科学研究費助成事業

平成 30 年 5月 24日現在

研究成果報告書

機関番号: 32665 研究種目:基盤研究(C)(一般) 研究期間: 2015~2017 課題番号: 15K05486 研究課題名(和文)耐光性に優れた新規長波長色素の合成,分光特性,応用 研究課題名(英文)Synthesis, Spectroscopy, and Applications of novel long-wavelength absorbing dyes with excellent durability 研究代表者 大月 穣(OTSUKI, Joe) 日本大学・理工学部・教授 研究者番号: 80233188

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文):本研究では,ナフタルイミドに基づくオリゴチオフェンで 共役系を拡張した一連の 蛍光色素を合成し,吸収および蛍光スペクトルを調べた. 共役系を拡張することにより吸収極大波長は約100 mm,蛍光極大波長は約180 nmに渡って制御できることを見出した.さらに,共通の構造で電子供与基を含む一連 の色素では,吸収や蛍光極大波長は 共役系の拡張の効果が小さいことも見出した.これらの色素に関して,吸 収・蛍光極大波長,モル吸光係数,ストークスシフト,蛍光量子収率,励起寿命,(無)放射速度定数を含む分 光学的光物理学的特性を総合的に明らかにした.これらの結果は,この種の色素を用いたセンサーの設計指針と なる.

研究成果の概要(英文): We have prepared a series of naphthalimide-based fluorescence dyes in which the pi-system is extended with oligothiophene units. It has been revealed that the absorption and fluorescence maxima can be tuned over ca. 100 nm and ca. 180 nm range by extending pi-conjugation, respectively. For the same series but with an electron-donating moiety (push-pull type dyes), the absorption and fluorescence maxima are less dependent on the conjugation length. These new fluorescent dyes have been fully characterized in terms of spectroscopy and photophysics, for which absorption maxima, molar absorption coefficients, fluorescence maxima, Stokes shifts, fluorescence quantum yields, excited state lifetimes, radiative rate constants, and nonradiative rate constants have been revealed, providing a valuable guide for the development of fluorescence probes and sensors.

研究分野:超分子化学

キーワード: 蛍光色素 ナフタルイミド チオフェン プッシュープル 共役

1.研究開始当初の背景

有機蛍光色素は、各種センサー、バイオプ ローブなどへ幅広く応用されており,また, 太陽電池用の増感色素としても研究開発が なされている.実用的な蛍光色素にとって耐 光性は最重要な特性の一つであるが,広く使 われている色素は,特にレーザー励起で観察 する際に耐光性の不十分さが問題となって いる.ナフタルイミドは安定な構造で,安定 な蛍光色素として有望な骨格であるが,その ままでは吸収が紫外域の 340 nm 程度と短か すぎる.そこで我々はナフタルイミドからさ らに共役系が広がった色素の開発を行った. 一つの可能性は,共役系が二次元的に広がっ たペリレンジカルボン酸誘導体への拡張で あり,我々も色素増感太陽電池用色素として 検討していた[1,2].しかし、ペリレン系は、 広い平面をもつために溶解性に難があり凝 集しやすい傾向があることを考え,共役系を -次元的に伸ばす分子設計をした.

チオフェン単位で共役系を伸ばし,その先 に電子ドナー,アクセプターなどを導入した 色素を合成し,その光物理的特性を詳細に調 べた (図1) [3]. 最大で吸収は 450 nm, 蛍 光は 580 nm まで長波長化した.置換基によ って,溶媒の極性が大きいほど蛍光量子収率 が増加するもの,逆に,極性溶媒ではほとん ど蛍光を示さないが,極性が小さいほど蛍光 量子収率が増加する(例えば量子収率 0.6 ま で)ものがみつかった.量子収率および蛍光 寿命データより,これらの溶媒の種類による 大きな変化は,放射速度ではなく無放射(熱 失活)速度の変化によることを明らかにし, また, DFT を用いて, 基底状態, 励起状態, 溶媒効果などを計算し,実験と比較し,発光 にかかわるメカニズムを検討した.



 $X - = Ph_2N -, H -, O_2N -$

図 1.π 共役系拡張ナフタルイミド誘導体蛍 光色素の分子設計 [3].

