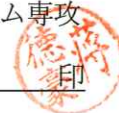


## 論文内容要旨 (和文)

2021 年度入学 大学院博士後期課程

有機材料システム専攻

氏 名 JIANG DEHAO



論 文 題 目 Development of novel matrix-free hyperfluorescence system for high color purity OLEDs

(高色純度有機ELのための新規マトリックスフリーハイパー有機EL技術の開発)

高精細ディスプレイの低消費電力化には、高効率、かつ、発光スペクトルの半値全幅が狭く色純度の高い有機 EL デバイスが必要となる。これを解決する手段として、多重共鳴型熱活性化遅延蛍光材料 (MR-TADF) と増感剤を併用したハイパー有機 EL 技術が注目されている。MR-TADF 材料の長い遅延蛍光寿命に起因する効率の低下とデバイスの駆動安定性を同時に解決する。しかしながら、発光層に 3 種類以上の材料を混合して用いるため、デバイス作成が極めて煩雑であり、再現性が低く留まり、大量生産に向かない問題がある。中でも、MR-TADF 材料は 0.5% の精度で精密に制御する必要がある。加えて、バンドギャップの大きなホストを併用するために、駆動電圧が高まる問題がある。本研究では、この問題の解決のために、マトリックスに使用されるバンドギャップの大きなホスト材料を使用しない「マトリックスフリーハイパー有機 EL 技術 (MFHF)」の確立を試みた。

発光材料は高い発光効率を実現するためにホスト材料に分散されるのが一般的である。本研究では、MFHF を実現するために、ホストを用いなくても高い発光量子効率を実現する TADF 材料の探索を行った。その結果、青色発光材料である SpiroAC-TRZ がホストを用いなくても高い発光効率 91% を示すことがわかった。次に、これと組み合わせる MR-TADF 材料の開発を行った。通常、MR-TADF 材料は激しい濃度消光を引き起こすため、1% 程度の低濃度で用いられるが、分子構造を非対称化し、嵩高い置換基を導入することで 10% の高濃度でも機能する新たな MR-TADF 材料 GBN を開発し、この問題を解決した。SpiroAc-TRZ と GBN を組み合わせた MFHF デバイスは、発光開始電圧 3 V、半値幅 50 nm 以下、最大外部量子効率が 30% 超を実現した。これらは、ホスト材料を利用した通常のデバイスに匹敵する成果であり、本研究のコンセプトが有効であることを実証する結果である。また、MFHF に適した新しい増感剤群の開発、さらなるデバイス構造の単純化も試みていた。

学位論文は全編 6 章で構成されている。第 1 章では、有機エレクトロルミネッセンス (OLED) の発展の歴史および基本原理を詳しく説明し、TADF 材料および MR-TADF 材料の理論的概念を深く掘り下げて解説する。この章では、現在広く使用されているハイパーフルオレッセンスシステムの利点と欠点を詳細に分析し、MFHF システムを開発する必要性を強調する。第 2 章では、MFHF システムに関する現在の研究状況と主要な課題を検討した後、エネルギー移動プロセスを調整することを目指した革新的な設計戦略を提案し、その後、新しい分子構造を設計および合成する。この新しい設計コンセプトの有効性と実用性を、ドーパされた薄膜の光物理特性の綿密な実験的検証を通じて確認する。第 3 章では、MFHF システムが示すエレクトロルミネッセンス (EL) 性能を詳しく分析し、非常に高い効率を実現しながらも、デバイスの安定性に関連する重大な問題を明らかにする。これらの安定性の問題に対処するために、第 4 章では、MFHF システム専用のホスト材料を設計する新しい戦略を紹介し、この戦略を基に 2 種類の新しいホスト材料を合成する。第 5 章では、これらの新規合成ホスト材料を取り入れた MFHF OLED デバイスの構造を体系的に最適化し、その性能を向上させる。最後に、第 6 章では全体を総括した。

## 論文内容要旨 (英文)

2021 年度入学 大学院博士後期課程

有機材料システム専攻

氏 名 JIANG DEHAO



論 文 題 目 Development of novel matrix-free hyperfluorescence system for high color purity OLEDs

Organic light-emitting diodes (OLEDs) technology has been widely used in the display field, but further improving device performance and reducing costs have always been desired. Thermally activated delayed fluorescence (TADF)-sensitized fluorescent OLEDs (TSF or Hyperfluorescent) are considered as one of the most promising solutions for next-generation OLEDs due to their ability to greatly improve device efficiency and lifetime while maintaining high color purity. Current hyperfluorescent OLEDs typically feature a three-component emissive layer (EML) (or even four components in the case of exciplex/mixed matrices: high triplet energy matrix, TADF sensitizer and emitter, which coined as matrix-containing hyperfluorescence (MCHF). To avoid concentration quenching and ensure effective energy transfer, the concentration of the sensitizer is usually kept below 50 wt%, while the concentration of the emitter is around 0.5 wt%. Compared to the typical binary EML (host-guest system) widely used in the industry, the diverse composition and extremely low doping concentrations required in MCHF devices lead to high costs and low reproducibility in device fabrication. Power efficiency is also reduced due to higher turn-on and driving voltages caused by wide bandgap matrices. Therefore, developing matrix-free hyperfluorescent (MFHF) devices with a binary EML would significantly enhance the commercial viability of hyperfluorescent OLEDs.

