

ERATO「安達分子エキシトン工学」プロジェクト

追跡調査概要

本プロジェクトは未だ実現されていない電流励起有機半導体レーザー等の新たなデバイスの創成の観点から出口デバイスを念頭に置いた俯瞰的視野に立つ基礎研究を進めた。プロジェクト期間中の主な研究成果として、電流励起有機半導体レーザー、有機材料のみを用いた蓄光材料、また内部量子効率 100%を超える有機 EL 素子の実現などが挙げられる。

プロジェクト終了後、科研費特別推進研究費等の競争的研究資金を得て、研究成果をさらに展開・発展させている。プロジェクト期間中の論文は 246 報 (Top10%以内は 76 報)、プロジェクト終了後の発展論文は 131 報 (Top10%以内は 26 報) であり、継続して着実に研究成果を発信している。なお、安達はクラリベイト・アナリティクス社の 2024 年度物理学部門の Highly Cited Researchers に選出され、2018 年以來の 7 年連続となった。特許出願に関しては、プロジェクト期間中は国内 52 件 (海外 43 件)、終了後は国内 16 件 (海外 8 件) であった。

特に注目すべき研究成果としては、電流励起有機半導体レーザーに関しては課題であったエッチングプロセスの改良と半値幅が狭く指向性に優れた発光デバイスの作製、ポリマー型蓄光材料や熱ルミネッセンスへの応用、バイオテクノロジーやセンサーなどへの応用などを旨とした熱活性化遅延蛍光 (TADF) 材料開発、また企業との共同研究も含め可視光から近赤外～中赤外までの波長制御が可能な特徴を活かしたディスプレイ (OLED) 等の開発などが挙げられる。なお、安達は現在までに 3 社 (Kyulux 社、KOALA 社および OPERA Solutions 社) のスタートアップを立ち上げ、有機フォトニクス産業の育成を進めている。

以上

国立研究開発法人 科学技術振興機構
戦略的創造研究推進事業
ERATO
追跡調査報告書

「安達分子エキシトン工学」プロジェクト
(2013年10月～2020年3月)

研究総括：安達 千波矢

2025年3月

目次

本資料について	1
プロジェクトの展開状況および波及効果(まとめ図)	2
第 1 章 プロジェクトの概要	4
1.1 研究期間	4
1.2 プロジェクトのねらい	4
1.3 研究体制	4
1.4 プロジェクト終了時点での研究成果	5
1.4.1 有機半導体レーザー	5
1.4.2 室温長寿命有機蓄光	6
1.4.3 TADF 材料の開発	7
1.4.4 Singlet Fission による高効率 OLED	7
1.4.5 ペロブスカイト材料の活用	7
第 2 章 プロジェクト終了から現在に至る状況	9
2.1 追跡調査について	9
2.1.1 調査方法	9
2.2 プロジェクトの終了後の状況に関する基礎データ	10
2.2.1 競争的研究資金の獲得状況	10
2.2.2 論文の発表状況	10
2.2.3 特許の出願・公開・登録状況	12
2.2.4 受賞状況	13
2.2.5 スタートアップの設立状況	14
2.3 プロジェクト終了後の発展状況	16
2.3.1 有機半導体レーザーに関する研究	16
2.3.2 室温長寿命蓄光に関する研究	19
2.3.3 熱活性化遅延蛍光(TADF)に関する研究	20
2.3.4 ペロブスカイト材料の活用	20
2.4 プロジェクト参加研究者の活動状況	21
2.5 第 2 章まとめ	24
第 3 章 プロジェクト成果の波及と展望	25
3.1 新規な理論や概念の創出	25
3.2 新たな研究領域や研究の潮流の形成	25
3.3 国際共同研究	26
3.4 ディ스플레이分野および赤外光利用分野への展開の期待	27
3.5 社会への貢献	27

3.6 波及のまとめと展望.....	28
--------------------	----

本資料について

本資料は、国立研究開発法人科学技術振興機構(JST)戦略的創造研究推進事業の ERATO「安達分子エキシトン工学」プロジェクト(2013年10月～2020年3月、以後、本プロジェクトと記載)において、研究終了後一定期間を経過した後、副次的効果を含めて研究成果の発展状況や活用状況を明らかにし、事業および事業運営の改善などに資するために、追跡調査を実施した結果をまとめたものである。

プロジェクトの展開状況および波及効果(まとめ図)

戦略目標、達成目標/プロジェクトの目標(わらい)	インプット	アクティビティ/アウトプット	アウトカム (short/mid-term)		アウトカム (long-term)/インパクト																																											
			～追跡調査時点	今後予想される展開	今後想定される波及効果																																											
<p>目的・目標</p> <p>戦略目標: 1) 電流励起有機半導体レーザーの実現。 2) 室温長寿命蓄光デバイスの実現。 3) 電流励起による100%の量子効率を超えるOLEDを実現。</p> <p>プロジェクトのわらい 1. エキシトンの有機半導体中でのふるまいを制御して、効率的な発光に結び付ける分子エキシトン工学の学理を確立する。 2. 学理の確立により、革新的有機光デバイス、(特に、電流励起有機半導体レーザー)を創製する。</p>	<p>研究体制</p> <p>研究総括: 安達千波矢 九州大学 OPERAセンター長(教授)</p> <p>研究総括補佐: 中野谷一 九州大学OPERA副センター長(准教授)</p> <p>グループ: GL</p> <p>① 分子設計・合成グループ: 嘉部量太</p> <p>② バイオデバイスグループ: 土屋陽一</p> <p>③ 応用デバイスグループ: 松島敏則</p> <p>④ 物性・解析グループ: 合志憲一</p> <p>委託・共同研究</p> <p>① 京都大学化学研究所: 梶弘典教授</p> <p>② 早稲田大学ナノライフ創新研究機構: 水野潤教授</p> <p>③ 産業技術総合研究所分析計測標準研究部門: 細貝拓也主任研究員</p>	<p>研究成果のまとめ</p> <p>論文投稿</p> <table border="1"> <tr> <td>① 成果論文数</td> <td>② 発展論文数</td> </tr> <tr> <td>246 (76)</td> <td>131 (26)</td> </tr> </table> <p>()の値はTop10%以内論文数</p> <p>特許申請・登録</p> <table border="1"> <tr> <td></td> <td>期間中</td> <td>終了後</td> </tr> <tr> <td>出願</td> <td>国内 52</td> <td>16</td> </tr> <tr> <td></td> <td>海外 43</td> <td>8</td> </tr> <tr> <td>登録</td> <td>国内 28</td> <td>1</td> </tr> <tr> <td></td> <td>海外 22</td> <td>0</td> </tr> </table> <p>受賞</p> <table border="1"> <tr> <th>賞の名称</th> <th>受賞年</th> </tr> <tr> <td>応用物理学会優秀論文賞</td> <td>2020</td> </tr> <tr> <td>Highly Cited Researchers 2020</td> <td>2020</td> </tr> <tr> <td>同上 2021</td> <td>2021</td> </tr> <tr> <td>応用物理学会業績賞</td> <td>2022</td> </tr> <tr> <td>服部報公会「報公省」</td> <td>2022</td> </tr> <tr> <td>Highly Cited Researchers 2022</td> <td>2022</td> </tr> <tr> <td>櫻井健二郎賞</td> <td>2022</td> </tr> <tr> <td>紫綬褒章</td> <td>2023</td> </tr> <tr> <td>Highly Cited Researchers 2023</td> <td>2023</td> </tr> <tr> <td>同上 2024</td> <td>2024</td> </tr> <tr> <td>市村学術賞功績賞</td> <td>2024</td> </tr> </table>	① 成果論文数	② 発展論文数	246 (76)	131 (26)		期間中	終了後	出願	国内 52	16		海外 43	8	登録	国内 28	1		海外 22	0	賞の名称	受賞年	応用物理学会優秀論文賞	2020	Highly Cited Researchers 2020	2020	同上 2021	2021	応用物理学会業績賞	2022	服部報公会「報公省」	2022	Highly Cited Researchers 2022	2022	櫻井健二郎賞	2022	紫綬褒章	2023	Highly Cited Researchers 2023	2023	同上 2024	2024	市村学術賞功績賞	2024	<p>終了後を含む本プロジェクトの成果 (要約)</p> <p>青色文字はプロジェクト期間中の成果。</p> <p>有機半導体レーザー</p> <ul style="list-style-type: none"> ・1次、2次のグレーティングから成るDFB構造とBSBCz活性層からなる電流励起型有機半導体レーザー発振の可能性を実証。 – 発振閾値: プロジェクト終了時100A/cm² – ダブルヘテロ構造化により、閾値 3mA/cm² ・発振波長幅2nm、広がり角度1.1度の指向性に優れたOLEDを開発。 ・国際共同研究に基づく量子化学シミュレーションにより、21個の新規有機レーザー活性分子を創出。 <p>室温長寿命有機蓄光デバイス</p> <ul style="list-style-type: none"> ・有機材料のみを用いた蓄光材料を世界で初めて実現。 ・ドナー/アクセプター間の電荷移動後に電荷分離状態が形成され、長寿命発光となる基本メカニズムを発見。 ・ドナーとアクセプターを含む共重合ポリマーを作製。 – ドナー/アクセプター混合膜の相分離や凝集を回避。 ・熱ルミネッセンスへの応用可能性を実証。 <p>熱活性化遅延蛍光(TADF)材料</p> <ul style="list-style-type: none"> ・深青発光材料の創出と近赤外発光の実現。 ・励起状態プロトン移動による新たなTADF分子を創出。 ・高次三重項状態の性質(エネルギー準位、分子軌道がスピンの変換速度を制御すること)を発見。 ・Rubreneホスト材料でSinglet Fission(一重項励起子開裂)とADF過程を融合して励起子生成効率112.5%を実現。 ・TADF蛍光体を重水素化して、非輻射遷移を抑制。 ・SONY社と共同して、近赤外光による3次元センシングデバイスの初期実験に成功。 <p>ペロブスカイト材料の活用</p> <ul style="list-style-type: none"> ・TADF含有発光層にペロブスカイト材料を併用することにより厚膜化と正孔輸送速度の高速化を実証。 ・ペロブスカイトから有機発光分子へのエネルギー移動を利用して高効率LEDを実現。 ・疑似2Dペロブスカイトで光励起によるレーザー発振を観測。 	<p>科学技術的な展望</p> <ul style="list-style-type: none"> ・電流励起発振時の安定性確保。 ・プロセス技術の高度化 ・ナノリングフィー、真空成膜装置 ・レーザー活性材料の探索 – ステルベン骨格の改良 – 三重項励起子を迅速に消光させる機構の導入 ・耐久性化の向上。 <ul style="list-style-type: none"> ・有機蓄光の電荷分離および蓄積過程の課題。= 無機蓄光材料の賦活剤同様のキャリアトラップ機構の導入。 ・ガスバリア性や耐久性の向上。 <ul style="list-style-type: none"> ・SF効率100%の材料の開発。 ・発光量子効率100%の近赤外発光材料開発。 ・逆項間交差(RISC)速度の向上。 	<p>科学技術的および社会・経済的な波及効果</p> <ul style="list-style-type: none"> ・可視域から赤外域にわたる電流励起レーザーによるレーザー産業の拡大。 ・ディスプレイ、センシング、バイオなど広範囲に応用される新しい有機フォトニクスデバイス産業への展開。 <ul style="list-style-type: none"> ・金属フリーの特徴を活かした長残光応用分野の展開。 ・熱ルミネッセンスほかの応用分野の拡大。 <ul style="list-style-type: none"> ・有機発光デバイスへの応用という新しい発想を取り入れて、50年の歴史をもつTADFの研究を活性化。 ・学理/産業応用両面でTADFの研究開発を先導。 ・国際的な研究開発ネットワークを主導。
① 成果論文数	② 発展論文数																																															
246 (76)	131 (26)																																															
	期間中	終了後																																														
出願	国内 52	16																																														
	海外 43	8																																														
登録	国内 28	1																																														
	海外 22	0																																														
賞の名称	受賞年																																															
応用物理学会優秀論文賞	2020																																															
Highly Cited Researchers 2020	2020																																															
同上 2021	2021																																															
応用物理学会業績賞	2022																																															
服部報公会「報公省」	2022																																															
Highly Cited Researchers 2022	2022																																															
櫻井健二郎賞	2022																																															
紫綬褒章	2023																																															
Highly Cited Researchers 2023	2023																																															
同上 2024	2024																																															
市村学術賞功績賞	2024																																															
			<p>研究プロジェクトの展開</p> <ul style="list-style-type: none"> ・国際共同研究の拡大(現在16ヶ国)と国際ネットワークの形成。 ・畠山教授(京大)との共同研究の継続と、国内共同研究の拡充による、当該分野の国内基盤強化。 ・スタートアップ企業や他企業との連携による実用化開発プロジェクト。 																																													
			<p>アウトリーチ活動</p> <ul style="list-style-type: none"> ・講演会、セミナー、展示会出展による有機光半導体デバイス研究開発活動の普及。 ・引き続き被引用論文数で当該分野を先導。 ・スタートアップ企業の技術力向上とビジネス拡大の支援。 																																													