2.研究の目的

本研究では, さらに共役系を伸ばすことに より,吸収, 蛍光を長波長に示すチエニレン ナフタルイミド骨格をもつ新規色素を合成 し,光特性を明らかにすることを目的とした. 共役系の長さを系統的に変化させて得られ る結果より,このクラスの色素の一般的な特 性を明らかにし,共役系伸張チエニレンナフ タルイミド蛍光色素の科学的基盤を形成す る.ナフタルイミドは DNA 二重鎖にインタ ーカレートして光切断することが知られて いることから,DNA との相互作用が特に興味 深い[4].そこで,さらに,応用可能性を具 体例をもって示すため,(共役系伸張)チエ ニレンナフタルイミドと DNA との相互作用 を検討する.色素に水溶性を付与するため, まずはピリジニウム基をイミド基を介して 導入する.これらの検討を通じて,より長波 長領域に吸収,蛍光を示す色素を開発し,有 用性の具体例を提示し,新しい一連の色素群 を提案する.

また,本研究の関連研究として,光と物質の相互作用を基盤とする研究を並行して行った.

3.研究の方法

チオフェン単位で共役系が伸長した,プ ッシュ・プル型を含むナフタルイミド誘導 体(図2)を合成した.吸収スペクトル, 蛍光スペクトル,蛍光寿命測定を極性の異 なる各種溶媒中で行い,放射速度,無放射 速度,蛍光量子収率の溶媒依存性,DFTに よる基底状態および励起状態計算と合わせ て,色素としての特性を明らかにした.さ らに,ナフタルイミド色素にピリジニウム 基を導入し,DNA との相互作用を調べた.

4.研究成果

オリゴチオフェンによってπ共役系を拡張 した,電子供与基をもつ/もたないナフタル イミド誘導体を合成し,それらの光物理を明 らかにした.図2に,検討したナフタルイミ ド誘導体をまとめた.チオフェン単位を2つ (T₂ 色素: Ph-T₂-NI, PyPh-T₂-NI) と4つ(T₄ 色素: Ph-T₄-NI, PyPh-T₄-NI, EH₂NPh-T₄-NI) もつ化合物については本研究で新たに合成 した.チオフェン単位をもたない色素(T₀色 素: Ph-NI, Ph₂NPh-NI)は, データとして文献 値[5,6]を用い,チオフェン単位を1つもつ色 素は,我々が以前報告したものである[3].新 規化合物である T2 色素および T4 色素の合成 は,ナフタルイミド部分,ビチオフェン部分, そして末端のフェニルあるいはアミン置換 フェニル部分の間の鈴木・宮浦カップリング および Stille カップリングをキー反応として 合成した.

ー般的に色素類は会合体を形成しやすく, 分子単独の吸収特性と異なる吸収特性を示 す場合があることが知られているので[7], これらの化合物の吸収特性を議論する前に, 実験的に得られた吸収スペクトルが分子単 独の性質を正しく反映しているかを確認し ておくことが重要である.そのためにまず吸 収スペクトルの濃度依存性を 2 μM から 20 μM の範囲で調べた.いくつかの色素は Lambert-Beer の法則に完全に従い,またいく つかの色素はLambert-Beer の法則から多少の ずれを示した.いずれにせよ,どの場合も吸



Ph2NPh-NI Ph2NPh-T-NI PyPh-T2-NI PyPh-T4-NI EH2NPh-T4-NI

図 2.チオフェンで π 共役系を拡張したナフ タルイミド誘導体.電子供与基をもたないシ リーズ(上段)ともつシリーズ(下段).

収極大波長は濃度によらずほぼ一定であったため,吸収極大波長に関する限り,分子単独の特性を表していると判断した.

図3に,電子供与基をもたない(上段パネ ル)および電子供与基をもつ(下段パネル), チオフェンで π 共役系を拡張したナフタルイ ミド誘導体の吸収スペクトルを示す.用いた 溶媒は非極性溶媒としてトルエン(左パネ ル),極性溶媒として DMSO(右パネル)を 用いた.全体的な特徴としては,300 nm 以上 の範囲において,チオフェン単位が1つの色 素と2つの色素は、2つの吸収ピークを示し、 チオフェン単位が4つの色素は単一の非常 にブロードな吸収ピークを示すことが挙げ られる.これらの吸収ピークを帰属するため に TDDFT 計算を最適化構造に対して行い, 結果を垂直なバーとして図3に合わせて示す. 汎関数としては,最もポピュラーな B3LYP は電荷移動遷移のエネルギーを過小評価す ることが知られており, BMK が T1 色素につ いて実験の再現性がよかったことから「31, これらの計算には BMK 汎関数[8]を用いた. 溶媒効果は SCRF (self-consistent reaction field model)によって取り込んだ.図3に示すよ うに,実験で得られた吸収スペクトルと比較 して, 遷移エネルギーを T1と T2色素につい ては少々過剰評価,T4については少々過大評 価しているものの,概ね一致している.計算 結果によると,最低エネルギー遷移はほぼ HOMOからLUMOへの遷移に対応している. どの色素に関しても、HOMO は末端フェニル 基 (電子供与基を含む色素についてはアミノ



