

**PRESS RELEASE (2018/07/06)**

## 励起子生成効率 100%以上を実現する OLED の原理実証に成功 ～高強度近赤外 OLED の実現に道～

九州大学最先端有機光エレクトロニクス研究センターの中野谷一准教授、永田亮工学府博士課程学生、安達千波矢センター長らの研究グループは、励起子生成効率<sup>(※1)</sup>100%以上を示す有機 EL 素子 (OLED:Organic Light Emitting Diode) の開発に成功しました。

本研究のポイント：

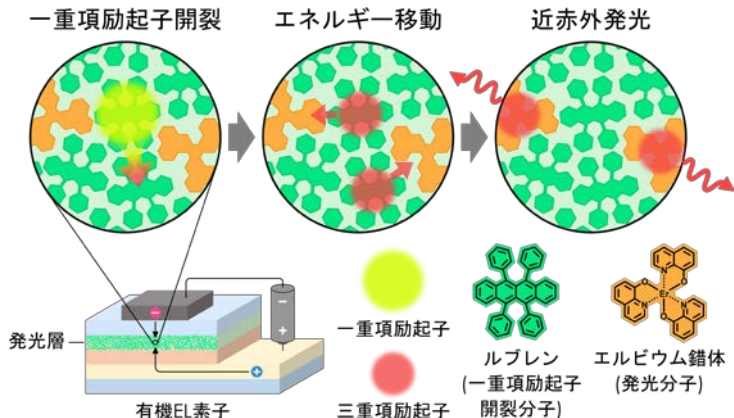
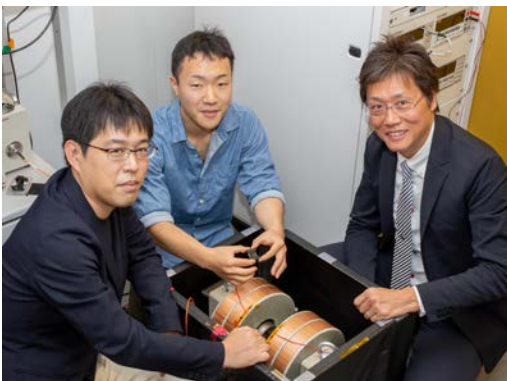
●OLED において、一重項励起子開裂を経て生成された三重項励起子を、エレクトロルミネッセンス (EL) として利用可能であることを初めて実証しました。本手法により、100%が理論限界とされてきた励起子生成効率をさらに高めることが可能となります。

●本研究での実証により、近赤外有機 EL 素子からの高強度エレクトロルミネッセンスが実現でき、センサー用や通信用光源等における新しいアプリケーション用途を開拓できると期待されます。

本研究成果は、科学技術振興機構 (JST) ERATO「安達分子エキシトン工学プロジェクト」の一環で得られました。本研究成果は、2018 年 7 月 5 日 (木) 19 時 (日本時間) に、ドイツの科学雑誌『Advanced Materials』誌のオンライン速報版で公開されました。

### 研究者からひとこと：

本研究成果は、OLED において、一重項励起子開裂現象の利用を初めて実証したものであり、近赤外 OLED における飛躍的な特性向上に貢献できると期待されます。今後、励起子生成効率 200%を示す究極の OLED を実現すべく、研究を引き続き進めていきます。



(左から) 中野谷一准教授、永田亮工学府博士課程学生、安達千波矢センター長

一重項励起子開裂を発生する分子をホスト材料に用いた新発光メカニズムの図。(1)一つの一重項励起子から一重項励起子開裂により二つの三重項励起子が生成する。(2)ルブレン分子からエルビウム錯体へ三重項励起エネルギーが移動する。(3)エルビウム錯体の発光準位から近赤外発光が生じる。

### 【お問い合わせ】

九州大学 最先端有機光エレクトロニクス研究センター  
センター長 安達 千波矢(あだち ちはや)  
准教授 中野谷 一(なかのたに はじめ)  
電話：092-802-6920 FAX：092-802-6921  
Mail：nakanotani@cstf.kyushu-u.ac.jp

