(19)中华人民共和国国家知识产权局

(12)发明专利申请

(10)申请公布号 CN 102473859 A
(43)申请公布日 2012.05.23

(21)申请号 201180003204.5
(22)申请日 2011.07.25
(30)优先权数据
2010-167319 2010.07.26 JP
(85)PCT申请进入国家阶段日
2012.02.01
(86)PCT申请的申请数据
PCT/JP2011/066852 2011.07.25
(87)PCT申请的公布数据
WO2012/014841 JA 2012.02.02
(71)申请人 出光兴产株式会社
地址 日本东京都
(72)发明人 西村和树 伊藤光则 日比野茎子
吉田圭
(74)专利代理机构 上海市华诚律师事务所 31210
代理人 徐申民 侯莉
(51)Int.Cl.
H01L 51/50(2006.01)
C07D 209/86(2006.01)
C07D 405/04(2006.01)
C09K 11/06(2006.01)

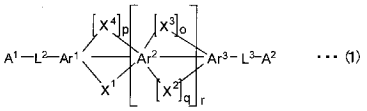
权利要求书 5 页 说明书 175 页 附图 1 页

(54)发明名称

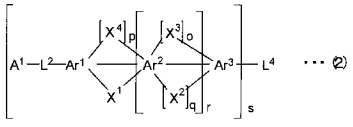
有机电致发光元件

(57)摘要

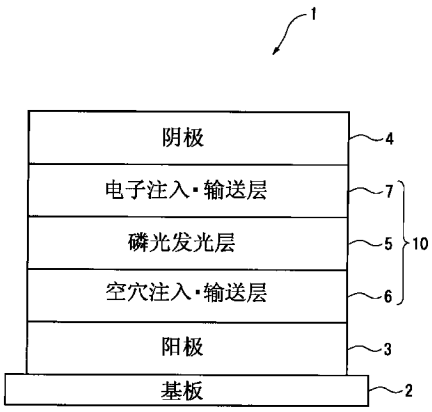
一种具备阳极、阴极、设置在所述阳极与所述阴极之间的有机薄膜层的有机电致发光元件，其特征在于，所述有机薄膜层具备至少含有第1基质、第2基质、显示发光的掺杂剂的发光层，上述第1基质为同一分子内具有1个以上咔唑基和1个以上含氮杂环基的化合物，上述第2基质为下述式(1)或(2)所示的化合物。



… (1)



… (2)



CN 102473859 A

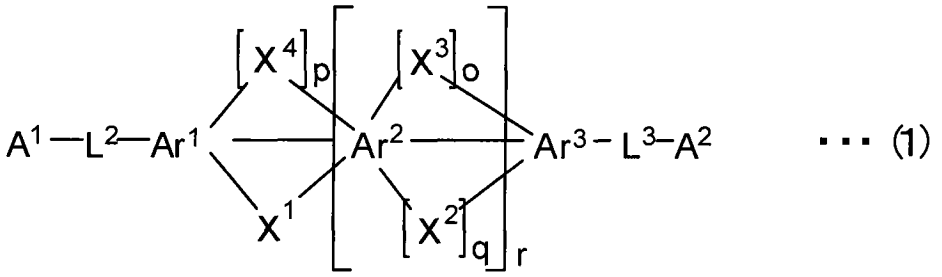
1. 一种有机电致发光元件，具备阳极、阴极、设置在所述阳极与所述阴极之间的有机薄膜层，其特征在于，

所述有机薄膜层具备，至少含有第 1 基质、第 2 基质、显示发光的掺杂剂的发光层，

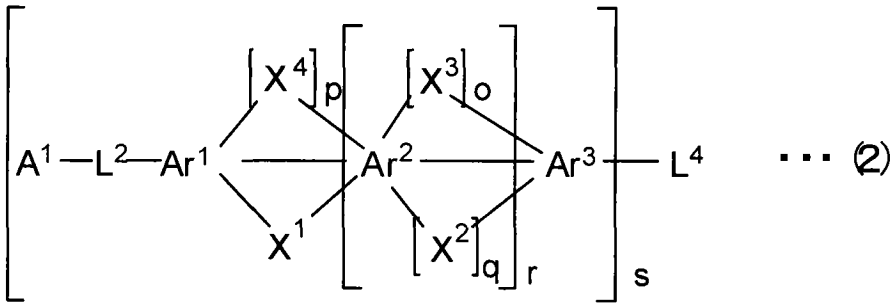
所述第 1 基质为同一分子内具有 1 个以上咔唑基和 1 个以上含氮杂环基的化合物，

所述第 2 基质为下述式 (1) 或 (2) 所示的化合物，

【化 1】



··· (1)



··· (2)

式 (1) 及 (2) 中，Ar^1、Ar^2 及 Ar^3 各自独立地表示

取代或无取代的成环碳原子数 6 的芳香族烃基、

或者取代或无取代的成环原子数 6 的芳香族杂环基，

其中，Ar^1、Ar^2 及 Ar^3 可具有一个或多个取代基 Y，当取代基 Y 为多个时，各自均可不相同，

Y 表示碳原子数 1 ～ 20 的烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环烷基、

碳原子数 1 ～ 20 的烷氧基、

碳原子数 7 ～ 24 的芳烷基、

甲硅烷基或碳原子数 3 ～ 20 的取代甲硅烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基、

或者成环碳原子数 3 ～ 24 的取代或无取代的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基，

式 (1) 及 (2) 中，X^1、X^2、X^3 及 X^4 各自独立地表示氧 O、硫 S、$N-R^1$ 或者 CR^2R^3，

所述 R^1、R^2 及 R^3 各自独立地表示

碳原子数 1 ～ 20 的烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环烷基、

碳原子数 7 ～ 24 的芳烷基、

甲硅烷基或碳原子数 3 ～ 20 的取代甲硅烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基、

或者取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 24 的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基，

其中，当 X^1 与 X^2 同时为 N-R^1，o、p 为 0、q 为 1 时，

或者当 X^1 与 X^3 同时为 N-R^1，p、q 为 0、o 为 1 时，

R^1 的至少 1 个表示取代或无取代的成环原子数 8 ～ 24 的 1 价稠合芳香族杂环基，

式 (1) 及 (2) 中，o、p 及 q 表示 0 或者 1，s 表示 1、2、3 或 4，是各自以 L^4 为连接基的 1 聚体、2 聚体、3 聚体、4 聚体，

r 表示 1、2、3 或者 4，

式 (1) 及 (2) 中，L^2 表示单键、

碳原子数 1 ～ 20 的亚烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环亚烷基、

2 价甲硅烷基或碳原子数 2 ～ 20 的 2 价取代甲硅烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的 2 价芳香族烃基或稠合芳香族烃基、

或者成环碳原子数 3 ～ 24 的取代或无取代的 1 价或 2 价的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基，

式 (1) 中，L^3 表示单键、

碳原子数 1 ～ 20 的亚烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环亚烷基、

2 价甲硅烷基或碳原子数 2 ～ 20 的 2 价取代甲硅烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的 2 价芳香族烃基或稠合芳香族烃基、

或者成环碳原子数 3 ～ 24 的取代或无取代的 2 价芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基，

式 (2) 中，L^4

当 s 为 2 时，表示

单键、

碳原子数 1 ～ 20 的亚烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环亚烷基、

2 价甲硅烷基或碳原子数 2 ～ 20 的 2 价取代甲硅烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的 2 价芳香族烃基或稠合芳香族烃、

或者成环碳原子数 3 ～ 24 的取代或无取代的 2 价芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基，

当 s 为 3 时，表示

碳原子数 1 ～ 20 的 3 价饱和烃基、

取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的 3 价环状饱和烃基、

3 价甲硅烷基或碳原子数 1 ～ 20 的 3 价取代甲硅烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的 3 价芳香族烃基或稠合芳香族烃基、

或者成环碳原子数 3 ～ 24 的取代或无取代的 3 价芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基，

当 s 为 4 时，表示

碳原子数 1 ～ 20 的 4 价饱和烃基、

取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的 4 价环状饱和烃基、

硅原子、

取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的 4 价芳香族烃基或稠合芳香族烃基、

或者成环碳原子数 3 ～ 24 的取代或无取代的 4 价芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基，式 (1) 及 (2) 中，A^1 表示

氢原子、

取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环烷基、

甲硅烷基或碳原子数 3 ～ 20 的取代甲硅烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基、

或者成环碳原子数 3 ～ 24 的取代或无取代的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基，式 (1) 中，A^2 表示

氢原子、

取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环烷基、

甲硅烷基或碳原子数 3 ～ 20 的取代甲硅烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基、

或者成环碳原子数 3 ～ 24 的取代或无取代的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。

2. 根据权利要求 1 所述的有机电致发光元件，其特征在于，所述式 (1) 及 (2) 的 X^1 与 X^4 之中的一个或 X^2 与 X^3 之中的一个为氧原子，

所述式 (1) 及 (2) 所示的化合物为分子内具有二苯并呋喃结构的化合物。

3. 根据权利要求 2 所述的有机电致发光元件，其特征在于，所述式 (1) 及 (2) 的 X^1 与 X^4 之中的一个，和 X^2 与 X^3 之中的一个同时为氧原子，

所述式 (1) 及 (2) 所示的化合物为具有苯并呋喃二苯并呋喃结构的化合物。

4. 根据权利要求 1 至 3 任意一项所述的有机电致发光元件，其特征在于，所述第 1 基质由下述式 (3) 至 (5) 的任意一项表示，

【化 2】

$$(Cz-)_aA^3 \quad \cdots (3)$$

$$Cz(-A^3)_b \quad \cdots (4)$$

式 (3) 及 (4) 中，Cz 表示取代或无取代的芳基咔唑基或咔唑基芳基，

A^3 为下述通式 (A) 所示的基团，a、b 分别为 1 ～ 3 的整数，

【化 3】

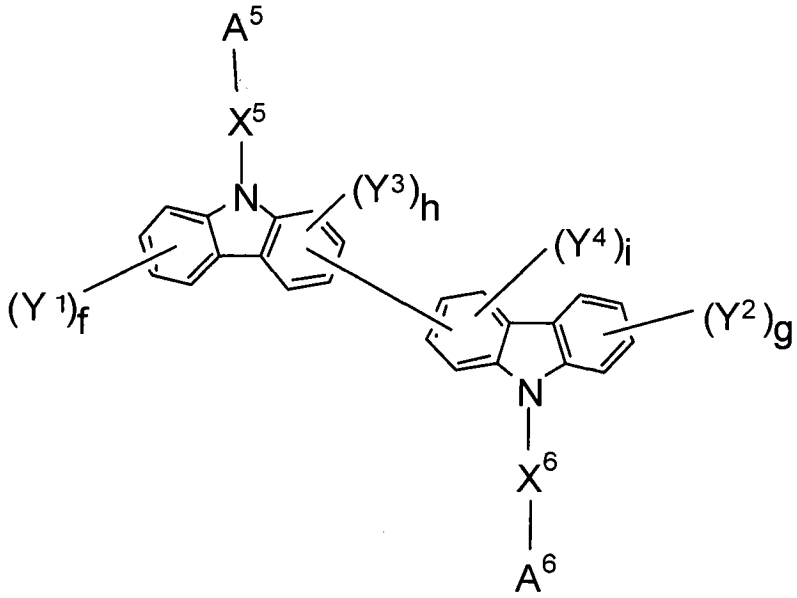
$$(M^1)_c-(L^5)_d-(M^2)_e \quad \cdots (A)$$

式 (A) 中，M^1 及 M^2 各自独立地为取代或无取代的成环碳原子数 2 ～ 40 的含氮芳香族杂环或含氮稠合芳香族杂环，可相同或不同，

L^5 为单键、取代或无取代的碳原子数 6 ～ 30 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基、取代或无取代的碳原子数 5 ～ 30 的环亚烷基，或者取代或无取代的碳原子数 2 ～ 30 的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基，

c 为 0 ～ 2、d 为 1 ～ 2、e 为 0 ～ 2 的整数，其中，c+e 在 1 以上，

【化 4】



... (5)

式 (5) 中，A^5 表示成环碳原子数 1 ～ 30 的取代或无取代的含氮杂环基，其中，不包括取代或无取代的咔唑基及取代或无取代的吲哚基，

A^6 表示成环碳原子数 6 ～ 30 的取代或无取代的芳香族烃基或稠合芳香族烃基，或者成环碳原子数 1 ～ 30 的取代或无取代的含氮杂环基，X^5，X^6 为连接基，相互独立地表示

单键、

成环碳原子数 6 ～ 30 的取代或无取代的芳香族烃基、

成环碳原子数 6 ～ 30 的取代或无取代的稠合芳香族烃基、

成环碳原子数 2 ～ 30 的取代或无取代的芳香族杂环基，或

成环碳原子数 2 ～ 30 的取代或无取代的稠合芳香族杂环基，

Y^1 ～ Y^4 相互独立地表示

氢原子、氟原子、氰基、

碳原子数 1 ～ 20 的取代或无取代的烷基、

碳原子数 1 ～ 20 的取代或无取代的烷氧基、

碳原子数 1 ～ 20 的取代或无取代的卤代烷基、

碳原子数 1 ～ 20 的取代或无取代的卤代烷氧基、

碳原子数 1 ～ 10 的取代或无取代的烷基甲硅烷基、

碳原子数 6 ～ 30 的取代或无取代的芳基甲硅烷基、

成环碳原子数 6 ～ 30 的取代或无取代的芳香族烃基、

成环碳原子数 6 ～ 30 的取代或无取代的稠合芳香族烃基、

成环碳原子数 2 ～ 30 的取代或无取代的芳香族杂环基，或

成环碳原子数 2 ～ 30 的取代或无取代的稠合芳香族杂环基，

另，相邻的 Y^1 ～ Y^4 可相互成键，形成环结构，

f、g 表示 1 ～ 4 的整数，h、i 表示 1 ～ 3 的整数，

另，当 f、g 为 2 ～ 4 的整数，h、i 为 2 ～ 3 的整数时，多个 Y^1 ～ Y^4 各自可相同或不同。

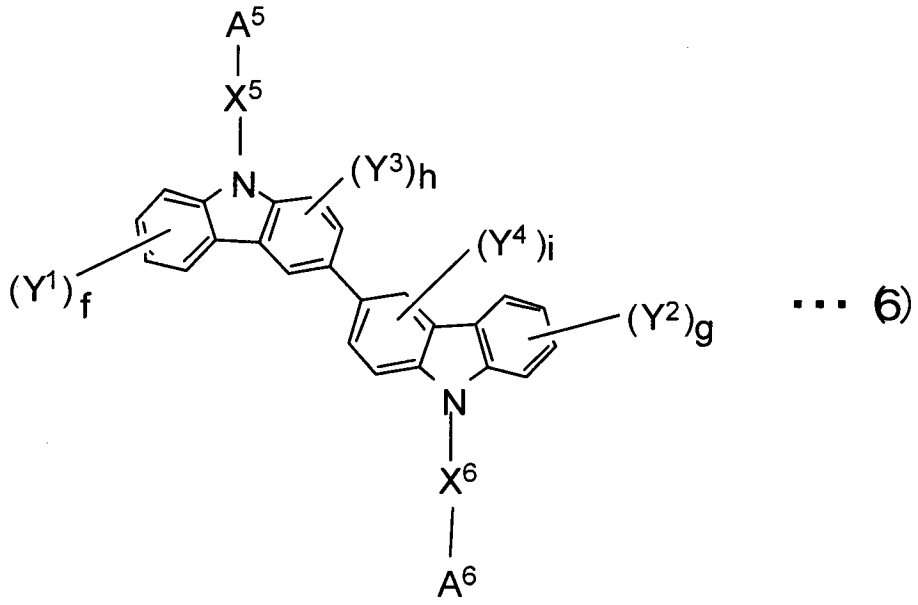
5. 根据权利要求 4 所述的有机电致发光元件，其特征在于，所述式 (3) 及 (4) 的 Cz 为取代或无取代的芳基咔唑基。

6. 根据权利要求 5 所述的有机电致发光元件，其特征在于，所述 Cz 为取代或无取代的苯基咔唑基。

7. 根据权利要求 5 所述的有机电致发光元件，其特征在于，所述芳基咔唑基的芳基部分被咔唑基取代。

8. 根据权利要求 4 所述的有机电致发光元件，其特征在于，所述式 (5) 由下述式 (6) 表示，

【化 5】



··· 6)

式 (6) 中，A^5、A^6、X^5、X^6、Y^1 ～ Y^4、f、G、h、i 与所述式 (5) 相同。

9. 根据权利要求 4 或 8 所述的有机电致发光元件，其特征在于，所述 A^5 为选自取代或者无取代的吡啶环、嘧啶环、三嗪环之中的基团。

10. 根据权利要求 9 所述的有机电致发光元件，其特征在于，所述 A^5 为取代或者无取代的嘧啶环基。

11. 根据权利要求 1 至 10 任意一项所述的有机电致发光元件，其特征在于，所述发光层含有磷光材料作为所述掺杂剂。

12. 根据权利要求 11 所述的有机电致发光元件，其特征在于，所述磷光材料为选自铱 Ir、锇 Os、铂 Pt 的金属原子的邻位金属化络合物。

13. 根据权利要求 1 至 12 任意一项所述的有机电致发光元件，其特征在于，在所述阴极与所述发光层之间具有电子注入层，该电子注入层含有含氮环衍生物。

14. 根据权利要求 1 至 13 任意一项所述的有机电致发光元件，其特征在于，由在所述阴极与所述有机薄膜层之间的界面添加还原性掺杂剂而成。

有机电致发光元件

技术领域

[0001] 本发明涉及有机电致发光元件。

背景技术

[0002] 有机电致发光元件（以下也简称为“有机 EL 元件”）是利用以下原理的自发光元件，该原理是通过外加电场，利用由阳极注入的空穴和由阴极注入的电子的再结合能量，使荧光性物质发光。自从有报告称イーストマン・コダック社的 C.W.Tang 等通过层压型元件实现低电压驱动的有机 EL 元件以来，关于以有机材料为构成材料的有机 EL 元件的研究逐渐高涨。

此外，有人提出了在有机 EL 元件的发光层中使用有机磷光材料的磷光型有机 EL 元件。该磷光型有机 EL 元件通过利用有机磷光材料的激发状态的单线态和三线态，来达成高的发光效率。当有机 EL 元件内，电子和空穴再结合时，由于自旋多重性的不同，单线态激子和三线态激子以 1 ： 3 的比例生成，若使用磷光性的发光材料，则可达成仅使用了荧光性材料的元件的 3 ～ 4 倍的发光效率。

[0003] 然后，为了提高使用磷光性发光材料的有机 EL 元件的发光效率或元件寿命，正进行着各种各样的研究。

作为这样的研究之一可列举，在发光层内混合多个材料构成的有机 EL 元件（例如、专利文献 1 ～ 10）。

[0004] 专利文献 1 中，公开了一种含有由空穴输送材料构成的空穴输送领域，和由电子输送材料构成的电子输送领域的有机 EL 元件，且该有机 EL 元件中，上述空穴输送领域与上述电子输送领域之间，设置有含有上述空穴输送材料及上述电子输送材料这两者，以及磷光性发光材料的混合领域。

专利文献 2 及专利文献 3 中，公开了一种同一发光层含有 2 种以上基质材料的有机 EL 元件。

专利文献 4 中，公开了一种将第一基质材料的 Ip 值（电离能）大于第二基质材料的 Ip 值，且第一基质材料的霍耳 (Hall) 迁移率大于第二基质材料的霍耳迁移率的材料进行组合，用于同一发光层内的有机 EL 元件。

[0005] 专利文献 5 中，公开了一种在同一发光层内包含作为空穴输送材料的第一基质化合物和作为第二基质化合物的磷光性金属络合物的有机 EL 元件。

专利文献 6 中，公开了一种分别在同一发光层内使用具有空穴输送性的化合物和具有电子输送性的化合物的有机 EL 元件。

专利文献 7 中，公开了一种在同一发光层内至少含有 2 种空穴输送性材料，且含有电子输送性基质材料的有机 EL 元件。专利文献 8 中，公开了一种在同一发光层内至少含有 2 种电子输送性材料，还含有空穴输送性基质材料的有机 EL 元件。

专利文献 9 中，公开了一种在同一发光层内各使用一个以上的电子注入性化合物和空穴注入性化合物作为基质材料的有机 EL 元件。

专利文献 10 中，公开了一种在同一发光层内含有空穴输送性化合物和铝络合物化合物的有机 EL 元件。

[0006]

专利文献 1 ：日本专利特开 2002-305085 号公报

专利文献 2 ：日本专利特开 2007-110102 号公报

专利文献 3 ：日本专利特开 2007-134677 号公报

专利文献 4 ：日本专利特开 2008-227462 号公报

专利文献 5 ：日本专利特开 2008-288344 号公报

专利文献 6 ：日本专利特开 2009-152578 号公报

专利文献 7 ：日本专利特开 2009-32987 号公报

专利文献 8 ：日本专利特开 2009-32989 号公报

专利文献 9 ：日本专利特开 2010-34573 号公报

专利文献 10 ：日本专利特表 2008-514002 号公报

发明内容

[0007] 然而，专利文献 1 中记载的发明，由于将发光层所使用的材料限定为在空穴输送领域及电子输送领域中使用的材料，故不能选择显示最佳性能的基质材料，在效率·驱动电压·寿命的点上存在限制。此外，发光材料仅限为红色，至于是否适用于绿色发光，目前尚不明确。

此外，专利文献 2 及 3 记载的发明中，必须具有与发光层相邻的不具有发光材料而仅有基质材料的层。这样的话，即增加了作成元件时的蒸镀工序，进而可能使制造装置复杂化。

