより、内部に存在する電子の寿命を評価することが可能となる。本測定においては、-2V のオフセット電圧印加下で光照射した後、電圧印加を off (開放状態)にした状態で一定時間待機し、その後 10 V のTurn-on 電圧をパルス幅 10 μs 条件で印加した際の EL 強度を観察した (図4b)。

図 4c に光照射から任意の待機時間経過後における EL パルス応答を示す。光照射を行ってい

ない条件ではパルス発光が観測されなかっ た一方で、40 mW cm<sup>-2</sup>の光照射を 50 µs 行 った後は明確に EL パルスが観測された。 これは光照射によって生成・蓄積していた 電荷が再結合発光として可視化されている ことを示している。本パルス発光の強度変 化は、図 4d inset に示す通り~10000 秒(約 2.7 時間) 経過後まではほぼ一定であり、239 時間 (約 10 日)という非常に長い時間経過 後も、初期強度に対して 80%の強度を保持 していることが明らかとなった。この減衰 を f(t)=Ae<sup>-t/t</sup>の指数関数でフィッティングす ると、電荷寿命 τは 903 時間と見積もられ、 これは電荷が室温状態において1カ月以上 安定に保持されるということを示してい る。光照射後の待機時間において-2 Vのオ フセット電圧を印加し続けた場合も、同様 の保持特性が得られていることから、TPA-DCPP を含む薄膜の SOP が電荷の安定保持 に貢献していると考えられる。



図4:(a) 素子構造、(b) 電荷保持特性の評価方法、(c) 任意時間経過後の電界印加による EL 発光特性、(d) 電荷保持の時間依存性

発光層内に蓄積された電子に関して、時間的な保持特性のみならず、空間的な保持特性に関しても評価を行った。Line & space (L&S)の形状のパターンで励起光をデバイスに投影し、1秒後に 電圧印加したパターンをカメラで撮像したところ、励起光が照射された領域のみパルス発光が 観察された(図 5a)。これはデバイスの発光エリアにおいて、ピクセル化等行っていないにもかか

わらず、パターン形状が保持されることを 示している。また光照射後の待機時間を 1000 秒まで増大した際の L&S 分解能を図 5b に示しているが、1000 秒経過後に若干の 分解能低下がみられるものの、空間情報が 長時間にわたり保持され続けるという結果 が得られた。さらに、任意の強度分布を持つ グレースケール画像を用いて同様の実験を 行ったところ、十分な分解能で画像を得る ことに成功した(図5c)。以上より、励起子 解離によって有機極性薄膜中に生成した電 荷が、室温下においても1カ月という非常 に長期間に亘って安定的に保持されるこ と、時間的な保持のみならず空間情報を保 持可能という事実を見出した。



図 5: (a) L&S パターンを投射した場合の EL 発光パタ ーン、(b) EL 発光パターンの保持時間特性、(c) 任意 パターン投射時の EL 発光特性

### 3) 今後の展望

本研究では、極性有機半導体膜中における自発的な励起子解離現象に焦点をあて、励起子解離 現象における励起スピン状態の役割に関して研究を行った。そして三重項励起状態からの励起 子解離が有利に進行することを明らかとした。またさらに、正孔と電子の再結合確率を極力小さ くすることで、電子寿命は室温で約1カ月以上という極めて長い寿命を有することを見出すと 共に、空間情報も保持可能であることを明らかとした。本研究によって明らかとなった学術的知 見は、高効率かつ超長寿命な電荷分離状態を実現する新たな CT 性分子および素子の設計指針を 示すだけでなく、受光-電荷保持-発光という物理現象の制御された新奇デバイスの創出に繋がり、 有機エレクトロニクスの更なる可能性を切り開くと期待できる。

### 5.主な発表論文等

# 〔雑誌論文〕 計12件(うち査読付論文 12件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 1件)

1.著者名 Nguyen Thanh Ba、Nakanotani Hajime、Adachi Chihaya	4 . 巻 10
2.論文標題	5 . 発行年
An Overlooked Charge Transfer Interaction in the Interfacial Triplet?Triplet Upconversion	2022年
Process in Blue Organic Light Emitting Diodes	
3. 雑誌名	6.最初と最後の頁
Advanced Optical Materials	2200704 ~ 2200704
掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子)	査読の有無
10.1002/adom.202200704	有
「オープンアクセス	国際共著
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	-