## ■概要

本研究では、一つの一重項励起子から二つの三重項励起子を生成する「一重項励起子開裂 (singlet fission)」という遷移過程に着目し、一重項励起子開裂を示す有機分子を OLED のホスト材料、近赤外発光を示す有機金属錯体を発光色素とすることで、一重項励起子開裂過程を経て生成された三重項励起子を、発光ドーパントからのエレクトロルミネッセンス (EL) として利用可能であることを実証したものです。本手法により、従来、100%が理論限界とされてきた励起子生成効率をさらに高めることが可能となります。これにより、OLED の高輝度・高強度化が実現でき、センサー用の光源や通信用光源等における新しいアプリケーション用途を開拓できると期待されます。

本研究成果は、2018 年 7 月 5 日 (木) 19 時 (日本時間) に、ドイツの科学雑誌『Advanced Materials』誌のオンライン速報版で公開されました。

## ■背景

OLED は、電子と正孔が有機分子上で電荷再結合することにより生成する”励起子”のエネルギーを発光として利用するものであり、1980 年代後半から研究開発が開始され、広範な材料開発により、現在ではディスプレイや照明用途としての魅力的な発光デバイスとして、実用化が進んでいます。電荷再結合により生成する励起子には、“一重項励起子”と“三重項励起子”という、スピン多重度の異なる励起子が存在し、OLED ではこれらが、スピン統計則により 1:3 の割合で生成することが知られています。すなわち、「電流励起により生成するスピン多重度の異なる励起子をいかにして発光として利用するか？」が、OLED の発光量子効率を向上させる鍵です。これまでの精力的な材料開発および物性研究により、ほぼ 100%に達する励起子生成効率が実現され、これが理論限界値であるとされてきました。

## ■内容・効果

本研究では、「OLED における励起子生成効率の理論限界を突破する」ことを研究目的とし、一重項励起子開裂 (singlet fission) 過程に着目しました。一重項励起子開裂とは、“一つ”の一重項励起子が基底状態にある分子と相互作用することで、“二つ”の三重項励起子が生成される電子遷移過程です。一光子から二つの励起子を生成できることから、近年、有機光電変換素子の研究分野で精力的な研究がなされ、100%を超える光電変換量子効率が実現される等(関連参考文献 1)、大きな注目を集めています。光電変換素子と同様に、一重項励起子開裂を利用することで、OLED においても理論限界を超える励起子生成・利用効率が得られると期待されますが、一重項励起子開裂を利用した OLED に関する研究例は皆無でした。本研究では、効率的な一重項励起子開裂を発生することがすでに判明しているルブレン分子を OLED のホスト材料、近赤外発光を示すエルビウム錯体を発光ドーパントとした OLED において、一重項励起子開裂を経由して生成された三重項励起子を、エルビウム錯体からの近赤外 EL 発光として利用できることを世界で初めて実証しました(参考図面 1)。また、一重項励起子開裂が発生しない有機分子を用いた試料と比較し、近赤外発光強度がより増強されること、および近赤外強度の磁場応答性等の解析(参考図面 2)から、ルブレン分子を用いた試料での励起子生成効率が、光励起の場合 108.5%、電流励起の場合においても 100.8%に達していることを明らかにしました。

## ■今後の展開

このように本研究は、OLED の発光量子効率を飛躍的に向上させるための新たな発光メカニズムを提案・実証したものです。本研究成果により、特に近赤外 OLED の高輝度・高強度化の実現が可能となり、センサー用の光源や通信用光源等における新しいアプリケーション用途を開拓できると期待されます。現時点では、近赤外発光色素自身の発光効率が極めて低く、十分な発光強度を得られていませんが、今後アカデミックな視点より、詳細な物性解析および新たな分子開発を進め、励起子生成効率と内部 EL 量子効率が 200%を示す究極の OLED の実現を目指していきます。また、本研究の提案に基づく近赤外 OLED の実用化を指向して、有機光エレクトロニクス実用化開発センター (i<sup>3</sup>-OPERA) 等との連携により、材料開発・デバイス開発・プロセス開発を統合し、高効率で耐久性のある近赤外 OLED を実現していきます。

論文名 : Exploiting singlet fission in organic light-emitting diodes

雑誌名 : Advanced Materials DOI:10.1002/adma.201801484

著者 : Ryo Nagata, Hajime Nakanotani, William J. Potscavage Jr., and Chihaya Adachi

【関連参考文献】

1) D. N. Congreve, et al., Science. 340, 331 (2013).

