

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 15 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2014

課題番号：25610084

研究課題名(和文)異種有機単結晶界面における励起子移動の測定

研究課題名(英文) Measurements of exciton transfer between organic single crystals of different materials

研究代表者

下谷 秀和 (Shimotani, Hidekazu)

東北大学・理学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：60418613

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：光励起による励起子拡散長の測定によると、テトラセン単結晶中では一重項励起子の三重項励起子へのフィッシュン、三重項励起子の拡散、三重項励起子の融合による一重項励起子の生成の過程により、励起子拡散長が単結晶の厚さよりも長いことが分かった。この性質を利用し、キャリア輸送層にテトラセン単結晶を、発光層に色素ドーブテトラセン単結晶を用いることにより、励起子移動による発光層からの発光を観測した。

研究成果の概要(英文)：Measurements of exciton diffusion length in tetracene single crystals revealed that the exciton diffusion length is longer than typical thickness of the tetracene single crystals. We successfully developed functionally separated single-crystal organic light-emitting field-effect transistor using the property. The transistor consists of two different organic semiconductor single crystals, which are laminated on a dielectric layer forming bilayer structure. Excitons generated by carrier injection to the bottom semiconductor crystal, which has higher carrier mobility, were transferred to the top semiconductor crystal, which have higher fluorescence efficiency, and light emission from the top crystal was observed.

研究分野：固体物理

キーワード：有機半導体

1. 研究開始当初の背景

有機半導体は発光効率の高さと発光波長の設計自由度の高さから発光素子への応用が期待されている。なかでも、電界効果トランジスタ構造を利用して静電的に有機半導体中に p-i-n 接合を形成することにより電子・正孔再結合による発光を起こす有機発光電界効果トランジスタが電流励起有機半導体レーザーを目指す観点から注目されている。しかし、キャリア易動度の高い有機半導体は一般的に発光効率が低い傾向にあり、高輝度化への障害となっている。

2. 研究の目的

(1) 従来用いられてきた有機半導体材料のキャリア易動度を低下させずに発光効率を高めた新規有機半導体材料を開発する。
(2) キャリア輸送層と発光層を分離し、キャリア易動度と発光効率がともに高くなり様な新規有機発光トランジスタ構造を開発する。

3. 研究の方法

(1) キャリア易動度と発光効率が比較的高い有機半導体材料であるチオフェンフェニレン子ポリマーの一種である 2,5-bis(4-biphenyl)bithiophene のチオフェン環をフラン環に置換した誘導体を新規合成し、それがキャリア易動度と発光効率に与える影響を測定した。
(2) キャリア輸送層と発光層を分離した 2 層型有機発光電界効果トランジスタを作製し、それぞれキャリア易動度と発光効率の高い異種有機半導体材料の単結晶を用いることにより、高輝度発光を目指した機能分離型素子の開発を行った。

4. 研究成果

(1) 2,5-bis(4-biphenyl)bithiophene のチオフェン環をフラン環に 1 個及び 2 個置換すると、正孔の易動度が増加していくことが分かった。これは、それぞれの HOMO 準位の変化とよく一致した。また、チオフェン環の 1 個をフラン環に置換した 2-([1,10-biphenyl]-4-yl)-5-(5-([1,10-biphenyl]-4-yl)thiophen-2-yl)furan の単結晶は従来物質に比べ高い発光効率を示した。X 線構造解析の結果、2-([1,10-biphenyl]-4-yl)-5-(5-([1,10-biphenyl]-4-yl)thiophen-2-yl)furan は結晶中で直線的な構造と屈曲した構造の 2 種類の構造を取るため、H 会合していても遷移双極子モーメントが打ち消し合わないためであることが分かった。
(2) 光励起による励起子拡散長の測定によると、テトラセン単結晶中では一重項励起子の三重項励起子へのフィッシュン、三重項励起子の拡散、三重項励起子の融合による一重項励起子の生成の過程により、励起子拡散長が単結晶の厚さよりも長いことが分かった。

この性質を利用し、キャリア輸送層にテトラセン単結晶を、発光層に色素ドープテトラセン単結晶を用いることにより、励起子移動による発光層からの発光を観測した。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 16 件)