Kohata Shintaro、Nakanotani Hajime、Adachi Chihaya       51         2.論文標題       5.発行年         Modulation of Intersystem Crossing Rate Induced by Singlet-triplet Energy Level Alignment in 1,2,3,5-Tetrakis(carbazol-9-yl)-4,6-dicyanobenzene Single Crystals       5.発行年	1.著者名	4.巻
2.論文標題 Modulation of Intersystem Crossing Rate Induced by Singlet-triplet Energy Level Alignment in 1,2,3,5-Tetrakis(carbazol-9-yl)-4,6-dicyanobenzene Single Crystals	Kohata Shintaro, Nakanotani Hajime, Adachi Chihaya	51
2.論文標題 Modulation of Intersystem Crossing Rate Induced by Singlet-triplet Energy Level Alignment in 1,2,3,5-Tetrakis(carbazol-9-yl)-4,6-dicyanobenzene Single Crystals		
Modulation of Intersystem Crossing Rate Induced by Singlet-triplet Energy Level Alignment in 2022年 1,2,3,5-Tetrakis(carbazol-9-yl)-4,6-dicyanobenzene Single Crystals	2. 論文標題	5 . 発行年
1,2,3,5-Tetrakis(carbazol-9-yl)-4,6-dicyanobenzene Single Crystals	Modulation of Intersystem Crossing Rate Induced by Singlet-triplet Energy Level Alignment in	2022年
	1,2,3,5-Tetrakis(carbazol-9-yl)-4,6-dicyanobenzene Single Crystals	
3.雑誌名 6.最初と最後の頁	3.雑誌名	6.最初と最後の頁
Chemistry Letters 989~992	Chemistry Letters	989 ~ 992
掲載論文のD01(デジタルオブジェクト識別子) 査読の有無	掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.1246/cl.220304 有	10.1246/cl.220304	有
オープンアクセス 国際共著	オープンアクセス	国際共著
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	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	-

1.著者名	4.巻
Yamanaka Takahiko, Nakanotani Hajime, Nakamoto Katsuhiro, Adachi Chihaya	35
2.論文標題	5.発行年
Electron Lifetime of Over One Month in Disordered Organic Solid State Films	2023年
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
Advanced Materials	2210335~2210338
掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子)	査読の有無
10.1002/adma.202210335	有
オープンアクセス	国際共著
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	-

1.著者名	4.巻
Fukami Yusuke, Iwasawa Masato, Sasaki Masahiro, Hosokai Takuya, Nakanotani Hajime, Adachi	9
Chihaya, Fukumoto Keiki, Yamada Yoichi	
2.論文標題	5 . 発行年
Direct Observation of Photoexcited Electron Dynamics in Organic Solids Exhibiting Thermally	2021年
Activated Delayed Fluorescence via Time Resolved Photoelectron Emission Microscopy	
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
Advanced Optical Materials	2100619 ~ 2100619
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.1002/adom.202100619	有
オープンアクセス	国際共著
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	-