第 1 章 プロジェクトの概要

本調査の対象である ERATO「安達分子エキシトン工学」プロジェクト(以後、本プロジェクトと記載)の概要を下記に示す。

1.1 研究期間

研究期間は 2013 年 10 月～2020 年 3 月である。但し、最後の 1 年(2019 年 4 月～2020 年 3 月)は特別重点期間として継続された。

1.2 プロジェクトのねらい

本プロジェクトは、電子と正孔の束縛状態である励起子(エキシトン)の有機半導体中でのふるまいを制御して効率的な発光に結び付ける分子エキシトン工学の学理の確立と、それによる革新的有機光デバイス、電流励起有機半導体レーザーの創製をねらいとした。

研究総括の安達は、2009 年 10 月から 2013 年 3 月までに実施した内閣府の最先端研究開発支援プログラム(FIRST)プロジェクト(最先端研究開発プログラム「スーパー有機 EL デバイスとその革新的材料への挑戦」)の研究期間中、2012 年に熱活性化遅延蛍光(Thermally Activated Delayed Fluorescence : TADF)を利用した高効率発光に成功した。本プロジェクトは、未だ実現されていない電流励起有機半導体レーザー等の新たなデバイスの創成の観点から出口デバイスを念頭に置いた俯瞰的視野に立つ基礎研究を進めた。

1.3 研究体制

本プロジェクトでは次の 4 つの研究グループを設置し、それぞれの検討課題に取り組むとともに、研究グループ間で相互に連携しながら研究を進めた(表 1-1 参照)。

(1) 分子設計・合成グループ

有機半導体材料の中核をなす有機化合物の材料開発を行う。

(2) バイオデバイスグループ

バイオ系の新しい発光デバイスの足掛かりをみつける。

(3) 応用デバイスグループ

デバイス物性の知見とナノ微細加工技術を生かし新たな高性能有機デバイスの開発を展開する。

(4) 物性・解析グループ

物性評価の観点から、有機スピントロニクスへの応用展開や分子エキシトン制御の検討を行い、電荷移動励起状態や分子設計に不可欠な量子化学計算を行う。

さらに、将来の福岡における国際的な研究開発拠点の形成を意識し、研究者の半数以上を外国人としているのも本プロジェクトの特徴である。

表 1.1 研究グループと人員および実施場所(2020年3月終了時点)

グループ名	分子設計・合成 グループ	バイオデバイス グループ	応用デバイス グループ	物性・解析 グループ	ヘッド クォーター
実施場所	九州大学 最先端有機光エレクトロニクス研究センター (OPERA:Center for Organic Photonics and Electronics Research)				
リーダー	(嘉部 量太)	(土屋 陽一)	(松島 敏則)	(合志 憲一)	
研究員	5名	1名	9名	1名	研究総括補佐 研究推進主任 研究推進員
リサーチ アシスタント	5名	3名	10名	2名	
研究協力員	0名	0名	2名	3名	
計	11名	5名	22名	7名	4名
総計	49名				

(*) 研究総括補佐：中野谷一
研究推進主任：工藤真弓

1.4 プロジェクト終了時点での研究成果

主要な研究成果について概略は以下の通りである。

1.4.1 有機半導体レーザー

本プロジェクトの最重要課題は、電流励起有機半導体レーザー(Organic Semiconductor Laser:OSL)の発振の実現である。この実現により、可視光から赤外光にまでわたる波長可変レーザー、フレキシブル基板に実装した光集積回路などの有機エレクトロニクスの新しい領域への展開が期待された。

研究成果としては、光共振器構造として1次と2次のDFB(分布帰還型、Distributed Feedback)構造と、有機半導体活性層としてBSBCz¹薄膜層を組み込んだ電流励起有機半導体レーザーの実現した(図1.1)。活性層として単層構造を用い、発光層のバルク中での励起子生成と失活を発生させ、約1kA·cm⁻²の高電流密度においても外部量子効率を一定値に保持しRolloffの抑制に成功、また電流密度が約600A·cm⁻²付近から狭帯域スペクトル(スペクトル半値幅として0.2nm以下)と増強された発光強度が得られた。また、スロープ効率は0.31%だった。

本プロジェクト終了までにレーザー発振の兆候をつかんだが、素子寿命が短く、終了後の課題として、耐久性が高く三重項寿命が短い新規レーザー分子の創製、Q値の高い光共振器構造の形成、一重項-三重項励起子相互作用による発光効率低下の抑制、励起三重項状態吸収による光損失の抑制など、またナノリソグラフィ技術を中心とした製造プロセスの改良による、さらに性能の優れたデバイスの安定的な製造という課題が残った。

