

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 13 日現在

機関番号：11501

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26620202

研究課題名(和文) 乾電池1本で発光する有機ELデバイスへの挑戦

研究課題名(英文) Challenges for the realization of extremely low-drive-voltage OLED

研究代表者

笹部 久宏 (Sasabe, Hisahiro)

山形大学・理工学研究科・助教

研究者番号：10570731

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：有機ELデバイスは、低炭素社会を実現する次世代照明用光源としても期待されている。本研究では、有機ELデバイスの低電圧化に取り組み、以下の成果を得た。トリアジン骨格を有する新規材料を設計・合成、多入射角分光エリプソメトリーによる分子配向、デバイス特性を評価した。青色リン光素子の低電圧化に取り組んだ。デバイスを作製・評価したところ、輝度1 cd/m²時に駆動電圧2.49 Vの発光開始電圧を示し、輝度1000 cd/m²時には、駆動電圧3.25 V、電力効率86 lm/W、外部量子効率32.5%を示した。エキサイプレックスを利用して緑色熱活性化遅延蛍光素子の大幅な低電圧化に成功した。

研究成果の概要(英文)：Organic light-emitting devices (OLEDs) are expected to represent the next generation of solid-state lighting technology. In this work, we developed a series of novel electron-transporter and fabricated low-drive-voltage phosphorescent and thermally activated delayed fluorescence OLEDs with high external quantum efficiency as shown (i)-(iii). (i) 1,3,5-Triphenyltriazine-based electron transport materials form a highly horizontally oriented film by synergistic effect of intra- and intermolecular hydrogen bonds. Organic light-emitting devices employing this film as electron transport layer can operate at an extremely low voltage and realize high power efficiency. (ii) A state-of-the-art blue OLED that simultaneously realizes a driving voltage of 3.25 V, EQE of over 30%, and a power efficiency of 78 lm/W at high brightness of 1000 cd/m² is developed. (iii) A green TADF OLED with an extremely high power efficiency of over 100 lm/W is realized through energy transfer from an exciplex.

研究分野：デバイス関連化学

キーワード：有機EL リン光 熱活性化遅延蛍光 低電圧化 電子輸送材料 ホスト材料

1. 研究開始当初の背景

有機 EL デバイスは、低炭素社会を実現する次世代照明用光源としても期待されている。現状、照明用有機 EL パネルの電力効率は蛍光灯を超えたばかりである。理論限界である 248 lm/W の実現には、未だ克服すべき課題が多い。材料化学の最重要課題の1つは低電圧化であり、将来のエレクトロニクス全体の根源的課題でもある。

2. 研究の目的

本研究は「乾電池 1 本で発光する有機 EL デバイスの実現」を目的としている。直接励起機構と熱活性化発光を利用した超低電圧駆動有機 EL デバイスを開発する。高性能有機 EL デバイスの温度依存特性と材料の電子物性値を多角的に検討し、駆動メカニズムを解明すると共に、熱活性化機構に適した材料、デバイス構造を見出す。エレクトロニクスの根源的な課題である夢の省エネルギー化が実現すれば、次世代有機デバイス全般に新たな技術展開が生まれ、波及効果は大きい。獲得できる指導原理は、有機半導体物性物理と材料化学の基礎学理の構築に貢献できる。

3. 研究の方法

本研究では理論限界電圧を突破する熱活性化発光機構の解明と機構発現に必要な材料の探索を行う。熱活性化発光機構では、(1) 蓄積キャリア数 (界面電荷密度)、(2) リン光寿命 (放射失活速度)、(3) 温度 (ボルツマン分布) の3つ因子がデバイス特性を決定する。そのため、異なる温度条件での特性比較、系統的に材料の電子物性を变化させた場合のデバイス特性評価を行い、駆動メカニズムを明らかにする。同時に、本発光機構を効率的に発現させるための材料、デバイス構成など、普遍的な設計指針を獲得し、これまでに前例のない低電圧化技術を確認する。これにより、有機材料の夢の機能実現として「乾電池 1 本で光る超省エネルギー有機 EL デバイスの開発」を目指す。

4. 研究成果

初年度は、温度依存性評価のために、ペルチェ素子を用いた温度可変デバイス特性評価システムを立ち上げた。また、トリフェニルトリアジン骨格を有する新規な BPyPTZ 誘導体を設計・合成、多入射角分光エリプソメトリーによる分子配向、デバイス特性を評価した。多入射角分光エリプソメトリー測定から B3PyPTZ は屈折率・消衰係数のいずれもが基板水平方向に大きく、異方性が発現することがわかった。配向パラメータ S 値は -0.38 であり、TPBi (S = -0.02) と比較し、基板に対して大きく水平配向する結果であった。一般的な緑色リン光有機 EL デバイスを作製・評価した。輝度 1 cd m⁻² 時に駆動電圧 2.11 V の極めて低い発光開始電圧を示し、実用的な輝度 1000 cd m⁻² 時には、駆動電圧 2.88 V、電力効

