

2023 年度年次報告書

未踏探索空間における革新的物質の開発

2021 年度採択研究代表者

山口 茂弘

名古屋大学 トランスフォーマティブ生命分子研究所
教授

励起ダイナミクス制御に基づく光機能性ヘテロ π 電子系の創製

主たる共同研究者:

藤本 和宏 (名古屋大学 トランスフォーマティブ生命分子研究所 特任准教授)

安田 琢磨 (九州大学 高等研究院 教授)

研究成果の概要

光電子機能の中でも「発光」は、多岐にわたる応用から重要な現象である。本研究では、未踏光機能の実現を目的に、多環 π 骨格に多種のヘテロ元素を組み込んだ「ヘテロ π 電子系」を対象とし、励起状態における多様な素過程(励起ダイナミクス)の理解と複合的制御に基づいた物質探索の手法を確立し、秀逸な分子システムを創出することに挑む。この本質的な課題に対し理論と実験の融合により取り組み、次の 5 つの成果を得た。

- 1) 近赤外発光を示す多環リード骨格の創出を狙い、反芳香族性のアゼピンに芳香族性の低いチオフェン環を組み合わせた3環式骨格を合成した。これをコア骨格に用い電子受容性基を導入することにより、基底状態での反芳香族性緩和により近赤外領域での発光の獲得に成功した。
- 2) 多環芳香族炭化水素であるペリレンに2つのホウ素原子をドーブし、チオフェン環を縮環させるという設計指針のもとに、分子構造ジェネレータと TD DFT 全構造探索を用いた in-silico スクリーニングを行い、7環式の近赤外発光分子の探索に成功し、この手法の有用性を実証した。
- 3) これまでに開発したフェルミの黄金律に基づく逆項間交差の速度計算プログラムを用いることで、超高速スピン変換発光材料の逆項間交差過程の解明に成功した。
- 4) 高速スピン変換能と高量子収率を両立した狭帯域緑色発光材料の開発に成功し、UHD ディスプレイに適合する高効率かつ高安定性の純緑色有機 EL を実証した。
- 5) 近赤外発光リンローダミンの機能化により、高い膜透過性とオルガネラ局在性、さらには高い耐光性をもつ蛍光プローブを開発し、超解像 5D(3D+タイムラプス+マルチカラー)イメージングに有用であることを実証した。

【代表的な原著論文情報】

- 1) M. Murai, T. Enoki, S. Yamaguchi, Dithienoazepine-Based Near-Infrared Dyes: Janus-Faced Effects of a Thiophene-Fused Structure on Antiaromatic Azepines, *Angew. Chem. Int. Ed.*, **62**, e202311445 (2023)
- 2) I. Hattori, M. Hagai, M. Ito, M. Sakai, H. Narita, K. J. Fujimoto, T. Yanai, S. Yamaguchi, In-Silico Screening and Experimental Verification of Near-Infrared-Emissive Two-Boron-Doped Polycyclic Aromatic Hydrocarbons, *Angew. Chem. Int. Ed.*, **63**, e202403829 (2024)
- 3) M. Hagai, N. Inai, T. Yasuda, K. J. Fujimoto, T. Yanai, Extended Theoretical Modeling of Reverse Intersystem Crossing for Thermally Activated Delayed Fluorescence Materials, *Sci. Adv.*, **10**, eadk3219 (2024)
- 4) R. K. Konidena, M. Yang, Y. Yasuda, **A π -Extended Tercarbazole-Core Multi-Resonance Delayed Fluorescence Emitter Exhibiting Efficient Narrowband Yellow Electroluminescence**, *J. Mater. Chem.*, **59**, 10251-10254 (2023)
- 5) Q. Wu, M. Taki, Y. Tanaka, M. Keshewani, Q. M. Phung, S. Enoki, Y. Okada, F. Tama, S. Yamaguchi, Stereochemistry-Dependent Labeling of Organelles with a Near-Infrared-Emissive Phosphorus-Bridged Rhodamine Dye in Live-Cell Imaging, *Angew. Chem. Int. Ed.*, **63**, e202400711 (2024)