1.著者名	4.巻
Balijapalli Umamahesh, Lee Yi Ting, Karunathilaka Buddhika S. B., Tumen, Ulzij Ganbaatar,	60
Auffray Morgan, Tsuchiya Youichi, Nakanotani Haiime, Adachi Chihava	
2 論文標題	5
Tetrahanzola clabenazine Backhone for Highly Efficient Orange-Red Thermally Activated Delayed	2021年
Fluorescence with Completely Horizontal Molecular Orientation	20214
	6 是初と是後の百
Angewandte Chemie International Edition	19364 ~ 19373
「掲載絵文のDOL(デジタルオブジェクト辨別子)	   本詰の右冊
10.1002/afre.2021065/0	月
	国際仕茎
オーノノアラビス	国际共有
オーランアクセスではない、文はオーランアクセスか困難	-
	4 ML
	4.
Balijapalli Umamahesh、Tang Xun、Okada Daichi、Lee Yi Ting、Karunathilaka Buddhika S. B.、	9
Auffray Morgan, Tumen Ulzii Ganbaatar, Tsuchiya Youichi, Sandanayaka Atula S. D., Matsushima	
Toshinori, Nakanotani Hajime, Adachi Chihaya	
2 . 論文標題	5.発行年
2,6 Dicarbonitrile Diphenyl 1 5Phosphinine (DCNP)A Robust Conjugated Building Block for	2021年
Multi Functional Dyes Exhibiting Tunable Amplified Spontaneous Emission	
3. 雑誌名	6.最初と最後の頁
Advanced Optical Materials	2101122 ~ 2101122
掲載論文のD01(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10 1002/adom 202101122	有
	6
オープンアクセス	国際共著
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	-
1	<i>1</i>
· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	4.2°
Talilahaka Takamko, Nakanotam najine, Audom omnaya	0
2 绘立種類	5 茶行在
	5.光1]牛
significant fore of spin-triplet state for exciton dissociation in organic solids	2022年
2 http://www.analysis.com/an	( 見知と見後の否
	0. 取物と取役の貝
Science Advances	abj9188-1~8
掲載調乂0000(テンタルオノンエクト識別子)	
10.1126/sciadv.abj9188	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)