¹ 4,4'-ビス[(N-カルバゾール)スチリル]ビフェニル

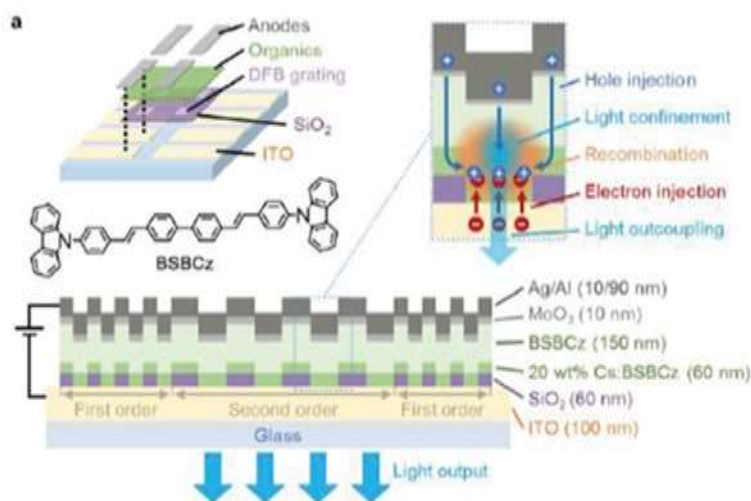


図 1.1 電流励起型有機半導体レーザーのデバイス構造の概念図²
 (左中段は発光体である BSBCz の化学構造。最下段は DFB 構造の断面概念図。)

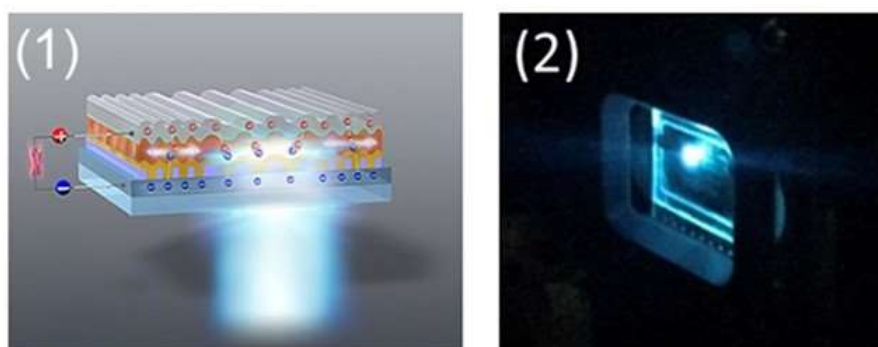


図 1.2 電流励起型有機半導体レーザーの(1)発光の概念図と(2)発光の様子³

1.4.2 室温長寿命有機蓄光

本プロジェクトでは、電子ドナーの TMB⁴分子と電子アクセプターの PPT⁵分子の混合膜で長寿命発光(室温で発光継続時間 1 時間)を観測し、有機材料のみを用いた蓄光材料を世界で初めて実現した。この有機蓄光材料は、室温下で溶液から成膜可能、無機蓄光材料に不可欠のレアメタルを必要としない、有機材料の分子設計によって透明性、柔軟性や発光色の制御が可能の特徴を有する。また、熱活性化遅延蛍光(TADF)も示し、各発光材料の三重項励起準位によって発光機構が変化することを見出した。

さらに、ドナー分子とアクセプター分子の間での電荷移動後に電荷分離状態が形成され、その結果として発光性再結合の時定数が著しく長くなることがこの長寿命発光の基本メカ

² ERATO「安達分子エキシトン工学プロジェクト」研究終了報告書、p. 55.

³ 九州大学、科学技術振興機構(JST)、九州先端科学技術研究所、株式会社 KOARA Tech. プレスリリース(2019年5月31日)「電流励起型有機半導体レーザーダイオードの実現」。

⁴ N, N, N', N'-テトラメチルベジジン

⁵ 2, 8-ビス(ジフェニル-フォスフォルル)ジベンゾ[b, d]チオフェン

ニズムであることを見出した。分子間電荷移動と電荷分離・再結合を用いる長寿命発光は、室温で動作する蓄光材料に直結する新規な過程である。これに蛍光分子を添加して電荷トラップによる高性能化を実現した。

ただし、無機蓄光材料に比べて発光効率が低く、酸素による消光など解決すべき課題が残った。

1.4.3 TADF 材料の開発

TADF 材料は一般的に電荷移動状態(CT)型励起状態を形成するため、色純度の高い青色 TADF 分子の開発は困難とされてきた。しかし、その分子骨格を精密に設計することで、単純かつ安定な骨格を用いながら、優れた発光特性を示す深青発光材料の創出および耐久性の高い青色 OLED を実現した。

他方、TADF 分子のドナー-アクセプター構造(D-A 型分子)に加え分子会合により、発光波長は長波長シフトし、近年ニーズが高まっている近赤外(Near Infrared:NIR)発光を可能にした。

さらに、励起状態プロトン移動(Excited-state Intramolecular Proton Transfer :ESIPT)が TADF 発現の新たな分子設計指針となることを見出した。

また、TADF 発現の学理的な面では、従来、一重項励起状態と三重項励起状態間のエネルギー差(ΔE_{ST})の大きさに依存して逆項間交差が決定されると考えられていたが、 ΔE_{ST} だけでなく、高次三重項励起状態のエネルギー準位とその分子軌道の性質が、有機分子におけるスピン変換過程で重要であることを解明した。こうした成果により、スピン変換速度が制御された新たな分子群の設計が可能となった。

1.4.4 Singlet Fissionによる高効率 OLED

本プロジェクトでは、燐光材料や TADF 材料を用いることによって励起子の生成効率を理論限界値である 100%を目指した。一重項励起子開裂(Singlet Fission:SF)過程⁶を適用することで励起子生成効率が 100%を超える OLED 素子を実現すると考え、研究を展開した。その第一歩として、SF を示す有機半導体分子(ruburen:ErQ³)を OLED の発光層中のホスト材料として用いることで、SF 過程と TADF 過程を融合し、励起子生成効率 112.5%に相当する NIR 発光を世界で初めて実現した⁷。

1.4.5 ペロブスカイト材料の活用

金属ハライドペロブスカイトを用いて、様々な半導体デバイスへの応用に取り組んだ。太陽電池を高耐久性化させるとともに、疑似太陽光照射下でのエネルギーへ変換効率は 20%を超え、半減寿命は 7.3 万時間に達した。また、高耐久性の鉛フリーペロブスカイト太

⁶ 一つの一重項励起子から二つの三重項励起子を生み出す過程。

⁷ R. Nagata, H. Nakanotani, W. J. Potscavage Jr., and C. Adachi, Adv. Mater., 30 (2018), 1801484.

陽電池を実現した。また、通常のペロブスカイト太陽電池が 60°C付近で相転移して劣化するのに対して、相転移が見られない高熱的安定性ペロブスカイト太陽電池を実現した。

製造プロセスを最適化し、スピコート膜で作製した電界効果トランジスタでは、最大で $26\text{cm}^2\cdot\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ の高いキャリア移動度を得た。

さらに、最適なエネルギーレベルをもつ有機アミンを選択することにより、ペロブスカイト LED の発光効率を約 4 倍向上させた。さらに高電流密度の注入およびレーザー発振閾値の低減、ペロブスカイトから有機発光分子へのエネルギー移動を利用して高効率 LED を実現した。また高いキャリア移動度のペロブスカイトをキャリア輸送層に用いて OLED の厚膜化に成功した。輸送層の膜厚は従来の常識よりも 10 倍厚い $1\mu\text{m}$ であるが、高移動度であるために十分な発光強度が得られ、耐久性も向上した。

第 2 章 プロジェクト終了から現在に至る状況

2.1 追跡調査について

2.1.1 調査方法

調査は、基礎データとして論文・特許・受賞他は各種データベースを用いて行い、またプロジェクト関係者へのインタビューを行った。

(1) 基礎データ調査の方法

研究総括(一部グループリーダーも含む)を基本的に対象とした。利用したデータベースと調査範囲等を下記に記す。

①競争的研究資金の獲得状況

調査対象者の所属する研究室や本人の WEB サイトおよびデータベースとして KAKEN 科学研究費助成事業(科研費)等の競争的研究資金に関する検索サイト、補助的に WEB 検索サイトを利用し、調査対象者(研究総括、グループリーダー)が当該研究助成金の研究代表者でかつ、競争的研究資金の総額が 1 千万円/件以上のものを抽出した。

②論文

本プロジェクト期間中の成果論文は、以下 2 つのどちらかの条件に合うものをプロジェクト期間中の成果論文(①)と定義する。

- (a)プロジェクトの終了報告書に成果論文としてリストアップされている論文(in press と表示されて終了後発表されたものを含む)。
- (b)2013 年 10 月以降 2020 年 12 月までに研究総括が著者となっている論文であり、Scopus の項目の助成金もしくは著者アドレスに当該 ERATO の記載のある論文。

本プロジェクト終了後の論文は、プロジェクト終了年である 2020 年については成果論文(①)とマークされなかったもの、および 2021 年以降検索時点までに発表された論文とした。

プロジェクト終了後の論文は、「成果論文(①)」を引用しているものを発展論文(②)、それ以外を展開論文(③)に分類した。

データベースは、主としてエルゼビア社の Scopus を利用し、文献タイプは Book(Book chapter、Book review)、Editorial、Erratum を除く全文献タイプとした。

各論文についての評価指標の一つである FWCI(Field-Weighted Citation Impact)⁸、および Journal の指標となる CiteScore についても収集した。

⁸ 1 文献あたりの被引用数を世界平均(年別・分野別・文献タイプ別に算出)で割った数値。

③特許の出願・登録状況

本プロジェクト期間中の特許は、プロジェクト終了報告書の成果リスト記載の特許とした。本プロジェクト終了後の特許は2020年4月以降に出願されかつ、研究総括が発明者の特許とし、データベースは主にPatentSQUAREを利用し、補助的に特許情報プラットフォームとEspacenetを用い、国内外の登録状況などを確認した。

