

## 審 査 の 結 果 の 要 旨

氏 名 神 野 浩

本論文は有機エレクトロルミネッセンス（有機EL）素子の効率向上に向けた研究の成果をまとめたもので、計六章よりなる。

第1章は序論とし、1987年に初めて報告され、薄型軽量化・広視野角・高輝度・高速応答性・広い色再現性範囲・素子作成の簡便性（低コスト性）といった長所をもつ有機EL素子につき、開発史と特性、用途を概観したあと、赤色発光および白色発光EL素子の現状と本研究の目的を述べている。また第2章では、分子の電子状態に基づきエネルギー移動と発光のメカニズムを概観している。

第3章には、赤色発光有機EL素子に関する研究の成果をまとめている。液晶ディスプレイをしのぐ高効率化（駆動電圧の低減）と長寿命化（輝度減衰の低減）を目指し、多環芳香族化合物のルブレンを増感剤に使うEL素子の性能を検討した。ルブレンは、ホスト（アルミニウムキノリン錯体 Alq）と赤色発光ドーパント（ピラン誘導体 DCJTB）の中間的なエネルギー準位をもち、発光スペクトルがDCJTBの吸収スペクトルとよく重なり合う物質であることより選択した。

ホストAlqにDCJTBを2%ドープした素子と、DCJTB 2%+ルブレン 10%をドープした素子は、電流効率・電力効率がそれぞれ $1.7 \text{ cd/A} \cdot 4.3 \text{ cd/A}$ ,  $0.6 \text{ lm/W} \cdot 1.7 \text{ lm/W}$ となって、予期どおりルブレンの添加により効率が大幅に向上了。この新規ドーピング手法は、有機EL素子に広く応用可能だと結論している。

また、ルブレンを増感剤ではなくホスト材料に使い、テトラフェニルジベンゾペリフランテンDBPをドーパント、アントラセン誘導体DBzAを電子輸送層に使う新規な赤色EL素子を作成して性能を評価したところ、駆動電圧3.2Vにおいて電流密度 $20 \text{ mA/cm}^2$ 、電流効率 $5.4 \text{ cd/A}$ 、電力効率 $5.3 \text{ lm/W}$ 、外部量子効率4.7%，色度[0.66, 0.34]となり、リン光発光素子を含むあらゆる報告例のうち最高効率のEL素子であり、素子寿命も安定していた。Alqに比べ、ルブレンのキャリア輸送性とDBzAの電子注入性が高いためにこうした成果が達成できたと結論づけている。

第4章には、白色発光有機EL素子に関する研究の成果をまとめている。検討の着眼点には、①蛍光・リン光材料への一重項および三重項励起エネルギー伝達経路の制御を通じた高効率化と、②新規な中間層を使うスタック構造の導入によるリン光白色発光素子の高効率化の二つがある。

まず①については、イリジウムや白金など重金属を含むリン光発光材料を使えば重原子効果（スピナー軌道カップリング）が項間交差を速めて内部量子収率が100%になるという予測（1998年）に基づき、前記CBPをホスト、イリジウム錯体Ir(bpy)<sub>3</sub>と前記ピラン誘導体DCJTBを発光性ドーパントとする白色発光素子を作成して性能を評価した。その結果、青色蛍光発光層で生じた一重項励起エネルギーが蛍光青色発光に消費され、より低エネルギーの三重項励起エネルギーが伝導性スペーサー内を拡散移動し、選択的に緑色・赤色発光ドーパントでリン光に変わり、一重項→三重項の項間交差によるエネルギーロスがない高効率発光が生じると判明した。外部量子効率と電力効率はそれぞれ $\eta_{ext}=11.0\%$ 、 $\eta_p=22.1\text{ lm/W}$ となり、電流密度の変化に左右されにくい安定した発光スペクトルを得た。こうして、高電流密度域の効率低下を抑え、高効率と長寿命が両立した新規な素子を実現している。

また②については、 $n$ 個の有機EL発光ユニットを積層して隣接ユニット間に電荷発生層を挟み、一定電流密度で輝度（電流効率）が単層発光ユニットの $n$ 倍となるうえ素子の超寿命化にもつながるスタック構造の検討を行っている。従来の電荷発生層（V<sub>2</sub>O<sub>5</sub>やFeCl<sub>3</sub>）の透過率が短波長域で低いことに注目し、可視域の透過率が80%以上と高く、電荷注入特性にもすぐれた電荷発生層MoO<sub>3</sub>を使う白色スタック素子を開発した。リン光発光ユニットを1, 2, 3層スタックした素子は、ユニット数にほぼ比例する外部量子効率 $\eta_{ext}$ を示し、外部量子効率と電力効率それぞれ $\eta_{ext}=34.9\%$ 、 $\eta_p=22.7\text{ lm/W}$ の高効率発光EL素子が実現でき、フルカラーディスプレイや照明用途に応用できる有望な技術だと結論している。

第5章には上記の研究成果を総括し、フルカラー表示用有機EL素子の将来展望も述べている。

以上要するに本研究は、将来のエレクトロニクス産業で重要な役割を演じる有機EL素子の高効率化につながる数々の有用な知見を得たものであり、工業物理化学、材料化学、材料工学の進展に大きな意義を有する。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。