专利文献 4 中公开的基质材料组合不是具有优异的电子注入性及电子输送性骨架的化合物的组合。

专利文献 5 中记载的发明，其使用具有胺结构的化合物作为空穴输送材料，电子耐久性存在问题。此外，其仅公开了红色发色，在绿色发色中的效果尚不明确。

[0008] 专利文献 6 记载的发明中，由于作为磷光性发光材料所使用的有机金属络合物的配体限定为喹喔啉骨架，故仅限于红色发光，适用范围窄。

专利文献 7 及专利文献 8 记载的发明中，上述的 2 种空穴输送性材料或者电子输送材料的总浓度必须从阳极侧至阴极侧逐渐减少。这样的话，会使元件制造装置复杂化，有可能使制造的元件的性能变得不稳定。

专利文献 9 中公开的基质材料组合不是具有优异的电子注入性及电子输送性骨架的化合物的组合。

专利文献 10 中记载的发明，由于使用电子迁移率小的铝络合物化合物，故驱动电压非常之高。

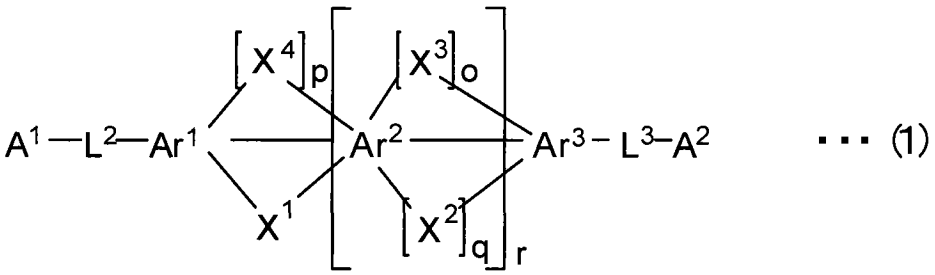
[0009] 本发明的目的在于，提供一种可绿色发光，高效率且寿命长的有机电致发光元件。

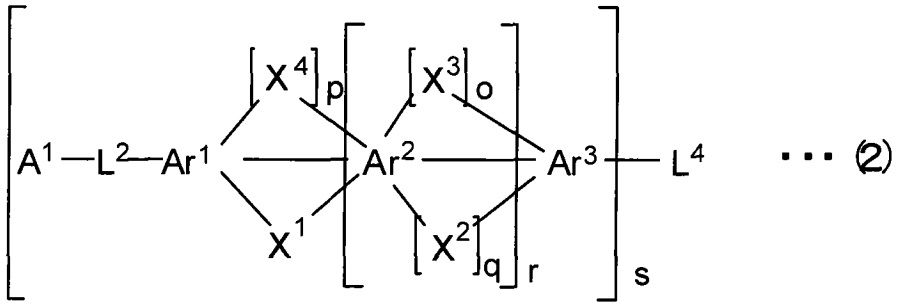
[0010] 本发明者为了达成上述目的，经过锐意研究后发现，在具备阳极、阴极以及上述阳极和上述阴极之间设置的有机薄膜层的有机电致发光元件中，有机薄膜层具备至少含有第 1 基质、第 2 基质以及显示发光的掺杂剂的发光层，当第 1 基质和第 2 基质各自为特定化合物时，即可达成上述目的，最终完成了本发明。

[0011] 即，本发明的有机电致发光元件是一种具备阳极、阴极以及上述阳极和上述阴极之间设置的有机薄膜层的有机电致发光元件，其特征在于，所述有机薄膜层具备至少含有第 1 基质、第 2 基质以及显示发光的掺杂剂的发光层，所述第 1 基质为在同一分子内具有 1 个以上咔唑基和 1 个以上含氮杂环基的化合物，所述第 2 基质为下述式 (1) 或者 (2) 所示的化合物。其中，第 1 基质和第 2 基质的混合比例不受限制。另，本说明书中，“氢”也包含重氢。

[0012]

【化 1】





[0013] [上述式 (1) 及 (2) 中，Ar^1、Ar^2 及 Ar^3 各自独立地表示

取代或无取代的成环碳原子数 6 的芳香族烃基、

或者取代或无取代的成环原子数 6 的芳香族杂环基。

其中，Ar^1、Ar^2 及 Ar^3 可具有一个或多个取代基 Y，当取代基 Y 为多个时，各自均可不相同。

Y 表示碳原子数 1 ～ 20 的烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环烷基、

碳原子数 1 ～ 20 的烷氧基、

碳原子数 7 ～ 24 的芳烷基、

甲硅烷基或碳原子数 3 ～ 20 的取代甲硅烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基、

或者成环碳原子数 3 ～ 24 的取代或无取代的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。

式 (1) 及 (2) 中，X^1、X^2、X^3 及 X^4 各自独立地表示氧 (O)、硫 (S)、$N-R^1$ 或者 CR^2R^3。

所述 R^1、R^2 及 R^3 各自独立地表示

碳原子数 1 ～ 20 的烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环烷基、

碳原子数 7 ～ 24 的芳烷基、

甲硅烷基或碳原子数 3 ～ 20 的取代甲硅烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基、

或者取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 24 的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。

其中，当 X^1 与 X^2 同时为 N-R^1，o、p 为 0、q 为 1 时，

或者当 X^1 与 X^3 同时为 N-R^1，p、q 为 0、o 为 1 时，

R^1 的至少 1 个表示取代或无取代的成环原子数 8 ～ 24 的 1 价稠合芳香族杂环基。

式 (1) 及 (2) 中，o、p 及 q 表示 0 或者 1，s 表示 1、2、3 或 4，是各自以 L^4 为连接基的 1 聚体、2 聚体、3 聚体、4 聚体。

r 表示 1、2、3 或者 4。

式 (1) 及 (2) 中，L^2 表示单键、

碳原子数 1 ～ 20 的亚烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环亚烷基、

2 价甲硅烷基或碳原子数 2 ～ 20 的 2 价取代甲硅烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的 2 价芳香族烃基或稠合芳香族烃基、

或者成环碳原子数 3 ～ 24 的取代或无取代的 1 价或 2 价的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。

式 (1) 中，L^3 表示单键、

碳原子数 1 ～ 20 的亚烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环亚烷基、

2 价甲硅烷基或碳原子数 2 ～ 20 的 2 价取代甲硅烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的 2 价芳香族烃基或稠合芳香族烃基、

或者成环碳原子数 3 ～ 24 的取代或无取代的 2 价芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。

式 (2) 中，L^4 当 s 为 2 时，表示

单键、

碳原子数 1 ～ 20 的亚烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环亚烷基、

2 价甲硅烷基或碳原子数 2 ～ 20 的 2 价取代甲硅烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的 2 价芳香族烃基或稠合芳香族烃、

或者成环碳原子数 3 ～ 24 的取代或无取代的 2 价芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。

当 s 为 3 时，表示

碳原子数 1 ～ 20 的 3 价饱和烃基、

取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的 3 价环状饱和烃基、

3 价甲硅烷基或碳原子数 1 ～ 20 的 3 价取代甲硅烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的 3 价芳香族烃基或稠合芳香族烃基、

或者成环碳原子数 3 ～ 24 的取代或无取代的 3 价芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。

当 s 为 4 时，表示

碳原子数 1 ～ 20 的 4 价饱和烃基、

取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的 4 价环状饱和烃基、

硅原子、

取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的 4 价芳香族烃基或稠合芳香族烃基、

或者成环碳原子数 3 ～ 24 的取代或无取代的 4 价芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。

式 (1) 及 (2) 中，A^1 表示

氢原子、

取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环烷基、

甲硅烷基或碳原子数 3 ～ 20 的取代甲硅烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基、

或者成环碳原子数 3 ～ 24 的取代或无取代的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。

式 (1) 中，A^2 表示

氢原子、

取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环烷基、

甲硅烷基或碳原子数 3 ～ 20 的取代甲硅烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基、

或者成环碳原子数 3 ～ 24 的取代或无取代的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。]

[0014] 本发明中，优选上述式 (1) 及 (2) 的 X^1 与 X^4 之中的一个或 X^2 与 X^3 之中的一个为氧原子，上述式 (1) 及 (2) 所示的化合物为分子内具有二苯并呋喃结构的化合物。

进一步，本发明中，优选上述式 (1) 及 (2) 的 X^1 与 X^4 之中的一个，和 X^2 与 X^3 之中的一个同时为氧原子，上述式 (1) 及 (2) 所示的化合物为具有苯并呋喃二苯并呋喃结构的化合物。

[0015] 此外，本发明中，优选上述第 1 基质由下述式 (3) 至 (5) 的任意一项表示。

[0016] 【化 2】

$$(Cz-)_aA^3 \quad \cdots (3)$$

$$Cz(-A^3)_b \quad \cdots (4)$$

[式 (3) 及 (4) 中，Cz 表示取代或无取代的芳基咔唑基或咔唑芳基。

A^3 为下述通式 (A) 所示的基团。

a、b 分别为 1 ～ 3 的整数。]

[0017] 【化 3】

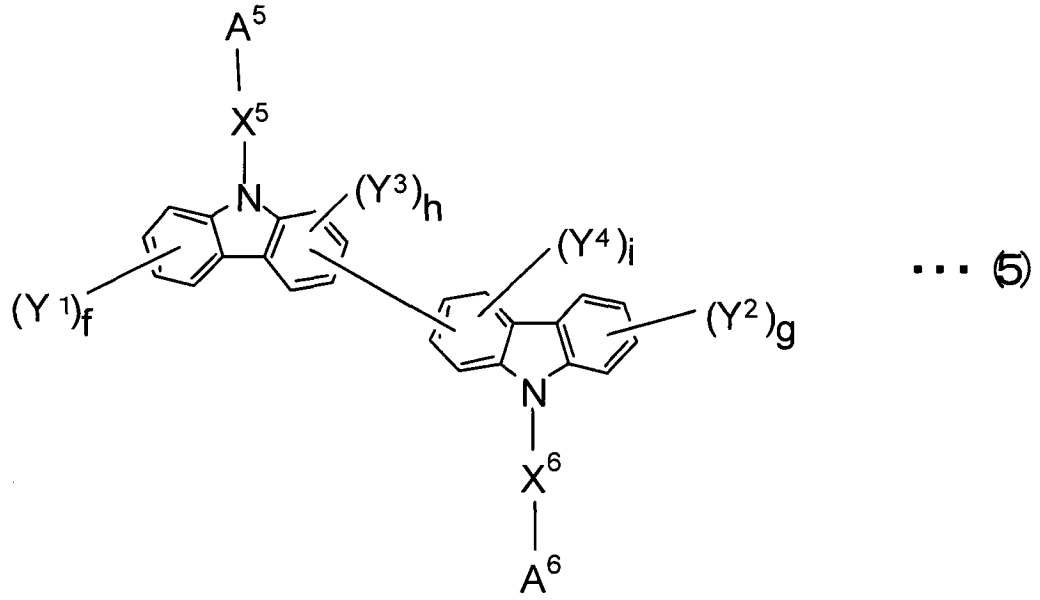
$$(M^1)_c-(L^5)_d-(M^2)_e \quad \cdots (A)$$

[式 (A) 中，M^1 及 M^2 各自独立地为取代或无取代的成环碳原子数 2 ～ 40 的含氮芳香族杂环或含氮稠合芳香族杂环，可相同或不同。

L^5 为单键、取代或无取代的碳原子数 6 ～ 30 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基、取代或无取代的碳原子数 5 ～ 30 的环亚烷基，或者取代或无取代的碳原子数 2 ～ 30 的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。

c 为 0 ～ 2、d 为 1 ～ 2、e 为 0 ～ 2 的整数。其中，c+e 在 1 以上。]

[0018] 【化 4】



... (5)

[0019] [式 (5) 中，A^5 表示成环碳原子数 1 ～ 30 的取代或无取代的含氮杂环基（其中，不包括取代或无取代的咔唑基及取代或无取代的吲哚基）。

A^6 表示成环碳原子数 6 ～ 30 的取代或无取代的芳香族烃基或稠合芳香族烃基，或者成环碳原子数 1 ～ 30 的取代或无取代的含氮杂环基。X^5，X^6 为连接基，相互独立地表示

单键、

成环碳原子数 6 ～ 30 的取代或无取代的芳香族烃基、

成环碳原子数 6 ～ 30 的取代或无取代的稠合芳香族烃基、

成环碳原子数 2 ～ 30 的取代或无取代的芳香族杂环基，或

成环碳原子数 2 ～ 30 的取代或无取代的稠合芳香族杂环基。

Y^1 ～ Y^4 相互独立地表示

氢原子、氟原子、氰基、

碳原子数 1 ～ 20 的取代或无取代的烷基、

碳原子数 1 ～ 20 的取代或无取代的烷氧基、

碳原子数 1 ～ 20 的取代或无取代的卤代烷基、

碳原子数 1 ～ 20 的取代或无取代的卤代烷氧基、

碳原子数 1 ～ 10 的取代或无取代的烷基甲硅烷基、

碳原子数 6 ～ 30 的取代或无取代的芳基甲硅烷基、

成环碳原子数 6 ～ 30 的取代或无取代的芳香族烃基、

成环碳原子数 6 ～ 30 的取代或无取代的稠合芳香族烃基、

成环碳原子数 2 ～ 30 的取代或无取代的芳香族杂环基，或

成环碳原子数 2 ～ 30 的取代或无取代的稠合芳香族杂环基。

另，相邻的 Y^1 ～ Y^4 可相互成键，形成环结构。

f、g 表示 1 ～ 4 的整数，h、i 表示 1 ～ 3 的整数。

另，当 f、g 为 2 ～ 4 的整数，h、i 为 2 ～ 3 的整数时，多个 Y^1 ～ Y^4 各自可相同或不同。]

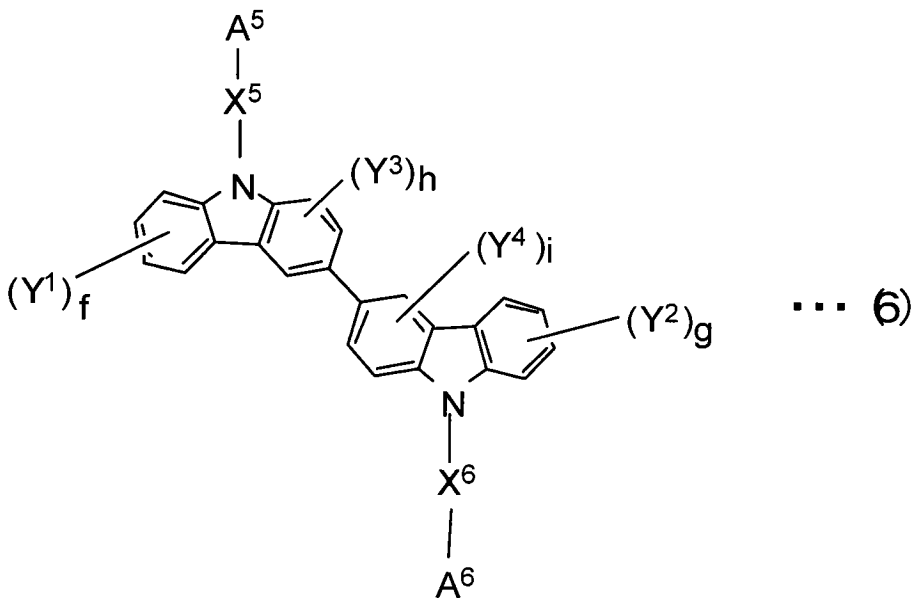
[0020] 进一步，本发明中，优选上述式 (3) 及 (4) 的 Cz 为取代或无取代的芳基咔唑基。

进一步，本发明中，优选上述 Cz 为取代或无取代的苯基咔唑基。

进一步，本发明中，优选上述芳基咔唑基的芳基部分被咔唑基取代。

此外，本发明中，上述式 (5) 由下述式 (6) 表示。

[0021] 【化 5】



··· 6)

[0022] [式 (6) 中，A^5、A^6、X^5、X^6、Y^1 ～ Y^4、f、g、h、i 与上述式 (5) 相同。]

[0023] 进一步，本发明中，优选上述 A^5 为选自取代或者无取代的吡啶环、嘧啶环、三嗪环之中的基团。

特别优选，A^5 为取代或者无取代的嘧啶环基。

[0024] 此外，本发明中，上述发光层含有磷光材料作为所述掺杂剂。

进一步，本发明中，优选上述磷光材料为选自铱 (Ir)、锇 (Os)、铂 (Pt) 的金属原子的邻位金属化络合物。

进一步，本发明中，优选在所述阴极与所述发光层之间具有电子注入层，该电子注入层含有含氮环衍生物。

此外，本发明是由在所述阴极与所述有机薄膜层的界面添加还原性掺杂剂而成。

[0025] 根据本发明，可提供一种能绿色发光，高效率且寿命长的有机电致发光元件。

附图说明

[0026] 【图 1】是本发明的实施方式中涉及的一例有机电致发光元件的概略结构示意图。

符号说明

1 有机电致发光元件

2 基板

3 阳极

4 阴极

5 磷光发光层

6 空穴注入·输送层

7 电子注入·输送层

10 有机薄膜层

具体实施方式

[0027] 以下，对本发明进行更具体地说明。

（有机 EL 元件的结构）

首先对有机 EL 元件的元件构成进行说明。

有机 EL 元件的代表性元件结构可列举：

(1) 阳极 / 发光层 / 阴极

(2) 阳极 / 空穴注入层 / 发光层 / 阴极

(3) 阳极 / 发光层 / 电子注入・输送层 / 阴极

(4) 阳极 / 空穴注入层 / 发光层 / 电子注入・输送层 / 阴极

(5) 阳极 / 有机半导体层 / 发光层 / 阴极

(6) 阳极 / 有机半导体层 / 电子阻挡层 / 发光层 / 阴极

(7) 阳极 / 有机半导体层 / 发光层 / 附着改善层 / 阴极

(8) 阳极 / 空穴注入・输送层 / 发光层 / 电子注入・输送层 / 阴极

(9) 阳极 / 绝缘层 / 发光层 / 绝缘层 / 阴极

(10) 阳极 / 无机半导体层 / 绝缘层 / 发光层 / 绝缘层 / 阴极

(11) 阳极 / 有机半导体层 / 绝缘层 / 发光层 / 绝缘层 / 阴极

(12) 阳极 / 绝缘层 / 空穴注入・输送层 / 发光层 / 绝缘层 / 阴极

(13) 阳极 / 绝缘层 / 空穴注入・输送层 / 发光层 / 电子注入・输送层 / 阴极等结构。

其中，理想的是使用 (8) 的构成，当然并不被这些所限定。

[0028] 图 1 表示本发明的实施方式中的一例有机 EL 元件的概略结构。

有机 EL 元件 1 具有透明基板 2、阳极 3、阴极 4 以及配置在阳极 3 和阴极 4 之间的有机薄膜层 10。

有机薄膜层 10 具有含有作为基质材料的磷光基质及作为磷光材料的磷光掺杂剂的磷光发光层 5，但也可以在磷光发光层 5 和阳极 3 之间具备空穴注入・输送层 6 等，在磷光发光层 5 和阴极 4 之间具备电子注入・输送层 7 等。

此外，也可分别在磷光发光层 5 的阳极 3 侧设置电子阻挡层，在磷光发光层 5 的阴极 4 侧设置空穴阻挡层。

由此，将电子或空穴封闭在磷光发光层 5 中，可以提高磷光发光层 5 中的激子的生成几率。

[0029] 另外，在本说明书中，关于荧光基质及磷光基质的术语，在与荧光掺杂剂组合时称作荧光基质，在与磷光掺杂剂组合时称作磷光基质，并不是只从分子结构上一义地限定区分荧光基质和磷光基质。

换言之，本说明书中，荧光基质是指构成含有荧光掺杂剂的荧光发光层的材料，并不是指只能用于荧光发光材料的基质。

同样，磷光基质是指构成含有磷光掺杂剂的磷光发光层的材料，并不是指只能用于磷光材料的基质。

[0030] 此外，在本说明书中，“空穴注入・输送层”是指“空穴注入层和空穴输送层中的至

少一个”，“电子注入・输送层”是指“电子注入层及电子输送层中的至少一个”。

[0031] （透光性基板）

本发明的有机 EL 元件制作于透光性基板上。这里所述的透光性基板是支撑有机 EL 元件的基板，优选在 400 ～ 700nm 的可见区域的透光率为 50％以上的平滑基板。

具体地可列举玻璃板、聚合板等。

玻璃板特别举例有使用钠钙玻璃、含钡・锶玻璃、铅玻璃、铝硅酸盐玻璃、硼硅酸玻璃、硼硅酸钡玻璃、石英等作为原料的玻璃板。

此外，聚合板可以举例有使用聚碳酸酯、丙烯酸、聚对苯二甲酸乙二酯、聚醚硫化物、聚砜等为原料之物。

[0032] （阳极及阴极）

有机 EL 元件的阳极，承担着将空穴注入空穴注入层、空穴输送层或发光层的作用，具有 4.5eV 以上的功函数有效。

作为阳极材料的具体例，可列举氧化铟锡合金 (ITO)、氧化锡 (NESA)、氧化铟锌氧化物、金、银、铂、铜等。

阳极可以通过采用蒸镀法或溅射法等方法使这些电极物质形成薄膜来制作。

如本实施方式，从阳极取得来自发光层的发光时，理想的是将阳极的可见区域的透光率设定为大于 10％。此外，阳极的片电阻优选在数百 Ω / 平方以下。阳极的膜厚根据材料来定，但通常在 10nm ～ 1μm、优选 10nm ～ 200nm 的范围内进行选择。

[0033] 作为阴极，其目的是将电子注入电子注入层、电子输送层或发光层，故优选功函数小的材料。

对阴极材料没有特别的限定，具体地可以使用铟、铝、镁、镁 - 铟合金、镁 - 铝合金、铝 - 锂合金、铝 - 钪 - 锂合金、镁 - 银合金等。

阴极也与阳极一样，可以通过采用蒸镀法和喷溅法形成薄膜来制作。此外，也可以采用从阴极侧取得发光的方式。

[0034] （发光层）

有机 EL 元件的发光层兼具以下的功能。

即，

(1) 注入功能 :外加电场时，可由阳极或空穴注入层注入空穴，由阴极或电子注入层注入电子的功能 ;