- (1) "Systematic Study of the Electronic States in Electron-Doped Polyacenes", Quynh T. N. Phan, Satoshi Heguri, Yoichi Tanabe, Hidekazu Shimotani, Katsumi Tanigaki, *Eur. J. Inorg. Chem.*, 4033-4038 (2014), DOI: 10.1002/ejic.201402381, 査読有.
- (2) "Systematic studies on anharmonicity of rattling phonons in type-I clathrates by low-temperature heat capacity measurements", Jiazhen Wu, Jingtao Xu, Dwi Prananto, Hidekazu Shimotani, Yoichi Tanabe, Satoshi Heguri, Katsumi Tanigaki, *Phys. Rev. B* **89**, 214301-1-8 (2014), DOI: 10.1103/PhysRevB.89.214301, 査読有.
- (3) "Continuous Band-Filling Control and One-Dimensional Transport in Metallic and Semiconducting Carbon Nanotube Tangled Films", Hidekazu Shimotani, Satoshi Tsuda, Hongtao Yuan, Yohei Yomogida, Rieko Moriya, Taishi Takenobu, Kazuhiro Yanagi, Yoshihiro Iwasa, *Adv. Funct. Mater.* **24**, 3305-3311(2014), DOI: 10.1002/adfm.201303566, 査読有.
- (4) "Field-Induced Superconductivity in Electric Double Layer Transistors", Kazunori Ueno, Hidekazu Shimotani, Hongtao Yuan, Jianting Ye, M. Kawasaki, Yoshihiro Iwasa, *J. Phys. Soc. Jpn.* **83**, 032001-1-16 (2014), DOI: 10.7566/JPSJ.83.032001, 査読有.
- (5) "Electron and Hole Injection via Charge Transfer at the Topological Insulator $\text{Bi}_{2-x}\text{Sb}_x\text{Te}_{3-y}\text{Se}_y$ -Organic Molecule Interface", Yoichi Tanabe, Khuong Kim Huynh, Ryo Nouchi, Satoshi Heguri, Gang Mu, Jingtao Xu, Hidekazu Shimotani, Katsumi Tanigaki, *J. Phys. Chem. C* **118**, 3533-3538 (2014), DOI: 10.1021/jp409715s, 査読有.
- (6) "Tuning of the ground state in electron doped anthracene", Quynh T. N. Phan, Satoshi Heguri, Yoichi Tanabe, Hidekazu Shimotani, Takehito Nakano,

- Yasuo Nozue, Katsumi Tanigaki, *Dalton Trans.* **43**, 10040-10045 (2014), DOI: 10.1039/c4dt00071d, 査読有.
- (7) "High-Sensitivity Photodetectors Based on Multilayer GaTe Flakes", Fucai Liu, Hidekazu Shimotani, Hui Shang, Thangavel Kanagasekaran, Viktor Zolyomi, Neil Drummond, Vladimir I. Fal'ko, Katsumi Tanigaki, *ACS NANO* **8**, 752-760 (2014), DOI: 10.1021/nn4054039, 査読有.
- (8) "Ionic liquid gated electric-double-layer transistors based on Mg-doped InN epitaxial films", Z. Y. Chen, Hongtao Yuan, X. Q. Wang, N. Ma, Y. W. Zhang, Hidekazu Shimotani, Z. X. Qin, B. Shen, Yoshihiro Iwasa, *Appl. Phys. Lett.* **103**, 253508-1-4 (2013), DOI: 10.1063/1.4852175, 査読有.
- (9) "Zeeman-type spin splitting controlled by an electric field", Hongtao Yuan, Mohammad Saeed Bahramy, Kazuhiro Morimoto, Sanfeng Wu, Kentaro Nomura, Bohm-Jung Yang, Hidekazu Shimotani, Ryuji Suzuki, Minglin Toh, Christian Kloc, Xiaodong Xu, Ryotaro Arita, Naoto Nagaosa, Yoshihiro Iwasa, *Nature Phys.* **9**, 563-569 (2013), DOI: 10.1038/NPHYS2691, 査読有.
- (10) "Low-Temperature Physical and Thermoelectric Properties of $Ba_8Ni_5Ge_{41}$ ", Jingtao Xu, Jiazhen Wu, Yoichi Tanabe, Satoshi Heguri, Gang Mu, Hidekazu Shimotani, Katsumi Tanigaki, *J. Electron. Mater.* **42**, 2025-2029 (2013), DOI: 10.1007/s11664-013-2509-z, 査読有.
- (11) "Tunable Surface Electron Spin Splitting with Electric Double-Layer Transistors Based on InN", Chunming Yi, Hongtao Yuan, Xinqiang Wang, Shitao Liu, Shan Zhang, Ning Tang, Fujun Xu, Zhuoyu Chen, Hidekazu Shimotani, Yoshihiro Iwasa, Yonghai Chen, Weikun Ge, Bo Shen, *Nano Lett.* **13**, 2024-2029 (2013), DOI: 10.1021/nl400153p, 査読有.
- (12) "Theoretical Analysis on the Optoelectronic Properties of Single Crystals of Thiophene-furan-phenylene Co-Oligomers: Efficient Photoluminescence due to Molecular Bending", Hiroyuki Tamura, Ikutaro Hamada, Hui Shang, Kazuaki Oniwa, Md. Akhtaruzzaman, Tienan Jin, Naoki Asao, Yoshinori Yamamoto, Thangavel Kanagasekaran, Hidekazu Shimotani, Susumu Ikeda, Katsumi Tanigaki, *J. Phys. Chem. C* **117**, 8072-8078 (2013), DOI: 10.1021/jp400646n, 査読有.
- (13) "Single crystal biphenyl end-capped furan-incorporated oligomers: influence of unusual packing structure on carrier mobility and luminescence", Kazuaki Oniwa, Thangavel Kanagasekaran, Tienan Jin, Md. Akhtaruzzaman, Yoshinori Yamamoto, Hiroyuki Tamura, Ikutaro Hamada, Hidekazu Shimotani, Naoki Asao, Susumu Ikeda, Katsumi Tanigaki, *J. Mater. Chem. C* **1**, 4163-4170 (2013), DOI: 10.1039/c3tc30220b, 査読有.
- (14) "Ambipolar Organic Single-Crystal Transistors Based on Ion Gels", Yohei Yomogida, Jiang Pu, Hidekazu Shimotani, Shimpei Ono, Shu Hotta, Yoshihiro Iwasa, Taishi Takenobu, *Adv. Mater.* **24**, 4392-4397 (2012), DOI: 10.1002/adma.201200655, 査読有.
- (15) "External electric field dependence of the structure of the electric double layer at an ionic liquid/Au interface", Ryosuke Yamamoto, Hazuki Morisaki, Osami Sakata, Hidekazu Shimotani, Hongtao Yuan, Yoshihiro Iwasa, Tsuyoshi Kimura, Yusuke Wakabayashi, *Appl. Phys. Lett.* **101**, 053122-1-4 (2012), DOI: 10.1063/1.4742920, 査読有.
- (16) "Electric-field-induced superconductivity at 9.4 K in a layered transition metal disulphide MoS_2 ", Kouji Taniguchi, Akiyo Matsumoto, Hidekazu Shimotani, Hidenori Takagi, *Appl. Phys. Lett.* **101**, 042603-1-3 (2012), DOI: 10.1063/1.4740268, 査読有.

