

論文内容要旨（和文）

平成17年度入学 大学院博士後期課程

物質生産工学専攻 機能性高分子化学講座

学生番号 05522210

氏名 元山 貴雄



論文題目 青色リン光有機EL素子に向けた新規ホスト材料の開発

近年、有機EL素子の実用化が急速に発展し、携帯電話や薄型テレビ等に応用が進み、市販品も数多くある。そして、有機EL素子のさらなる応用技術として、蛍光灯に置き換わる次世代照明があり、世界規模で活発に研究が進んでいるのが現状である。照明としての応用を考えた場合には、色度再現性を向上させるため光の三原色(青、緑、赤)が必要である。すなわち、それぞれの色に発光する有機EL素子の開発が必要不可欠であると同時に、実用化レベルの発光効率を示す有機EL素子の開発も非常に重要である。現在、白色発光を示す有機EL素子の報告例は多数あるが、蛍光灯の代替品として用いるためには、さらなる高効率化が重要である。発光材料における高効率化の一手法としては、リン光材料を使用することで大幅に向上させることが可能である。一般的な蛍光材料では最大外部量子効率が7.5%程度であるのに対してリン光材料を用いた場合には最大外部量子効率が25~30%程度まで向上し、蛍光材料よりも約4倍の効率向上が可能である。現状として、緑色や赤色に比べて青色のリン光有機EL素子の開発が遅れている。従って、照明用途を目指した場合、高効率青色リン光有機EL素子の開発は非常に重要である。

一般的なリン光有機EL素子において、リン光材料はホスト材料と呼ばれる有機物に低濃度分散した系で広く使用される。そして、有機EL素子の効率は、このホスト材料に大きく依存することが過去の研究から明らかである。高効率発光を得るために、1)高E_Tレベル、2)ゲスト材料の凝集抑制、3)ホール及び電子の再結合確率向上が挙げられる。1)については、リン光材料よりも高いE_Tレベルを有するホスト材料を使用することで励起子の閉じ込めが可能であり、円滑なリン光発光が得られる。2)については、ゲスト材料の凝集が起こると円滑な発光が得られないため、ゲスト材料との分散性が高いホスト材料が必要である。3)については、発光層中にホールと電子の再結合確率を向上させることで、低電圧化が可能であり、高効率化が期待できる。

そこで、本論文では、上記の項目に着目し種々のホスト材料を合成し青色リン光有機EL素子へと応用を試みた。具体的な項目を以下に示す。

1. 新規カルボリン含有ホスト材料の合成と有機EL素子への応用

これまでに当研究室で開発されたホスト材料である、2, 6-bis(3-(carbazol-9-yl)phenyl)pyridine (26DCzPPy)は、青色及び白色有機EL素子に応用すると、非常に高効率な発光を示すことがわかっている。この26DCzPPyに着目すると、構造中にピリジン環、すなわちC=N結合を有している。そこで、現在、広く一般的に使用されているホスト材料である、N,N'-dicarbazolyl-3, 5-benzene (mCP)に対して、さらにC=N結合を導入することによって、高効率化を期待した新規ホスト材料の開発を試みた。新規に合成した1, 3-di[9H-pyrido(2, 3-b)indolyl]benzene (mCaP)を一般的な青色リン光ゲスト材料(FIrpic)のホスト材料として使用したところ、mCPよりも約1.1~1.3倍程度の効率向上を確認した。この原因について、詳細に解析を行ったところ、mCaPの方がmCPよりも電子注入性に優れていることが見出され、すなわち発光層中でのホールと電子の再結合確率が向上したことによって高効率化が達成されたと言える。

2. 他の青色リン光ゲスト材料への応用

実用化を考えた場合、高効率且つ長寿命を示す青色リン光有機EL素子が必要不可欠である。しかしながら、前述したFIRpicは電気化学的安定性が乏しいことが危惧されているため、より電気化学安定性が高いゲスト材料の使用を試みた。新規に合成したmCaPを用いたところ、ゲスト材料の凝集と思われる発光が観測されたためにより嵩高い置換基を有するホスト材料が必要であることが見出された。そこで、トリフェニルシリル基及びテトラフェニルシリル基を導入したホスト材料を用いたところ、ゲスト材料の凝集を抑制し、円滑な青色リン光発光を得ることに成功した。すなわち、分子設計指針として、ホスト材料が嵩高い骨格を有することが今回用いたゲスト材料には必要不可欠であること見出した。また骨格として、ジベンゾフランを有したホスト材料が低電圧化を示したことから、次項目で誘導体化を検討した。

3. 新規ジベンゾフラン含有ホスト材料の合成と有機EL素子への応用

前述の実験より、ジベンゾフランを有したホスト材料が低電圧化を示すことから、より高効率及び長寿命を達成するために新規ジベンゾフラン含有ホスト材料の合成を試みた。設計指針として、両キャリア輸送が期待できるジベンゾフランとカルバゾールを組み合わせた新規ホスト材料を合成し、青色リン光有機EL素子へと応用したところ、高効率及び長寿命を達成した。

青色リン光有機EL素子に関しては、さらなる高効率化と長寿命化が課題である。今回行った研究が青色リン光有機EL素子に対するホスト材料の分子設計指針の一端を担えたと言える。

(注) ① タイプ、ワープロ等を用いてください。10pt 2,000字程度（2頁以内）とします。

② 論文題目が英文の場合は、題目の下に和訳を（ ）を付して併記してください。

論文内容要旨（英文）

平成17年度入学 大学院博士後期課程

物質生産工学専攻 機能性高分子化学講座

学生番号 05522210

氏名 元山 貴雄



論文題目 Development of novel host materials
for blue phosphorescent organic light emitting devices

Phosphorescent organic light emitting devices(OLEDs) have received considerable attention for next generation lighting and flat panel display applications. In phosphorescent OLEDs, the host material plays a critical role in determining the OLED performance. The primary requirements of host materials are 3-fold: (1) the confinement of triplet excitons on the emitter; (2) the suppression of emitter aggregation; (3) the adjustment of the carrier balance of holes and electrons in the emissive layer (EML). To meet these requirements, our group has already reported a pyridine-containing host material (26DCzPPy). This material has electron-deficient C=N double-bond(s), and thus the weak electron accepting nature of C=N double-bond promotes the electron injection as well as electron-transport creating superior carrier balance of holes and electrons in EML.

Firstly, we introduce an α -carboline derivative 1,3-di[9H-pyrido(2,3-b)indolyl]benzene (mCaP) as a host material for phosphorescent OLEDs. Similarly to 26DCzPPy, mCaP has two electron-deficient C=N double-bonds, and can be regarded as an aza analog of conventional host material *N,N'*-dicarbazolyl-3,5-benzene(mCP). By using a combination with blue phosphorescent emitters such as Flrpic, we have successfully developed high performance OLEDs.

Secondly, we also tried to estimate another blue phosphorescent emitter. The emission of OLEDs exhibited from superimposition of emitters and their aggregation. Consequently, a further molecular design to suppress the aggregation effect is proposed. We focused on triphenylsilyl and/or tetraphenylsilyl as the bulky side chain groups. By using a new host material, we have successfully suppressed the suppression of emitter aggregation.

In the third section, the novel 2DBFCz compound containing two dibenzofuran as electron transport unit and one carbazole as hole transport unit was designed and synthesized. To investigate the functionality of 2DBFCz as a host material, and a blue phosphorescent OLED was fabricated. 2DBFCz based OLED showed much higher current density and efficiency than that of conventional host material.