④受賞

本プロジェクト期間中、終了後の受賞を調査対象者(研究総括、グループリーダー)の所属する研究室や本人のWEBサイトの調査、を検索サイトで調査を行い、研究総括に関する受賞のみをリストにした。

⑤スタートアップ情報

インターネット検索やベンチャー情報の記載のあるデータベースを用いて検索した。

⑥参加研究者の動静

終了報告書を基にプロジェクト参加研究者を特定し、プロジェクト参加時の職位および、終了時の職位、現在の職位の調査を行った。

(2)インタビュー調査の方法

インタビュー調査は研究総括および本プロジェクトの主なメンバー数名に実施した。

2.2 プロジェクトの終了後の状況に関する基礎データ

2.2.1 競争的研究資金の獲得状況

本プロジェクト期間中から現在までのプロジェクト参加研究者も含めた競争的研究資金の獲得状況について以下に示す。

安達は、本プロジェクトの研究成果をさらに発展させる目的で、科研費の挑戦的研究(開拓)、特別推進研究、国際共同研究加速基金、日本学術振興会の学術国際交流事業である研究拠点形成事業(A.先端拠点形成型)、JSTのA-STEP、CREST「原子・分子の自在配列・配向技術と分子システム機能」研究領域[研究代表者：京都大学 教授 畠山琢次(安達は主たる共同研究者)]の競争的研究資金を得た。

グループリーダーを務めた嘉部は、沖縄科学技術大学院大学(OIST)へ異動したのち、科研費基盤研究(B)2件、松島と合志もそれぞれ同1件を獲得し、本プロジェクトの研究終了後も研究を推進している。

2.2.2 論文の発表状況

成果論文および発展論文の全論文の Field-Weighted Outputs in Top Citation

Percentiles(FWCI TOP%)⁹の論文数を表 2-1 に示す。

表 2.1 プロジェクトの論文投稿状況一覧

成果論文数	発展論文数	FWCI Top 0.1%		FWCI Top 1%		FWCI Top 10%	
		成果論文	発展論文	成果論文	発展論文	成果論文	発展論文
246	131	1	2	19	4	76	26

検索日：2024年4月17日
再検索日：2024年7月1日
指標取得日：2024年8月1日時点

(1)本プロジェクト成果に直接関わる論文

本プロジェクトの成果論文数は246報、その中で76報がFWCI Top10%の論文である。また、76報のうち29報が、国際的に評価の高い論文誌¹⁰に掲載されている。本プロジェクトの第一目標である電流励起有機半導体レーザーに関しては、主要論文として以下の3つがあげられる。

①Top1.739%の“Toward continuous-wave operation of organic semiconductor lasers”, (Science Advances, 3 (2017), e1602570.):DFB構造の電流励起連続発振有機半導体レーザーの設計指標を与えた論文。被引用数が多く、また年あたり20~30報で被引用数が増加している(図2.2)。

②Top0.164%の“High-efficiency electroluminescence and amplified spontaneous emission from a thermally activated delayed fluorescent near-infrared emitter”, (Nature Photonics, 12 (2018), 98.):DFB共振器構造にすることにより自然放射増幅光(Amplified Spontaneous Emission, ASE)を観測した論文である。図2.1に本論文の被引用数を示したが、年に20報程度の割合で増加している。

③Top0.268%の“Indication of current-injection lasing from an organic semiconductor”, (Applied Physics Express, 12 (2019), 061010.):②に即して試作したDFB構造素子を電流励起して得られた光が、レーザー光であることを示唆する実証を報告した論文で、安達らの一連の論文として初めてレーザー発振の実証を示唆した¹¹。図2-2に本論文の年毎の被引用数を示したが、年に30~40報の割合で増加している。

⁹ 出版年別のFWCIが世界全体の上位X%に含まれる文献数/率。

¹⁰ Nature, Nature Photonics, Nature Materials, Journal of Physical Chemistry, Applied Physics Lettersなどを指す。

¹¹ JST、KOALA社、九州大学のプレスリリース(2019年5月31日)に、「DFB型共振器構造を埋め込むことで、レーザー発振が可能であることを初めて実証しました」と書かれている。

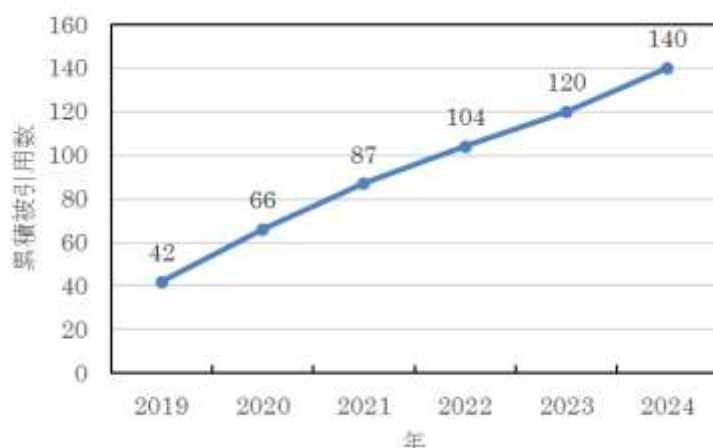


図 2.1 Science Advances, vol. 3(2017), e1602570 の被引用数

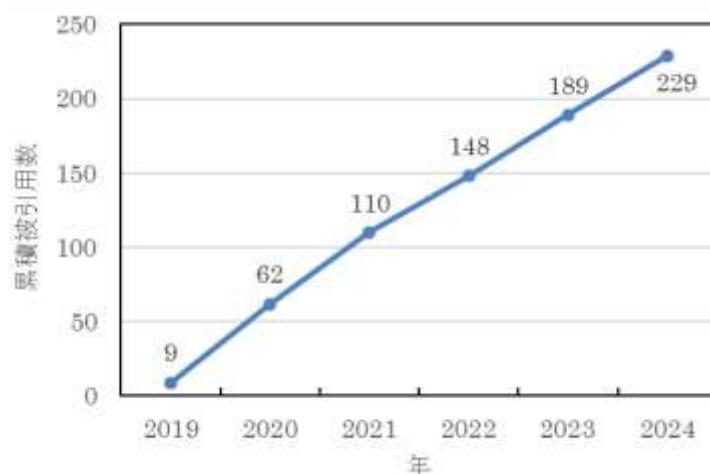


図 2.2 Applied Physics Express, vol. 12 (2019), 061010 の被引用数

(2)本プロジェクトの成果の発展、または本プロジェクトから波及した研究内容の文献

本プロジェクト終了後に発表された発展論文の数は 131 報となり、研究終了後も順調に論文が発表されている。この内、26 報が FWCI Top10%の論文となっている。なお、発展論文の研究内容として、近赤外光や色純度の高い有機 LED に関する発表が多く、被引用数の多い Top10%の論文の中に電流励起有機半導体レーザーに関するものはない。

Top3.996%の“A Materials Acceleration Platform for Organic Laser Discovery”, Advanced Materials, 35 (2023) 2207070. は、カナダとのグループを含めた国際共同研究によるもので、量子化学的シミュレーションによりスチルベン骨格をもつ誘導体の中からレーザー発振性能の高い化合物を見出した研究成果である。

2.2.3 特許の出願・公開・登録状況

本プロジェクトの期間中と終了後の調査時点に至るまでの特許出願状況を表 2.2 に示す。

表 2.2 プロジェクトの特許出願状況一覧

	出願件数		登録件数	
	国内	海外 ¹²	国内	海外
プロジェクト期間中	52	43	28	22
プロジェクト終了後	16	8	1	0
合計	68	51	29	22

検索日：2023年5月7日
 確認/再検索：2024年9月12日

これらの中で、特願 2019-515680(電流注入有機半導体レーザーダイオード、その作製方法及びプログラム)は特許登録された(特許第 7162306 号)。また、特願 2022-162035(電流励起有機半導体レーザーダイオード、その作成方法及びプログラム)も、すでに権利化された(特許第 7474430 号)。

2.2.4 受賞状況

安達は、本プロジェクト以前からのさまざまなプロジェクトも含む研究成果ならびに材料化学、光化学、物性物理の学理の進化に対して、2023 年度に内閣府より紫綬褒章が授与された。

また、2022 年度に応用物理学会より授与された業績賞では、「応用物理学に関連する研究分野において、発明、発見あるいは研究・開発を通して、学問分野や産業分野へ特別大きな貢献をなした業績(研究業績)と応用物理学に関連する学生・若手研究開発者の育成・啓発、あるいは科学技術に関する青少年・一般人への啓発に特別に大きく貢献した業績(教育業績)」¹³と評価されている。2024 年度は、「高効率熱活性化遅延蛍光分子の創製と OLED への展開」の研究業績において市村学術賞功績賞を受賞している¹⁴。

さらに、クラリベイト・アナリティクス社¹⁵は世界中で引用された回数の多い論文の著者を研究分野ごとに選出した Highly Cited Researchers(高被引用論文著者)を発表しているが、安達は 2024 年度物理学部門の Highly Cited Researchers に選ばれ¹⁶、2018 年以來の 7 年連続の選出となった。