[学会発表](計 5件)

- (1) "有機単結晶 FET の電子易動度の絶縁層修飾膜依存性", 下谷秀和, 小林昌太, 及川翔, 谷垣勝己, 日本物理学会第 70 回年次大会, 早稲田大学(東京), 2015 年 3 月 21 日
- (2) "Control of Carrier Injection Barrier in Organic Thin-Film Transistors by Surface Modification of Dielectric Layer", Hidekazu Shimotani, Thangavel Kanagasekaran, Susumu Ikeda, Hui Shang, Ryotaro Kumashiro, Katsumi

- Tanigaki, 2014 MRS Fall Meeting, Boston (USA), 2014年12月1日
- (3) "絶縁層表面修飾による有機薄膜トランジスタのキャリア注入障壁の変化", 下谷秀和, カナガセカラン サンガベル, 谷垣勝己, 日本物理学会第69回年次大会, 東海大学(平塚市), 2014年3月29日
- (4) "Continuous carrier tuning in metallic and semiconducting SWNT Film", Hidekazu Shimotani, Japan-France Joint Seminar 2012, Physics and Control of Clustering Solids, 淡路夢舞台(淡路市), 2012年11月6日
- (5) "One-dimensional Nature in Transport Property of SWNT Thin Film Electrochemical Transistor", Hidekazu Shimotani, Satoshi Tsuda, Yuan Hongtao, Yohei Yomogida, Rieko Moriya, Taishi Takenobu, Kazuhiro Yanagi, Yoshihiro Iwasa, 2012 MRS Spring Meeting, San Francisco (USA), 2012年4月11日

()
研究者番号 :
(3) 連携研究者 ()
研究者番号 :

〔図書〕(計 0件)

〔産業財産権〕
出願状況(計 0件)

名称 :
発明者 :
権利者 :
種類 :
番号 :
出願年月日 :
国内外の別 :

取得状況(計 0件)

名称 :
発明者 :
権利者 :
種類 :
番号 :
出願年月日 :
取得年月日 :
国内外の別 :

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

下谷 秀和 (Hidekazu Shimotani)
東北大学・大学院理学研究科物理学専攻・
准教授
研究者番号 : 60418613

(2) 研究分担者