1. 著者名	4.巻
Nguyen Thanh B., Nakanotani Hajime, Chan Chin-Yiu, Kakumachi Shunta, Adachi Chihaya	15
2.論文標題	5 . 発行年
Enhancing Triplet?Triplet Upconversion Efficiency and Operational Lifetime in Blue Organic	2023年
Light-Emitting Diodes by Utilizing Thermally Activated Delayed Fluorescence Materials	
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
ACS Applied Materials & amp; Interfaces	23557 ~ 23563
掲載論文のD01(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.1021/acsami.3c02855	有
オープンアクセス	国際共著
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 Kakumachi Shunta、Ba Nguyen Thanh、Nakanotani Hajime、Adachi Chihaya	4.巻 471
2.論文標題 Abrupt exciton quenching in blue fluorescent organic light-emitting diodes around turn-on voltage region	5 . 発行年 2023年
3.雑誌名 Chemical Engineering Journal	6 . 最初と最後の頁 144516~144516
掲載調文のD01(テンタルオフシェクト識別子) 10.1016/j.cej.2023.144516	
オープンアクセス	国際共著
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	-
1 茎老夕	<i>1</i>
Kohata Shintaro, Nakanotani Hajime, Chitose Youhei, Yasuda Takuma, Tsuchiya Youichi, Adachi Chihaya	62
2.論文標題 Anti Stokes Luminescence in Multi Resonance Type Thermally Activated Delayed Fluorescence Molecules	5 . 発行年 2023年
3. ##iorodato	6.最初と最後の頁
	6202312320
掲載論文のD01(デジタルオブジェクト識別子)	 査読の有無
10.1002/anie.202312326	有
オープンアクセス	国際共著
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	-
1 茎老夕	▲ 券
Ueda Yuuhi, Tanaka Masaki, Nakanotani Hajime, Adachi Chihaya	833
<ul> <li>2.論文標題         <ul> <li>A polar transition of spontaneous orientation polarization in organic amorphous thin films</li> </ul> </li> </ul>	4 · E 833 5 · 発行年 2023年
Ueda Yuuhi、Tanaka Masaki、Nakanotani Hajime、Adachi Chihaya 2.論文標題 A polar transition of spontaneous orientation polarization in organic amorphous thin films	4 · E 833 5 · 発行年 2023年
Ueda Yuuhi、Tanaka Masaki、Nakanotani Hajime、Adachi Chihaya 2.論文標題 A polar transition of spontaneous orientation polarization in organic amorphous thin films 3.雑誌名	4 · さ 833 5 · 発行年 2023年 6 · 最初と最後の頁
<ul> <li>2.論文標題         <ul> <li>A polar transition of spontaneous orientation polarization in organic amorphous thin films</li> <li>3.雑誌名                 Chemical Physics Letters</li> </ul> </li> </ul>	4 · さ 833 5 · 発行年 2023年 6 · 最初と最後の頁 140915~140915
Ueda Yuuhi、Tanaka Masaki、Nakanotani Hajime、Adachi Chihaya 2.論文標題 A polar transition of spontaneous orientation polarization in organic amorphous thin films 3.雑誌名 Chemical Physics Letters	4 · E 833 5 · 発行年 2023年 6 · 最初と最後の頁 140915 ~ 140915
<ul> <li>1.11日日 Ueda Yuuhi、Tanaka Masaki、Nakanotani Hajime、Adachi Chihaya</li> <li>2.論文標題 A polar transition of spontaneous orientation polarization in organic amorphous thin films</li> <li>3.雑誌名 Chemical Physics Letters</li> <li>掲載論文のDOL(デジタルオブジェクト識別子)</li> </ul>	<ul> <li>4 · E 833</li> <li>5 · 発行年 2023年</li> <li>6 · 最初と最後の頁 140915 ~ 140915</li> </ul>
<ul> <li>1.1目日 Ueda Yuuhi、Tanaka Masaki、Nakanotani Hajime、Adachi Chihaya</li> <li>2.論文標題 A polar transition of spontaneous orientation polarization in organic amorphous thin films</li> <li>3.雑誌名 Chemical Physics Letters</li> <li>掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子) 10.1016/j.cplett.2023.140915</li> </ul>	4 · E 833 5 · 発行年 2023年 6 · 最初と最後の頁 140915~140915 査読の有無 有
<ul> <li>1.4百日 Ueda Yuuhi、Tanaka Masaki、Nakanotani Hajime、Adachi Chihaya</li> <li>2.論文標題 A polar transition of spontaneous orientation polarization in organic amorphous thin films</li> <li>3.雑誌名 Chemical Physics Letters</li> <li>掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cplett.2023.140915</li> <li>オープンアクセス</li> </ul>	<ul> <li>4 · ど 833</li> <li>5 · 発行年 2023年</li> <li>6 · 最初と最後の頁 140915 ~ 140915</li> <li>査読の有無 有</li> <li>国際共著</li> </ul>
<ul> <li>1.4百日 Ueda Yuuhi、Tanaka Masaki、Nakanotani Hajime、Adachi Chihaya</li> <li>2.論文標題 A polar transition of spontaneous orientation polarization in organic amorphous thin films</li> <li>3.雑誌名 Chemical Physics Letters</li> <li>掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子) 10.1016/j.cplett.2023.140915</li> <li>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</li> </ul>	<ul> <li>4 · ど 833</li> <li>5 · 発行年 2023年</li> <li>6 · 最初と最後の頁 140915 ~ 140915</li> <li>査読の有無 有</li> <li>国際共著</li> <li>-</li> </ul>