¹² 海外は国内出願に優先権主張をかけて、海外に出願した特許を示す。

¹³ <https://www.jsap.or.jp/outstanding-achievement-award> (応用物理学会ホームページ)

¹⁴ <https://www.cstf.kyushu-u.ac.jp/~adachilab/lab/?p=18517>

¹⁵ イギリス(ロンドン)に本社を置く学術情報分析・サービス会社(<https://clarivate.com/ja/>)。同社は、全世界で公開された学術論文を分析し、それぞれの専門分野でトップ 1%の被引用数の論文著者を、Highly Cited Researchers として選出している。

¹⁶ 九州大学ホームページ・トピックス(2024年11月22日): <https://www.kyushu-u.ac.jp/ja/topics/view/2159>

2.2.5 スタートアップの設立状況

(1) 株式会社 Kyulux (以下、Kyulux 社)

表 2.3 Kyulux 社の概要

会社名	株式会社 Kyulux ¹⁷
設立	2015 年 03 月 09 日
代表取締役社長	中野 伸之
資本金	2,235,000,000 円(2023 年 11 月末)
従業員数	100 人 (連結 2024 年 10 月末時点)

Kyulux 社は、有機 EL ディスプレイや照明に用いる次世代材料の開発に取り組んでいる九州大学発のスタートアップ企業である。安達が開発した「熱活性化遅延蛍光(TADF)」を活用し高効率、高純度発光色、低コスト、高輝度発光、低消費電力を実現した HyperfluorescenceTM¹⁸ と呼ばれる発光メカニズムを開発している (FIRST の研究成果)。

同社は、2015 年 4 月に九州大学らと TADF 材料及び HyperfluorescenceTM の基本特許について実施許諾契約を締結し、その実用化を進めてきた。さらに、基本特許以外にも契約を締結し、HyperfluorescenceTM 技術を Kyulux 社に集結した¹⁹。

なお、同社が、ディスプレイ分野で権威ある国際会議 (Society of Information Display, SID Display Week 2021) で発表した “HyperfluorescenceTM: Excel the Performance, Create the Future”²⁰ は、1 年間で最もダウンロードされた論文に選出された²¹。

さらに、同社は、日本曹達株式会社と次世代有機 EL 発光材料である TADF 材料に関する量産体制構築に向けた資本業務提携契約を締結し、世界初となる TADF の量産と安定した供給体制を実現していくとしている²²。

また、Kyulux 社には、Samsung ディスプレイ、LG ディスプレイも出資している。SONY 株式会社は、「TADF/HyperfluorescenceTM で有機 EL の未来を創る」を目標として、Kyulux 社に投資し、HyperfluorescenceTM の実用化に挑戦している²³。

2022 年度の売り上げは 14,700 千円であった。

¹⁷ <https://www.kyulux.com/?lang=ja>

¹⁸ 蛍光材料を発光材料とする有機 EL 素子の発光層中に、TADF 材料をアシストドーパントとしてドーピングすることにより、蛍光分子からの EL 発光効率を究極の 100% まで向上させる技術。

¹⁹ JST、Kyulux 社、九州大学共同プレスリリース (2016 年 2 月 25 日)。

²⁰ 著者は S. H. Cheng, A. Endo, H. Kakizoe, S. Otsu, Y. Suzuki, M. Yamashita, and J. Adachi.

²¹ Kyulux 社ホームページ: <https://www.kyulux.com/kyulux-com-kyuluxs-article-selected-as-one-of-the-top-downloaded-articles-in-the-2021-sid-journal/?lang=ja>

²² Kyulux 社ニュースリリース (2024 年 11 月 20 日): <https://www.kyulux.com/kyulux-nippon-soda-capital-business-alliance/?lang=ja>

²³ Sony Acceleration Platform インタビュー記事 (2022 年 12 月 22 日): <https://sony-startup-acceleration-program.com/article944.html>

(2)株式会社 KOALA Tech (以下、KOALA 社)

表 2.4 KOALA 社の概要

会社名	株式会社 KOALA Tech ²⁴
設立	2019 年 03 月 22 日
代表取締役 CEO	ベンシュイク・ファティマ (Fatima Bencheikh)
資本金	100,000,000 円(2024 年 2 月 19 日)
従業員数	19 人

KOALA Tech 社は、九州大学で世界に先駆けて実現された『有機半導体レーザーダイオード(OSLD)』の実用化を目指すスタートアップ企業である。

同社では、CTO 兼 CEO を Dr.Fatima Bencheikh が担い、外国人も積極的に雇用し、国際的に発展する企業を目指している。

図 2-3 に、KOALA 社の売上推移を示す。設立 3 年目に売り上げは 10,000 千円規模になっている。

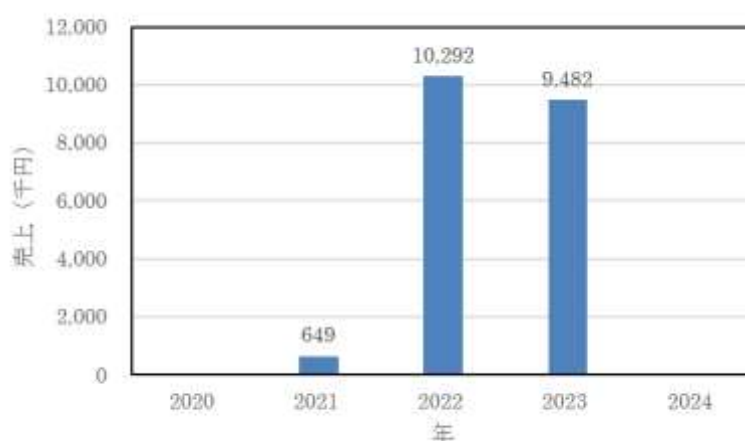


図 2.3 KOALA 社の売上推移

(3)OPERA Solutions 株式会社(以下、OPERA Solutions 社)

表 2.5 OPERA Solutions 株式会社の概要

会社名	OPERA Solutions 株式会社 ²⁵
設立	2020 年 11 月 16 日
代表取締役 CEO	原田 健太郎
資本金	8,000,000 円(2021 年 4 月)
従業員数	3 人

OPERA Solutions 社は、対企業向けに新規コンセプトに基づく有機・無機ハイブリッドエレクトロニクスモデル構築と試作、また信頼性評価サービスの技術支援を行っている。

²⁴ <https://www.koalatech.co.jp/>

²⁵ <https://www.opera-solutions.com/>

図 2.4 に、OPERA Solutions 社の売上推移を示す。年度によって増減はあるものの、年商 170 百万円規模に成長しつつある。

同社は、設立当初より公益財団法人福岡県産業・科学技術振興財団や株式会社東レリサーチセンターと業務提携契約を締結し、高付加価値サービスの創出ならびに市場と顧客の開拓に努めている。近年では、山形大学有機エレクトロニクスオープンイノベーションセンター(INOEL、米沢市)と共同研究契約を締結し、INOEL と協業しながら有機エレクトロニクスデバイスや材料の製品開発に取り組む企業を側面からサポートする体制をとっている²⁶。

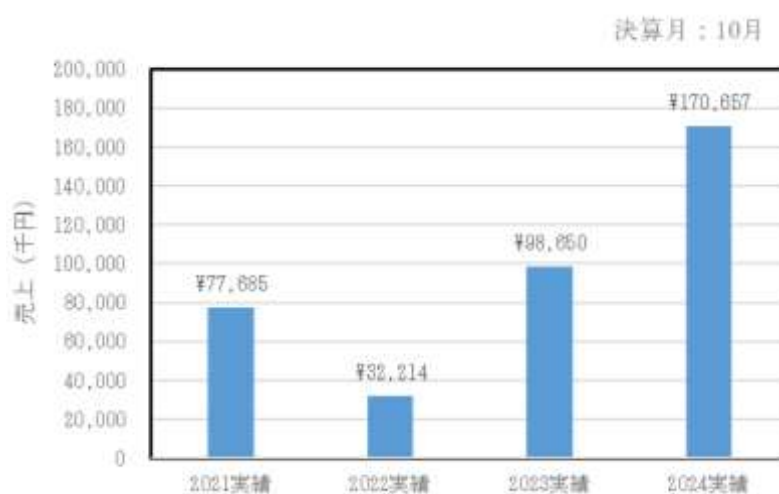


図 2.4 OPERA Solutions 社の売上げ推移

2.3 プロジェクト終了後の発展状況

2.3.1 有機半導体レーザーに関する研究

(1) 製造プロセス(エッチング)の安定性向上

本プロジェクト終了後、エッチングを含むデバイス製造の検討は KOALA 社が主体となつて行ってきた。

有機層を製膜するプラズマエッチング装置を九州大学内の最先端有機光エレクトロニクス研究センター(Center for Organic Photonics and Electronics Research:OPERA)²⁷に導入し、製造技術及び動作特性の安定性について検討している。なお、デバイス性能の発現再現性の改善のため現在はアウトソーシングして専門企業の装置を用いており EB(Electron Beam、電子線)リソグラフィーを行っている。