率 73.9 lm W⁻¹、外部量子効率 18.8% を示した。この特性は、TPBi を用いた素子と比べると 0.94 V の低電圧化、1.6 倍の効率であり、BPyPTZ 誘導体の電子輸送材料としての有用性が示された。

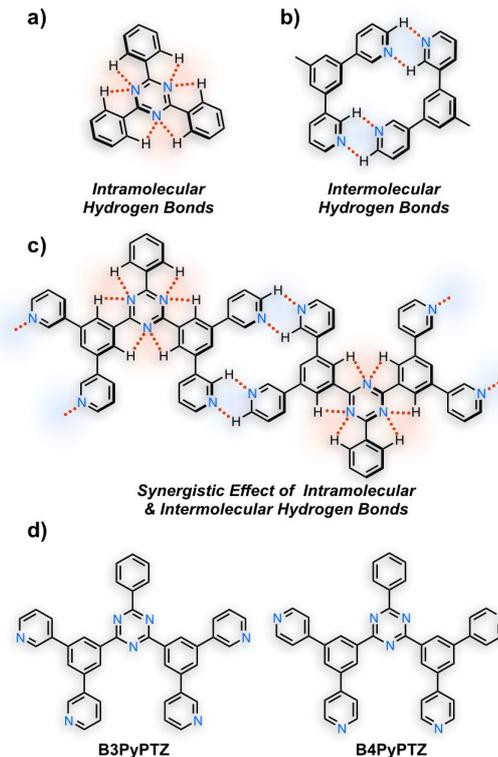


図 1. トリフェニルトリアジン誘導体の構造と分子内・分子間水素結合

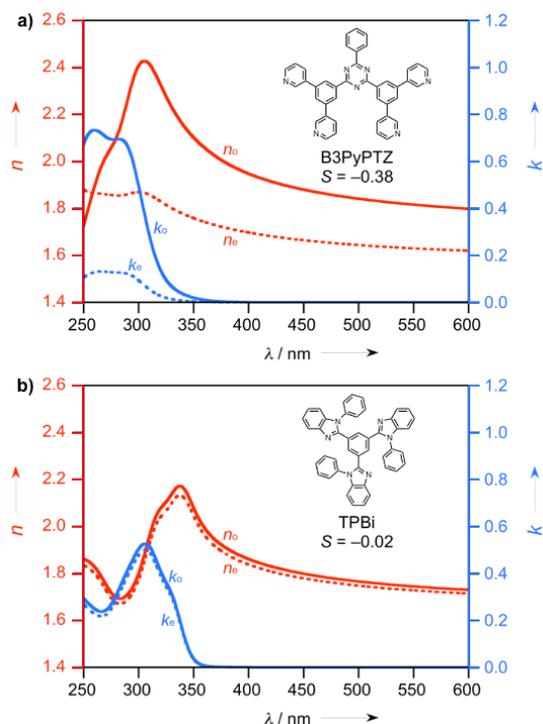


図 2. トリフェニルトリアジン誘導体と TPBi の分子配向

最終年度では、青色リン光素子の低電圧化に取り組んだ。デバイスを作製・評価したところ、輝度 1 cd m⁻² 時に駆動電圧 2.49 V の極

めて低い発光開始電圧を示し、実用的な輝度 1000 cd m^{-2} 時には、駆動電圧 3.25 V 、電力効率 86 lm W^{-1} 、外部量子効率 32.5% を示した。この特性は、ダブル発光層を用いた素子と比べると 1000 cd m^{-2} 時に 1.4 倍の電力効率の向上であり、混合ホストの有用性が示された。

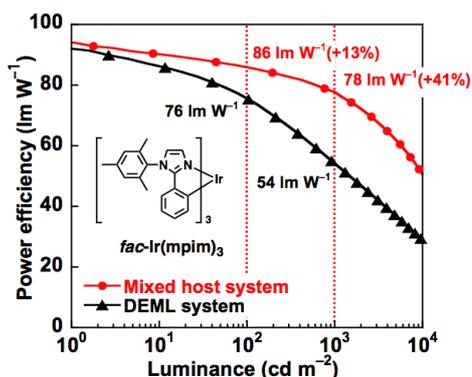


図3. 青色リン光素子の電力効率-輝度特性

一方、第三世代の熱活性化遅延蛍光 (TADF) 発光素子の低電圧化にも取り組んだ。申請者らの材料系を利用することにより、最大で既存系の 1.6 倍の 100 lm/W を超えるデバイスの開発に成功した。輝度 1 cd m^{-2} 時に駆動電圧 2.33 V の極めて低い発光開始電圧を示し、実用的な輝度 1000 cd m^{-2} 時には、駆動電圧 3.17 V 、電力効率 79 lm/W 、外部量子効率 24.8% を示した。申請者らの開発した一連の電子輸送材料群および混合ホスト系を利用することにより、第二世代、第三世代の有機 EL デバイスの超低電圧化に成功した。これにより、世界最高水準の電力効率を示すデバイスの開発に成功した。