<ul> <li>1.4百日 Ueda Yuuhi、Tanaka Masaki、Nakanotani Hajime、Adachi Chihaya</li> <li>2.論文標題 A polar transition of spontaneous orientation polarization in organic amorphous thin films</li> <li>3.雑誌名 Chemical Physics Letters</li> <li>掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子) 10.1016/j.cplett.2023.140915</li> <li>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</li> </ul>	4 · さ 833 5 · 発行年 2023年 6 · 最初と最後の頁 140915 ~ 140915 査読の有無 有 国際共著 -
<ul> <li>1.4百日 Ueda Yuuhi、Tanaka Masaki、Nakanotani Hajime、Adachi Chihaya</li> <li>2.論文標題 A polar transition of spontaneous orientation polarization in organic amorphous thin films</li> <li>3.雑誌名 Chemical Physics Letters</li> <li>掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cplett.2023.140915</li> <li>オープンアクセス 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</li> <li>1.著者名</li> </ul>	<ul> <li>4 · ぎ 833</li> <li>5 · 発行年 2023年</li> <li>6 · 最初と最後の頁 140915 ~ 140915</li> <li>査読の有無 有</li> <li>国際共著 -</li> <li>4 · 巻</li> </ul>
1. 音音音         Ueda Yuuhi、Tanaka Masaki、Nakanotani Hajime、Adachi Chihaya         2. 論文標題         A polar transition of spontaneous orientation polarization in organic amorphous thin films         3. 雑誌名         Chemical Physics Letters         掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)         10.1016/j.cplett.2023.140915         オープンアクセス         オープンアクセス         1. 著者名         Yamanaka Takahiko、Nakanotani Hajime、Adachi Chihaya	4 · ぎ 833 5 · 発行年 2023年 6 · 最初と最後の頁 140915 ~ 140915 査読の有無 有 国際共著 - 4 · 巻 12
<ul> <li>1.者百日 Ueda Yuuhi、Tanaka Masaki、Nakanotani Hajime、Adachi Chihaya</li> <li>2.論文標題 A polar transition of spontaneous orientation polarization in organic amorphous thin films</li> <li>3.雑誌名 Chemical Physics Letters</li> <li>掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cplett.2023.140915</li> <li>オープンアクセス オープンアクセス</li> <li>1.著者名 Yamanaka Takahiko、Nakanotani Hajime、Adachi Chihaya</li> <li>2.論文標題</li> </ul>	<ul> <li>4 · ぎ 833</li> <li>5 · 発行年 2023年</li> <li>6 · 最初と最後の頁 140915 ~ 140915</li> <li>査読の有無 有</li> <li>国際共著 -</li> <li>4 · 巻 12</li> <li>5 · 発行年</li> </ul>
<ul> <li>1.4日日 Ueda Yuuhi、Tanaka Masaki、Nakanotani Hajime、Adachi Chihaya</li> <li>2.論文標題 A polar transition of spontaneous orientation polarization in organic amorphous thin films</li> <li>3.雑誌名 Chemical Physics Letters</li> <li>掲載論文のDOI (デジタルオプジェクト識別子) 10.1016/j.cplett.2023.140915</li> <li>オープンアクセス 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</li> <li>1.著者名 Yamanaka Takahiko、Nakanotani Hajime、Adachi Chihaya</li> <li>2.論文標題 The role of spontaneous orientation polarization on charge storage behavior at an interface between organic semiconductor layers</li> </ul>	4 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
<ul> <li>1.4日日 Ueda Yuuhi、Tanaka Masaki、Nakanotani Hajime、Adachi Chihaya</li> <li>2.論文標題 A polar transition of spontaneous orientation polarization in organic amorphous thin films</li> <li>3.雑誌名 Chemical Physics Letters</li> <li>掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cplett.2023.140915</li> <li>オープンアクセス オープンアクセス</li> <li>1.著者名 Yamanaka Takahiko、Nakanotani Hajime、Adachi Chihaya</li> <li>2.論文標題 The role of spontaneous orientation polarization on charge storage behavior at an interface between organic semiconductor layers</li> <li>3.雑誌名</li> </ul>	<ul> <li>4 · ぎ 833</li> <li>5 · 発行年 2023年</li> <li>6 · 最初と最後の頁 140915 ~ 140915</li> <li>査読の有無 有</li> <li>国際共著 -</li> <li>4 · 巻 12</li> <li>5 · 発行年 2024年</li> <li>6 · 最初と最後の頁</li> </ul>
<ul> <li>1.1111 Ueda Yuuhi、Tanaka Masaki、Nakanotani Hajime、Adachi Chihaya</li> <li>2.論文標題 A polar transition of spontaneous orientation polarization in organic amorphous thin films</li> <li>3.雑誌名 Chemical Physics Letters</li> <li>掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cplett.2023.140915</li> <li>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</li> <li>1.著者名 Yamanaka Takahiko、Nakanotani Hajime、Adachi Chihaya</li> <li>2.論文標題 The role of spontaneous orientation polarization on charge storage behavior at an interface between organic semiconductor layers</li> <li>3.雑誌名 Journal of Materials Chemistry C</li> </ul>	<ul> <li>4 · ぎ 833</li> <li>5 · 発行年 2023年</li> <li>6 · 最初と最後の頁 140915 ~ 140915</li> <li>査読の有無 有</li> <li>国際共著 -</li> <li>4 · 巻 12</li> <li>5 · 発行年 2024年</li> <li>6 · 最初と最後の頁 1055 ~ 1060</li> </ul>
