

研究成果概要

発光スペクトルの狭線化を実現できる熱活性化遅延蛍光 (Thermally Activated Delayed Fluorescence, TADF) 材料として、多重共鳴 (Multiple Resonance, MR) 構造を持つ TADF 材料が注目を集めている[1]。MR-TADF のメカニズム解明は、実用的な有機 EL 素子を開発する上で重要である。本研究では、量子化学計算を用いて、代表的な MR-TADF 材料である DABNA-1[1] に対して、項間交差 (Intersystem Crossing, ISC) ならびに逆項間交差 (Reverse ISC, RISC) の速度定数、蛍光および TADF 寿命、発光量子収率 (Photoluminescence Quantum Yield, PLQY)、さらには PLQY における蛍光・遅延蛍光成分の寄与を計算し、実測値を定量的に再現することに成功した[2]。DABNA-1 の励起状態計算には、京都大学化学研究所スーパーコンピュータシステムに実装されている量子化学計算ソフトウェア Gaussian 16 ならびに QChem を使用した。

$S_1 \rightarrow T_1$ および $S_1 \rightarrow T_2$ 遷移の速度定数を計算したところ、 $S_1 \rightarrow T_2$ 遷移の速度は、 $S_1 \rightarrow T_1$ 遷移よりも 30 倍程度速いことがわかった。このことから、 S_1 から T_1 への失活は、 T_2 を経由する 2 段階の $S_1 \rightarrow T_2 \rightarrow T_1$ 過程により起こることが示唆される。 T_1 から S_1 への変換過程を調べるため、PL 減衰曲線を計算した。その結果、PLQY (0.92) およびその蛍光成分 (0.89)、遅延蛍光成分の内訳 (2.9×10^{-2}) は、実測 (実測値はそれぞれ、0.88、0.85、 3.5×10^{-2}) とよく一致した。また、 $T_1 \rightarrow S_1$ 遷移は T_2 を経由する 2 段階の $T_1 \rightarrow T_2 \rightarrow S_1$ 過程により起こることがわかった。

以上の結果から、 S_1 - T_1 変換は、どちらも T_2 を経由する 2 段階の過程 ($S_1 \rightarrow T_2 \rightarrow T_1$ ISC および $T_1 \rightarrow T_2 \rightarrow S_1$ RISC) により起こることが示された (図 1)。

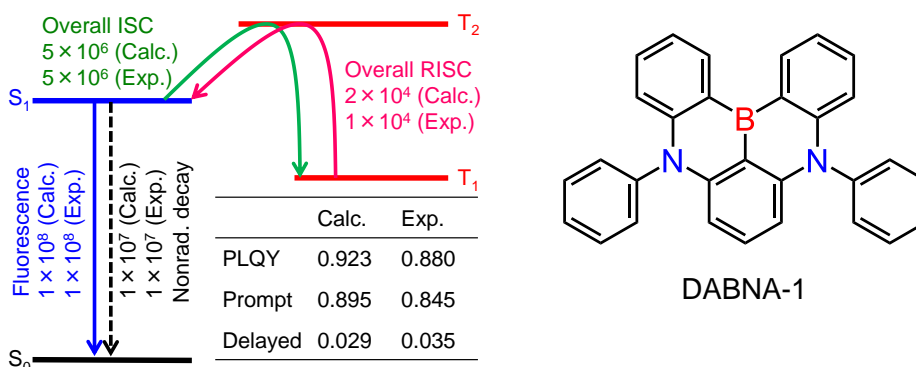


図 1 DABNA-1 の発光メカニズム

[1] T. Hatakeyama *et al.*, *Adv. Mater.*, 2016, 28, 2777.

[2] K. Shizu and H. Kaji, *Commun. Chem.*, 2022, 5, 53. 発表論文(謝辞あり).