²⁶ OPERA Solutions 社ホームページ: <https://www.opera-solutions.com/> 東日本 rd-lab/

²⁷ <https://www.cstf.kyushu-u.ac.jp/~adachilab/opera-c/>

(2) 素子特性の改良

①素子構造設計

本プロジェクト終了時、レーザー発振閾値として約 $100\text{A}\cdot\text{cm}^{-2}$ の電流駆動の可能性が見えていたが、光閉じ込めを強化してレーザー発振閾値を低くすることが課題であった。この課題へのアプローチとして、素子構造としてDFB構造が最適と判断し検討を進めている。

DFB構造はブラッグ回折条件に基づいて設計するが、本プロジェクト期間中に考案した1次の回折モードに寄与するグレーティング領域と2次の回折モードに寄与するグレーティング領域を形成したmixed-modeのレーザー共振器において、mixed-modeの1次と2次を組み合わせた共振器(Super Cell)のグレーティング数を変えて出射光の最適化条件を検討した²⁸。出射角度は1次光と2次光のグレーティング数比によって決まり、その比が4:200のときに²⁹共振方向に対してほぼ垂直にレーザー光が出射した³⁰。

発振効率を向上させる上では、光閉じ込めを強化する必要がある。最近 KOALA 社は、独自の材料と素子設計を組み合わせることで、発散角度 1.1° という高い直進性、スペクトル幅 2.5nm という高い色純度を同時に達成することに成功した³¹。素子構造をホモ接合構造からダブルヘテロ接合構造にすることにより、発光層が電子輸送層(ETL)と正孔輸送層(HTL)に挟まれてキャリア再結合領域が狭くなり、再結合効率がホモ結合よりも高くなるため、発光層(励起子再結合領域)を狭くして光閉じ込めが強化される³²。注入電流が低く発光スペクトルが広い領域から発光スペクトルが尖鋭になる点を閾値とした場合、電流密度 $3\text{mA}\cdot\text{cm}^{-2}$ 、波長 450nm での半値幅は 2nm 、広がり角度は 1.1° であった³³。発光スペクトル半値幅が狭く(=色純度が高い)指向性に優れた新しい発光デバイスとして、将来の新たなOLEDディスプレイにつながることを期待している³⁴。

②劣化対策

素子のもう一つの大きな課題は、耐久性(有機半導体の劣化対策)であった。有機半導体は水と酸素を徹底的に除去し、完全に封止することによって劣化を防ぐことができるが、本プロジェクトで用いてきた BSBCz のスチルベン骨格中にある二重結合が分子結合開裂点となって劣化することは防ぐことができない。しかし、これまでのところ、スチルベン系

²⁸ H. Park, S. Alasv and Yazdan, F. Bencheikh, R. Komatsu, S. Yokoyama, and C. Adachi, J. Appl. Phys. 132, (2022) 203101.

²⁹ 1次光のグレーティング数を4に固定し、2次光のグレーティング数を変えたので、このように表している。

³⁰ ただし、この時は電流励起ではなく光励起であったため、本プロジェクト終了時点(電流励起で約 $100\text{A}/\text{cm}^2$ のレーザー発振閾値)からの発展は明らかでない。

³¹ <https://www.koalatech.co.jp/2937/>

³² M. Auffray, A. Mikaeilli, A. Mohammed, T. Fukuta, T. Yoshizumi, H. Ishida, and K. Tsujiki, J. Soc. Inf. Display, 32, (2024), 279-288. 本学会論文は、SID Display Week 2024でDistinguished Paper Award(優秀論文賞)を受賞した。

³³ なお、得られた出射光がレーザー光であるか否かについては、この発表では明確に言及していない。

³⁴ 特許第7474430号では「レーザー発振している」としている。

材料のレーザー発振閾値が他の材料に比べて圧倒的に低く、現在も主力材料として用いている。

また、無機光半導体のような結晶性材料であれば結晶欠陥が劣化を促進するが、有機半導体はアモルファスなので、無機材料のような劣化モードはほとんど起こらない。ただし、アモルファスではあっても分子間の隙間に空隙(ボイド)を形成し、これが劣化につながる。大きさの異なる分子の混合によりボイド形成のないアモルファス相が生成し、劣化を抑制できることがわかった。さらに、有機半導体のガラス転移点温度よりも少しだけ低い温度で蒸着すると、密度の高いアモルファス相が形成し、劣化耐性が向上することも見出した³⁵。

(3) レーザー活性材料の探索

2019年、JSPS Core to Core(研究拠点形成事業 A. 先端拠点形成型: 5年間)に採択され、本プロジェクト終了後も継続して主に英国(St. Andrews 大学)、オーストラリア(クイーンズランド大学)、フランス(ソルボンヌ大学)と協働し、新規レーザー材料への新たな展開を進めてきた。また、カナダ(トロント大学、バンクーバー大学)、米国(イリノイ大学)、英国(グラスゴー大学)、日本(九州大学)とは、レーザー材料の探索を加速するため、各拠点がもつ専門知識や研究インフラをネットワーク化し、材料合成実験結果は機械学習させ、また量子化学シミュレーションを統合して次の材料設計にフィードバックすることで材料の絞り込みを進めている。その結果、光増幅断面積が改善された21個の新規有機レーザー分子の創出に至った^{36,37}。

スチルベン系以外の材料探索も検討しており、京都大学の畠山琢次教授との共同研究で、電子ドナー基だけからなるヘキサカルバゾリルベンゼン誘導体がTADF蛍光体となることを見出した³⁸。また、緑色の色純度が高いTADF材料を見出した³⁹。

³⁵ 安達インタビュー

³⁶ 九州大学プレスリリース(2024年5月17日)「非局在、非同期、閉ループによる有機レーザー発光分子の発見」: https://www.kyushu-u.ac.jp/f/57323/24_0517_01.pdf

³⁷ F. Strieth-Kalthoff, H. Hao, V. Rathore, J. Derasp, T. Gaudin, N. H. Angello, M. Seifrid, Ekaterina Trushina, 6 Mason Guy, J. Liu, X. Tang, M. Mamada, W. Wang, T. Tsagaantsooj, C. Lavigne, R. Pollice, T. C. Wu, K. Hotta, L. Bodo, S. Li, M. Haddadnia, A. Wołos, R. Roszak, Cher-Tian Ser, C. Bozal-Ginesta, R. J. Hickman, Jenya Vestfrid, A. Aguilar-Granda, E. L. Klimareva, R. C. Sigerson, W. Hou, D. Gahler, S. Lach, A. Warzybok, O. Borodin, S. Rohrbach, B. Sanchez-Lengeling, C. Adachi, B. A. Grzybowski, L. Cronin, J. E. Hein, M. D. Burke, and A. Aspuru-Guzikl, *Science*, 384, (2024), 6697.

³⁸ M. Mamada, S. Yada, M. Hayakawa, R. Uchida, H. Katagiri, T. Hatakeyama, and C. Adachi, *Commun. Chem.* 7, (2024), 212.

³⁹ Y. T. Lee, C. Y. Chan, N. Matsuno, S. Uemura, S. Oda, M. Kondo, R. W. Weerasinghe, Y. Hu, G. N. Iswara Lestanto, Y. Tsuchiya, Y. Li, T. Hatakeyama, and C. Adachi, *Nat. Commun.*, 15, (2024), 3174.

2.3.2 室温長寿命蓄光に関する研究

プロジェクト期間中、有機蓄光材料の研究は嘉部(現沖縄科学技術大学院大学(OIST)、准教授)が中心となって進められた。嘉部は2019年にOISTに異動後も研究展開を進めており進展を以下に示した。

(1) 発光強度の向上

これまでに蓄光発光が確認された TPP⁴⁰分子に加えて、様々な光触媒材料について電子ドナーまたはアクセプターへの応用を検討した。電荷移動が可能となる適切なホスト材料を選択した場合、いくつかの光触媒分子で蓄光の確認、またレドックス安定な光触媒の蓄光への有用性が確認された。この結果をもとに、ドナーユニットとアクセプターユニットのランダム共重合ポリマーを作製した。通常、ドナー・アクセプター低分子の混合物の場合、相溶性や融点の差による成膜プロセスの影響やドナー・アクセプター分子の相分離や凝集の可能性があるが、ポリマー型の場合は、これらの問題点を解決可能である。ドナー・アクセプターを含むポリマー単体の発光特性を確認した結果、蓄光発光を確認することができた。また膜の均一性から熱物性解析にも適しており、低分子混合膜に比べても良好な発光特性を観測することができ、トラップ深さの解析や発光メカニズムの解明にもつながった^{41,42}。さらに、本プロジェクト終了時点では無機蓄光材料の1/100程度の発光強度が、その後10倍程度に高められた。最近では、無機蓄光材同等の性能を示唆する結果も得られた⁴³。

(2) 熱ルミネッセンス

さまざまな可能性の中で、熱ルミネッセンス(Thermal Luminescence:TL)は、特徴的な応用になるかも知れない。

m-MTDATA⁴⁴(1mol%)とPPT⁴⁵(99mol%)とを混合して熔融キャストした後に加熱し得られたフィルムに波長340nmのLED光を30秒間照射した後、5K・min⁻¹の昇温速度で加熱するとTLが観測され⁴⁶、新しいTL材料としての可能性を示した。

⁴⁰ 1,3,5-トリフェニルピリリウム

⁴¹ Z. Lin, M. Li, R. Yoshioka, R. Oyama, and R. Kabe, *Angew. Chem. Int. Ed.*, 7, (2023), 202314500.