図 3. ナフタルイミド色素の吸収スペクトル (10µM). 曲線が実験結果(左軸)で, バー が振動子強度の計算値(右軸)計算は TDDFT (BMK/6-31G*, SCRF).

窒素を含む)とオリゴチオフェン部位に分布 しており,LUMOは主にナフタルイミド部位 に分布している.したがって,HOMOから LUMOへの遷移は大きな距離にわたる電荷 移動を伴うことがわかる.色素 Ph-T₂-NI, Ph₂NPh-T-NI,PyPh-T₂-NIについて見られる2 番目のエネルギーの遷移は HOMOから LUMO+1の遷移に対応する.LUMO+1の分 布範囲は HOMO とほぼ同様であるので,こ れらの遷移はππ^{*}遷移である.

蛍光スペクトルを図4に示す.それぞれの 色素は最低エネルギーの吸収極大波長で励 起し,縦軸は単位波長あたりの相対光子数を 示す.蛍光スペクトルからいくつか特徴を抽 出することことができる.電子供与基をもた ない最も短い誘導体である Ph-T-NI では, 蛍 光強度はトルエンから DMSO になると大き く増加する.しかし,この挙動はより長い誘 導体に一般化することはできないことがわ かった.すなわち,溶媒がトルエンから DMSO へ変わった場合, Ph-T₂-NI の蛍光強度 はそれほど変化せず, Ph-T₄-NIの場合は逆に 減少することが明らかになった.また,電子 供与基をもつ色素の場合,蛍光量子収率は, トルエン中では高いが (0.29-0.56), DMSO 中では極めて小さい.私たちは以前 Ph₂NPh-T-NI の蛍光について,溶媒の配向分 極率(極性の指標 Δf)が約 0.2 を越えると無 放射遷移速度が急に大きくなることを報告 してある[3].

π 共役系を伸ばすか電子供与基を導入する ことによって,吸収波長や蛍光波長がどの程 度長波長シフトするかが,実用的な意味でも 決定的な情報であり,本研究で明らかにすべ き最も重要な疑問点であった.チオフェン単 位の数と最低エネルギー吸収極大波長と蛍 光波長との関係を,電子供与基のない色素に ついて図 5a に,電子供与基のある色素につい て図 5b にまとめた.

電子供与基をもたない色素について,実験 的な吸収極大波長は, T_0 色素から T_2 色素にな ると計算から予測される程度長波長シフト する. T_2 色素から T_4 色素では,長波長シフト



図 4.ナフタルイミド誘導体(10μM)の蛍光 強度.励起波長は,それぞれの色素の最低エ ネルギーの吸収極大波長.

はするが,その程度は計算から予測されるよ りも小さい.電子供与性基をもつ色素の場合 は,吸収極大波長は Ta 色素から Ta 色素では 長波長シフトするが、T₂色素から T₄色素では, 計算からは長波長シフトが予測されるが,実 際は短波長シフトした . いずれの系列の色素 の場合も、T₂から T₄への変化は計算の実験と の一致がよくない.チオフェン単位の数が増 えると,回転できる結合も増え,より多くの 分子が , ねじれてπ共役系が短いエネルギー の高いコンホメーションを取るために,最適 化した最低エネルギーのコンホメーション についての計算とずれが生じるのであろう これは T₄ 色素の吸収スペクトルが非常にブ ロードであることから溶液中で様々なコン ホメーションをとっていることが示唆され ることとも一致する.