(2) 输送功能 :用电场力使注入的电荷（电子和空穴）移动的功能 ;

(3) 发光功能 :提供电子与空穴再结合的场所，并使其发光的功能。

[0035] 其中，注入空穴的难易度和注入电子的难易度可以不同，由空穴和电子的迁移率表示的输送能也可以有大小。

形成该发光层的方法可以适用例如蒸镀法、旋涂法、LB 法等公知的方法。

[0036] 发光层优选为分子沉积膜。

此处，分子沉积膜是指由气相状态的材料化合物沉积形成的薄膜，或者由溶液状态或液相状态的材料化合物固化形成的膜，通常，该分子沉积膜与 LB 法形成的薄膜（分子累积膜）可以通过凝聚结构、高次结构的不同和由此引起的功能性的不同来区分。

此外，如日本专利特开昭 57-51781 号公报公开的，将树脂等粘结剂和材料化合物溶于

溶剂作成溶液后，通过旋涂法将其薄膜化，可以形成发光层。

[0037] 本发明的有机 EL 元件在阴极和阳极之间，具备由 1 层或者多层构成的有机薄膜层，该有机薄膜层具有至少 1 个发光层，发光层含有至少 1 种磷光材料、后述的第 1 基质、第 2 基质。

[0038] （第 1 基质）

本发明的有机电致发光元件，含有下述式 (7) 至 (9) 任意一项所示的化合物作为第 1 基质。

[0039] 【化 6】

$(Cz-)_aA^3$ … (7)

$Cz(-A^3)_b$ … (8)

[0040] 上述式 (7) 及 (8) 中，Cz 表示取代或无取代的芳基咔唑基或咔唑芳基。

A^3 为下述通式 (A) 所示的基团。

a、b 分别为 1 ～ 3 的整数。

[0041] 【化 7】

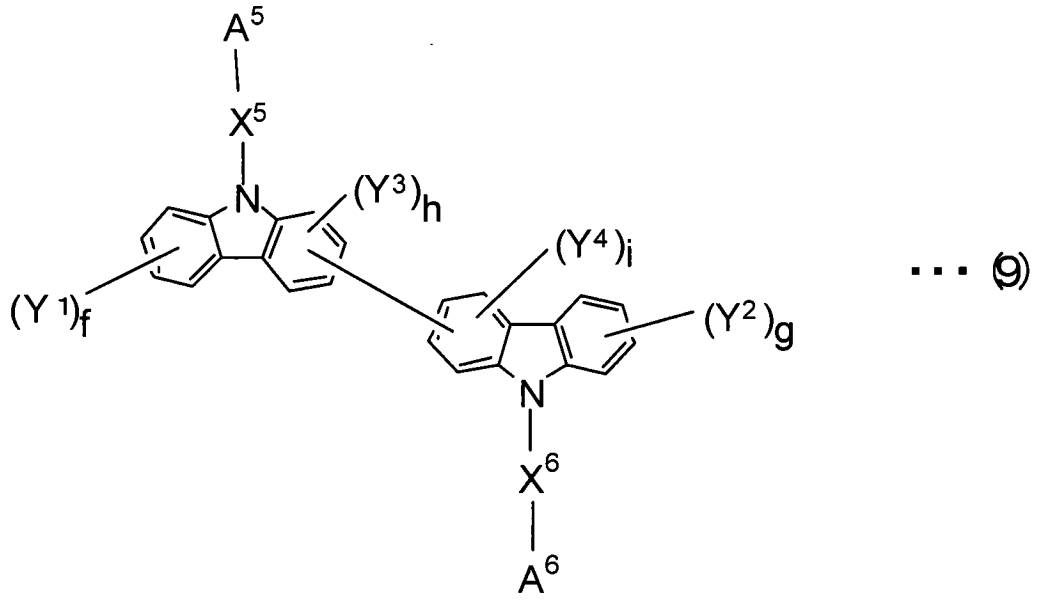
$(M^1)_c-(L^5)_d-(M^2)_e$ … (A)

[0042] 上述式 (A) 中，M^1 及 M^2 各自独立地为取代或无取代的成环碳原子数 2 ～ 40 的含氮芳香族杂环或含氮稠合芳香族杂环，可相同或不同。

L^5 为单键、取代或无取代的碳原子数 6 ～ 30 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基、取代或无取代的碳原子数 5 ～ 30 的环亚烷基，或者取代或无取代的碳原子数 2 ～ 30 的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。

c 为 0 ～ 2、d 为 1 ～ 2、e 为 0 ～ 2 的整数。其中，c+e 在 1 以上。

[0043] 【化 8】



… (9)

[0044] 上述式 (9) 中，A^5 表示成环碳原子数 1 ～ 30 的取代或无取代的含氮杂环基（其中，不包括取代或无取代的咔唑基及取代或无取代的吲哚基）。

A^6 表示成环碳原子数 6 ～ 30 的取代或无取代的芳香族烃基或稠合芳香族烃基，或成环

碳原子数 1 ～ 30 的取代或无取代的含氮杂环基。X^5，X^6 为连接基，相互独立地表示

单键、

成环碳原子数 6 ～ 30 的取代或无取代的芳香族烃基、

成环碳原子数 6 ～ 30 的取代或无取代的稠合芳香族烃基、

成环碳原子数 2 ～ 30 的取代或无取代的芳香族杂环基，或

成环碳原子数 2 ～ 30 的取代或无取代的稠合芳香族杂环基。

Y^1 ～ Y^4 相互独立地表示

氢原子、氟原子、氰基、

碳原子数 1 ～ 20 的取代或无取代的烷基、

碳原子数 1 ～ 20 的取代或无取代的烷氧基、

碳原子数 1 ～ 20 的取代或无取代的卤代烷基、

碳原子数 1 ～ 20 的取代或无取代的卤代烷氧基、

碳原子数 1 ～ 10 的取代或无取代的烷基甲硅烷基、

碳原子数 6 ～ 30 的取代或无取代的芳基甲硅烷基、

成环碳原子数 6 ～ 30 的取代或无取代的芳香族烃基、

成环碳原子数 6 ～ 30 的取代或无取代的稠合芳香族烃基、

成环碳原子数 2 ～ 30 的取代或无取代的芳香族杂环基，或

成环碳原子数 2 ～ 30 的取代或无取代的稠合芳香族杂环基。

另，相邻的 Y^1 ～ Y^4 之间可相互成键，形成环结构。

f、g 表示 1 ～ 4 的整数，h、i 表示 1 ～ 3 的整数。

另，当 f、g 为 2 ～ 4 的整数，h、i 为 2 ～ 3 的整数时，多个 Y^1 ～ Y^4 各自可相同或不同。

[0045] 以下，针对上述式 (7) ～ (9) 所示的化合物进行详细说明。

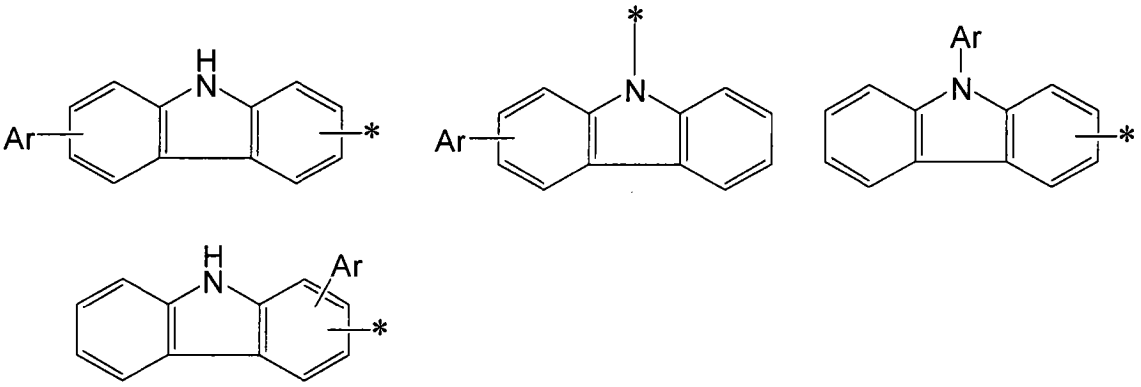
[0046] （式 (7) 及 (8) 所示的化合物）

Cz 为取代或无取代的芳基咔唑基或者取代或无取代的咔唑芳基。

芳基咔唑基是指具有至少 1 个芳基或杂芳基作为取代基的咔唑基，芳基或杂芳基的取代位置不限。

具体地，可列举如下。以下的化学式中，Ar 表示芳基或杂芳基，* 表示与其他基团成键的位置。

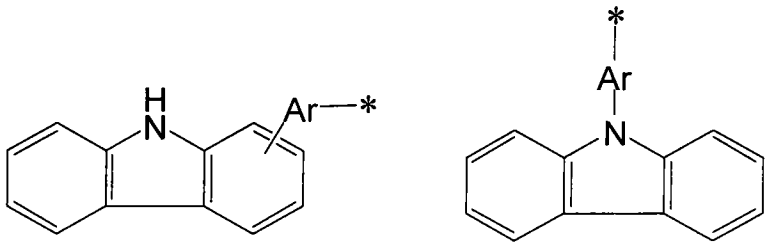
[0047] 【化 9】



[0048] 此外，咔唑芳基是指具有至少 1 个咔唑基作为取代基的芳基，芳基的取代位置不限。

[0049] 【化 10】

具体地，可列举如下。以下的化学式中，Ar 表示芳基，* 表示与其他基团成键的位置。



[0050] 进一步，取代的芳基咔唑基是指，上述芳基咔唑基具有至少 1 个不限取代位置的取代基，取代的咔唑芳基是指，上述咔唑芳基具有至少 1 个不限取代位置的取代基。

[0051] 上述式 (7) 及 (8) 中，a 及 b 各自表示 1 ～ 3 的整数。

芳基咔唑基或咔唑芳基中的芳基，优选其碳原子数为 6 ～ 30，可列举，例如苯基、萘基、蒽基、菲基、并四苯基、芘基、芴基、联苯基、三联苯基等，其中优选苯基、萘基、联苯基、三联苯基。

此外，芳基咔唑基中的杂芳基可列举，吡啶、嘧啶、吡嗪、三嗪、氮丙啶、氮杂吲哚嗪、吲哚嗪、咪唑、吲哚、异吲哚、吲唑、噁唑、蝶啶、β－咔啉、萘啶、喹喔啉、三联吡啶、联吡啶、吖啶、菲绕啉、吩嗪、咪唑并吡啶等，特别优选由吡啶、三联吡啶、嘧啶、咪唑并吡啶、三嗪的环而形成的基团。

上述通式 (7) 及 (8) 中，A 为上述通式 (A) 所示的基团。

[0052] 上述通式 (A) 中，M^1 和 M^2 各自独立地为取代或无取代的成环碳原子数 2 ～ 40 的含氮杂环基，可相同或不同。

含氮杂环可列举吡啶、嘧啶、吡嗪、三嗪、氮丙啶、氮杂吲哚嗪、吲哚嗪、咪唑、吲哚、异吲哚、吲唑、噁唑、蝶啶、β－咔啉、萘啶、喹喔啉、三联吡啶、联吡啶、吖啶、菲绕啉、吩嗪、咪唑并吡啶等，特别优选由吡啶、三联吡啶、嘧啶、咪唑并吡啶、三嗪的环而形成的基团。

L^5 为单键、取代或无取代的碳原子数 6 ～ 30 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基、取代或无取代的碳原子数 5 ～ 30 的环亚烷基、取代或无取代的碳原子数 2 ～ 30 的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。

c 为 0 ～ 2，d 为 1 ～ 2，e 为 0 ～ 2 的整数。其中，c+e 在 1 以上。

[0053] 碳原子数 6 ～ 30 的芳香族烃基或者稠合芳香族烃基可列举，例如苯基、联苯基、三联苯基、萘基、蒽基、菲基、芘基、屈 (chrysene) 基、荧蒽基、全氟芳基，其中优选苯基、联苯基、三联苯基、全氟芳基。

碳原子数 5 ～ 30 的环亚烷基可列举，例如环亚戊基、环亚己基、环亚庚基等，其中优选环亚己基。

[0054] 碳原子数 2 ～ 30 的芳香族杂环基或者稠合芳香族杂环基可列举，1- 吡咯基、2- 吡咯基、3- 吡咯基、吡嗪基、2- 吡啶基、3- 吡啶基、4- 吡啶基、1- 吲哚基、2- 吲哚基、3- 吲哚基、4- 吲哚基、5- 吲哚基、6- 吲哚基、7- 吲哚基、1- 异吲哚基、2- 异吲哚基、3- 异吲哚基、4- 异吲哚基、5- 异吲哚基、6- 异吲哚基、7- 异吲哚基、2- 呋喃基、3- 呋喃基、2- 苯并呋喃基、3- 苯并呋喃基、4- 苯并呋喃基、5- 苯并呋喃基、6- 苯并呋喃基、7- 苯并呋喃基、1- 异苯并呋喃基、

3- 异苯并呋喃基、4- 异苯并呋喃基、5- 异苯并呋喃基、6- 异苯并呋喃基、7- 异苯并呋喃基、2- 喹啉基、3- 喹啉基、4- 喹啉基、5- 喹啉基、6- 喹啉基、7- 喹啉基、8- 喹啉基、1- 异喹啉基、3- 异喹啉基、4- 异喹啉基、5- 异喹啉基、6- 异喹啉基、7- 异喹啉基、8- 异喹啉基、2- 喹喔啉基、5- 喹喔啉基、6- 喹喔啉基、1- 咔唑基、2- 咔唑基、3- 咔唑基、4- 咔唑基、9- 咔唑基、1- 菲啶基、2- 菲啶基、3- 菲啶基、4- 菲啶基、6- 菲啶基、7- 菲啶基、8- 菲啶基、9- 菲啶基、10- 菲啶基、1- 吖啶基、2- 吖啶基、3- 吖啶基、4- 吖啶基、9- 吖啶基、1,7- 菲绕啉 -2- 基、1,7- 菲绕啉 -3- 基、1,7- 菲绕啉 -4- 基、1,7- 菲绕啉 -5- 基、1,7- 菲绕啉 -6- 基、1,7- 菲绕啉 -8- 基、1,7- 菲绕啉 -9- 基、1,7- 菲绕啉 -10- 基、1,8- 菲绕啉 -2- 基、1,8- 菲绕啉 -3- 基、1,8- 菲绕啉 -4- 基、1,8- 菲绕啉 -5- 基、1,8- 菲绕啉 -6- 基、1,8- 菲绕啉 -7- 基、1,8- 菲绕啉 -9- 基、1,8- 菲绕啉 -10- 基、1,9- 菲绕啉 -2- 基、1,9- 菲绕啉 -3- 基、1,9- 菲绕啉 -4- 基、1,9- 菲绕啉 -5- 基、1,9- 菲绕啉 -6- 基、1,9- 菲绕啉 -7- 基、1,9- 菲绕啉 -8- 基、1,9- 菲绕啉 -10- 基、1,10- 菲绕啉 -2- 基、1,10- 菲绕啉 -3- 基、1,10- 菲绕啉 -4- 基、1,10- 菲绕啉 -5- 基、2,9- 菲绕啉 -1- 基、2,9- 菲绕啉 -3- 基、2,9- 菲绕啉 -4- 基、2,9- 菲绕啉 -5- 基、2,9- 菲绕啉 -6- 基、2,9- 菲绕啉 -7- 基、2,9- 菲绕啉 -8- 基、2,9- 菲绕啉 -10- 基、2,8- 菲绕啉 -1- 基、2,8- 菲绕啉 -3- 基、2,8- 菲绕啉 -4- 基、2,8- 菲绕啉 -5- 基、2,8- 菲绕啉 -6- 基、2,8- 菲绕啉 -7- 基、2,8- 菲绕啉 -9- 基、2,8- 菲绕啉 -10- 基、2,7- 菲绕啉 -1- 基、2,7- 菲绕啉 -3- 基、2,7- 菲绕啉 -4- 基、2,7- 菲绕啉 -5- 基、2,7- 菲绕啉 -6- 基、2,7- 菲绕啉 -8- 基、2,7- 菲绕啉 -9- 基、2,7- 菲绕啉 -10- 基、1- 吩嗪基、2- 吩嗪基、1- 吩噻嗪基、2- 吩噻嗪基、3- 吩噻嗪基、4- 吩噻嗪基、10- 吩噻嗪基、1- 吩噁嗪基、2- 吩噁嗪基、3- 吩噁嗪基、4- 吩噁嗪基、10- 吩噁嗪基、2- 噁唑基、4- 噁唑基、5- 噁唑基、2- 噁二唑基、5- 噁二唑基、3- 呋咱基、2- 噻嗯基、3- 噻嗯基、2- 甲基吡咯 -1- 基、2- 甲基吡咯 -3- 基、2- 甲基吡咯 -4- 基、2- 甲基吡咯 -5- 基、3- 甲基吡咯 -1- 基、3- 甲基吡咯 -2- 基、3- 甲基吡咯 -4- 基、3- 甲基吡咯 -5- 基、2- 叔丁基吡咯 -4- 基、3-(2- 苯基丙基) 吡咯 -1- 基、2- 甲基 -1- 吲哚基、4- 甲基 -1- 吲哚基、2- 甲基 -3- 吲哚基、4- 甲基 -3- 吲哚基、2- 叔丁基 -1- 吲哚基、4- 叔丁基 -1- 吲哚基、2- 叔丁基 -3- 吲哚基、4- 叔丁基 -3- 吲哚基等，其中优选吡啶基、喹啉基。

[0055] 此外，上述通式 (7)、(8) 以及 (A) 中的 Cz、M^1、M^2 的取代基可列举氯、溴、氟等卤原子、咔唑基、羟基、取代或无取代的氨基、硝基、氰基、甲硅烷基、三氟甲基、羰基、羧基、取代或无取代的烷基、取代或无取代的烯基、取代或无取代的芳基烷基、取代或无取代的芳香族烃基或者稠合芳香族烃基、取代或无取代的芳香族杂环基或者稠合芳香族杂环基、取代或无取代的芳烷基、取代或无取代的芳氧基、取代或无取代的烷氧基等。其中优选氟原子、甲基、全氟亚苯基、苯基、萘基、吡啶基、吡唑基 (ピラジル基)、嘧啶基、金刚烷基、苯甲基、氰基、甲硅烷基。

[0056] 上述通式 (7) 或者 (8) 所示的化合物的成键方式，根据 a、b 值的不同，显示如下表 1。

[0057] 【表 1】

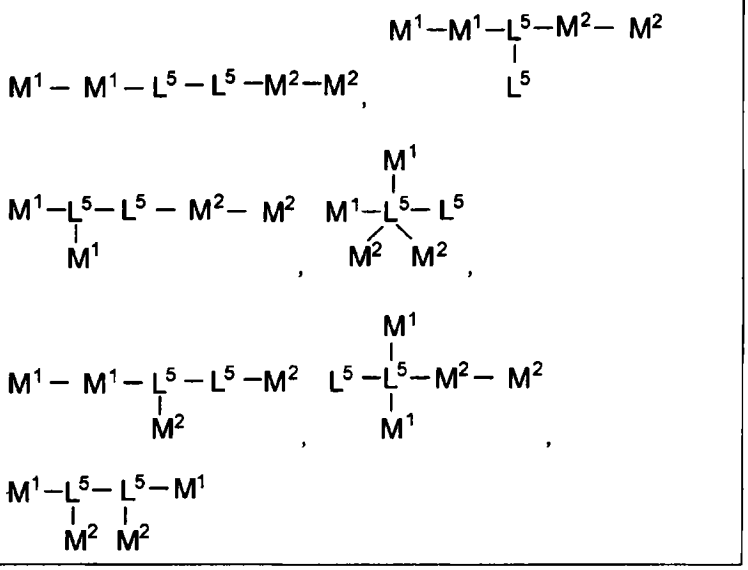
a = b = 1	a = 2	a = 3	b = 2	b = 3
Cz−A^3	Cz−A^3−Cz	Cz−A^3−Cz | Cz	A^3− Cz−A^3	A^3− Cz−A^3 | A^3

[0058] 上述通式 (A) 所示的基团的成键方式，根据 c、d、e 值的不同，显示如下表 2 ～ 3。

[0059] 【表 2】

No	c	d	e	成键方式
〔1〕	0	1	1	L^5-M^2
〔2〕	0	1	2	$L^5-M^2-M^2$，$M^2-L^5-M^2$
〔3〕	0	2	1	$L^5-L^5-M^2$，$L^5-M^2-L^5$
〔4〕	0	2	2	$L^5-L^5-M^2-M^2$，$M^2-L^5-L^5-M^2$， $L^5-M^2-M^2-L^5$（L^5，L^5），$M^2-L^5-M^2$（L^5），$L^5-M^2-L^5$（M^2）
〔5〕	1	1	0	同〔1〕（将 M^2 改读为 M^1）
〔6〕	1	1	1	$M^1-L^5-M^2$
〔7〕	1	1	2	$M^1-L^5-M^2-M^2$，$M^1-L^5-M^2$（M^2）
〔8〕	1	2	0	同〔3〕（将 M^2 改读为 M^1）
〔9〕	1	2	1	$M^1-L^5-L^5-M^2$，$L^5-M^1-L^5-M^2$， $L^5-M^1-L^5-M^2$
〔10〕	1	2	2	$M^1-L^5-L^5-M^2-M^2$，$M^2-L^5-M^1-L^5-M^2$， $M^2-M^2-L^5-M^1-L^5$，$M^1-L^5-L^5$（M^2，M^2）， $M^1-L^5-L^5-M^2$（M^2）， $L^5-L^5-M^2-M^2$（M^1），$L^5-M^1-L^5-M^2$（M^2），$M^1-L^5-L^5$（M^2，$_2$）
〔11〕	2	1	0	同〔2〕（将 M^2 改读为 M^1）
〔12〕	2	1	1	同〔7〕（将 M^2 改读为 M^1）
〔13〕	2	1	2	$M^1-M^1-L^5-M^2-M^2$，$M^1-L^5-M^1$（M^2），$M^1-L^5-M^2-M^2$（M^1）

