

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	有機材料中における三重項励起子拡散のナノスケール特性評価
Title(English)	Nanoscale study of triplet exciton diffusion in organic molecular materials
著者(和文)	成島魁至
Author(English)	Kaishi Narushima
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第11145号, 授与年月日:2019年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:VACHA MARTIN,森 健彦,大内 幸雄,松本 英俊,早水 裕平
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11145号, Conferred date:2019/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

(博士課程)

論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第	号	学位申請者氏名	成島魁至	
		氏名	職名	氏名	職名
論文審査 審査員	主査	バッハ マーティン	教授	早水 裕平	准教授
	審査員	森 健彦	教授		
		大内 幸雄	教授		
		松本 英俊	准教授		

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は「Nanoscale study of triplet exciton diffusion in organic molecular materials (有機材料中における三重項励起子拡散のナノスケール特性評価)」と題し、5章で構成されており、英文で書かれている。

第1章「General introduction」では三重項励起子拡散に関する光化学の原理および先行研究について概説することで有機材料中におけるその役割を明確にし、本研究の目的と意義を述べている。

第2章「Triplet exciton diffusion in up-conversion materials」ではドナー分子とアクセプター分子の2成分からなる結晶性アップコンバージョン材料中の三重項励起子拡散長の測定手法の確立について報告している。無機物ナノ粒子にドナー分子と蛍光色素を吸着させたハイブリッドドナーナノ粒子(HDP)を用いることで、アクセプター分子の三重項励起子を回折限界以下の局所的な空間に発生させることが可能となり、HDPを結晶性アップコンバージョン材料中にドーピングすることでアントラセンと9,10-ジフェニルアントラセン(DPA)の三重項励起子拡散の可視化をはじめ報告している。結果として、アントラセンとDPAの三重項励起子拡散長はそれぞれ491 nmと172 nmであることを明らかにした。従来の手法における三重項励起子拡散長の測定手法ではドナー分子の凝集体由来に起因するパラメーターの誤差が大きく、正確な測定が困難であることを示し、提案した手法の優位性を報告している。

第3章「Triplet exciton diffusion in conjugated polymer nanofibers」では共役系高分子から成るアップコンバージョン材料をナノファイバー状態に作製し、そのナノファイバー内の三重項励起子拡散に関して報告している。共役系高分子としてポリフェニレンビニレンコポリマー(super yellow)を用いて、エレクトロスピンニング法にてナノファイバーを得ている。作製したサンプルは直線偏光の2色性の測定より偏光比が1:10となり、高分子鎖がナノファイバーに沿って配向していることを報告している。また、ナノファイバー状態のアップコンバージョン材料は、そのアップコンバージョン発光の閾値がスピコートフィルムのアップコンバージョン材料の場合と比較して約3倍低いことを見出し、結果としてナノファイバーの三重項励起子拡散長がスピコートフィルムと比較して長いことを明らかにしている。

第4章「Suppressed triplet exciton diffusion as a possible factor for the appearance of persistent room temperature phosphorescence」では長寿命室温りん光を発する重原子フリー芳香族結晶中における三重項励起子拡散と無放射速度定数の関係について報告している。室温において0.61 sの三重項寿命を有する2-carbazolyl-4,6-dichloro-1,3,5-triazine (CzDCIT)において、三重項励起子拡散を落射型顕微鏡を用いて可視化した。結果として、拡散長は0.41 μmであることを見出した。一方、室温りん光を生じないルブレンの三重項励起子拡散長は同様の測定の結果3.4 μmとなり、CzDCITが長寿命であるにもかかわらず拡散長が抑制されていることを明らかにした。さらにCzDCITとルブレンの拡散長と三重項寿命から、三重項励起子の拡散係数がそれぞれ 3.0×10^{-9} と $1.1 \times 10^{-3} \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ となり、CzDCITの拡散係数が桁違いに小さい値となっていることを見出した。量子化学計算により、CzDCITの結晶スタッキング方向では分子軌道が局在しているために軌道の重なりがルブレンと比較して小さく、これがCzDCITの拡散係数と三重項励起子拡散長が抑制されている根本的な原因であることを報告している。CzDCITの三重項励起子は拡散が抑制しているために、結晶中の欠陥サイトや結晶表面にて消光されるプロセスを抑制しており、その結果として無放射の速度定数が小さくなり長寿命の室温りん光が発現すると説明している。

第5章「General conclusion」ではこれまでに述べた研究成果を総括し、さらに今後の展望について述べている。これを要するに本論文では、HDPを用いた三重項励起子拡散を測定する手法が2成分からなる結晶性アップコンバージョン材料中において有用であること、共役系高分子のナノファイバーが励起子拡散長を向上させるために優れた手段であること、さらに結晶系材料における長寿命室温りん光発現のメカニズムを明らかにした。また、これらの結果を踏まえて、結晶系アップコンバージョンの特性の向上、共役系高分子のアップコンバージョン材料や太陽電池への応用、長寿命の室温りん光を発現する分子設計が可能であることを示しており、工学上ならびに工業上貢献するところが大きい。よって本論文は博士(工学)の学位論文として十分な価値があるものと認められる。

注意:「論文審査の要旨及び審査員」は、東工大リサーチポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。