まとめると, π 共役拡張ナフタルイミドの 分子設計により,吸収極大波長は350 nmか ら 450 nm まで変化させることができる.電 子供与基を導入すると,π共役系の短い色素 については吸収は長波長シフトするが, π共 役系の長い色素についてはその効果は小さ くなる.その結果,カバーできる波長範囲は 430 nm から 480 nm であり,最も長波長の吸 収はT₂色素のPy-Ph₂-NIによる.電子供与基の ない色素の蛍光は , トルエン中では 410 nm から 590 nm までの 180 nm の範囲にわたり, DMSO 中では 540 nm から 660 nm の 120 nm の範囲にわたる.電子供与基をもつ色素に関 しては、トルエン中で蛍光極大波長は 560 nm から 650 nm まで変化する .これらの結果は, 望みの波長で吸収と蛍光を示す機能性のセ ンサーやプローブを設計するための重要な ガイドとなる.本研究でのもう一つの発見は, 蛍光強度または蛍光量子収率に関するもの である.それは,(1)電子供与基をもたな い色素に関しては,溶媒(極性)依存性がチ オフェン単位数によって異なること,および (2)電子供与基をもつ色素については, 蛍 光量子収率は、トルエン中では高い(>0.3) が DMSO 中では極めて低いことである .この



図 5.最低エネルギー吸収および蛍光極大 波長とチオフェン単位数の関係.点は実験 値で線は計算値.黒:トルエン中の吸収極 大波長;緑:DMSO 中の吸収極大波長;赤: トルエン中の蛍光極大波長;オレンジ: DMSO 中の蛍光極大波長.(a)電子供与基な しの色素.(b)電子供与基ありの色素.

性質は極性応答蛍光プローブとしての応用 が期待される.

応用例として, Ph-T-NI のイミド結合を利 用してピリジニウム基を導入した色素を合 成し,既知化合物である共役系が拡張されて いないナフタルイミドにピリジニウム基を 導入した分子と DNA との相互作用を比較し た.後者では DNA 存在下で蛍光が減少する のに対し,我々の合成した前者では蛍光が増 加する現象が見つかった DNA との相互作用 についてさらに別の誘導体の挙動と合わせ て検討を進めている.

我々は,光と物質との相互作用を総合的に 検討しており,本研究はこの一環としての研 究である.関連研究として,本研究と並行し て,炭素ナノ粒子,光励起エネルギー移動, 色素増感太陽電池,金属ナノ粒子,ピロール イミダゾールポリアミド,金属錯体超分子, ペロプスカイト太陽電池などに関して検討 し,成果をあげた.

< 引用文献 >

- J. Otsuki, Y. Takaguchi, D. Takahashi, K. Sugawa, P. Kalimuthu, A. Islam, L. Han, *Chem. Lett.* 2013, 42, 450.
- [2] J. Otsuki, Y, Takaguchi, D. Takahashi, P. Kalimuthu, S. P. Singh, A. Islam, L. Han, Adv. OptoElectron. 2011, 2011, 860486.
- [3] T. Inari, M. Yamano, A. Hirano, K. Sugawa, J. Otsuki, J. Phys. Chem. A 2014, 118, 5178.
- [4] S. Banerjee, E. B. Veale, C. M. Phelan, S. A.

Murphy, G. M. Tocci, L. J. Gillespie, D. O. Frimannsson, J. M. Kelly, T. Gunnlaugsson, *Chem. Soc. Rev.* **2013**, *42*, 1601.

- [5] Y. Qu, L. Wang, J. Wu, Y. Rui, J. Cao, J. Xu, *Dyes Pigm.* **2018**, *148*, 99.
- [6] R. Greiner, T. Schlucker, D. Zgela, H. Langhals, J. Mater. Chem. C 2016, 4, 11244.
- [7] P. Gopikrishna, N. Meher, P. K. Iyer, ACS Appl. Mater. Interf. 2018, 10, 12081.
- [8] A. D. Boese, J. M. L. Martin, J. Chem. Phys. 2004, 121, 3405.

5.主な発表論文等

〔雑誌論文:全て査読あり〕(計24件)

[Front Cover] R. Kaneko, G. Wu, K. Sugawa, J. Otsuki, "Intermolecular Electronic Communication in Tetrathiafulvalene Derivatives with Hydrogen-Bonding Amide Units", Asian J. Org. Chem., in press. DOI: 10.1002/ajoc.201800100.

【 Inside Front Cover 】 J. Otsuki, "Supramolecular approach towards light-harvesting materials based on porphyrins and chlorophylls", J. Mater. Chem. A 2018, 6, 6710–6753. DOI: 10.1039/c7ta11274b.