[0060] 【表 3】

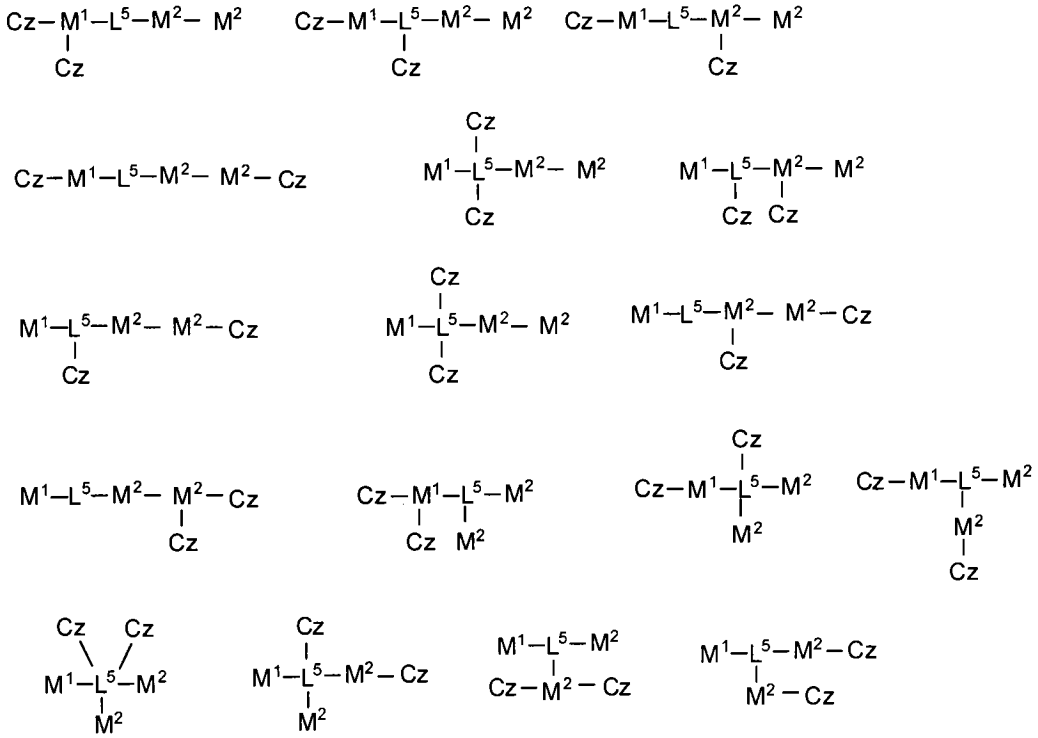
No	c	d	e	成键方式
〔14〕	2	2	0	同〔4〕 （将M^2改读为M^1）
〔15〕	2	2	1	同〔10〕 （将M^2改读为M^1）
〔16〕	2	2	2	

[0061] 与 A 键合的 Cz 也可与表示 A 的通式 (A) 的 M、L、M' 的任一成键。

例如，通式 (7) 或 (8) 中，a = b = 1 时为 Cz-A^3，当 (A) 为表 2 中的 [6](c = d = e = 1) 时，可列举 Cz-M^1-L^5-M^2、M^1-L^5(Cz)-M^2 以及 M^1-L^5-M^2-Cz 的 3 种成键方式。

此外，例如在通式 (7) 中，a = 2 时为 Cz-A^3-Cz，当 (A) 为表 2 中的 [7](c = d = 1、e = 2) 时，可列举以下的成键方式。

[0062] 【化 11】



[0063] 如上的通式 (7)、(8) 和 (A) 的成键方式，以及各个基团的例示组合中，优选为下述

[1] ～ [4] 所示的化合物。

[1] 上述通式 (7) 中 a ＝ 1，且上述通式 (A) 中 c ＝ 1、d ＝ 0，

在通式 (7) 式中，Cz 为取代或无取代的芳基咔唑基或者咔唑芳基，

通式 (A) 式中，M^1 为取代或无取代的成环碳原子数 4 ～ 5 的含氮六元杂环或者七元杂环、取代或无取代的成环碳原子数 2 ～ 4 的含氮五元杂环、取代或无取代的成环碳原子数 8 ～ 11 的含氮杂环、取代或无取代的咪唑并吡啶环，L^5 为取代或无取代的碳原子数 6 ～ 30 的芳基或者芳香族烃基或者稠合芳香族烃基、取代或无取代的碳原子数 2 ～ 30 的芳香族杂环基或者稠合芳香族杂环基。

[2] 上述通式 (7) 中 a ＝ 2，且上述通式 (A) 中 c ＝ 1、e ＝ 0，

在通式 (7) 式中，Cz 为取代或无取代的芳基咔唑基或者咔唑芳基，

通式 (A) 式中，M^1 为取代或无取代的成环碳原子数 4 ～ 5 的含氮六元杂环或者七元杂环、取代或无取代的成环碳原子数 2 ～ 4 的含氮五元杂环、取代或无取代的成环碳原子数 8 ～ 11 的含氮杂环、取代或无取代的咪唑并吡啶环，L^5 为取代或无取代的碳原子数 6 ～ 30 的芳基或者芳香族烃基或者稠合芳香族烃基、取代或无取代的碳原子数 2 ～ 30 的芳香族杂环基或者稠合芳香族杂环基。

[0064] [3] 上述通式 (7) 中 a ＝ 1，且上述通式 (A) 中 c ＝ 2、e ＝ 0，

在通式 (7) 式中，Cz 为取代或无取代的芳基咔唑基或者咔唑芳基，

通式 (A) 式中，M^1 为取代或无取代的成环碳原子数 4 ～ 5 的含氮杂六元环或者七元环、取代或无取代的成环碳原子数 2 ～ 4 的含氮杂五元环、取代或无取代的成环碳原子数 8 ～ 11 的含氮杂环、取代或无取代的咪唑并吡啶环，L^5 为取代或无取代的碳原子数 6 ～ 30 的芳基或者芳香族烃基或者稠合芳香族烃基、取代或无取代的碳原子数 2 ～ 30 的芳香族杂环基或者稠合芳香族杂环基。

[4] 上述通式 (8) 中 b ＝ 2，且上述通式 (A) 中 c ＝ d ＝ 1，

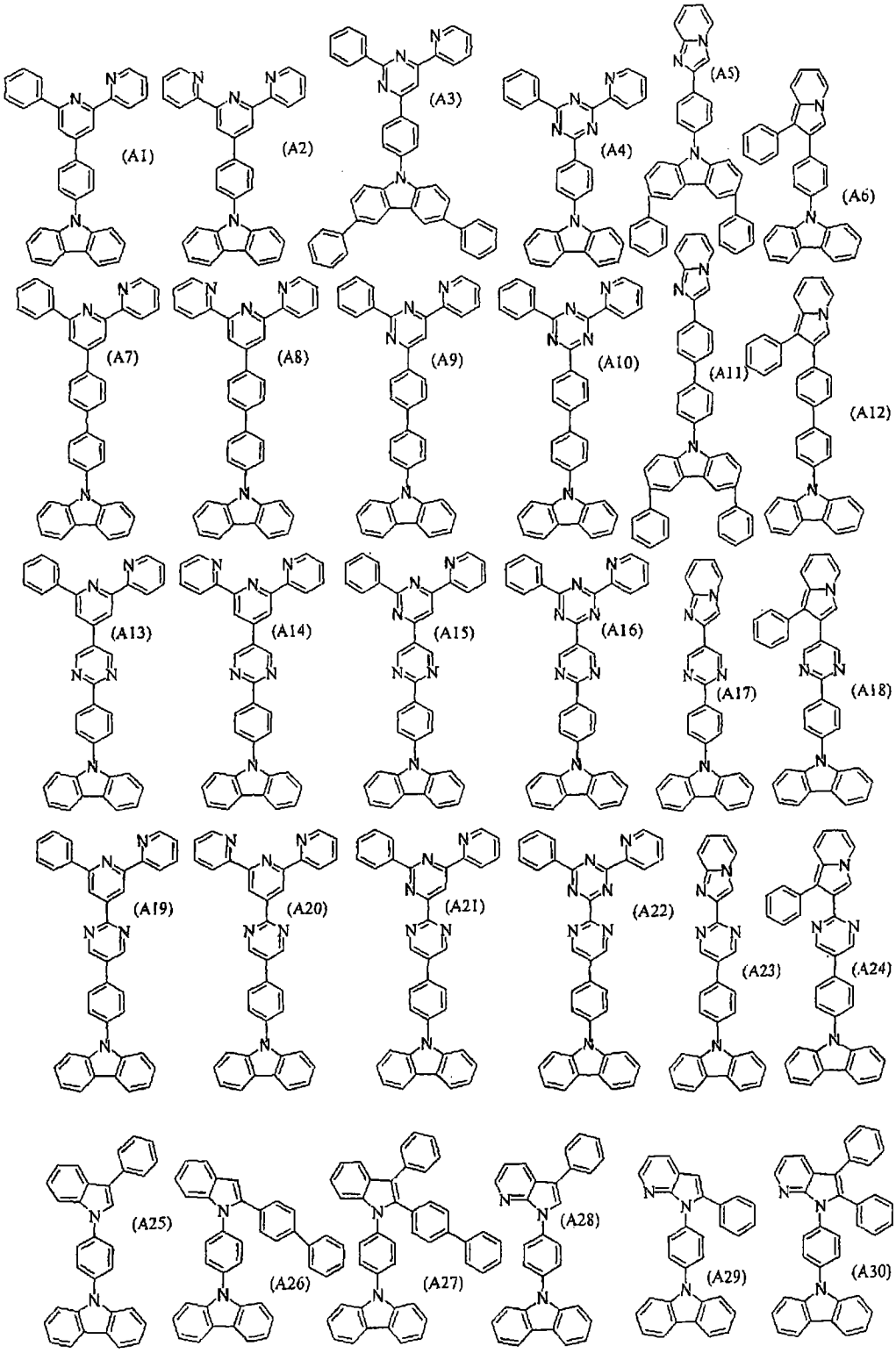
在通式 (8) 式中，Cz 为取代或无取代的芳基咔唑基或者咔唑芳基，

通式 (A) 式中，M^1 为取代或无取代的成环碳原子数 4 ～ 5 的含氮杂六元环或者七元环、取代或无取代的成环碳原子数 2 ～ 4 的含氮杂五元环、取代或无取代的成环碳原子数 8 ～ 11 的含氮杂环、取代或无取代的咪唑并吡啶环，L^5 为取代或无取代的碳原子数 6 ～ 30 的芳基或者芳香族烃基或者稠合芳香族烃基、取代或无取代的碳原子数 2 ～ 30 的芳香族杂环基或者稠合芳香族杂环基。

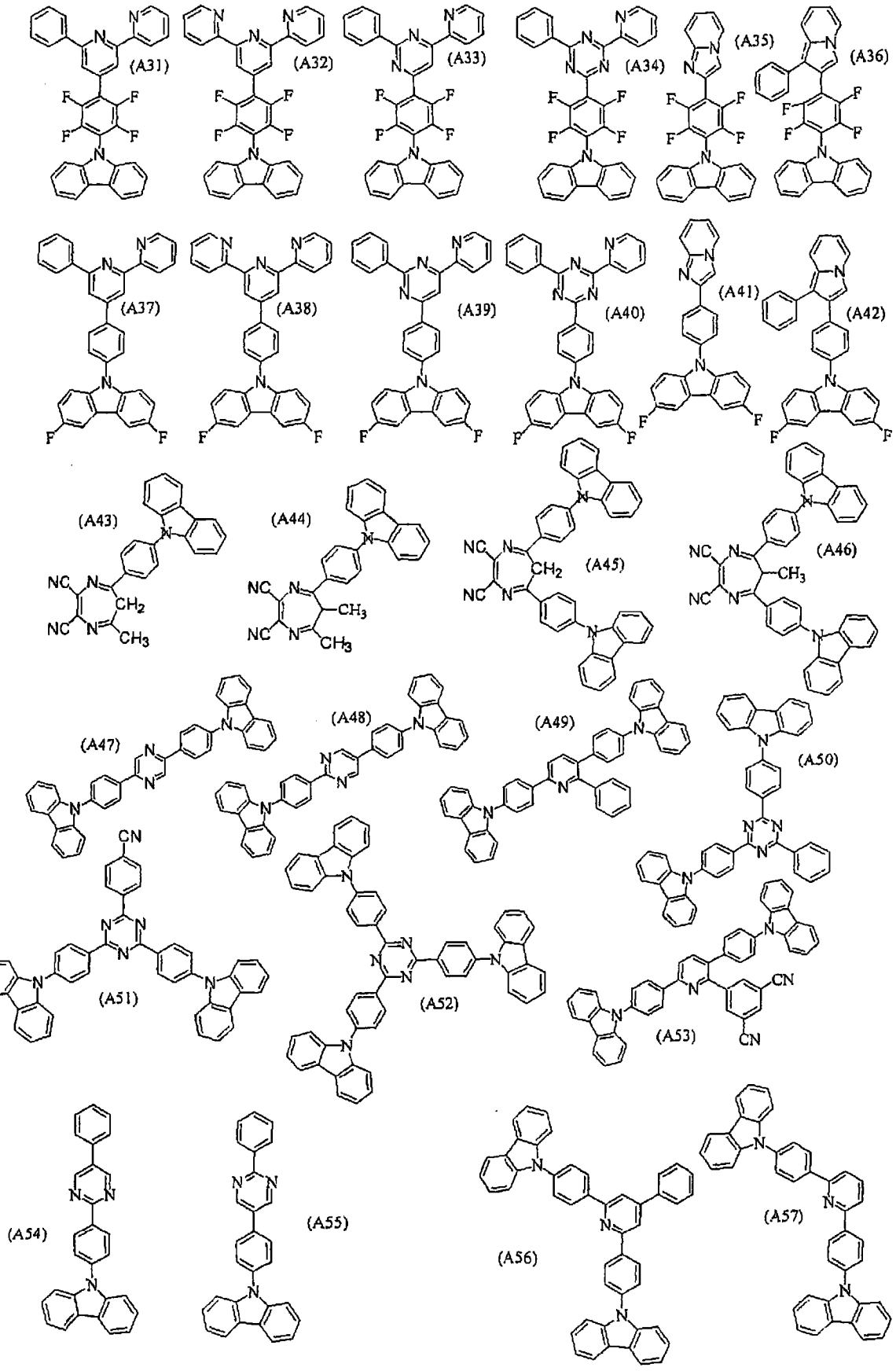
[0065] 进一步，在上述通式 (7) 和 (8) 中，Cz 优选为取代或无取代的芳基咔唑基，更优选为苯基咔唑基。此外，芳基咔唑基的芳基部分优选被咔唑基取代。

本发明的通式 (7) 所示的化合物的具体例如下所示，但本发明并不局限于这些化合物。

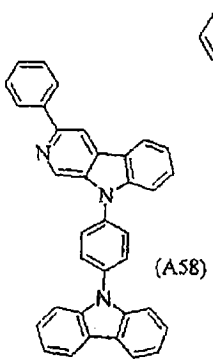
[0066] 【化 12】

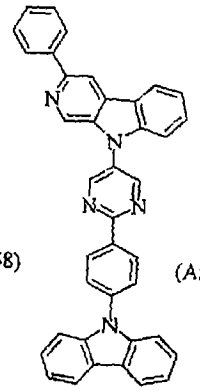

(A1)
(A2)
(A3)
(A4)
(A5)
(A6)
(A7)
(A8)
(A9)
(A10)
(A11)
(A12)
(A13)
(A14)
(A15)
(A16)
(A17)
(A18)
(A19)
(A20)
(A21)
(A22)
(A23)
(A24)
(A25)
(A26)
(A27)
(A28)
(A29)
(A30)

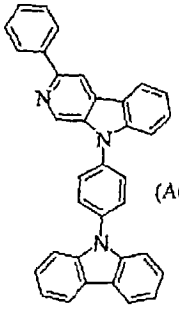
[0067] [化 13]

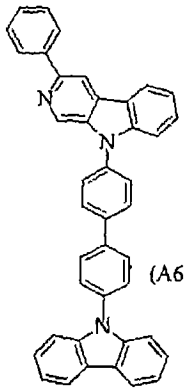

(A31)
(A32)
(A33)
(A34)
(A35)
(A36)
(A37)
(A38)
(A39)
(A40)
(A41)
(A42)
(A43)
(A44)
(A45)
(A46)
(A47)
(A48)
(A49)
(A50)
(A51)
(A52)
(A53)
(A54)
(A55)
(A56)
(A57)

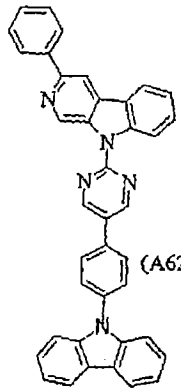
[0068] 【化 14】

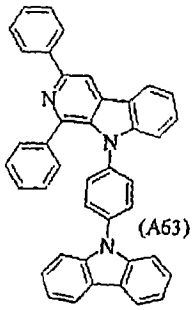

(A58)

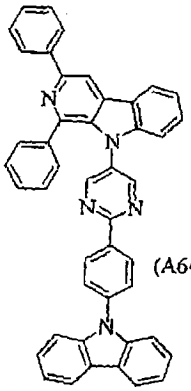

(A59)

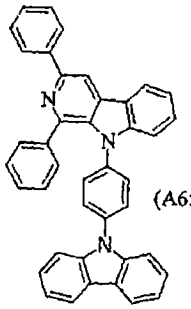

(A60)

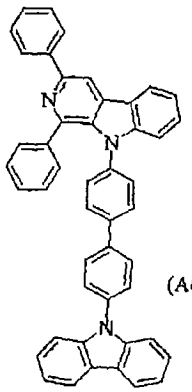

(A61)

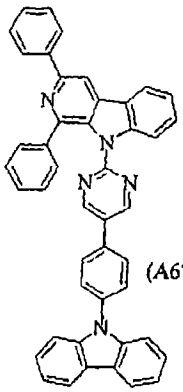

(A62)

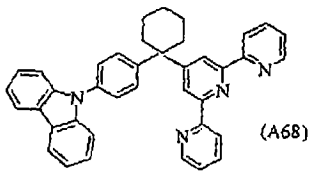

(A63)

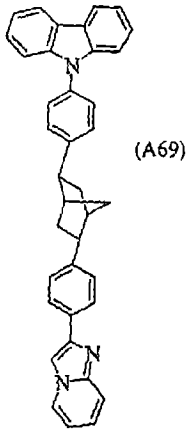

(A64)

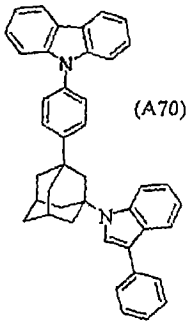

(A65)

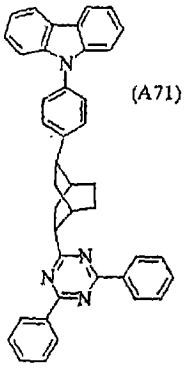

(A66)


(A67)

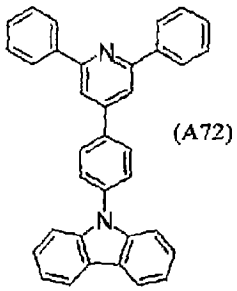

(A68)


(A69)

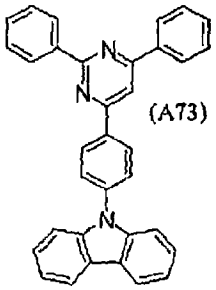

(A70)


(A71)

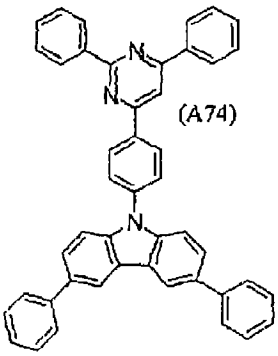
[0069] 【化 15】



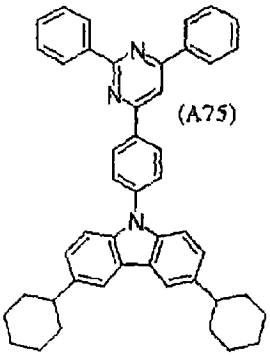
(A72)



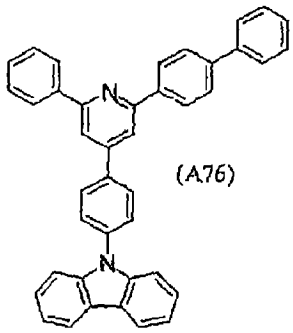
(A73)



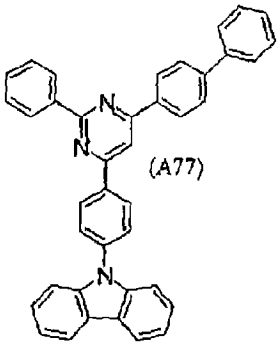
(A74)



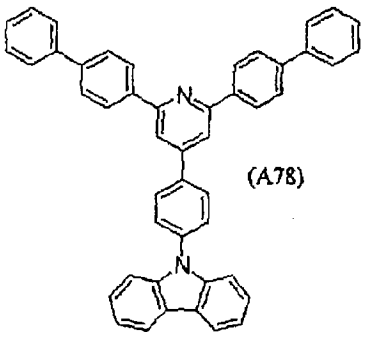
(A75)



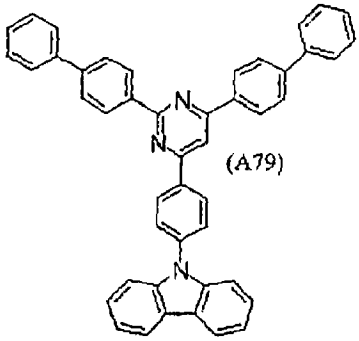
(A76)