<ul> <li>1.1111</li> <li>Ueda Yuuhi, Tanaka Masaki, Nakanotani Hajime, Adachi Chihaya</li> <li>2.論文標題 <ul> <li>A polar transition of spontaneous orientation polarization in organic amorphous thin films</li> </ul> </li> <li>3.雑誌名 <ul> <li>Chemical Physics Letters</li> </ul> </li> <li> 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <ul> <li>10.1016/j.cplett.2023.140915</li> </ul> </li> <li> オープンアクセス <ul> <li>オープンアクセス</li> <li>オープンアクセス</li> </ul> </li> <li> 1.著者名 <ul> <li>Yamanaka Takahiko, Nakanotani Hajime, Adachi Chihaya</li> </ul> </li> <li> 2.論文標題 <ul> <li>The role of spontaneous orientation polarization on charge storage behavior at an interface between organic semiconductor layers</li> </ul> </li> <li> 3.雑誌名 <ul> <li>Journal of Materials Chemistry C</li> </ul> </li> </ul>	<ul> <li>4 · ぎ 833</li> <li>5 · 発行年 2023年</li> <li>6 · 最初と最後の頁 140915 ~ 140915</li> <li>査読の有無 有</li> <li>国際共著 -</li> <li>4 · 巻 12</li> <li>5 · 発行年 2024年</li> <li>6 · 最初と最後の頁 1055 ~ 1060</li> </ul>
<ul> <li>1.1 1.1 1.1 1.1 1.1 1.1 1.1 1.1 1.1 1.1</li></ul>	<ul> <li>4 · ぎ 833</li> <li>5 · 発行年 2023年</li> <li>6 · 最初と最後の頁 140915 ~ 140915</li> <li>査読の有無 有</li> <li>国際共著 -</li> <li>4 · 巻 12</li> <li>5 · 発行年 2024年</li> <li>6 · 最初と最後の頁 1055 ~ 1060</li> <li>査読の有無</li> </ul>
<ul> <li>1.1日日 Ueda Yuuhi、Tanaka Masaki、Nakanotani Hajime、Adachi Chihaya</li> <li>2.論文標題 A polar transition of spontaneous orientation polarization in organic amorphous thin films</li> <li>3.雑誌名 Chemical Physics Letters</li> <li>掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cplett.2023.140915</li> <li>オープンアクセス 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</li> <li>1.著者名 Yamanaka Takahiko、Nakanotani Hajime、Adachi Chihaya</li> <li>2.論文標題 The role of spontaneous orientation polarization on charge storage behavior at an interface between organic semiconductor layers</li> <li>3.雑誌名 Journal of Materials Chemistry C</li> <li>掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D3TC03979J</li> </ul>	4 . 音         833         5 . 発行年         2023年         6 . 最初と最後の頁         140915 ~ 140915         査読の有無         有         国際共著         -         4 . 巻         12         5 . 発行年         2024年         6 . 最初と最後の頁         1055 ~ 1060         査読の有無         査読の有無
<ul> <li>1.1日日 Ueda Yuuhi、Tanaka Masaki、Nakanotani Hajime、Adachi Chihaya</li> <li>2.論文標題 A polar transition of spontaneous orientation polarization in organic amorphous thin films</li> <li>3.雑誌名 Chemical Physics Letters</li> <li>掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cplett.2023.140915</li> <li>オープンアクセス オープンアクセス</li> <li>1.著者名 Yamanaka Takahiko、Nakanotani Hajime、Adachi Chihaya</li> <li>2.論文標題 The role of spontaneous orientation polarization on charge storage behavior at an interface between organic semiconductor layers</li> <li>3.雑誌名 Journal of Materials Chemistry C</li> <li>掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子) 10.1039/D3TC03979J</li> </ul>	4 . 音         833         5 . 発行年         2023年         6 . 最初と最後の頁         140915 ~ 140915         査読の有無         有         国際共著         -         4 . 巻         12         5 . 発行年         2024年         6 . 最初と最後の頁         1055 ~ 1060         査読の有無         有
<ul> <li>1.1日日 Ueda Yuuhi、Tanaka Masaki、Nakanotani Hajime、Adachi Chihaya</li> <li>2.論文標題 A polar transition of spontaneous orientation polarization in organic amorphous thin films</li> <li>3.雑誌名 Chemical Physics Letters</li> <li>掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cplett.2023.140915</li> <li>オープンアクセス</li> <li>オープンアクセスではない、又はオーブンアクセスが困難</li> <li>1.著名名 Yamanaka Takahiko、Nakanotani Hajime、Adachi Chihaya</li> <li>2.論文標題 The role of spontaneous orientation polarization on charge storage behavior at an interface between organic semiconductor layers</li> <li>3.雑誌名 Journal of Materials Chemistry C</li> <li>掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D3TC03979J</li> <li>オープンアクセス</li> </ul>	4 . 音         833         5 . 発行年         2023年         6 . 最初と最後の頁         140915 ~ 140915         査読の有無         有         国際共著         -         4 . 巻         12         5 . 発行年         2024年         6 . 最初と最後の頁         1055 ~ 1060         査読の有無         有         国際共著