[Back Cover] G. Wu, Y. Zhang, R. Kaneko, Y. Kojima, K. Sugawa, A. Islam, T. H. Chowdhury, Q. Shen, Md. Akhtaruzzaman, T. Noda, <u>J. Otsuki</u>, "Hole-Transport Materials Containing Triphenylamine Donors with a Spiro[fluorene-9,9'-xanthene] Core for Efficient and Stable Large Area Perovskite Solar Cells", *Solar RRL* **2017**, *1*, 1700096. DOI: 10.1002/solr.201700096.

G. Wu, Y. Zhang, R. Kaneko, Y. Kojima, Q. Shen, A. Islam, K. Sugawa, <u>J. Otsuki</u>, "A 2,1,3-Benzooxadiazole Moiety in a D-A-D-Type Hole-Transporting Material for Boosting Photovoltage in Perovskite Solar Cells", *J. Phys. Chem. C* **2017**, *121*, 17617–17624. DOI:

10.1021/acs.jpcc.7b04614.

Y. Zhang, G. Wu, I. Mora-Seró, C. Ding, F. Liu, Q. Huang, Y. Ogomi, S. Hayase, T. Toyoda, <u>J. Otsuki</u>, Q. Shen, "Improvement of Photovoltaic Performance of Colloidal Quantum Dot Solar Cells Using Organic Small Molecule as Hole-Selective Layer", *J. Phys. Chem. Lett.* **2017**, *8*, 2163–2169. DOI: 10.1021/acs.jpclett.7b00683.

<u>J. Otsuki</u>, T. Sekine, Y. Kida, Y. Shinozaki, S. Kobayashi, T. Tamura, K. Sugawa, I. Yoshikawa, H. Houjou, H. Yoshikawa, A. Tsukamoto, "Spontaneous Ligand Nitrosation and Self-Assembly into a Pentacopper Metallacrown Complex", *Dalton Trans.* **2017**, *46*, 2760–2764. DOI: 10.1039/C6DT04696G. R. Kaneko, G. Wu, K. Sugawa, <u>J. Otsuki</u>, A. Islam, L. Han, I. Bedja, R. K. Gupta, "Cyclometalated Ruthenium Complexes with

6-(*ortho*-Methoxyphenyl)-2,2'-Bipyridine as Panchromatic Dyes for Dye-Sensitized Solar Cells", *J. Organomet. Chem.* **2017**, *833*, 61–70. DOI:

10.1016/j.jorganchem.2017.01.025.

G. Wu, R. Kaneko, K. Sugawa, A. Islam, I. Bedja, R. K. Gupta, L. Han, <u>J. Otsuki</u>, "Effect of different auxiliary ligands and anchoring ligands on neutral thiocyanate-free ruthenium(II) dyes bearing tetrazole chromophores for dye-sensitized solar cells", *Dyes Pigments* **2017**, *140*, 354–362. DOI:

10.1016/j.dyepig.2017.01.061.

J. Lin, K. Hiraoka, T. Watanabe, T. Kuo, Y. Shinozaki, A. Takatori, N. Koshikawa, A. Chandran, J. Otsuki, H. Sugiyama, P. Horton, H. Nagase, "Identification of Binding Targets of a Pyrrole-Imidazole Polyamide KR12 in the LS180 Colorectal Cancer Genome", *PLoS One* **2016**, *11*, e0165581. DOI:

10.1371/journal.pone.0165581.

G. Wu, R. Kaneko, A. Islam, Y. Zhang, K. Sugawa, L. Han, Q. Shen, I. Bedja, R. K. Gupta, <u>J. Otsuki</u>, "Thiocyanate-free asymmetric ruthenium(II) dye sensitizers containing azole chromophores with near-IR light-harvesting capacity", *J. Power Sources*, **2016**, *331*, 100–111. DOI: 10.1016/j.jpowsour.2016.09.040.

Y. Shinozaki, Y. Mizumura, Y. Kida, K. Sugawa, K. Wada, S. Kishiro, J. Otsuki, "Crystal Structures and Side-Arm Dynamics of Cerium *meso*-Tetrathienylporphyrin Double-Decker Complexes", *Chem. Lett.* **2016**, 45, 1123–1125. DOI:10.1246/cl.160549.

G. Wu, R. Kaneko, Y. Zhang, Y. Shinozaki, K. Sugawa, A. Islam, L. Han, I. Bedja, R. K. Gupta, Q. Shen, <u>J. Otsuki</u>, "Neutral and anionic tetrazole-based ligands in designing novel ruthenium dyes for dye-sensitized solar cells", *J. Power Sources* **2016**, *307*, 416–425. DOI:

10.1016/j.jpowsour.2015.12.135.