【参考図面】

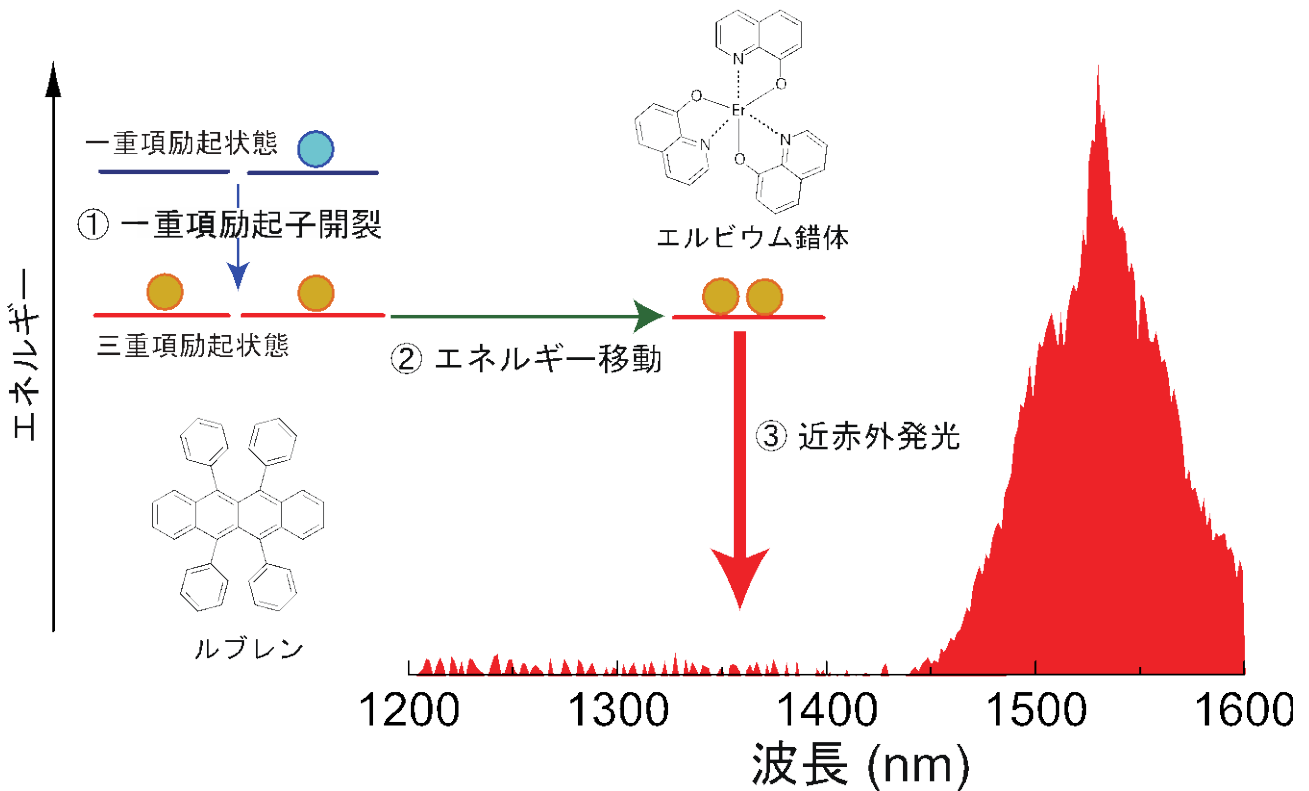


図1：一重項励起子開裂を示す分子を宿主材料に用いた新発光メカニズム。①一つの一重項励起子から一重項励起子開裂により二つの三重項励起子が生成する。②ルブレン分子からエルビウム錯体へ三重項励起エネルギーが移動する。③エルビウム錯体の発光準位から近赤外発光が生じる。