⁴² 科研費, 21H02020, 「光誘起電荷分離効率化による高効率有機蓄光システムの実現」

⁴³ Z. Lin, J. Ye, S. Shinohara, Y. Tanaka, R. Yoshioka, C.Y. Chan, Y.T. Lee, X. Tang, K. Mitrofanov, K. Wang, H. Ouchi, Y. S. L. V. Narayana, H. Ishii, X.H. Zhang, C. Adachi, X. K. Chen, and R. Kabe, *ChemRxiv*, 15 February (2024) version2.

⁴⁴ 4,4',4"-トリス[フェニル(m-アミノ)-トリフェニルアミン

⁴⁵ 2,8-ビス(ジフェニル-フォスフォルル)ジベンゾ[b,d]チオフェン

⁴⁶ K. Jinnai, N. Nishimura, C. Adachi, and R. Kabe, *Nanoscale*, 13 (2021), 8414.

2.3.3 熱活性化遅延蛍光 (TADF)に関する研究

TADF性能の向上に関しては、本プロジェクト以降も進めている。例えば、TADF 蛍光体を重水素化することにより、非輻射遷移を抑制して、効率よく近赤外光を発することを見出した⁴⁷。

応用面で、近年、さまざまな分野で赤外光 (IR)、近赤外光 (NIR) へのニーズが高まっているが、この要求を満たす発光デバイスはほとんどない。その点、TADF-OLED は波長の選択自由度が高く、注目されている。SONY と TADF 蛍光体で NIR を出射させる OLED (NIR-OLED) を用いた 3 次元センシングデバイスの開発を進めている⁴⁸。

シリコン基板上に形成した CMOS (Complementary Metal Oxide Semiconductor、相補型金属酸化膜半導体) ベースの高精細バックプレーンに NIR-OLED を集積化し、定電流 $100\text{mA}\cdot\text{cm}^{-2}$ で駆動したとき、得られた NIR の波長は 930nm 、光出力は $3.8\text{W}\cdot\text{Sr}^{-1}\text{m}^{-2}$ 、半値幅 (FWHM) は 85nm であった。センサーは $7\mu\text{m}$ ピッチで 230,400 画素。図 2.5 に、同センサーを用いて 3 次元表面センシングした事例を示す (左から桜の花、小鳥、色鉛筆で、いずれも実物ではなく実験用のモデル(モック)である)。



図 2.5 NIR-OLED を用いた 3 次元表面センシングによって得られた画像⁴⁸。

2.3.4 ペロブスカイト材料の活用

2021 年度以降にペロブスカイト材料を用いた発光の一つとして、NMA⁴⁹からなる疑似 2D ペロブスカイトで光励起によるレーザー発振を観測した。この場合、高輝度エキシトンが他のエキシトンや電荷キャリアによって消光されにくく、また欠陥準位が浅くて非発光再結合が起こりにくい⁵⁰。

さらに、同ペロブスカイト材料を用いて電流励起 DFB 型半導体レーザー発振を試みたが、デバイスの不完全性により光損失が増大してしまったため、レーザー発振閾値の理論値が $\sim 2.640\text{A}\cdot\text{cm}^{-2}$ に対して実デバイスでの実験値は $\sim 2.04\text{kA}\cdot\text{cm}^{-2}$ と高かった⁵¹。

⁴⁷ Q. Yu, Y. Tamura, H. Nakanotani, M. Mamada, and C. Adachi, *Adv. Opt. Mat.*, 12 (2024), 2400932.

⁴⁸ N. Yamada, H. Nakanotani, A. Takagi, M. Mamada, U. Balijapalli, T. Ichikawa, E. Hirata, S. Kaizu, A. Tanaka, K. Itonaga, and C. Adachi, *Sci. Adv.*, 10 (2024), 6583.

⁴⁹ 1-ナフチルメチルアミン

⁵⁰ R. Nasu, X. Tang, S. Watanabe, C. A. M. Senevirathne, G. Tumen-Ulzii, T. Matsushima, and C. Adachi, *Adv. Func. Mat.*, 33 (2023), 2301794.

⁵¹ R. Nasu, X. Tang, A. M. C. Senevirathne, T. Matsushima, and C. Adachi, *J. Phys. Chem. C*, 128 (2024), 10974.

2.4 プロジェクト参加研究者の活動状況

本プロジェクトで研究総括、研究総括補佐、グループライダー、及び海外から参加した研究者たちのプロジェクト採択時とプロジェクト終了時の動静を表 2.6 にまとめた。幅広く共同研究を行っており、外国人研究員だった多くが出身国でポジションを獲得している。

表 2.6 プロジェクト参加研究者の動静

グループ	氏名	プロジェクト参加期間	プロジェクトでの職位	採択時の職位	終了直後の職位	調査時点の職位
	安達 千波矢 (Adachi Chihaya)	2013. 12. 01- 2020. 03. 31	研究総括	九州大学応用化学部門 教授 (兼任：最先端有機光エレクトロニクス研究センター センター長 未来化学創造センター 教授)九州大学主幹教授	九州大学応用化学部門 教授 (兼任：最先端有機光エレクトロニクス研究センター センター長 未来化学創造センター 教授)九州大学主幹教授	終了直後の職位と変更なし(以下、変更がない場合には 変更なしと記載)
	中野谷 一 (Nakanotani Hajime)	2014. 04. 01- 2020. 03. 31	研究総括補佐	(財)九州先端科学技術研究所 有機光デバイス研究室 研究員 九州大学 未来化学創造センター 客員助教	九州大学大学院工学研究院 応用化学部門 准教授	変更なし
	安田 琢磨 (Yasuda Takuma)	2014. 01. 01- 2014. 09. 30	研究総括補佐	九州大学大学院工学研究院 応用化学部門 准教授	稲盛フロンティア研究センター 教授	九州大学高等研究院 教授
分子設計・合成	嘉部 量太 (Kabe Ryota)	2014. 02. 01- 2019. 07. 31	グループリーダー	日本学術振興会特別研究員 (PD) 九州大学 助教	沖縄科学技術大学院大学 准教授	変更なし
応用デバイス	松島 敏則 (Matsushima Toshinori)	2014. 03. 01- 2016. 10. 30 2016. 11. 01- 2020. 03. 31	グループリーダー	北陸先端科学技術大学院大学マテリアルサイエンス研究科 助教 九州大学 准教授	九州大学カーボンニュートラル・エネルギー国際研究所 准教授	変更なし
物性・解析	合志 憲一 (Goushi Kenichi)	2014. 04. 01- 2014. 09. 30	グループリーダー	九州大学大学院工学研究院 応用化学部門 助教	九州大学大学院工学研究院 応用化学部門 助教	変更なし
バイオデバイス	土屋 陽一 (Tsuchiya Yoichi)	2016. 03. 01- 2020. 03. 31	グループリーダー	九州大学 最先端有機光エレクトロニクス研究センター 学術研究員	九州大学 最先端有機光エレクトロニクス研究センター 特任准教授(本務)	変更なし

グループ	氏名	プロジェクト 参加期間	プロジェ クトでの 職位	採択時の職位	終了直後の職位	調査時点の職位
共同研究	細貝 拓也 (Hosokai Takuya)	2016.06.01- 2019.03.31	研究員	産業技術総合研究所 分析計測標準研究部門 研究員	産業技術総合研究所 分析計測標準研究部門 主任研究員	産業技術総合研究所 物質計測標準研究部門 主任研究員 東京理科大学 創域理工学研究科先端化学専攻 連携大学院 准教授
	Zhang Qisheng	2014.04.01- 2015.04.30	研究員	九州大学最先端有機光エレクトロニクス研究センター 准教授	浙江大学 教授(中国)	浙江虹舞科技有限公司 創業者
	Ribierre Jean-Charles	2014.03.01- 2016.10.31 2018.11.01- 2019.03.31	研究員	九州大学最先端有機光エレクトロニクス研究センター 准教授	Koala Tech Inc. CEO	Reader, School of Physics and Astronomy, University of St. Andrews
	Lee Sae Youn	2014.04.01- 2015.03.31	研究員	九州大学工学府 物質創造工学専攻 後期博士課程	Samsung Electronics Co., Ltd(韓国)	Associate Professor Department of Energy and Materials Engineering Dongguk University
電流励起型の有機半導体レーザーの実現	Sandanayaka Sangarange Don Atula	2014.05.01- 2017.10.31 2018.09.01- 2020.03.31	研究員	北陸先端科学技術大学院大学マテリアルサイエンス研究科 産学官連携研究員	Professor, Sabaragamuwa University(スリランカ)	Professor, Department of Physical Sciences and Technology, Sabaragamuwa University of Sri Lanka, Belihuloya
	Qin Chuanjiang	2014.09.01- 2019.07.31	研究員	物質・材料研究機構 ポストドク研究員	Professor, Changchun Institute of Applied Chemistry(中国)	Professor, Changchun Institute of Applied Chemistry, Chinese Academy of Sciences

2.5 第2章まとめ

本プロジェクトの主要テーマである電流励起有機半導体レーザーを中心に、室温長寿命蓄光、TADF材料、ペロブスカイト材料の4点について、本プロジェクト終了後の発展状況を述べた。

