JAIST Repository
https://dspace.jaist.ac.jp/

Title	昇華可能な軸不斉誘導体による高効率円偏光エレクトロルミネセンス
Author(s)	原, 琛豫和
Citation	
Issue Date	2025-09
Type	Thesis or Dissertation
Text version	ETD
URL	http://hdl.handle.net/10119/20084
Rights	
Description	Supervisor: 村田 英幸, 先端科学技術研究科, 博士

JAIST
JAPAN
ADVANCED INSTITUTE OF
SCIENCE AND TECHNOLOGY

Japan Advanced Institute of Science and Technology

氏名	YUAN, Chenyuhe		
学位の種類	博士（マテリアルサイエンス）		
学位記番号	博材第 611 号		
学位授与年月日	令和 7 年 9 月 24 日		
論文題目	High Efficiency Circularly Polarized Electroluminescence Induced by Sublimable Axially Chiral Inducers		
論文審査委員	村田英幸	北陸先端科学技術大学院大学	教授
	鈴木寿一	同	教授
	安東秀	同	准教授
	山口拓実	同	准教授
	井改知幸	名古屋大学	教授

論文の内容の要旨

Organic light-emitting diodes (OLEDs) capable of emitting circularly polarized (CP) light have attracted significant interest from researchers due to their potential applications, such as 3D display and optical information storage. One of the effective approaches to fabricate CP-OLEDs is to construct chiral light-emitting layers by chiral induction, where chiral small molecules are doped as chiral inducers into achiral luminescent polymers. Due to the chiral transfer, strong circularly polarized luminescence (CPL) of the polymer can be achieved. While this method can yield high asymmetry factor g, the presence of chiral inducers within the films can decrease the device performance of the CP-OLEDs. To solve this problem, it may be important to remove the chiral inducers from polymer after chiral induction is complete.

In this study, we doped the axially chiral inducers into thin films of the achiral conjugated polymers. Upon annealing the films, a clear circular dichroism (CD) signal from emitting polymer appeared, indicating the induction of chiroptical properties. Nuclear magnetic resonance (NMR) spectra of the samples before and after annealing confirmed the complete removal of chiral inducers by sublimation during annealing, resulting in the formation of neat polymer films. The red shift in absorption spectra and the fibrous morphology in atomic force microscope (AFM) after annealing indicated that the chiroptical properties were caused by intermolecular exciton coupling due to aggregation. The photoluminescence quantum yield (PLQY) of as-prepared films was remarkably low but after annealing it increased to that of neat films, suggesting that the removal of chiral inducers by high-temperature sublimation realized both high g factor and PLQY simultaneously. We applied this thin film to the emitting layer of CP-OLEDs. The device achieved a maximum external quantum efficiency (EQE) of 1.20%, The $|g_{EL}|$ of 7×10^{-3} was achieved without any optimization of the device structures. This study demonstrates for the first time a way to realize CP-OLEDs by sublimable chiral inducers.

Furthermore, the generality of the sublimation-assisted chiral induction strategy was also investigated. We confirmed that BINOL is capable of inducing CPL not only in F8BT but also in PFO. Compared to F8BT, PFO exhibited a g_{lum} value one order of magnitude lower. In addition, the CPL emission of PFO could be further red-shifted after solvent vapor annealing, which induced the β-phase crystalline structure. The chiral F8BT system was further extended to realize circularly polarized Förster resonance energy transfer (C-FRET). By replacing BINOL with a more efficient chiral inducer, R5011, and doping the blend with a red-emitting molecule DBP as both the energy and chirality acceptor, red CPL emission was successfully achieved. Notably,

we also discovered that R5011 contributed to a significant enhancement in the PLQY of the films. These studies provide a new method for the preparation of high-efficiency CP-OLEDs.

Keywords: Chiral induction, Circularly polarized organic light-emitting diodes, BINOL, Polyfluorene, Circularly polarized fluorescence resonance energy transfer

論文審査の結果の要旨

円偏光（CP）を発光する円偏光有機発光ダイオード（CP-OLED）は、3D 表示ディスプレイや光通信、量子コンピューターへの応用が期待されている。CP-OLED には、エレクトロルミネッセンス（EL）の高い非対称性因子（g_{EL} 値）と高い外部量子効率（EQE）の両立が求められる。この課題を実現するためには CP-OLED の発光層において、高い円偏光発光（CPL）の非対称性因子（g_{CPL} 値）と高い発光量子収率（PLQY）を達成する必要がある。CPL を得る手法のひとつに、アキラルな発光材料にキラル誘導剤を添加する方法が知られている。この手法では高い g_{CPL} 値が得られる反面、発光層内にキラル誘導剤が残存すると CP-OLED の電気特性に悪影響を及ぼし EQE が低下するという問題がある。

本研究では、アキラルな発光性共役ポリマーF8BT にキラル誘導剤（BINOL および BINOL 誘導体 R/S5011）を添加することで F8BT へのキラル誘導を実現した。アニール処理により F8BT から強い CPL 信号が得られ $|g_{CPL}|$ は 4.3×10^{-2}に達した。ここで興味深いことにアニール中に BINOL が薄膜中から昇華して除去されることを見出した。また、BINOL を添加した F8BT 薄膜の PLQY は、未添加の F8BT の 30%から約 5~6%へと大幅に低下したものの、アニール後は BINOL の除去によって 25%まで回復することが分かった。詳細な検討の結果、F8BT へのキラル誘導は 2 段階で進行し、第一に BINOL との F8BT 分子鎖との相互作用によって F8BT 分子鎖に軸キラルが誘導され、第二に軸キラルが誘導された F8BT 分子鎖による超分子相互作用によって薄膜全体にキラル誘導が生じることが分かった。さらに、キラル誘導後には F8BT 分子間で励起子結合が生じ CPL 特性が増幅されていることを確認した。

F8BT/R-BINOL および F8BT/S-BINOL を発光層に用いた CP-OLED は、EQE がそれぞれ 1.20%、1.01%と F8BT を発光層に用いた場合の 1.09%と同等であり、$|g_{EL}|$ が 4.8×10^{-3}、6.4×10^{-3}という優れた CP-EL 特性を示した。このように高い CP-EL 特性と高い EQE を両立した CP-OLED を初めて実証した。さらに円偏光 Förster 共鳴エネルギー移動を用いた赤色 CPL の実現や、他の発光性共役系ポリマー系（PFO、MEH-PPV）への本手法の適用にも取り組み、本手法の普遍性と将来的な発展性を示唆する結果を得ている。

以上、本論文は、昇華可能なキラル誘起剤を用いることで高い g_{EL} 値と高い EQE の両立が CP-OLED で可能であることを実証した研究であり、学術的に貢献するところが大きい。よって博士（マテリアルサイエンス）の学位論文として十分価値あるものと認めた。