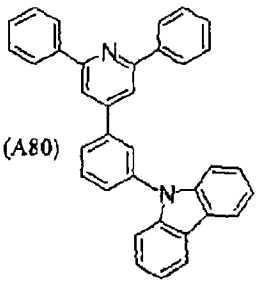
(A77)



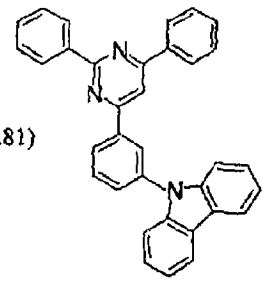
(A78)



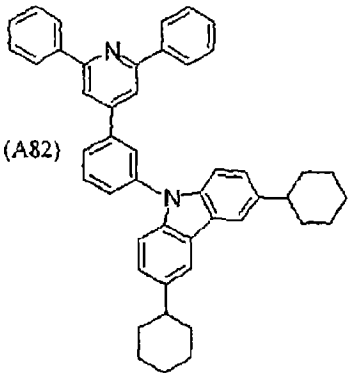
(A79)



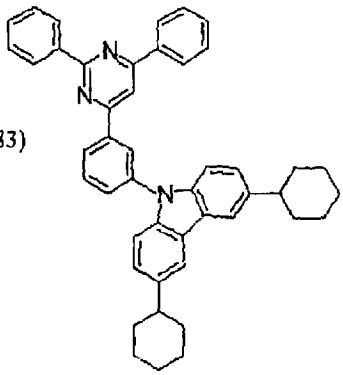
(A80)



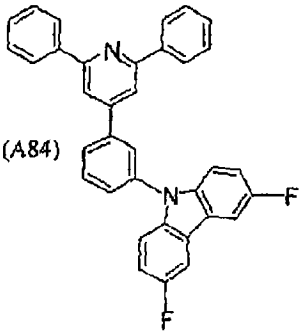
(A81)



(A82)

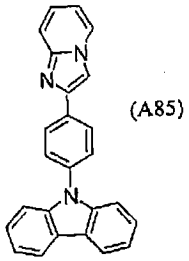


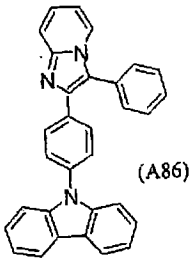
(A83)

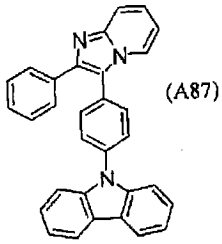


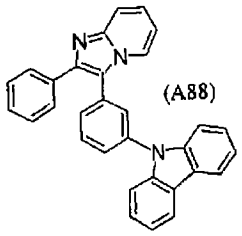
(A84)

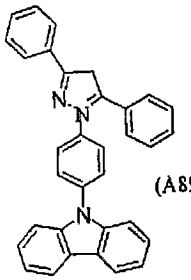
[0070] 【化 16】

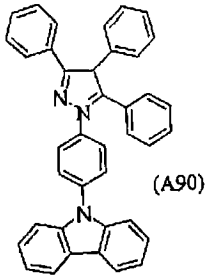

(A85)

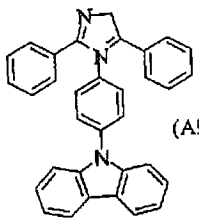

(A86)

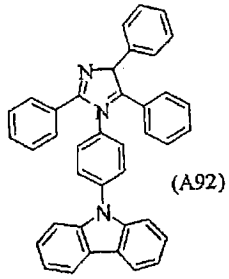

(A87)

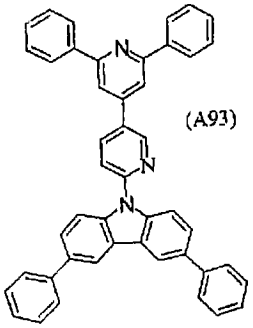

(A88)

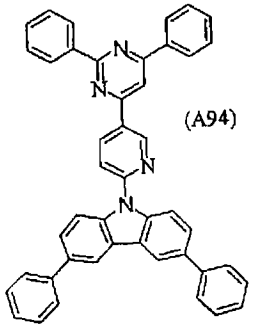

(A89)

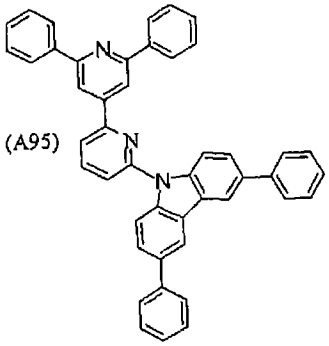

(A90)

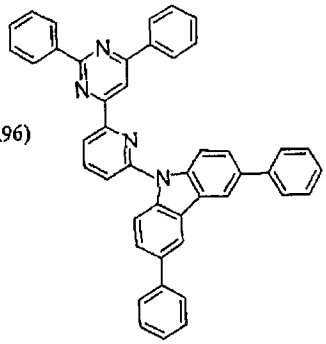

(A91)

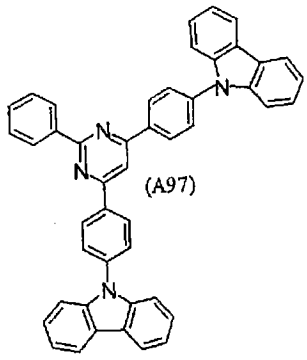

(A92)


(A93)

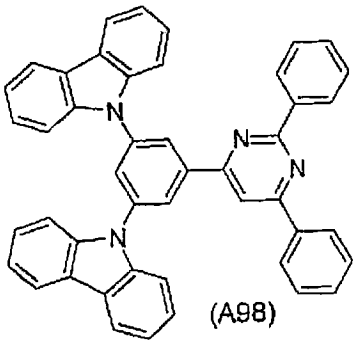

(A94)


(A95)

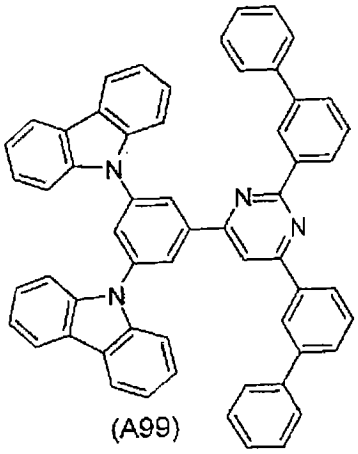

(A96)


(A97)

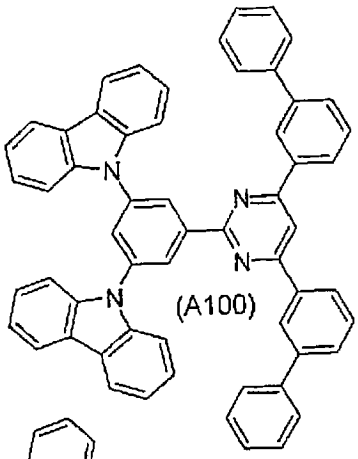
[0071] 【化 17】



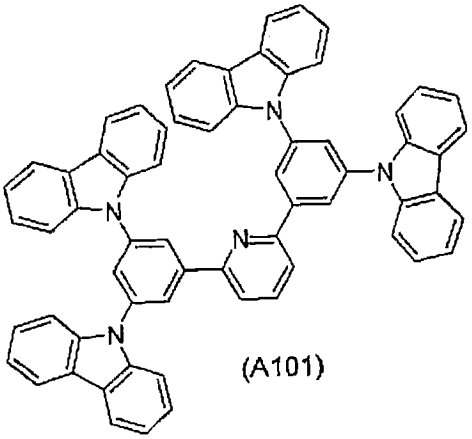
(A98)



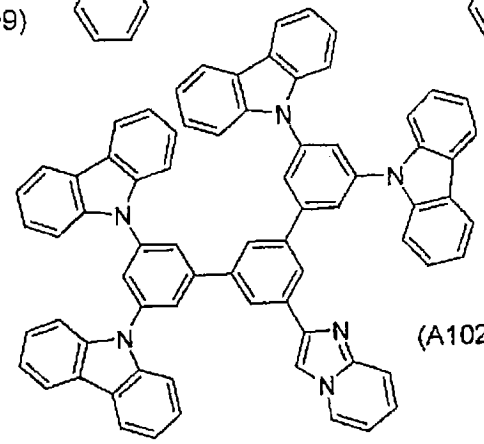
(A99)



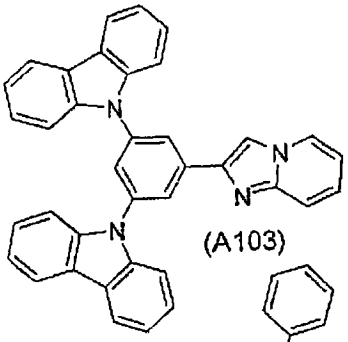
(A100)



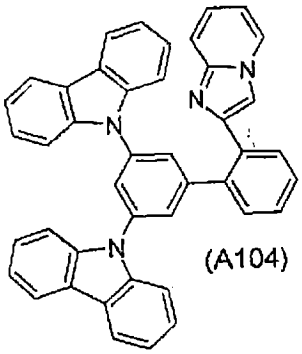
(A101)



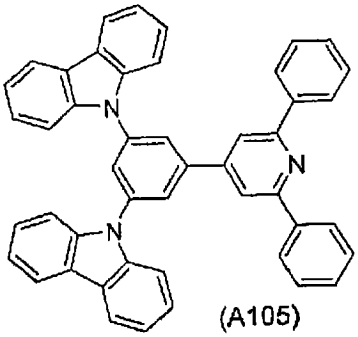
(A102)



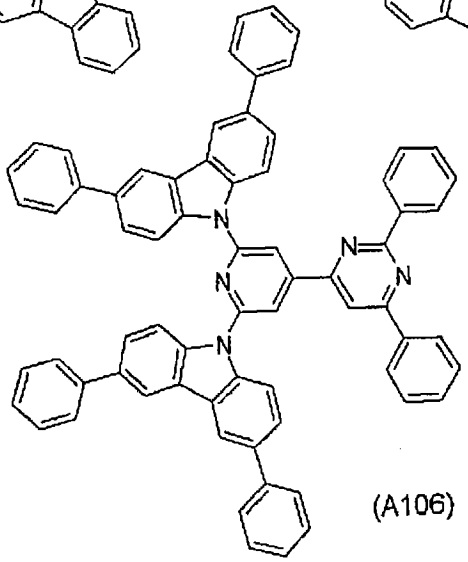
(A103)



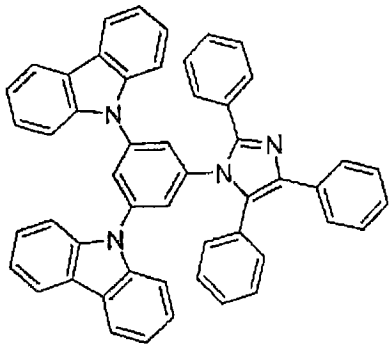
(A104)



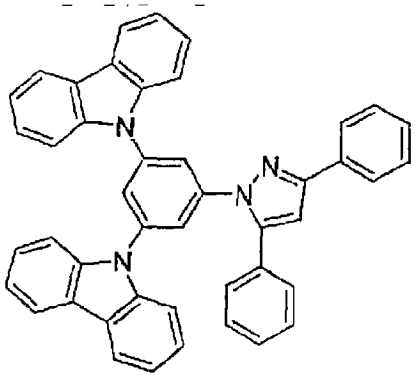
(A105)



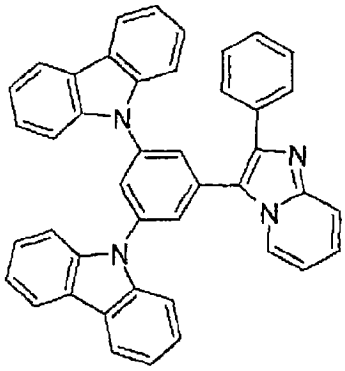
(A106)



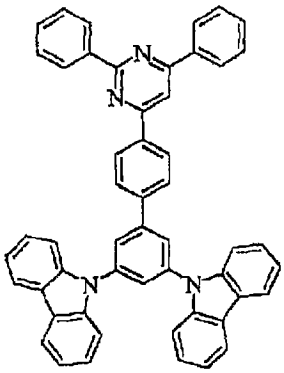
(A107)



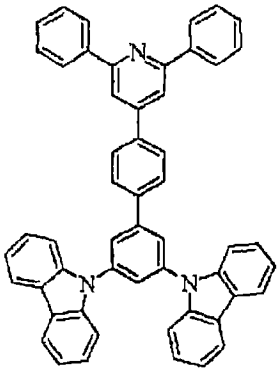
(A108)



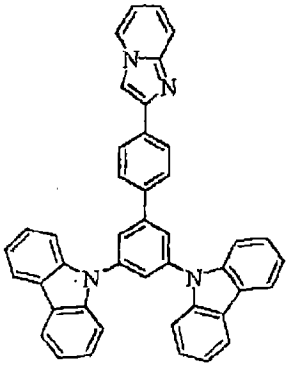
(A109)



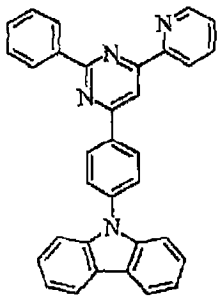
(A110)



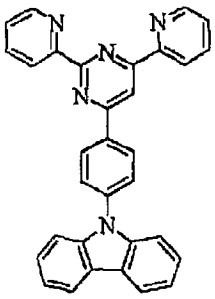
(A111)



(A112)



(A113)

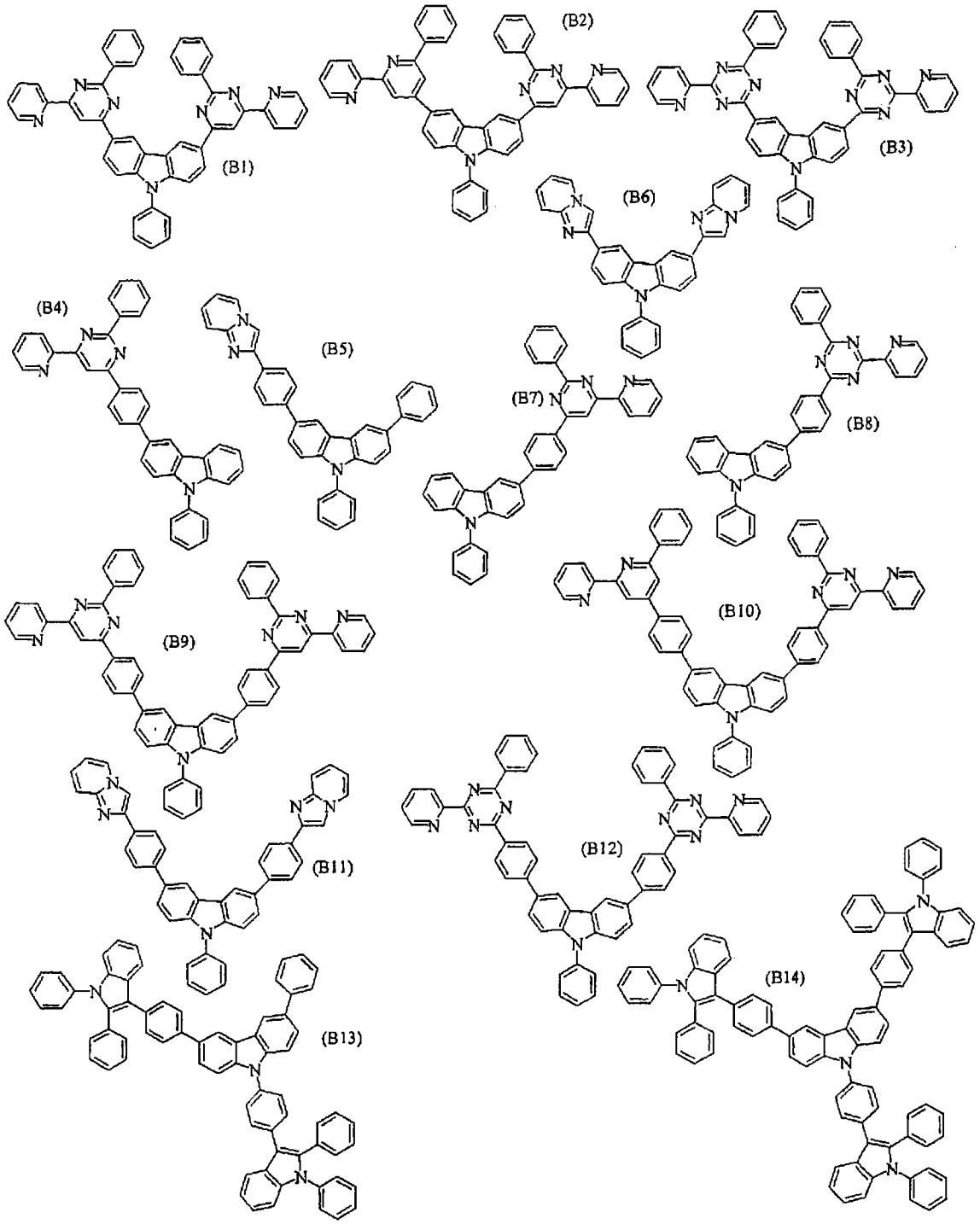


(A114)

[0072] 【化 18】

[0073] 通式 (8) 所示的化合物的具体例显示如下，但不限定为这些例示化合物。

[0074] 【化 19】



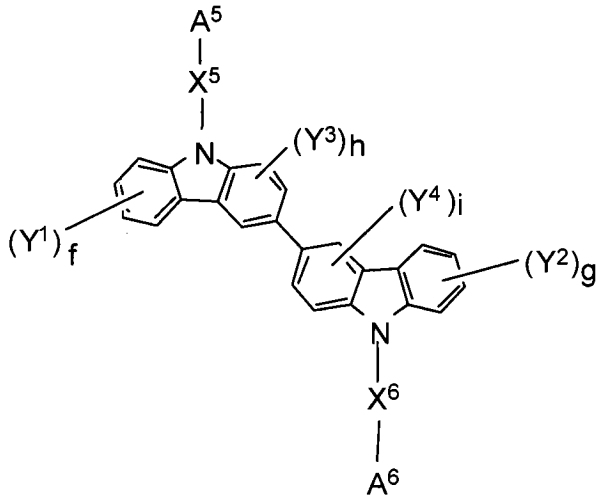
[0075] 本发明中的通式 (7) 或 (8) 所示的化合物的三线态能隙为 2.5 ～ 3.3eV，优选为 2.5 ～ 3.2eV。

本发明中的通式 (7) 或者 (8) 所示的化合物的单线态能隙为 2.8 ～ 3.8eV，优选为 2.9 ～ 3.7eV。

[0076] （上述式 (9) 所示的化合物）

上述式 (9) 所示的双咔唑衍生物更优选为下述式 (10) 所示的化合物。

[0077] 【化 20】



··· (10)

[0078] 上述式 (10) 中，A^5、A^6，X^5、X^6、Y^1 ～ Y^4、f、g、h、i 与上述式 (9) 相同。

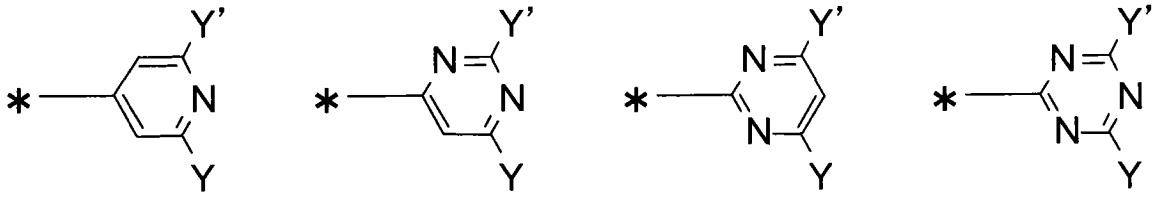
[0079] 进一步，上述式 (10) 中，A^5 优选选自取代或无取代的吡啶环、嘧啶环、三嗪环，特别地，A^5 优选取代或者无取代的嘧啶环。

[0080] 上述式 (9) 及 (10) 中，X^5 优选单键或者成环碳原子数 6 ～ 30 的取代或无取代的 2 价芳香族烃基或稠合芳香族烃基，特别优选苯环。

上述式 (9) 及 (10) 中，当 X^5 为取代或无取代的苯环时，与 X^5 成键的 A^5 和咔唑基优选相互为间位或对位。特别地，X^5 优选无取代的对亚苯基。

[0081] 上述式 (9) 或者 (10) 中，吡啶环、嘧啶环、三嗪环各自优选为下式所示。此处，Y 及 Y' 表示取代基，作为取代基，可使用与上述 Y^1 ～ Y^4 相同的基团，Y 与 Y' 可相同或不同。其中优选为成环碳原子数 6 ～ 30 的取代或无取代的芳香族烃基或稠合芳香族烃基、取代或无取代的成环碳原子数 2 ～ 30 的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。另，在下式中，* 表示与 X^5 或者 X^6 的成键位置。

[0082] 【化 21】



[0083] 上述式 (9) 及 (10) 中，Y^1 ～ Y^4 所示的烷基、烷氧基、卤代烷基、卤代烷氧基、烷基甲硅烷基可以是直链状、支链状、环状的任一。

[0084] 上述式 (9) 及 (10) 中，上述碳原子数 1 ～ 20 的烷基可列举，例如甲基、乙基、丙基、异丙基、正丁基、仲丁基、异丁基、叔丁基、正戊基、正己基、正庚基、正辛基、正壬基、正癸基、正十一烷基、正十二烷基、正十三烷基、正十四烷基、正十五烷基、正十六烷基、正十七烷基、正十八烷基、新戊基、1- 甲基戊基、2- 甲基戊基、1- 戊基己基、1- 丁基戊基、1- 庚基辛基、3- 甲基戊基、环戊基、环己基、环辛基、3,5- 四甲基环己基等。