電流励起有機半導体レーザーに関しては、本プロジェクト終了後の課題であったエッチングプロセスの改良は達成された。また、デバイス設計・製造技術検討を KOALA 社主体で進めており、半値幅が狭く指向性に優れた発光デバイスの作製に至った。

室温長寿命蓄光については、ポリマー型蓄光材料や TL への応用可能性を見出している。

TADF に関する研究では、NIR 発光を着実に進めるとともに、企業との共同研究を通じて NIR 光を用いた応用研究に展開が進んでいる。

ペロブスカイト材料については、プロジェクト終了後にペロブスカイト材料の膜厚が厚いこと、またキャリア移動度の高い点に注目し有機半導体の脆弱性を補完する材料としての研究を進めている。

第 3 章 プロジェクト成果の波及と展望

3.1 新規な理論や概念の創出

プロジェクト終了後も引き続き理論と実証の両面から研究を進めている。

例えば、Comprehensive Analytical Spin-flips (COMPASS) モデルというエネルギー準位モデルと理論計算手法を提言し、CT (Charge Transfer、電荷移動) タイプ分子の TADF の逆項間交差においてスピン変換するメカニズムの解明⁵²、また、2 個のアントラセン分子をスペーサーユニットによって結合した 6 個の二量体分子を含む 3 次元構造分子を用いて、エレクトロルミネッセンス効率を増幅する三重項-三重項消滅アップコンバージョン (TTU) の高効率化の実証⁵³などがあげられる。TADF に関するメカニズム解明および OLED 性能向上にかかわる重要な研究成果を上げている。また、2.3.1 で述べた、出射光の指向性に優れ、色純度の高い発光素子の発表は、本プロジェクトの研究成果の延長上に生まれた新しい概念を包含していると言える。

3.2 新たな研究領域や研究の潮流の形成

Thermally-Activated Delayed Fluorescence (TADF) は、1960 年に Backstrom と Sandros によって、ベンゾフェノンの三重項からのスピン禁制エネルギー移動による発光 (燐光: phosphorescence) が報告され⁵⁴、1968 年に Parker と Joyce がこの発光を “delayed fluorescence” と呼んだ⁵⁵。続いて、1971 年に Jones と Calloway が「ベンゾフェノンの最低三重項状態から熱的に一重項状態に移行したのち、発光 (蛍光: fluorescence) する」という光化学過程を提唱し、Thermally-Activated Delayed Fluorescence という術語を用いた⁵⁶。

図 3-1 に、論文中に “thermally-activated delayed fluorescence” が論文タイトル、抄録、キーワードに入っている論文数の年次推移を示す。2012 年頃までは論文数の増加はほぼ見られない。2012 年に安達らが “Highly efficient organic light-emitting diodes from delayed fluorescence” (*Nature*, vol. 492 (2012), pp. 234-240) を発表した。その後、2013 年、2014 年から徐々に発表論文数が増え、これ以降は年間 80~90 報の割合で、thermally-activated delayed fluorescence (TADF) 関連論文数が増加している。これらの事実は、安達らの「TADF 発光メカニズムの解明」と「その発光デバイスへの応用」は、学術的にもまた応用面でも世界中の注目を集め、新たな潮流を作りその波及効果は大きいと言える。

2.2.4 にも述べたように、安達は、2018 年から 7 年連続してクラリベイト・アナリティクス社の Highly Cited Researchers に選出された。このことは、本プロジェクト期間内及

⁵² H. S. Kim, S. H. Lee, S. Yoo, and C. Adachi, *Nat. Commun.*, 15 (2024), 2267.

⁵³ S. Sasaki, K. Goushi, M. Mamada, S. Miyazaki, K. Miyata, K. Onda, and C. Adachi, *Adv. Opt. Mater.*, 12 (2023), 2301924.

⁵⁴ H. J. Backstrom and K. Sandros, *Act Chem Scand*, 14 (1960), 48.

⁵⁵ C. A. Parker and T. A. Joyce, *Chem. Commun.*, (1968), 749.

⁵⁶ P. F. Jones and A. R. Calloway, *Chem. Phys. Lett.*, 15 (1971), 438.

び終了後において、安達が主導する研究が、当該分野で先導的であり注目されていることを示している。

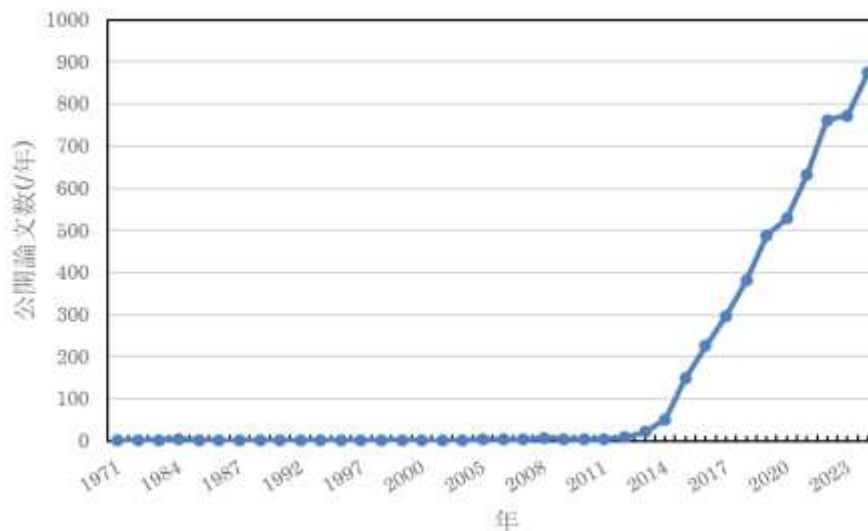


図 3.1 “thermally-activated delayed fluorescence” OR “TADF”で検索した年次公開論文数の推移 (2024年11月25日検索 DB:Scopus)

3.3 国際共同研究

本プロジェクトでは、安達のリーダーシップのもと、当初より外国人参加型の研究を進めてきた。また、本プロジェクト後に外国人研究参加者が、韓国、中国、スリランカなどの母国に帰国し、各研究機関の中核を担うポジションを獲得して、引き続き九州大学と共同研究を続けている。

本プロジェクト終了後に発表された国際共同研究論文の相手国としては、韓国、中国、香港、スリランカ、リトアニア、オーストラリア、台湾、ドイツ、フランス、インド、米国、英国、スウェーデン、カナダ、イタリア、ベルギー等である(図 3-2)。以上から、安達が国際的な研究ネットワーク構築に主導的な役割を担っていることが示唆される。

また、安達は、1939年に設立されたフランス最大の基礎科学研究機関であるフランス国立科学研究センター(CNRS)の2024年フェロー・アンバサダーに任命された⁵⁷。なお、OPERAとCNRSは、これまで長年にわたり共同研究・人的交流を行ってきており、2023年には協働で国際共同研究加速基金(国際先導研究)に採択された。また、現在CNRSとはOPERA内に2026年International Research Lab(国際共同ラボ)設置に向け、準備を進めている。

⁵⁷ 九州大学ホームページニュース(2024年3月26日): <https://www.kyushu-u.ac.jp/ja/notices/view/2648/>



図 3.2 過去 5 年の安達らと共同研究を実施している機関の国・地域別分布

3.4 ディスプレイ分野および赤外光利用分野への展開の期待

本プロジェクトの研究成果の展開として、3.2 にも述べたように、ディスプレイ分野が期待されるが、化合物半導体 LED の後継技術など競合技術がある。また、近年、医療、ライフサイエンスへの応用可能な赤外レーザー(特に近赤外(NIR)、中赤外(mid-IR))に対するニーズが高まっている。いかなる分野へ展開するにしても、新たな OLED の可能性を追究するとともに、本プロジェクトの第一目標だった電流励起有機半導体レーザーの性能向上という点での研究開発を推し進め、その実用性能や特徴を実証しつつ、さまざまな課題(生産技術、温度安定性、寿命安定性、コストなど)を解決していくことが求められる。

3.5 社会への貢献

前章 2.2.5 に述べたように、安達は、現在までに 3 社のスタートアップ設立に寄与している。しかも、Kyulux 社は TADF 材料の深化を基軸として、材料化学研究を担っている。KOALA 社は有機半導体レーザーのデバイス設計・製造を基軸として、指向性と色純度に優れた新規発光デバイスの改良と実用化を担っている。加えて、OPERA Solutions 社は、九州大学の強みである有機エレクトロニクスを活用して、共同研究の形式で企業と結びついている。それぞれのスタートアップに異なる役割を担わせ、俯瞰的な経営戦略をもって有機フォトリソグラフィ産業を育成し、社会に貢献している。

3.6 波及のまとめと展望

TADF についての研究は、歴史は長いものの、50 年以上の間活発に展開されることはなかった。2012 年に安達が発表した論文をきっかけに、基礎研究を含め、バイオテクノロジー、センサーなどへの応用などを目指し、新規な TADF 材料開発、また、可視光から近赤外、中赤外までの波長制御が可能な特徴を活かして OLED ディスプレイ等の開発研究が進められている。また、安達はこれらの研究を少なくとも 16 ケ国に及ぶ国際的な共同研究ネットワークを通じて進めている。

一方で、競合技術も存在しており、今後、実用化に向けたさまざまな課題(生産技術、温度安定性、寿命安定性、コストなど)を解決していくことが求められる。

以上