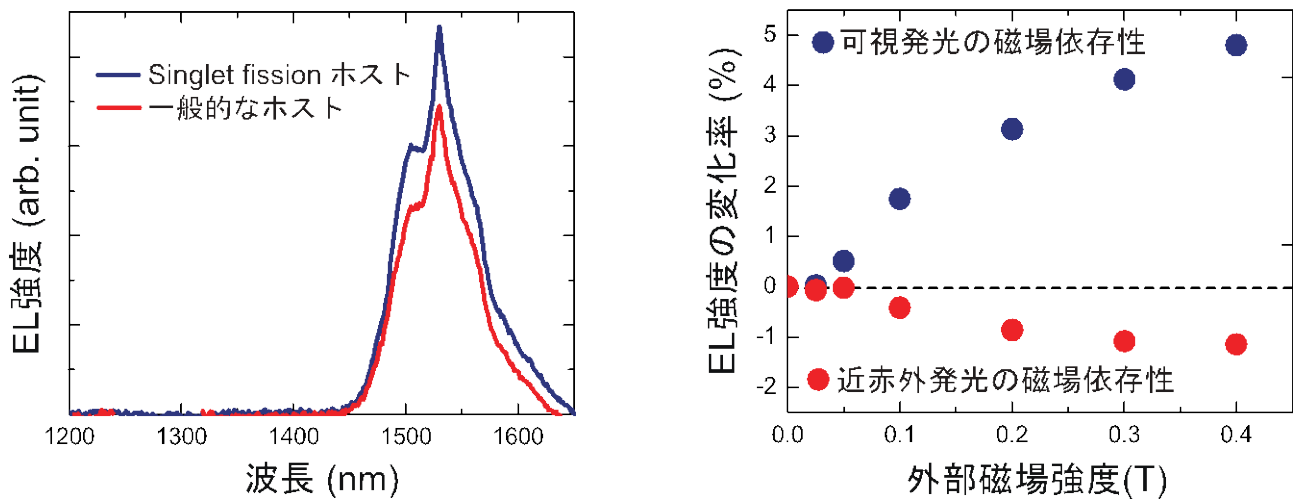


図2：本提案による OLED 特性と EL スペクトル、および EL 強度の磁場依存性

## 【用語解説】

### ※1 励起子生成効率：

有機分子の励起状態には、一重項励起状態 ( $S_1$ ) と三重項励起状態 ( $T_1$ ) の二つのスピン多重度の異なる状態が存在しますが、電子と正孔の再結合による励起子生成過程では、スピン統計則に従って、一重項励起子が 25% の確率で生成され、三重項励起子が 75% の確率で生成されます。生成された励起子のうち、EL 発光として利用することが可能な励起子割合を、励起子生成効率と定義します。そのため、蛍光発光のみを示す蛍光色素を OLED の発光材料とした場合、その励起子生成効率は 25% となります。一方で、燐光材料や熱活性化遅延蛍光分子など、三重項励起子を発光として利用できる分子での励起子生成効率は、100% となります。また、素子に注入された電子と正孔の再結合によってデバイス内部で生じる光子 (フォトン) の割合を内部 EL 量子効率といい、薄膜デバイス内部で発生した光をデバイスの外部に取り出す効率を外部 EL 量子効率といいます。光取り出し効率 ( $\eta_p$ ) と  $\eta_{int}$  (内部 EL 効率) の積からなります。

<お問い合わせ先>

<JST の事業に関すること>

古川 雅士 (フルカワ マサシ)

科学技術振興機構 研究プロジェクト推進部

〒102-0076 東京都千代田区五番町 7 K' s 五番町

Tel : 03-3512-3528 Fax : 03-3222-2068

E-mail : eratowww@jst. go. jp

<報道担当>

九州大学広報室

〒819-0395 福岡市西区元岡 7 4 4

Tel : 092-802-2130 Fax : 092-802-2139

E-mail : koho@jimu. kyushu-u. ac. jp

科学技術振興機構 広報課

〒102-8666 東京都千代田区四番町 5 番地 3

Tel : 03-5214-8404 Fax : 03-5214-8432

E-mail : jstkocho@jst. go. jp