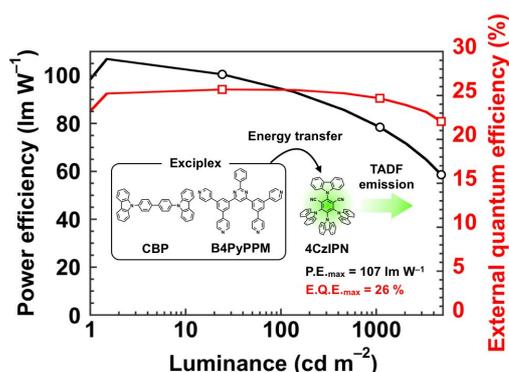


図4. 緑色 TADF 素子の電力効率-輝度-外部量子効率特性

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 14 件)

(1) K. Udagawa, H. Sasabe, F. Igarashi, J. Kido, Simultaneous realization of high EQE of 30%, low drive voltage, and low efficiency roll-off at high brightness in blue phosphorescent OLEDs,

Adv. Opt. Mater., **2016**, 4, 86–90. (査読有)

(2) R. Komatsu, H. Sasabe, Y. Seino, K. Nakao, J. Kido, Light-Blue Thermally Activated Delayed Fluorescent Emitters Realizing a High External Quantum Efficiency of 25% and Unprecedented Low Drive Voltages in OLEDs, *J. Mater. Chem. C* **2016**, 4, 2274–2278. (査読有)

(3) Y. Seino, S. Inomata, H. Sasabe, Y.-J. Pu, and J. Kido, High performance Green Organic LEDs Using Thermally Activated Delayed Fluorescence with Power Efficiency of 100 lm/W , *Adv. Mater.*, **2016**, 23, 2638–2643. (査読有)

(4) K. Udagawa, H. Sasabe, C. Cai, J. Kido, Low Driving Voltage Blue Phosphorescent Organic Light-emitting Devices with External Quantum Efficiency of 30%, *Adv. Mater.*, **2014**, 26, 5062–5066. (査読有)

(5) Y. Seino, H. Sasabe, Y.-J. Pu, J. Kido, High Performance Blue Phosphorescent OLEDs Using Energy Transfer From Exciplex, *Adv. Mater.*, **2014**, 26, 1612–1616. (査読有)

〔学会発表〕(計 21 件)

(1) 笹部久宏、渡邊雄一郎、鎌田嵩弘、宇田川和男、横山大輔、片桐洋史、城戸淳二、分子間水素結合能を有する n 型有機半導体群および高性能有機 EL デバイスの開発、日本学術振興会情報科学用有機材料第 142 委員会、東京、PORTA 神楽坂、2015 年、11 月 20 日 (依頼講演)

(2) H. Sasabe, J. Kido, Realizing low-drive-voltage organic light-emitting devices with high external quantum efficiency of 30%, *The 7th Asian Conference on Organic Electronics*, I-06, Beijing, China, October 28–31st, 2015. (招待講演)

(3) H. Sasabe, J. Kido, Realizing low-drive-voltage organic light-emitting devices with high external quantum efficiency of 30%; 12th International Symposium on Functional π -Electron Systems; Seattle, USA, July 21st, 2015; Session B6.

(4) 笹部久宏、高性能有機 EL デバイスを実現するフェニルピリジン誘導体ワイドギャップ電子輸送材料の開発、高分子学会 関東支部 湘北地区懇話会、神奈川大学横浜キャンパス、有機エレクトロニクスの最前線、2014 年、11 月 21 日 (依頼講演)

(5) 笹部久宏、フェニルピリジン誘導体電子輸送材料群による有機 EL デバイスの超低電圧化、化学系学協会東北大会、山形県米沢市、山形大学、2014 年、9 月 21 日 (依頼講演)

(6) 笹部久宏、高性能照明用有機 EL 材料・デバイスの開発、日本照明学会全国大会、埼玉県さいたま市、埼玉大学、2014 年、9 月 4 日 (依頼講演)

〔図書〕(計 1 件)

笹部久宏、城戸淳二、未来のあかり：有機 EL が世界を照らす—材料とデバイス開発の最前

線, 化学と工業, 2014 年, 4 月号, pp. 326-328.

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://oled.yz.yamagata-u.ac.jp/index.html>

6. 研究組織

笹部 久宏 (SASABE, Hisahiro)

山形大学・大学院理工学研究科・助教

研究者番号: 10570731