[0085] 上述碳原子数 1 ～ 20 的烷氧基优选碳原子数 1 ～ 6 的烷氧基，具体地可列举，甲氧基、乙氧基、丙氧基、丁氧基、戊氧基、己氧基等。

[0086] 上述碳原子数 1 ～ 20 的卤代烷基可列举，例如上述碳原子数 1 ～ 20 的烷基被 1

以上的卤基所取代的基团。

上述碳原子数 1 ～ 20 的卤代烷氧基可列举，例如上述碳原子数 1 ～ 20 的烷氧基被 1 以上的卤基所取代的基团。

[0087] 上述碳原子数 1 ～ 10 的烷基甲硅烷基可列举，例如三甲基甲硅烷基、三乙基甲硅烷基、三丁基甲硅烷基、二甲基乙基甲硅烷基、二甲基异丙基甲硅烷基、二甲基丙基甲硅烷基、二甲基丁基甲硅烷基、二甲基叔丁基甲硅烷基、二甲基异丙基甲硅烷基等。

[0088] 上述碳原子数 6 ～ 30 的芳基甲硅烷基可列举，例如苯基二甲基甲硅烷基、二苯基甲基甲硅烷基、二苯基叔丁基甲硅烷基、三苯基甲硅烷基等。

[0089] 上述成环碳原子数 2 ～ 30 的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基可列举，吡咯基、吡嗪基、吡啶基、吲哚基、异吲哚基、呋喃基、苯并呋喃基、异苯并呋喃基、二苯并呋喃基、二苯并硫代苯基、喹啉基、异喹啉基、喹喔啉基、咔唑基、菲啶基、吖啶基、啡啉基、噻吩基和由吡啶环、吡嗪环、嘧啶环、哒嗪环、三嗪环、吲哚环、喹啉环、吖啶环、吡咯烷环、二噁烷环、哌啶环、吗啉环、哌嗪环、咔唑环、呋喃环、噻吩环、噁唑环、噁二唑环、苯并噁唑环、噻唑环、噻二唑环、苯并噻唑环、三唑环、咪唑环、苯并咪唑环、吡喃环、二苯并呋喃环形成的基团。。

[0090] 上述成环碳原子数 6 ～ 30 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基可列举，苯基、萘基、菲基、联苯基、三联苯基、四联苯基、荧蒽基、9,10- 苯并菲基、菲基（フェナントレニル基）。

[0091] 当上述式 (9) 及 (10) 中的 A^5、A^6、X^5、X^6、Y^1 ～ Y^4 具有 1 个或多个取代基时，上述取代基优选直链状、支链状或者环状碳原子数 1 ～ 20 的烷基、直链状、支链状或者环状碳原子数 1 ～ 20 的烷氧基、直链状、支链状或者环状碳原子数 1 ～ 20 的卤代烷基、直链状、支链状或者环状碳原子数 1 ～ 10 的烷基甲硅烷基、成环碳原子数 6 ～ 30 的芳基甲硅烷基、氰基、卤原子、成环碳原子数 6 ～ 30 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基，或者成环碳原子数 2 ～ 30 的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。

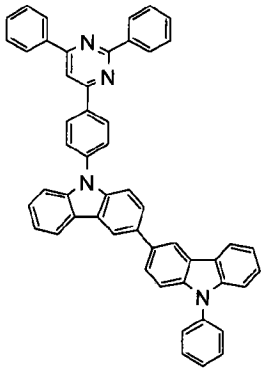
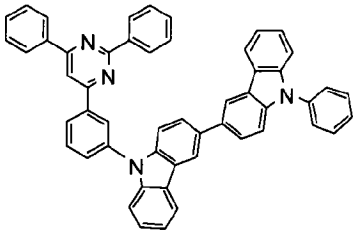
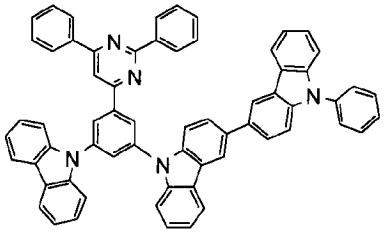
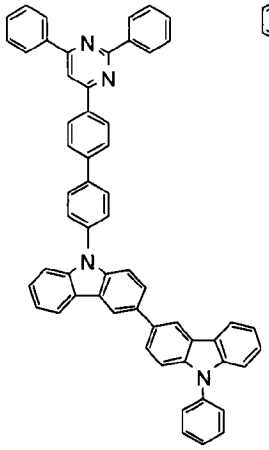
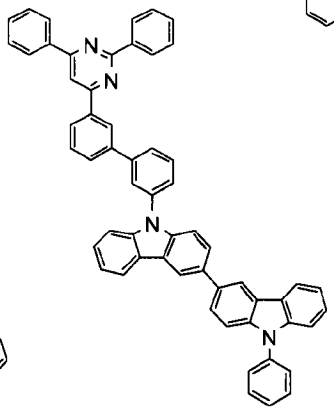
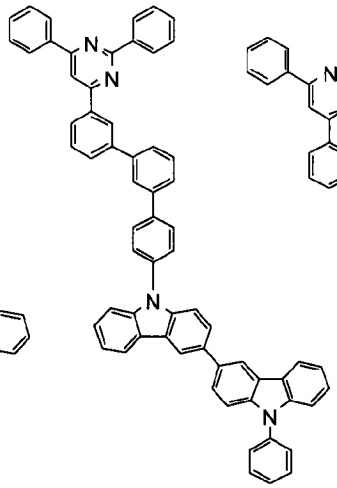
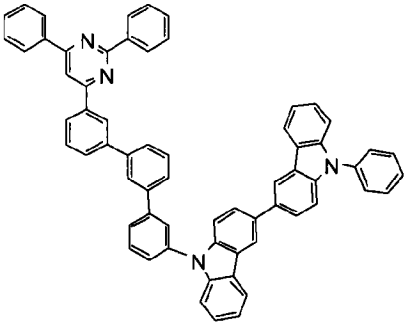
[0092] 上述直链状、支链状或者环状碳原子数 1 ～ 20 的烷基、上述直链状、支链状或者环状碳原子数 1 ～ 20 的烷氧基、上述直链状、支链状或者环状碳原子数 1 ～ 20 的卤代烷基、上述直链状、支链状或者环状碳原子数 1 ～ 10 的烷基甲硅烷基、上述成环碳原子数 6 ～ 30 的芳基甲硅烷基、上述成环碳原子数 6 ～ 30 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基、上述成环碳原子数 2 ～ 30 的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基可列举例如，前述的基团，卤原子可列举氟原子。

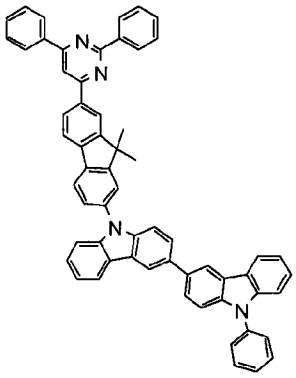
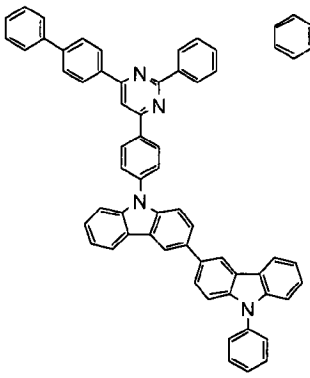
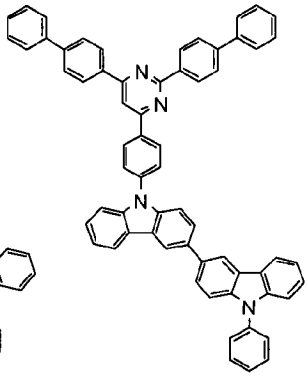
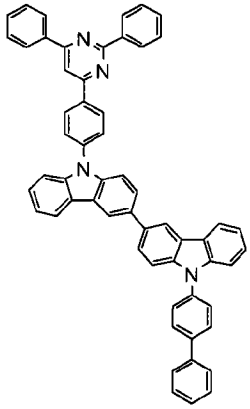
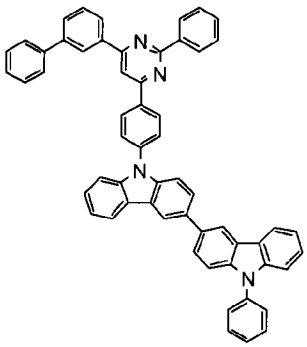
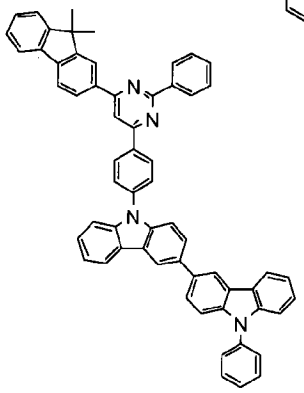
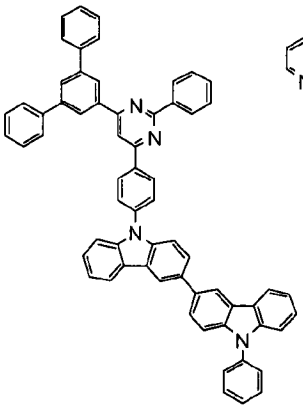
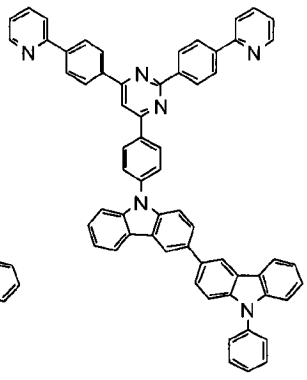
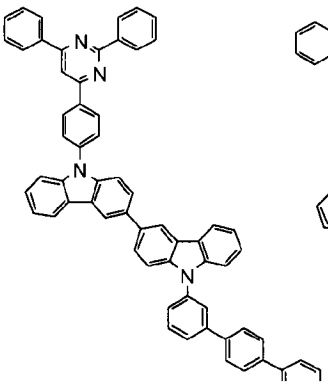
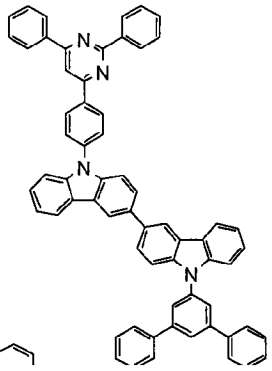
[0093] 上述式 (9) 及 (10) 所示的化合物的具体例可列举，例如以下的化合物。

[0094] 【化 22】

[0095]

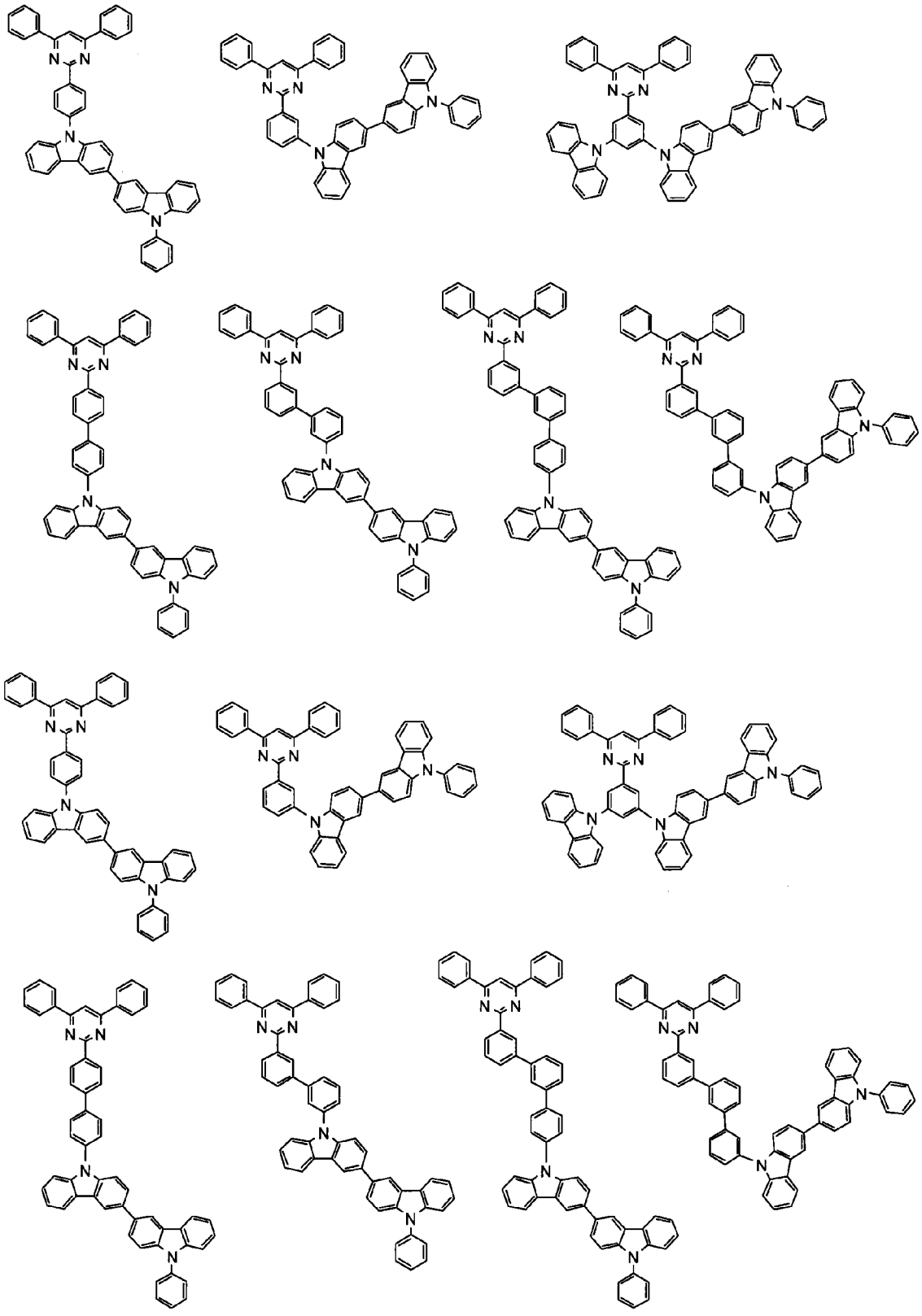
【化 23】

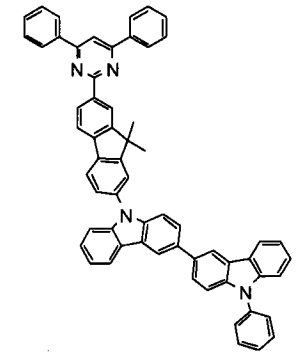
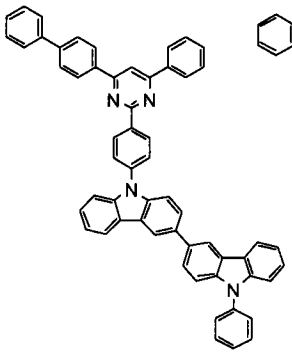
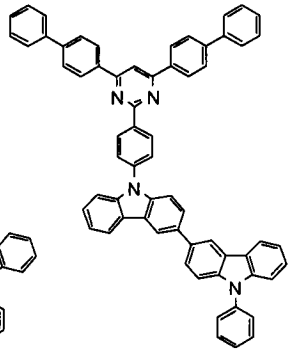
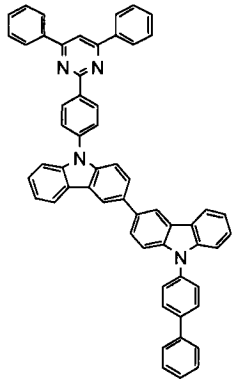
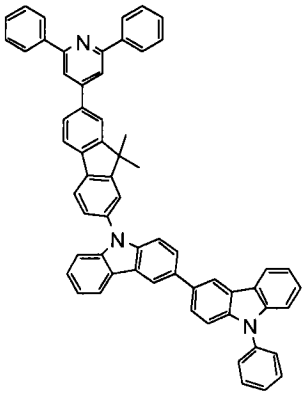
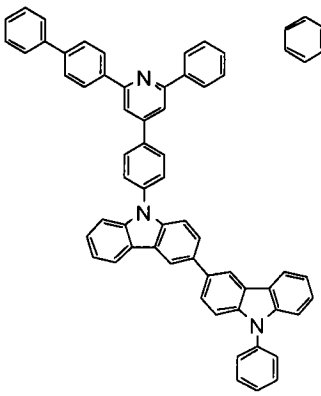
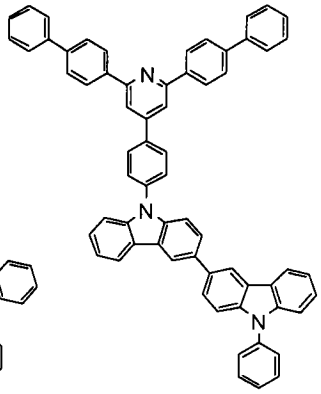
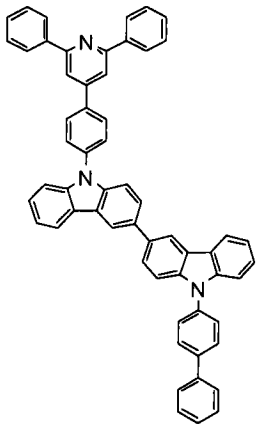
[0096]

【化 24】



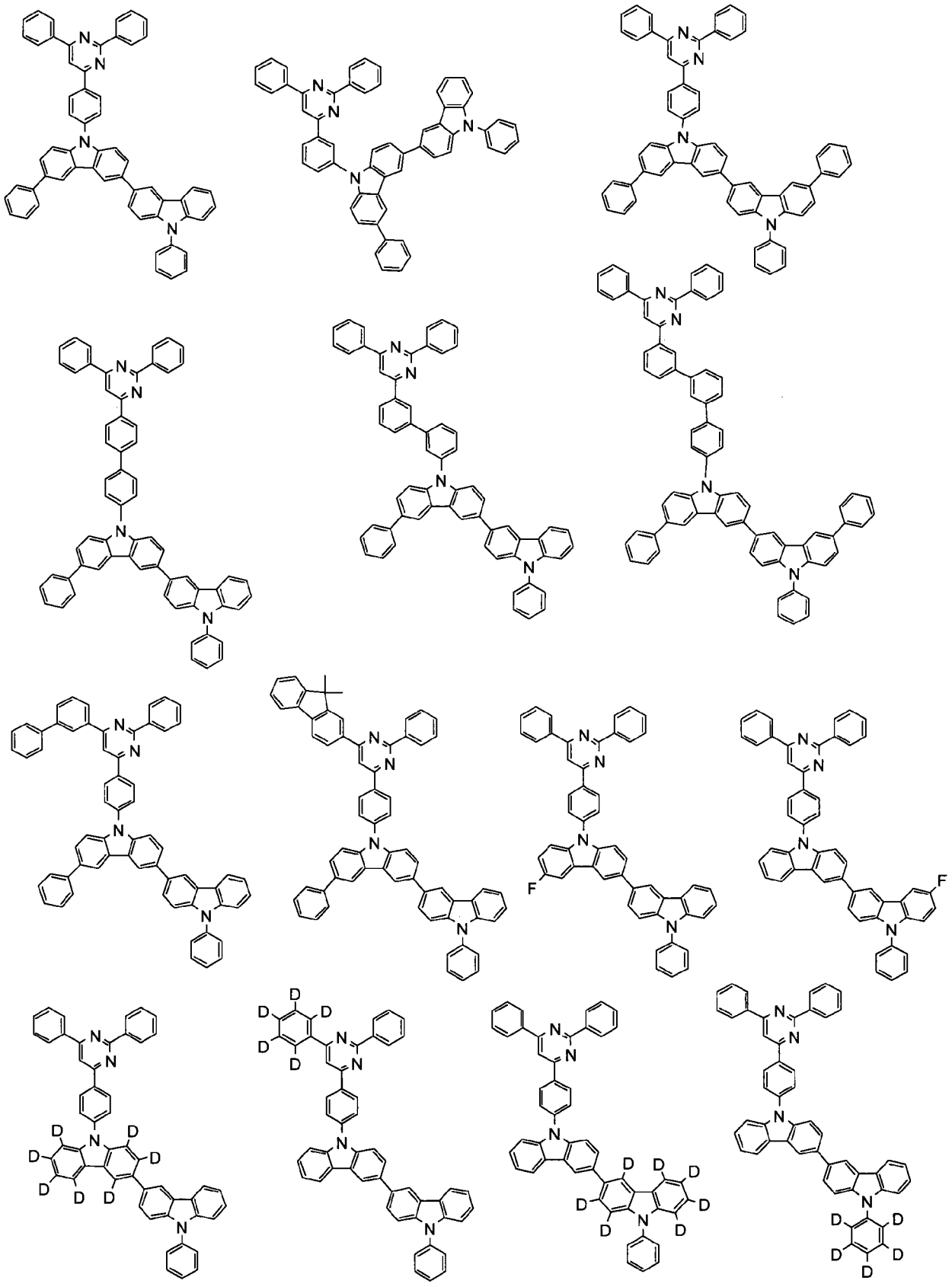
[0097]

