

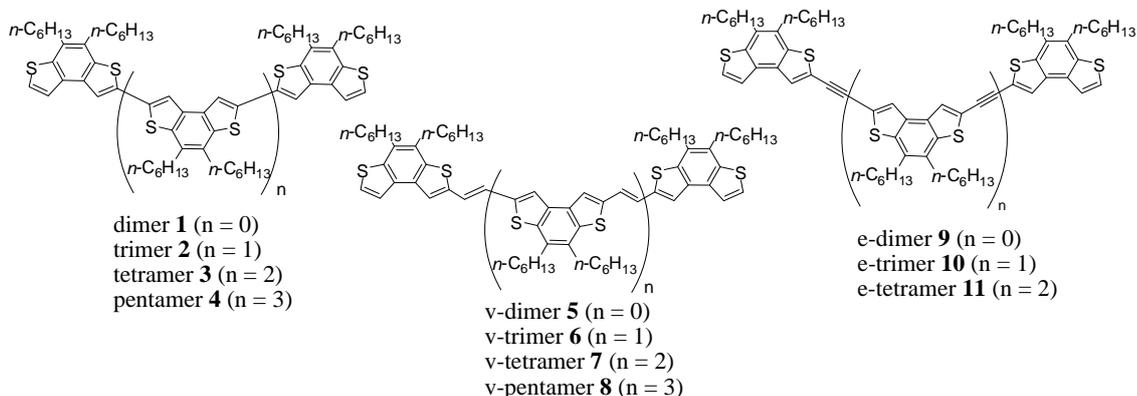
氏名（本籍）	西出洋祐（和歌山県）
学位の種類	博士（工学）
学位授与番号	甲第21号
学位授与日付	平成20年3月25日
専攻	システム工学専攻
学位論文題目	Synthesis and Relationship between Structures and Properties of Oligomers and Copolymers Based on Benzo[1,2-b:4,3-b']dithiophene:Aiming at Application to Organic Light-Emitting Diodes 【和訳】ベンゾジチオフエンを用いた新規有機EL発光材料の合成と構造-物性の関係
学位論文審査委員	(主査) 教授 木村 恵一 (副査) 教授 坂本 英文 准教授 大須賀 秀次

論文内容の要旨

有機エレクトロルミネッセンス（有機EL）は蛍光物質に電圧を印加すると発光する現象で、電界発光とも呼ばれている。有機EL素子は自発光型であるためバックライトが不要であり、高視野角、低消費電力、軽量、薄型といった特徴を持つディスプレイが作製可能である。有機EL素子は次世代型ディスプレイの最有力候補として注目されており、効率的な材料の開発が活発になされている。本研究では、ベンゾジチオフエンを基本骨格としたオリゴマーやコポリマーを合成し、その構造と特性の関係を調べることで、高効率発光材料への応用を目的とした。

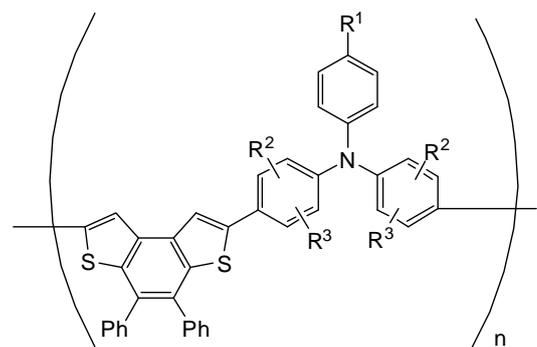
第一章では、三種類のベンゾジチオフエン（BDT）オリゴマーを合成し、それらの特性を評価した。

三環性複素環化合物であるBDT誘導体が熱的に安定であり、強い発光を示すため、有機ELの発光材料として利用できることがこれまでの研究で明らかにされている。本章では、BDT骨格を直接結合したオリゴマー（1-4）やビニレンおよびエチニレンスペーサーで結合したオリゴマー（5-8、9-11）を合成した。これら発光材料の構造と熱安定性、光学特性、電気化学特性、EL特性などの関連性を詳しく調べた。



第二章では、ベンゾジチオフエン-トリフェニルアミンコポリマーを合成し、その光学特性、EL特性における置換基効果を調べた。

高分子系の有機EL発光材料は、インクジェット印刷を用いると無駄なく低コストで基板上に塗布することができ、その精度も極めて高いために最近注目を集めている。また、その構造と特性の関係を詳しく調査することは、高効率な有機EL発光材料を生み出すために非常に重要である。本章では、BDT骨格を有する高効率高分子発光材料を得るために、正孔輸送能力を持つことが知られているTPAとのコポリマーを合成した。それにより、正孔輸送能力を兼ね備えるとともに、TPAの立体的なかさ高さのためにある程度分子間相互作用が抑制された。



