

研究成果概要

熱活性化遅延蛍光(TADF)材料は, Ir や Pt といった希少元素を用いずに, すべての励起子を光に変換可能なことから盛んに研究が行われている. TADF は最低三重項状態(T_1)から最低励起一重項状態(S_1)への逆項間交差(RISC)を介して発現する. TADF 発現機構の中で, 一般的に律速過程である RISC の高速化は重要である. 近年の研究から, 電荷移動(CT)性一重項および三重項(それぞれ 1CT , 3CT)のエネルギー準位に局所励起性三重項(3LE)のエネルギー準位を近接させることで RISC を高速化させることがわかっているが, 具体的な分子設計指針は得られていなかった.

本研究では, 量子化学計算から *tilted Face-to-Face alignment with Optimal distance* (tFFO)と名づけた高速な RISC を得るための分子設計指針を確立した[1,2]. この設計指針では電子ドナー・アクセプター間の距離を適切に制御することにより, 1CT , 3CT および 3LE の三つのエネルギー準位の近接を実現している. また, ドナー・アクセプター面を平行から少し傾けることにより, RISC の高速化に重要なスピン軌道相互作用が増大することを見出した. この設計指針に基づき実際に得られた分子は, その逆項間交差の速度定数(k_{RISC})が, 通常の TADF 材料($k_{RISC} = 10^{3-5} \text{ s}^{-1}$)と比較して, いずれも 10^6 s^{-1} を超える非常に大きな値を示した(Figure 1). とりわけ, アクリダンドナーおよびトリアジンアクセプターからなる TpAT-tFFO は $k_{RISC} = 1.2 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$ という, H,C,N 原子のみからなる TADF 材料において報告当時最速の値を示した. また, TpIBT-tFFO について, 高速な RISC のみならず立体配座制御による TADF 特性の向上を実現している. 今後, tFFO 設計指針に基づき, さらなる高性能な分子の設計に取り組む. 本研究のすべての量子化学計算は, 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 Gaussian16 および ADF を使用した.

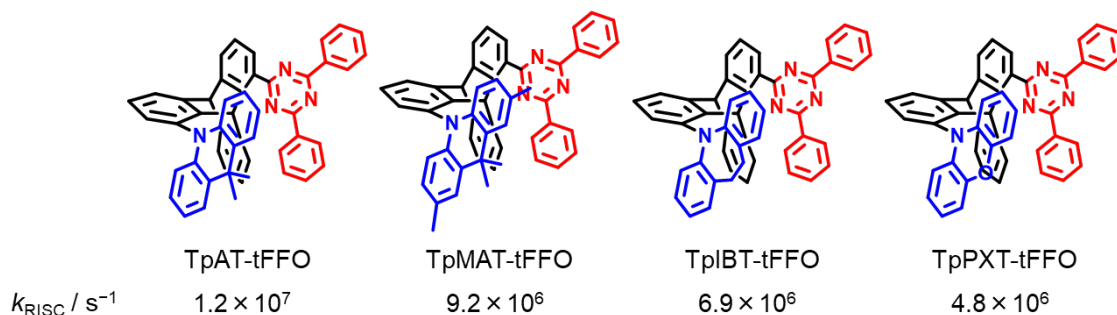


Figure 1. Chemical Structure of tFFO-based TADF molecules.

発表論文(謝辞あり)

- [1] Y. Wada, H. Nakagawa, S. Matsumoto, Y. Wakisaka and H. Kaji, *Nat. Photonics*, **2020**, *14*, 643.
- [2] Y. Kusakabe, Y. Wada, H. Nakagawa, K. Shizu and H. Kaji, *Front. Chem.* **2020**, *8*, 530.