Y. Shinozaki, T. Tsubomura, K. Sugawa, J. Otsuki, "Construction of dendrimers with a square-shaped core consisting of zinc chlorophyll assembly via intermolecular nitrogen–zinc coordination", *Tetrahedron Lett.* **2016**, *57*, 48–52. DOI: 10.1016/j.tetlet.2015.11.057.

Y. Shinozaki, K. Ohkubo, S. Fukuzumi, K. Sugawa, <u>J. Otsuki</u>, "Cyclic Tetramers of Zinc Chlorophylls as a Coupled

Light-Harvesting Antenna–Charge Separation System", *Chem. Eur. J.* **2016**, *22*, 1165–1176. DOI: 10.1002/chem.201503789.

M. A. Hossain, S. Islam, F. A. Chowdhury, T. G. Mohiuddin, K. Uchida, T. Tamura, K. Sugawa, T. Mochida, J. Otsuki, M. S. Alam, "Structural, Mechanical, and Electrical Properties of Carbon Nanoparticles Synthesised from Diesel", *Fuller. Nanotub. Car. N.* **2016**, *24*, 43–51. DOI: 10.1080/1536383X.2015.1092436.

〔学会発表〕(計7件)

<u>J. Otsuki</u>, "A Copper Metallacrown Complex Formed via Spontaneous Ligand Transformation and Self-Assembly", 43rd International Conference on Coordination Chemistry (ICCC2018), July 30 - August 4, 2018, Sendai, Japan.

<u>J. Otsuki</u>, "Photo/electronic Processes in Multimetal Coordination Compounds", 14th International Conference of Computational Methods in Sciences and Engineering, March 14–18, 2018, Thessaloniki, Greece.

受賞講演 ſ] J. Otsuki, "Coordination-Directed Supramolecular Assemblies: Light-Harvesting and Metal-Metal Interactions", International Congress on Pure & Applied Chemistry (ICPAC) 2018, March 7-10, 2018, Sokhalay Angkor Resort & Spa, Siem Reap, Cambodia.

<u>大月穣</u>, "超分子金属錯体の光・電子機 能",分子研研究会,2018年3月4-5日, 分子科学研究所,岡崎.

【Lecture Award(講演賞)受賞】<u>J. Otsuki</u>, "Coordination-Directed Self-Assembling Systems for Photoelectroactive Functions", International Symposium on Pure & Applied Chemistry (ISPAC) 2017, June 8–10, 2017, Hotel Continental Saigon, Ho Chi Minh City, Vietnam.

<u>J. Otsuki</u>, "Supramolecular Coupled Light Harvesting and Charge Separation Systems", EMN Summer Meeting 2017, May 4–7, 2017, Memories Miramar Havana, Havana, Cuba.

【 Keynote Lecture 】 J. Otsuki, "Supramolecular Approach to Photo/Electro-Active Molecular Systems: Light Harvesting and Charge Separation", IKM International Symposium on Pure & Applied Chemistry (ISPAC), August 16–18, 2016, Borneo Convention Centre Kuching, Kuching, Sarawak, Malaysia.

〔図書〕(計2件)

J. Otsuki, G. Wu, R. Kaneko, Y. Ebata, "Orbital Tuning of Ruthenium Polyimine Complexes by Ligand Design: from Basic Principles to Applications", p. 161–213, in Ruthenium Chemistry, Ed. A. K. Mishra, L. Mishra, Pan Stanford, Singapore, January 17, 2018.

https://www.crcpress.com/Ruthenium-Chem istry/Mishra-Mishra/p/book/978981477439 0.

F. A. Chowdhury, J. Otsuki, M. S. Alam, "Chemically Converted Graphene Thin Films for Optoelectronic Applications", p. 629–640, in Graphene Science Handbook: Electrical and Optical Properties, CRC Press, Boca Raton, FL, 25 April 2016. https://www.crcpress.com/Graphene-Scienc e-Handbook-Electrical-and-Optical-Properti es/Aliofkhazraei-Ali-Milne-Ozkan-Mitura-Gervasoni/p/book/9781466591318.

〔その他〕

ホームページ等

http://www.chem.cst.nihon-u.ac.jp/~otsuki/otsuki .html

6.研究組織 (1)研究代表者 大月 穰(OTSUKI, Joe) 日本大学・理工学部・教授 研究者番号:80233188