This thesis comprises six chapters. The thesis consists of six chapters. Chapter 1 introduces the development history and fundamental principles of OLEDs, as well as the concepts of TADF materials and MR-TADF materials. It summarizes the advantages and disadvantages of currently used hyperfluorescence systems and highlights the necessity of developing the MFHF system. Chapter 2 introduces the current research status and challenges of the MFHF system. It then proposes a novel design strategy for constructing the MFHF system by regulating the energy transfer process and subsequently designs and synthesizes new molecules. Finally, the effectiveness of this design concept is successfully validated through testing the photophysical properties of doped films. Chapter 3 delves into the electroluminescence (EL) performance of the MFHF system, which exhibits exceptional efficiency but suffers from poor stability. To address the stability issue, Chapter 4 introduces a new host material design strategy and reports the synthesis of two novel host materials. Chapter 5 systematically optimizes the device structure of MFHF OLEDs using these new host materials. Finally, Chapter 6 provides a comprehensive summary of the findings and implications of this research



# 学位論文の審査及び最終試験の結果の要旨

2025 年 2 月 12 日

有機材料システム研究科長 殿

課程博士論文審査委員会

主査 笹部 久宏 印  
副査 千葉 貴之 印  
副査 佐野 健志 印  
副査 横山 大輔 印

学位論文の審査及び最終試験の結果を下記のとおり報告します。

## 記

論文申請者	有機材料システム専攻 氏名 JIANG DEHAO		
論文題目	Development of novel matrix-free hyperfluorescence system for high color purity OLEDs (高色純度有機 EL のための新規マトリックスフリーハイパー有機 EL 技術の開発)		
学位論文審査結果	合格	論文審査年月日	2025 年 2 月 5 日～ 2025 年 2 月 12 日
論文公聴会	2025 年 2 月 12 日	場 所	工学部 11 号館 2 階未来ホール
最終試験結果	合格	最終試験年月日	2025 年 2 月 12 日

## 学位論文の審査結果の要旨 (1,000 字程度)

全 5 章から構成される博士学位論文の審査を行った。本論文では、単純な構成で高効率かつ高色純度の有機 EL デバイスを実現する新しい技術の開発を目指し、多重共鳴型熱活性化遅延蛍光 (MR-TADF) 材料と増感剤を併用したハイパー有機 EL 技術に着目した。従来のハイパー有機 EL 技術には、(i) 発光層を構成する材料が 3～4 種と多い、(ii) ワイドバンドギャップホストが必須であり、デバイスの駆動電圧が高い、(iii) MR-TADF 発光材料の凝集起因消光が原因となり、0.5 wt% 程度の極めて低いドーピング濃度の制御が必須である問題点があった。本研究では、濃度消光の小さな MR-TADF 発光材料と TADF ホストの 2 種類のみを用いる新しいマトリックスフリーハイパー有機 EL 技術 (MFHF) を開発し、これらの課題解決を試みた。

第 1 章では、既存のハイパー有機 EL 技術の現状を整理し、問題点を指摘した。問題解決のために、本研究の対象である MFHF の既存技術に対する優位性と解決すべき課題について整理し、その開発の意義を述べた。第 2 章では、MFHF に適用可能な MR-TADF 発光材料と TADF ホストの分子設計指針を示した。MR-TADF 材料 GBN は新たに開発し、TADF ホスト SpiroAC-TRZ は既存の分子を用いた。これらの組み合わせを用いることで、MR-TADF 材料を高い濃度で用いても 100% の発光量子効率を実現することができ、遅延蛍光寿命も 1 桁短縮された。第 3 章では、第 2 章で見出した発光材料とホストを用いて有機 EL デバイスを作成・評価した。デバイスは、3 V の極めて低い発光開始電圧、最大外部量子効率 30% 超を実現したことから、本論文のコンセプトが有効であることが示された。一方、高輝度下では、大きな効率のロールオフが見られた。第 4 章では、MFHF に適用可能な新規 TADF ホスト材料群を設計・合成した。デバイスを評価した結果、効率のロールオフが低減された。第 5 章では、本論文を総括し、今後の展望を述べた。本研究の成果は 2 報の学術論文として発表され、当該専攻の審査基準を満たしている。

以上を総合的に判断し、本論文の研究テーマには新規性・独自性があり、専門的知識に基づいた研究計画の立案・遂行が適切に行われていると評価できる。論文の構成は適切であり、論理的な記述および研究テーマに沿った明確な結論が述べられている。以上の点から、合格と判断した。

## 研究内容に関する研究倫理又は利益相反に係る手続き

- ☐ 本論文は、研究倫理又は利益相反に係る手続きを要する研究内容を含んでいます。  
内容：
- ☒ 本論文は、研究倫理又は利益相反等に係る学内規則に基づく手続きは必要ありません。

## 最終試験の結果の要旨

最終試験は、公聴会後に行われた質疑応答の中で 1 時間 5 分行われた。学位論文の内容と関連分野に関する理解度が十分であり、研究内容や課題点を理解し、博士に必要な専門知識と研究能力を十分に備えていることから、専攻が定める審査基準を満たしていると判断し、合格とした。