#### 〔学会発表〕 計9件(うち招待講演 3件/うち国際学会 1件)

1.発表者名 中野谷 一

2.発表標題

熱活性化遅延蛍光分子の進展:有機EL からフォトンアップコンバージョン

3 . 学会等名

日本化学会第104回春季年会(招待講演)

4.発表年 2024年

1.発表者名

Thanh Ba Nguyen, Hajime Nakanotani, Chin-Yiu Chan, Shunta Kakumachi, Chihaya Adachi

2.発表標題

Enhancing TTU-OLED performances by utilizing TADF Materials

3.学会等名 有機EL討論会第36回例会

4 . 発表年 2023年

1.発表者名 木幡真太郎,中野谷一,安達千波矢

2 . 発表標題

Research on Anti-Stokes Luminescence in Thermally Activated Delayed Fluorescence Molecules

3.学会等名
 2023年光化学討論会

4 . 発表年 2023年

1.発表者名

角町 駿太, Thanh Ba Nguyen, 中野谷 一, 安達 千波矢

### 2.発表標題

青色蛍光OLEDの駆動電圧付近で生じる急激な励起消滅過程

# 3 . 学会等名

第84回 応用物理学会 秋季学術講演会

4.発表年 2023年

# 1.発表者名

角町 駿太, Thanh Ba Nguyen, 中野谷 一, 安達 千波矢

# 2.発表標題

Abrupt exciton quenching in blue fluorescent organic light-emitting diodes around turn-on voltage region

3 . 学会等名

The 15th Asian Conference on Organic Electronics(国際学会)

4.発表年 2023年

1. 発表者名 角町 駿太, Thanh Ba Nguyen, 中野谷 一, 安達 千波矢

2.発表標題

青色蛍光OLEDの駆動電圧付近で生じる急激な励起子消滅過程

3. 学会等名 有機EL討論会 第37回例会

4.発表年

2023年

### 1.発表者名

木幡真太郎, 中野谷一, 安達千波矢

2.発表標題

熱活性化遅延蛍光分子におけるアンチストークス発光

 3.学会等名 第71回応用物理学会春季学術講演会

4.発表年 2024年

1.発表者名

中野谷 一

2.発表標題

有機薄膜中での自発的な励起子解離現象とその応用

3 . 学会等名

第71回高分子討論会(招待講演)

4 . 発表年 2022年

### 1.発表者名

Hajime Nakanotani

### 2.発表標題

Spontaneous dissociation of charge-transfer type excitons in organic solid-state films

3.学会等名 日本化学会第102春季年会(招待講演)

# 4 . 発表年

2022年

# 〔図書〕 計0件

#### 〔産業財産権〕

〔その他〕

次世代有機LED材料の電子の動きを直接観察することに成功 https://www.kyushu-u.ac.jp/ja/researches/view/621

# 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
---------	---------