【化 25】

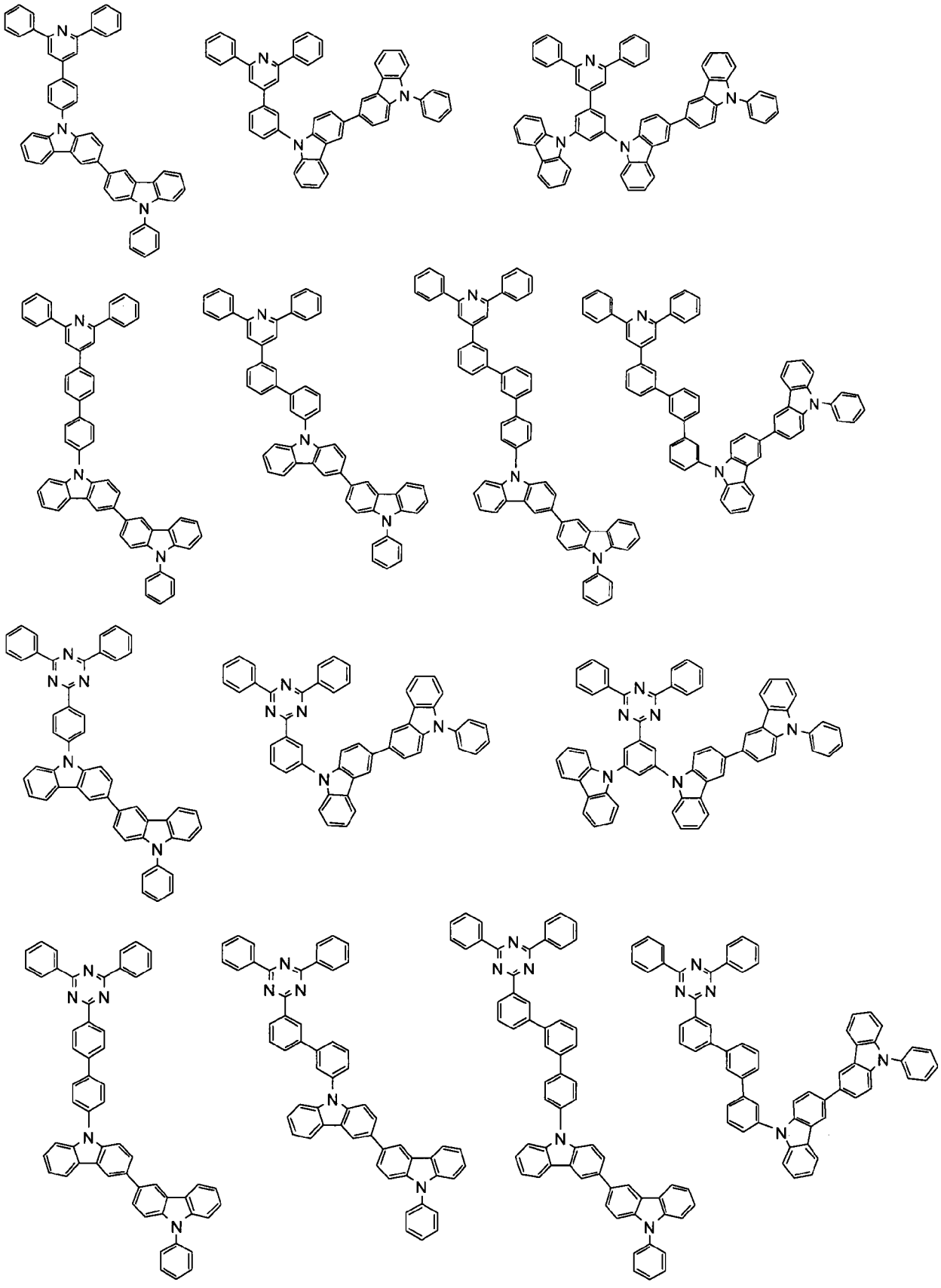
[0098]

【化 26】



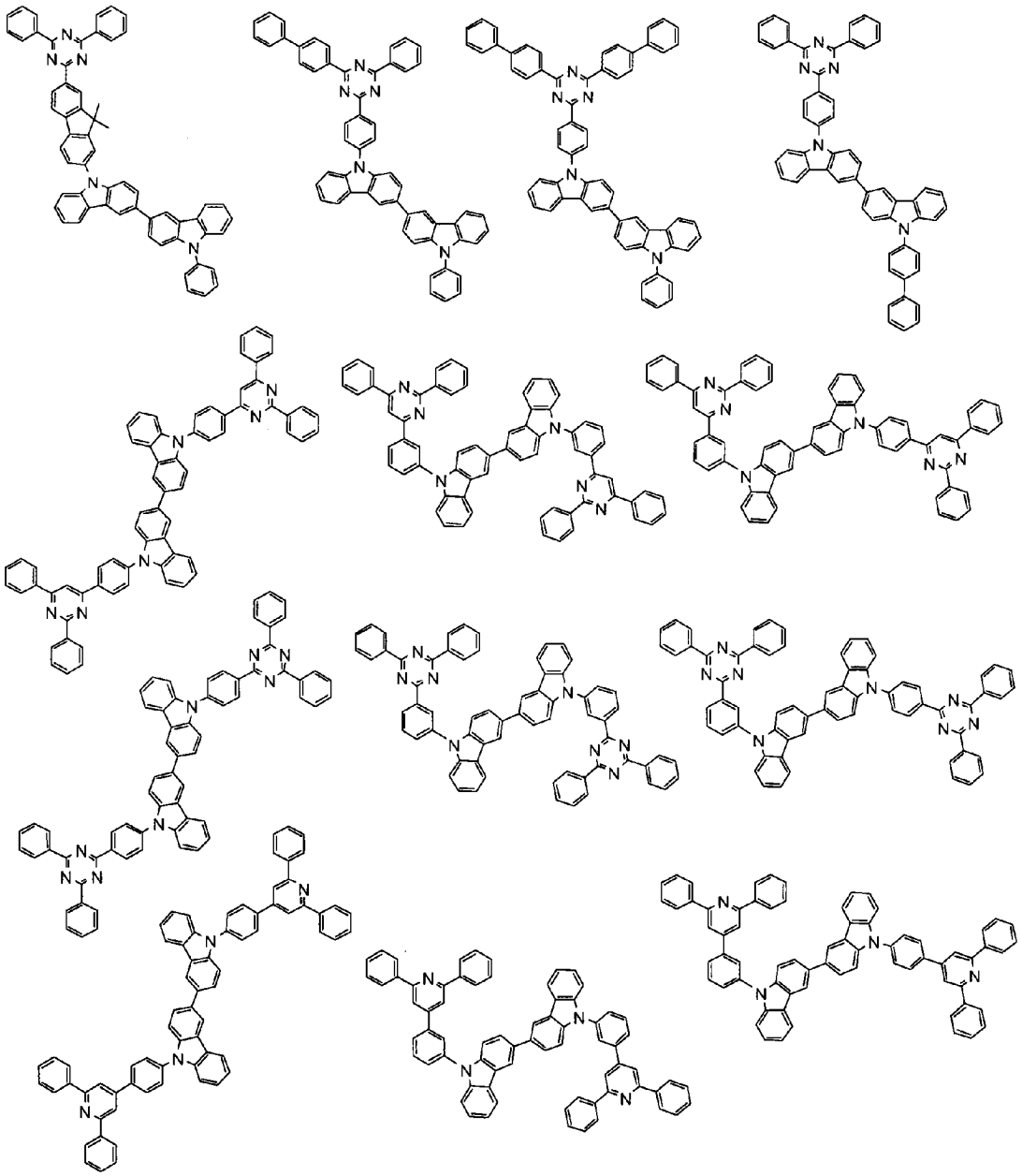
[0099]

【化 27】



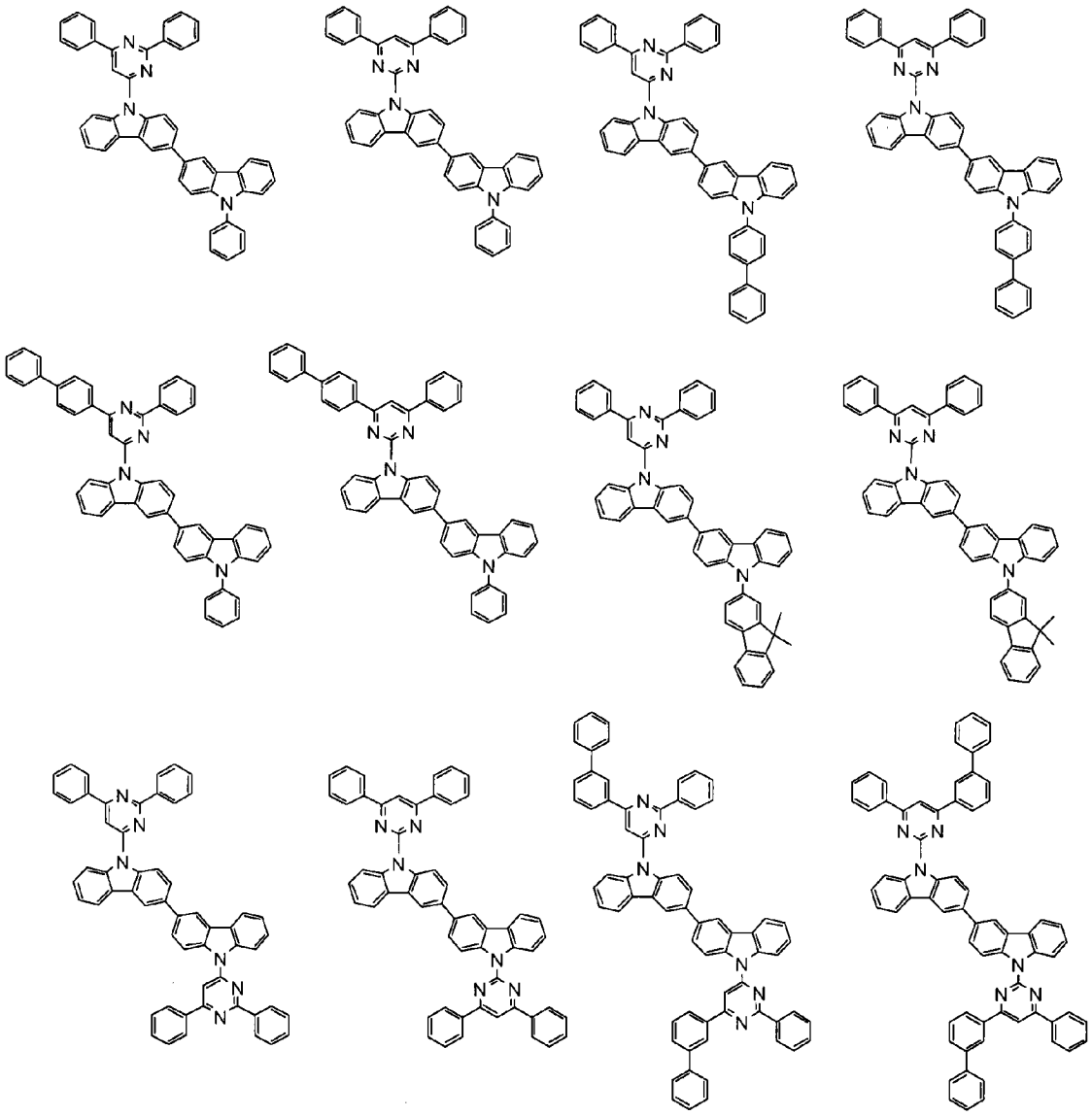
[0100]

【化 28】



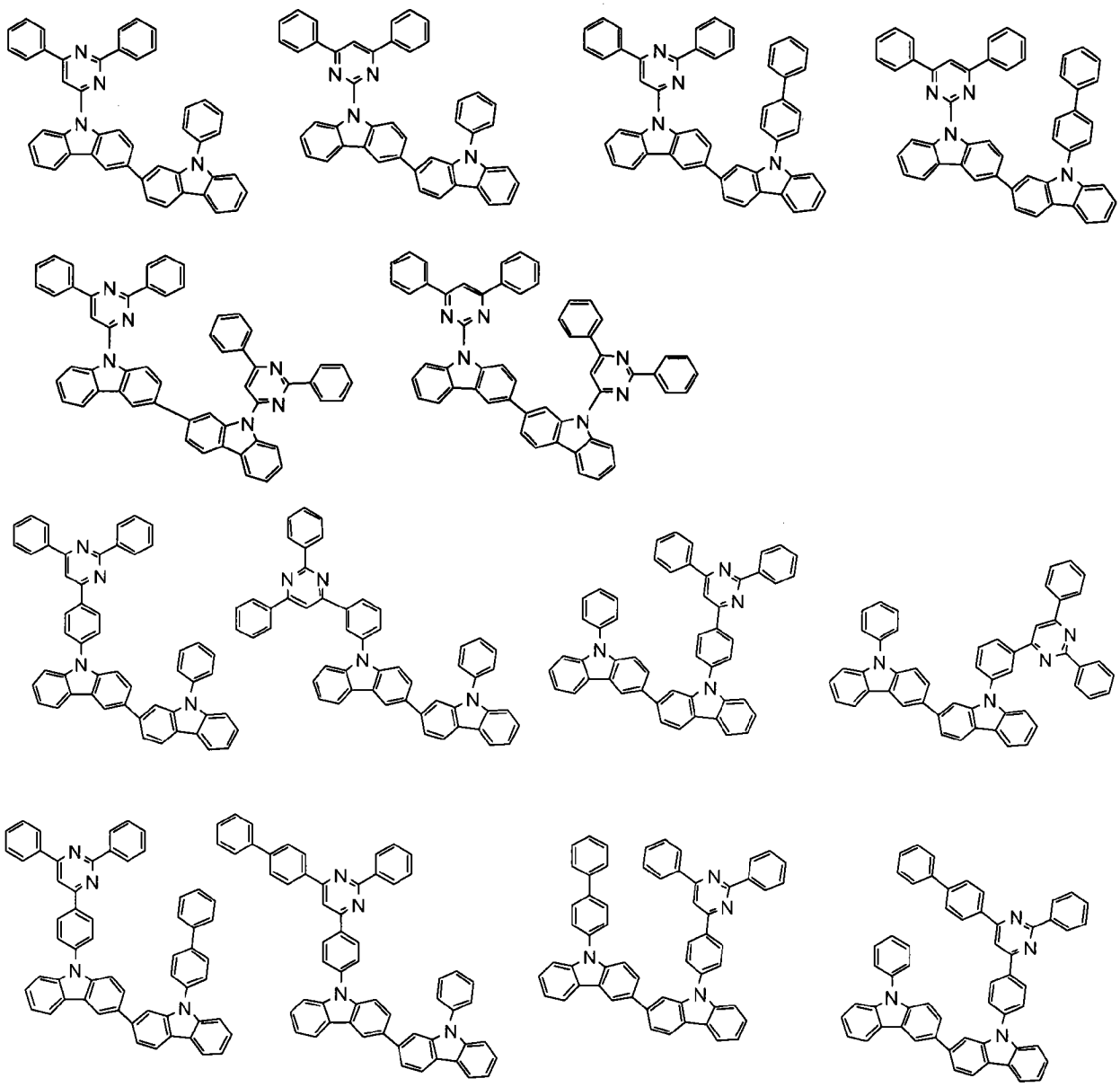
[0101]

【化 29】



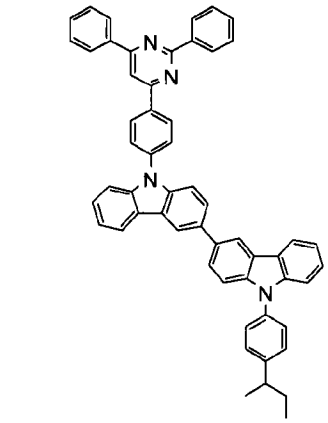
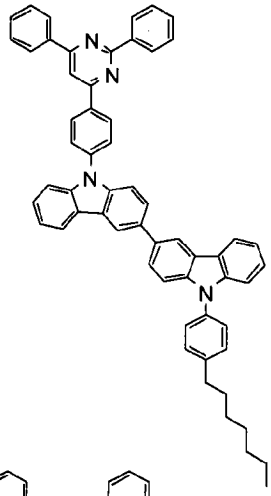
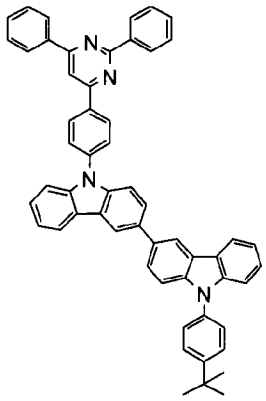
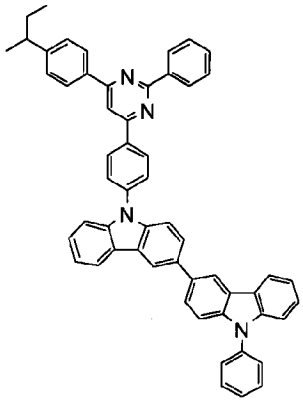
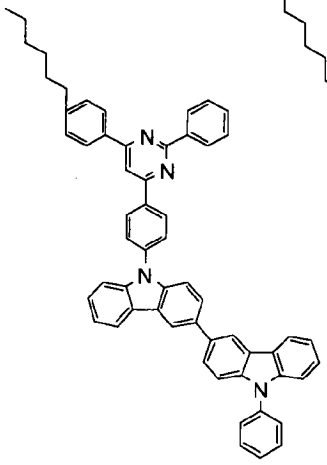
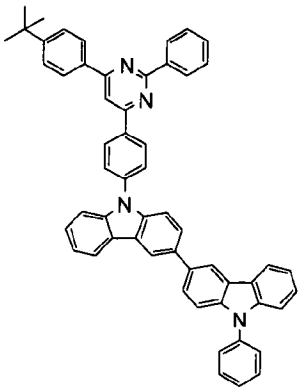
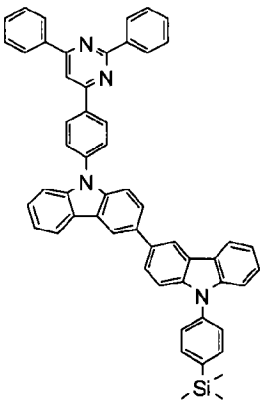
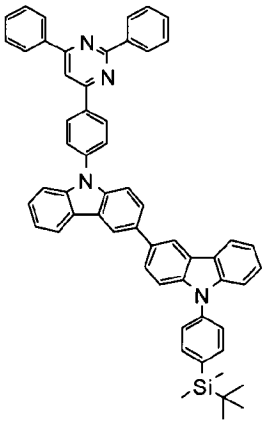
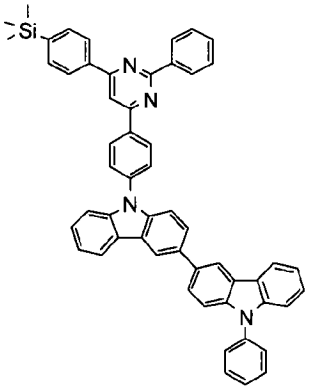
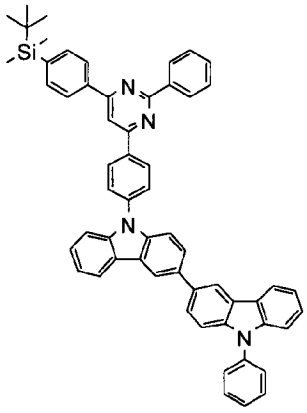
[0102]

【化 30】



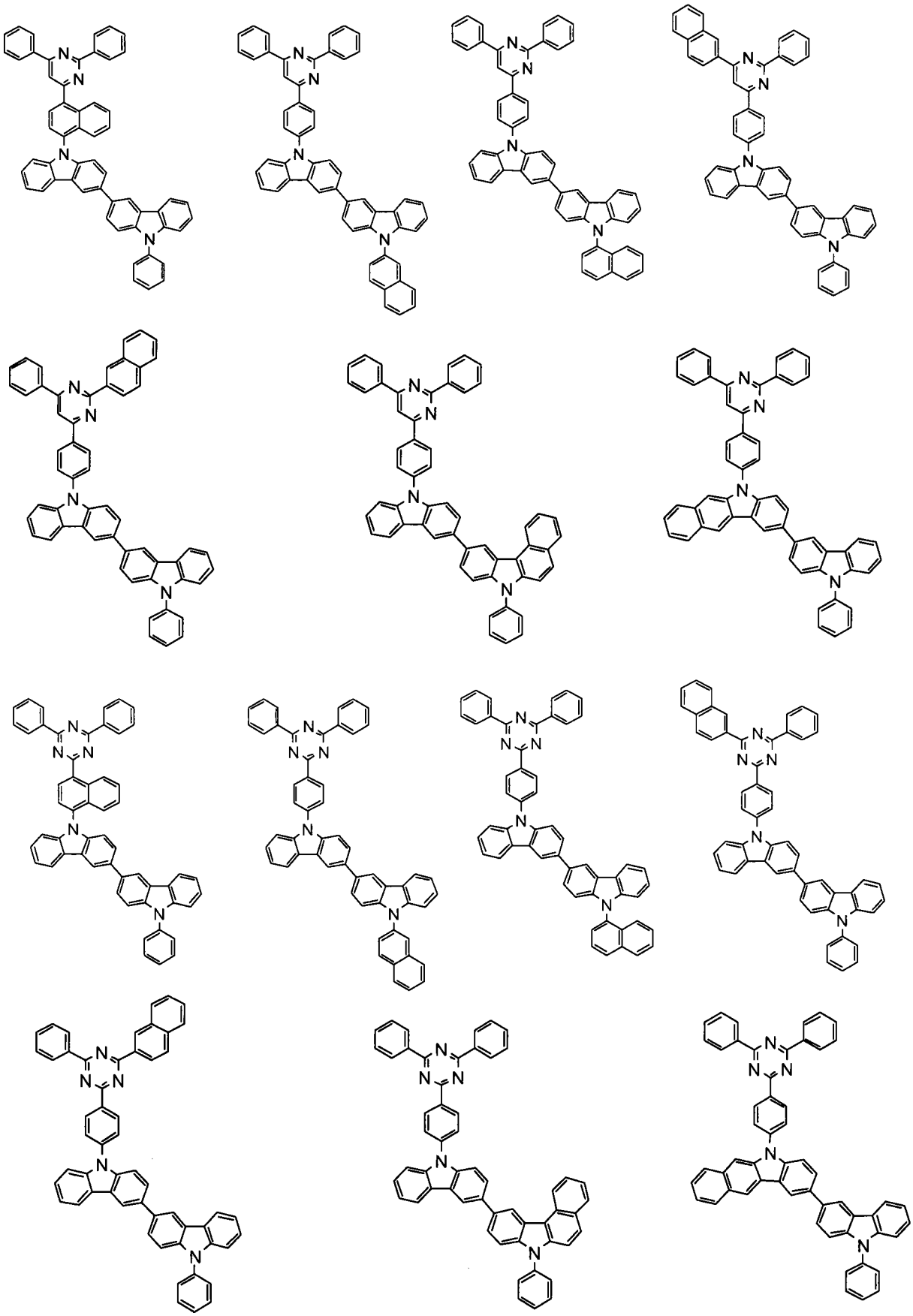
[0103]