P-2eh ($R^1 = 2\text{-ethylhexyl}$, $R^2 = \text{H}$, $R^3 = \text{H}$)

P-Me ($R^1 = n\text{-hexyl}$, $R^2 = \text{Me}$, $R^3 = \text{H}$)

P-2Me ($R^1 = n\text{-hexyl}$, $R^2 = \text{Me}$, $R^3 = \text{Me}$)

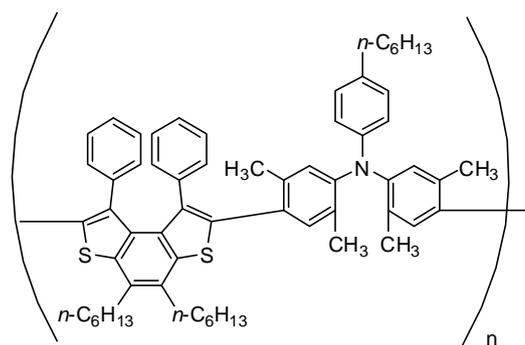
第三章では、励起状態でもねじれた構造をもつベンゾジチオフェン-トリフェニルアミンコポリマーを合成し、白色有機 EL (WLEDs) への応用を目的とした。

複数の発光材料を組み合わせた WLEDs は、色安定性や再現性の問題がある。しかし、単一の発光材料からなる WLEDs は、その問題を改善できるため、白色に発光する新規な構造をもつ材料が注目を集めている。

P-Me および P-2Me は、基底状態では主鎖がねじれた構造をとっているが、励起状態では共役の安定化の効果が大きく主鎖が平面化した構造となった。そこで、BDT 部位の β 位にフェニル基を導入することで、ポリマー主鎖がさらに歪んだ構造を持つコポリマー P-PBTx を合成し、構造と特性の関係をより詳細に調査することを目的とした。

このコポリマーを発光層に用いて、スピコート法により有機 EL 素子を作製した。薄膜の光励起発光スペクトルが 450 nm 付近に単一のピークを示したのに対し、電気励起 EL スペクトルでは大きく二つの発光ピークが観測され、青色と黄色の発光が合わさることで、ほぼ白色の発光が得られた。この発光の原因について、さらに詳しく調査する必要があるが、単一成分の高分子材料から白色の発光が得られたことは、非常に興味深く重要な結果である。

以上のように、ベンゾジチオフェンを用いて構造を変化させたオリゴマーやコポリマーを合成し、その構造と特性の関係を調査した。この研究より得られた知見は、他の有機 EL 材料の開発にも応用でき、高効率かつ高色純度の材料の合成への指針となり得る。



論文審査結果の要旨

本研究では、オリゴマーもしくは高分子の基本ユニットとしてベンゾジチオフェンを用いることで新規有機 EL 発光材料を合成し、発光材料の構造と物性との関係について検討した。

第一章では、ベンゾジチオフェン (BDT) 骨格を直接結合したオリゴマーやビニレンおよびエチニレンスペーサーで結合したオリゴマーを合成し、これら発光材料の構造と熱安定性、光学特性、電気化学特性、EL 特性などの関連性を詳しく調べた。第二章では、正孔輸送能力を持つことが知られているトリフェニルアミン (TPA) とベンゾジチオフェンとのコポリマーを合成し、その光学特性、EL 特性における置換基効果を調べた。その結果、TPA の立体的かさ高さのために分子間相互作用がある程度抑制されること、また基底状態では主鎖がねじれた構造をとっているものの励起状態では共役の安定化の効果が大きく、主鎖が平面化した構造となることを明らかにした。第三章では、BDT 部位の β 位にフェニル基を導入することで、ポリマー主鎖がさらに歪んだ構造を持ち、励起状態でもねじれた構造をもつベンゾジチオフェン-トリフェニルアミンコポリマーを合成した。このコポリマーを発光層に用いて有機 EL 素子を作製したところ、薄膜の光励起発光スペクトルが 450 nm 付近に単一のピークを示したのに対し、電気励起 EL スペクトルでは二つの大きな発光ピークが観測され、青色と黄色の発光が合わさることで、ほぼ白色の発光が得られることを明らかにした。

当該論文は新しい研究成果を含んでおり、優れた研究であることが認められた。このことは、権威ある学会誌に研究論文として公表され、また、国内外の学会においても数多くの口頭発表がなされていることから明らかである。さらに、予備審査の結果を受けて、新たな研究結果を得た上、論文を加筆修正したことが確認された。

以上の結果および博士論文公聴会 (平成 20 年 2 月 6 日開催) を含む審査委員会の審査により本論文は博士論文として価値あるものと認める。

最終試験結果の要旨

平成 20 年 2 月 14 日全審査員出席のもとに学位申請者に対し、論文内容およびこれに関する事項について試問を行い、最終試験に合格と判定した。