

熱活性化遅延蛍光材料の新規開発

Development of thermally activated delayed fluorescence emitter

京都大学 化学研究所 分子材料化学研究領域 梶 弘典

研究成果概要

近年、熱活性化遅延蛍光(TADF)を示す分子が、有機発光ダイオード(OLED)の発光材料として注目されている。TADF-OLED が抱える課題の一つに、高輝度域での外部量子効率の低下(ロールオフ)がある。ロールオフ軽減のためには、TADF 分子の励起子寿命の短縮が有効である。TADF 分子の場合、三重項励起状態(T_1)から一重項励起状態(S_1)への逆項間交差(RISC)の速度定数(k_{RISC})、および S_1 からの輻射失活の速度定数(k_r)を増大させることにより、励起子寿命の短縮が理論上可能である。本研究では、ロールオフの抑制を目的として、 k_{RISC} と k_r のいずれもが大きくなるよう分子設計を行った。具体的には、 S_1 - T_1 間のエネルギー差(ΔE_{ST})が小さく、また輻射失活速度の指標となる S_1 - S_0 間の振動子強度(f)が大きくなるよう、適切な HOMO-LUMO 間の空間的重なりを有する CC-TXO-I (Fig. 1(a))を設計した。CC-TXO-Iは、硫黄の重原子効果によるスピン軌道相互作用(SOC)の増大も期待される。

分子設計の有効性を確認するため、量子化学計算を行った。本研究の量子化学計算には、京都大学化学研究所スーパーコンピュータシステム量子化学計算ソフトウェア ADF を使用した。DFT および TD-DFT 計算の汎関数/基底関数には、pSOC-TDA-PBE0/TZPaeを使用した。CC-TXO-Iについて、 S_1 - S_0 間の f 値は 0.1003 と大きな値を示した。また CC-TXO-I の $T_2 \rightarrow S_1$ および $T_1 \rightarrow S_1$ の遷移におけるスピン-軌道相互作用行列要素の値(SOCMEV)は、それぞれ 1.69, 2.01 cm^{-1} と算出された。これは CC-TXO-Iの酸素類似体である CCX-I(Fig. 1(b))と比較して顕著に大きく、硫黄の重原子効果が寄与した結果であると考察される。また PPF をホストとした CC-TXO-I:PPF 混合薄膜を作製し光物性評価を行ったところ、量子化学計算により算出された SOCMEV の大きさから予測されたように、 k_{RISC} は $\sim 10^7 \text{ s}^{-1}$ と非常に大きな値を示した。この k_{RISC} は CCX-I:PPF 混合薄膜の k_{RISC} ($\sim 10^4 \text{ s}^{-1}$)と比較して3桁上回る値であった。

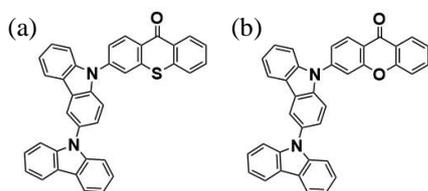


Figure 1. Chemical structures of (a) CC-TXO-I and (b) CCX-I.

Table 1. Results of quantum chemical calculations. *

	f	SOCMEV (cm^{-1}) / $\Delta E_{S_1-T_n}$ (eV)	
		T_1	T_2
CC-TXO-I	0.1003	1.69 / 0.17	2.01 / 0.06
CCX-I	0.1050	0.32 / 0.13	0.75 / -0.20

*pSOC-TDA-PBE0/TZPae

発表論文(謝辞あり)

[1] N. Kanno, Y. Ren, Y. Kusakabe, K. Suzuki, K. Shizu, H. Tanaka, Y. Wada, H. Nakagawa, J. Geldsetzer and H. Kaji, *Appl. Phys. Express* **2023**, *16*, 011006.