熱刺激電流計測法を用いたTADF素子のキャリアトラップおよび劣化解析

Carrier traps and degradation analysis of organic light-emitting diodes using thermally activated delayed florescence emitter by thermally stimulated current measurement

九州先端研 [1]、CEREBA[2]、九大 OPERA[3]
筒井 裕子 [1]、°八尋 正幸 [1]、藤原 隆 [1]、筒井 哲夫 [2]、安達 千波矢 [3]
ISIT [1], CEREBA[2], OPERA, Kyushu Univ. [3]
Yuko Tsutsui[1], °Masayuki Yahiro[1], Takashi Fujihara[1], Tetsuo Tsutsui[2], Chihaya Adachi[3]
E-mail: yahiro@isit.or.jp, adachi@cstf.kyushu-u.ac.jp

【緒言】熱刺激電流（TSC）計測法は、有機薄膜層内部や界面などに形成されたキャリアトラップを計測し、キャリアトラップ深さの算出ができることから、有機 EL 素子の劣化解析[1]や素子設計[2]に活用されてきた。そこで、我々は TSC 計測法を用いて熱活性型遅延蛍光（TADF）材料を用いた多数の積層構造からなる有機 EL 素子のキャリアトラップ解析を行い、TADF を用いた有機 EL 素子のキャリアトラップの起源を同定し、素子の劣化に伴う TSC スペクトルの関係から劣化機構の検討を行ったので報告する。

【実験】TSC 解析には TADF 材料を発光材料に用い、文献[3]を参考にして素子構造を ITO/HAT-CN(10 nm)/Tris-PCz(30 nm)/15wt%-4CzIPN:mCBP(30 nm)/T2T(10 nm)/BPy-TP2 (40 nm)/LiF(0.8 nm)/Al(100 nm)とした。さらに、TSC 解析に応じて、上記素子の一部分を切り出した単層素子や電極材料を変化させた素子を作製した。TSC 測定では、クライオスタットに設置した素子を 80 K まで冷却し、1 mA/cm^2 の電流を 2 分間印加し、素子中のキャリアトラップに十分にキャリアを捕捉させた。その後、コレクティングバイアスを-0.01 V 印加した状態で、10 K/min の速度で昇温しながら電流を計測した。

【結果】最初に TADF を用いた有機 EL 素子の TSC および partial TSC を測定し、partial TSC のアレニウスプロットから、トラップ深さを算出した。その結果、低温側のピークからは、0.13、0.20、0.25 eV の 3 つの準位の活性化エネルギーを持つトラップ、高温側のピークからは、0.47 eV の活性化エネルギーを持つトラップがあることが分かった。さらに、この素子を 10 mA/cm^2 の定電流で駆動させ TSC 計測を行った結果、Fig.1 に示したように、高温側の深いトラップ強度は一度増加するものの、L_T60 から減少し始め L_T20 ではほぼ消失することが分かった。これらの TSC ピークは、それぞれの単層素子の解析から、変化しない低温側のピークは、Tris-PCz と mCBP のホールトラップであり、劣化に伴って変化する高温側のピークは、4CzIPN と T2T との相互作用により形成された電子トラップと分かった。その結果、この有機 EL 素子の劣化機構の一つとして、4CzIPN と T2T の相互拡散によるトラップ密度の増加と同時に T2T の分解が進むことにより、さらに深いトラップへと変化することにより劣化が進行する可能性が強く示唆された。

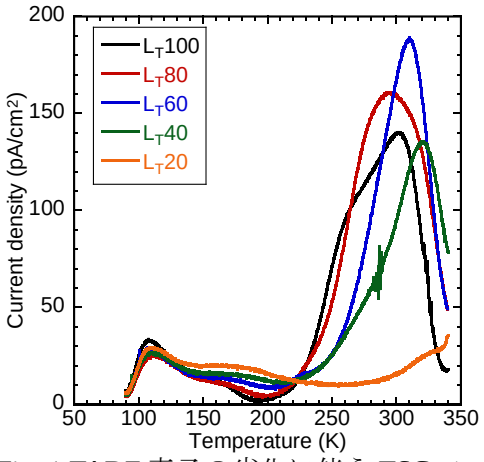

Fig. 1 TADF 素子の劣化に伴う TSC スペクトルの変化

本成果の一部は、新エネルギー・産業技術開発機構（NEDO）から受託したプロジェクト「次世代材料評価基盤技術開発/有機 EL 材料の評価基盤技術開発」事業により研究を行ったものである。

[1] M. Nakahara, et al., *Jpn. J. Appl. Phys.*, **46**, L636 (2007)
[2] D. P-K. Tsang, et al., *Sci. Rep.*, **6**, 22463 (2016)
[3] H. Nakanotani, et al., *Sci. Rep.*, **3**, 2127 (2013)

© 2017年 応用物理学会