【化 31】

[0104]

【化 32】

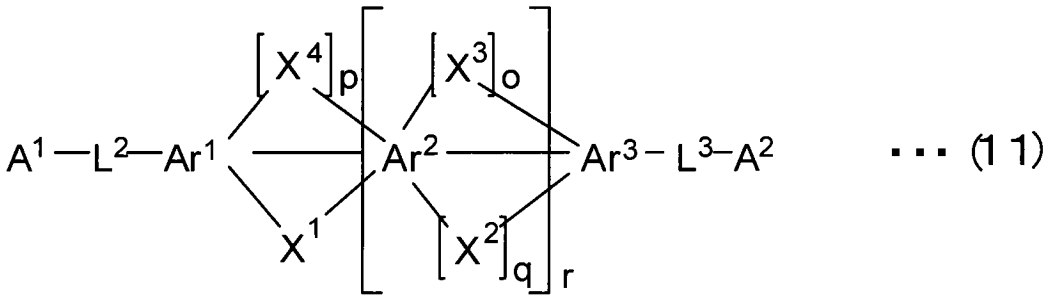


[0105] （第 2 基质）

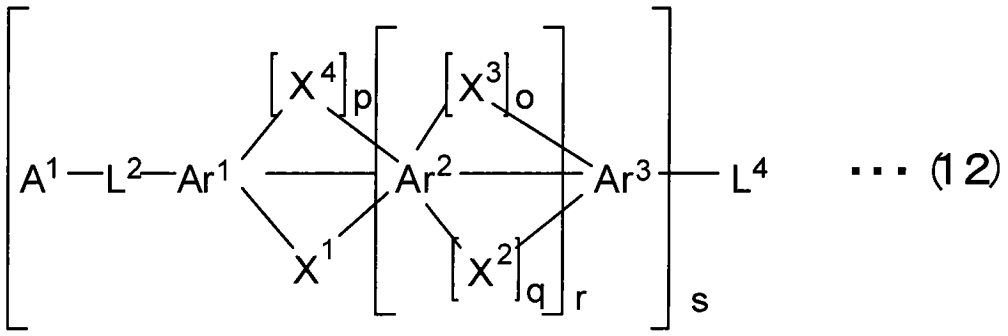
本发明的有机电致发光元件含有下述式 (11) 或者 (12) 的任一所示化合物作为第 2 基

质。

【化 33】



··· (11)



··· (12)

[上述式 (11) 及 (12) 中，Ar^1、Ar^2 及 Ar^3 各自独立地表示

取代或无取代的成环碳原子数 6 的芳香族烃基、

或者取代或无取代的成环原子数 6 的芳香族杂环基。

其中，Ar^1、Ar^2 及 Ar^3 可具有一个或者多个取代基 Y，多个的情况下可分别不同。

Y 表示碳原子数 1 ～ 20 的烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环烷基、

碳原子数 1 ～ 20 的烷氧基、

碳原子数 7 ～ 24 的芳烷基、

甲硅烷基或碳原子数 3 ～ 20 的取代甲硅烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基、

或者成环碳原子数 3 ～ 24 的取代或无取代的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。

式 (1) 及 (2) 中，X^1、X^2、X^3 及 X^4 各自独立地表示氧 (O)、硫 (S)、$N-R^1$ 或者 CR^2R^3。

上述 R^1、R^2 及 R^3 各自独立地表示

碳原子数 1 ～ 20 的烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环烷基、

碳原子数 7 ～ 24 的芳烷基、

甲硅烷基或碳原子数 3 ～ 20 的取代甲硅烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基、

或者取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 24 的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。

其中，当 X^1 与 X^2 同时为 $N-R^1$，o、p 为 0，q 为 1 时，

或者 X^1 与 X^3 同时为 $N-R^1$，p、q 为 0，o 为 1 时，

R^1 的至少 1 个表示取代或无取代的成环原子数 8 ～ 24 的 1 价稠合芳香族杂环基。

式 (1) 及 (2) 中，o、p 及 q 表示 0 或者 1。s 表示 1、2、3 或 4，各自为以 L^4 为连接基的 1 聚体、2 聚体、3 聚体、4 聚体。

r 表示 1、2、3 或者 4。

式 (1) 及 (2) 中，L^2 表示单键、

碳原子数 1 ～ 20 的亚烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环亚烷基、

2 价甲硅烷基或碳原子数 2 ～ 20 的 2 价取代甲硅烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的 2 价芳香族烃基或稠合芳香族烃基、

或者成环碳原子数 3 ～ 24 的取代或无取代的 1 价或 2 价芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。

式 (1) 中，L^3 表示单键、

碳原子数 1 ～ 20 的亚烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环亚烷基、

2 价甲硅烷基或碳原子数 2 ～ 20 的 2 价取代甲硅烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的 2 价芳香族烃基或稠合芳香族烃基、

或者成环碳原子数 3 ～ 24 的取代或无取代的 2 价芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。

式 (2) 中，L^4

当 s 为 2 时，表示

单键、

碳原子数 1 ～ 20 的亚烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环亚烷基、

2 价甲硅烷基或碳原子数 2 ～ 20 的 2 价取代甲硅烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的 2 价芳香族烃基或稠合芳香族烃、

或者成环碳原子数 3 ～ 24 的取代或无取代的 2 价芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基，

当 s 为 3 时，表示

碳原子数 1 ～ 20 的 3 价饱和烃基、

取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的 3 价环状饱和烃基、

3 价甲硅烷基或甲硅烷基或碳原子数 1 ～ 20 的 3 价取代甲硅烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的 3 价芳香族烃基或稠合芳香族烃基、

或者成环碳原子数 3 ～ 24 的取代或无取代的 3 价芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基，

当 s 为 4 时，表示

碳原子数 1 ～ 20 的 4 价饱和烃基、

取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的 4 价环状饱和烃基、

硅原子、

取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的 4 价芳香族烃基或稠合芳香族烃基、

或者成环碳原子数 3 ～ 24 的取代或无取代的 4 价芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。

式 (1) 及 (2) 中，A^1 表示

氢原子、

取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环烷基、

甲硅烷基或碳原子数 3 ～ 20 的取代甲硅烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基、

或者成环碳原子数 3 ～ 24 的取代或无取代的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。

式 (1) 中，A^2 表示

氢原子、

取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环烷基、

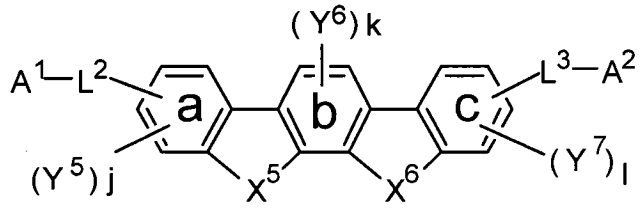
甲硅烷基或碳原子数 3 ～ 20 的取代甲硅烷基、

取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基、

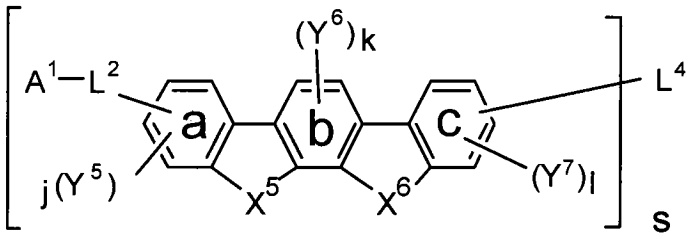
或者成环碳原子数 3 ～ 24 的取代或无取代的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。]

[0106] 本发明中，上述式 (1) 所示的化合物优选为下述式 (13) 或者 (15) 所示的化合物，上述式 (2) 所示的化合物优选为下述式 (14) 或者 (16) 所示的化合物。

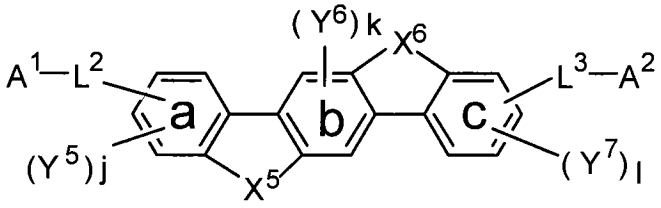
[0107] 【化 34】



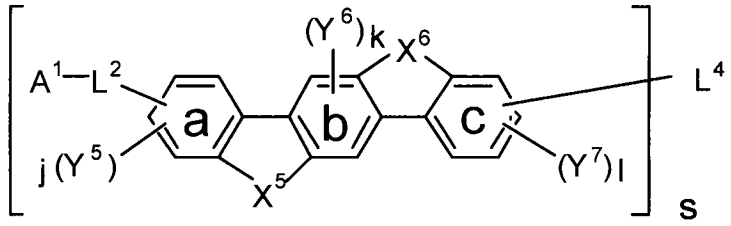
··· (13)



··· (14)



··· (15)



··· (16)

[0108] 上述式 (13) ～ (16) 中，X^5 及 X^6 各自独立地表示氧 (O)、硫 (S)、N-R^1 或者 CR^2R^3。

上述 R^1、R^2 及 R^3 各自独立地表示碳原子数 1 ～ 20 的烷基、取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环烷基、碳原子数 7 ～ 24 的芳烷基、甲硅烷基或碳原子数 3 ～ 20 的取代甲硅烷基、取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基，或者取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 24 的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。其中，X^5 与 X^6 同时

共为 N-R^1 时，R^1 的至少 1 个表示取代或无取代的成环原子数 8 ～ 24 的 1 价稠合芳香族杂环基。

式 (14) 及 (16) 中，s 表示 2、3 或者 4，各自为以 L^4 为连接基的 2 聚体、3 聚体、4 聚体。

式 (13) ～ (16) 中，L^2 表示单键、碳原子数 1 ～ 20 的亚烷基、取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环亚烷基、2 价甲硅烷基或碳原子数 2 ～ 20 的 2 价甲硅烷基、取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的 2 价芳香族烃基或稠合芳香族烃基，或者成环碳原子数 3 ～ 24 的苯环 a 和取代或无取代的 2 价芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。

式 (13) 及 (15) 中，L^3 表示单键、碳原子数 1 ～ 20 的亚烷基、取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环亚烷基、2 价甲硅烷基或碳原子数 2 ～ 20 的 2 价取代甲硅烷基、取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的 2 价芳香族烃基或稠合芳香族烃基，或者成环碳原子数 3 ～ 24 的与苯环 c 连接的取代或无取代的 2 价芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。

式 (14) 及 (16) 中，L^4 当 s 为 2 时，表示单键、碳原子数 1 ～ 20 的亚烷基、取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环亚烷基、2 价甲硅烷基或碳原子数 2 ～ 20 的 2 价取代甲硅烷基、取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的 2 价芳香族烃基或稠合芳香族烃基，或者成环碳原子数 3 ～ 24 的苯环 c 和取代或无取代的 2 价芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基，当 s 为 3 时，表示碳原子数 1 ～ 20 的 3 价饱和烃基、取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的 3 价环状饱和烃基、3 价甲硅烷基或碳原子数 1 ～ 20 的 3 价取代甲硅烷基、取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的 3 价芳香族烃基或稠合芳香族烃基，或者原子数 3 ～ 24 的苯环 c 和取代或无取代的 3 价芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基，当 s 为 4 时，表示碳原子数 1 ～ 20 的 4 价饱和烃基、取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的 4 价环状饱和烃基、硅原子、取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的 4 价芳香族烃基或稠合芳香族烃基，或者成环碳原子数 3 ～ 24 的苯环 c 和取代或无取代的 4 价芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。

式 (13) ～ (16) 中，A^1 表示氢原子、取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环烷基、碳原子数 3 ～ 20 的甲硅烷基、取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基，或者成环碳原子数 3 ～ 24 的 L^2 和芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。

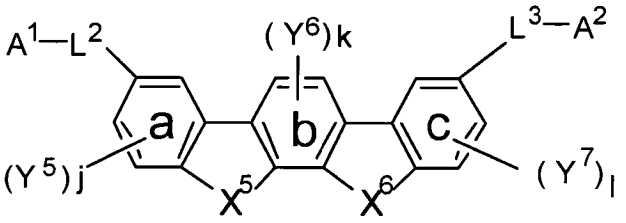
式 (13) 及 (15) 中，A^2 表示氢原子、取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环烷基、甲硅烷基或碳原子数 3 ～ 20 的取代甲硅烷基、取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基，或者成环碳原子数 3 ～ 24 的 L^3 和芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。

式 (13) ～ (16) 中，Y^5、Y^6 及 Y^7 表示碳原子数 1 ～ 20 的烷基、取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环烷基、碳原子数 1 ～ 20 的烷氧基、碳原子数 7 ～ 24 的芳烷基、甲硅烷基或碳原子数 3 ～ 20 的取代甲硅烷基、取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基，或者取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 24 的苯环 a、b、c 和芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。j、l 为 0、1、2 或者 3，k 为 0、1 或者 2。

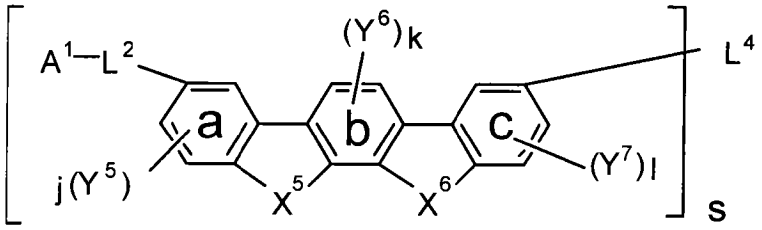
式 (13) ～ (16) 中，A^1、A^2、L^2、L^3 及 L^4 不含羰基。

[0109] 进一步，上述式 (13) 至 (16) 所示的化合物优选下述式 (17) 至 (20) 任一所示的化合物。

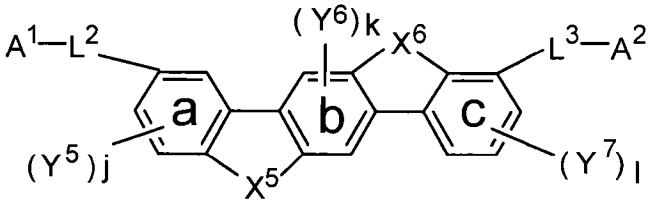
[0110] 【化 35】



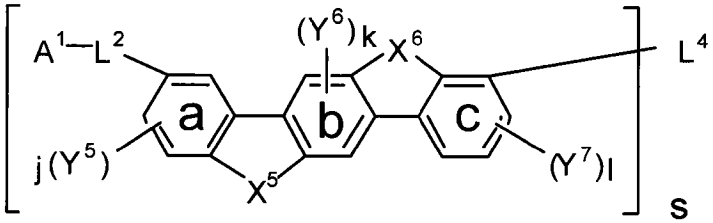
··· (17)



··· (18)



··· (19)



··· (20)

[0111] 式 (17) 至 (20) 中，A^1、A^2、L^2 ～ L^4、X^5、X^6、Y^5 ～ Y^7、s、j ～ l 与上述式 (13) ～ (16) 相同。

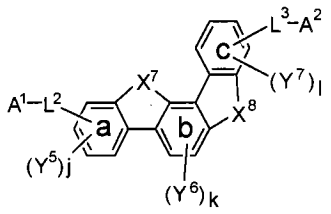
[0112] 进一步，本发明中，上述式 (17) 至 (20) 的 X^5 与 X^6 之中的至少一方为氧原子，上述式 (17) 至 (20) 的任一所示的化合物优选具有苯并呋喃结构。

进一步，上述式 (17) 至 (20) 的 X^5 与 X^6 同时为氧原子时，上述式 (17) 至 (20) 的任一所示的化合物更优选具有苯并呋喃二苯并呋喃结构。

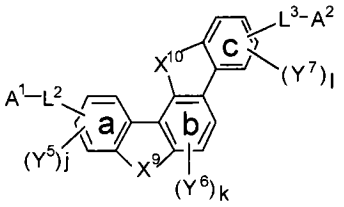
特别优选具有上述式 (17) 及 (19) 所示的苯并呋喃二苯并呋喃结构的化合物。

[0113] 此外，本发明中，上述 (1) 或者上述式 (2) 所示的化合物也优选由下述式 (21) 至 (28) 表示。

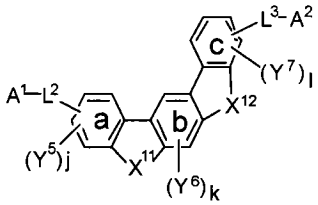
[0114] 【化 36】



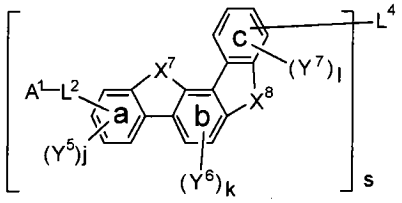
... 21)



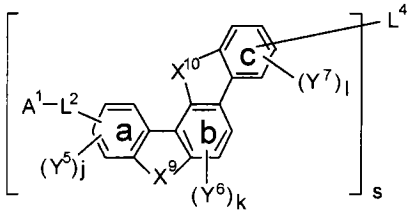
... 22)



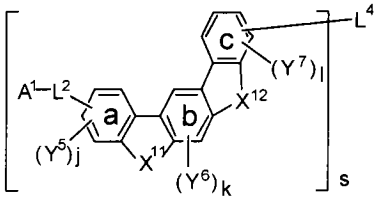
... 23)



... 24)



... 25)



... 26)

[0115] 式 (21) ～ (26) 中，X^7、X^8、X^9、X^{10}、X^{11} 及 X^{12} 各自独立地表示氧 (O)、硫 (S)、$N-R^1$ 或者 CR^2R^3。

上述 R^1、R^2 及 R^3 各自独立地表示碳原子数 1 ～ 20 的烷基、取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环烷基、碳原子数 7 ～ 24 的芳烷基、甲硅烷基或碳原子数 3 ～ 20 的取代甲硅烷基、取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基，或者取代或无取代的成环原子数 3 ～ 24 的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。其中，X^7 与 X^8、X^9 与 X^{10}，或者 X^{11} 与 X^{12} 同时为 $N-R^1$ 时，R^1 的至少 1 个表示取代或无取代的成环原子数 8 ～ 24 的 1 价稠合芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。

式 (24) ～ (26) 中，s 表示 2、3 或者 4，为各自以 L^4 为连接基的 2 聚体、3 聚体、4 聚体。

式 (21) ～ (26) 中，L^2 表示单键、碳原子数 1 ～ 20 的亚烷基、取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环亚烷基、2 价甲硅烷基或碳原子数 2 ～ 20 的 2 价甲硅烷基、取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的 2 价芳香族烃基或稠合芳香族烃基，或者成环原子数 3 ～ 24 的与苯环 a 以碳 - 碳键连接的取代或无取代的 1 价或 2 价芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。

式 (21) ～ (23) 中，L^3 表示单键、碳原子数 1 ～ 20 的亚烷基、取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环亚烷基、2 价甲硅烷基或碳原子数 2 ～ 20 的 2 价甲硅烷基、取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的 1 价或 2 价芳香族烃基或稠合芳香族烃基，或者成环原子数 3 ～ 24 的与苯环 c 以碳 - 碳键连接的取代或无取代的 2 价芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。其中，X^7 与 X^8、X^9 与 X^{10}，或者 X^{11} 与 X^{12} 同时为 CR^2R^3，且 L^2、L^3 同时为取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的 1 价或 2 价芳香族烃基或稠合芳香族烃基时，L^2、L^3 不存在同时相对于苯环 b 以对位连接的情况。

式 (24) ～ (26) 中，L^4 当 s 为 2 时，表示单键、碳原子数 1 ～ 20 的亚烷基、取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环亚烷基、2 价甲硅烷基或碳原子数 2 ～ 20 的 2 价取代甲硅烷

基、取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的 2 价芳香族烃基或稠合芳香族烃基，或者成环原子数 3 ～ 24 的与苯环 c 以碳 - 碳键连接的取代或无取代的 2 价芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基，当 s 为 3 时，表示碳原子数 1 ～ 20 的 3 价饱和烃基、取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的 3 价环状饱和烃基、3 价甲硅烷基或碳原子数 1 ～ 20 的 3 价取代甲硅烷基、取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的 3 价芳香族烃基或稠合芳香族烃基，或者原子数 3 ～ 24 的与苯环 c 以碳 - 碳键连接的取代或无取代的 3 价芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基，当 s 为 4 时，表示碳原子数 1 ～ 20 的 4 价饱和烃基、取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的 4 价环状饱和烃基、硅原子、取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的 4 价芳香族烃基或稠合芳香族烃基，或者成环原子数 3 ～ 24 的与苯环 c 以碳 - 碳键连接的取代或无取代的 4 价芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。其中，X^7 与 X^8、X^9 与 X^{10}，或者 X^{11} 与 X^{12} 同时为 CR_2R_3，且 L^2、L^4 同时为取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的 2 价、3 价或 4 价芳香族烃基或稠合芳香族烃基时，L^2、L^4 不存在同时相对于苯环 b 以对位连接的情况。

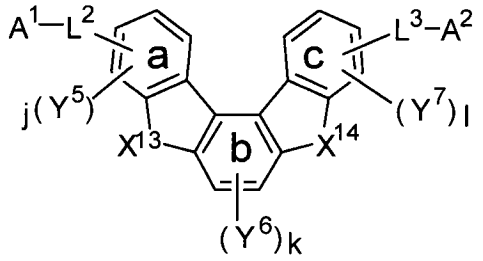
式 (21) ～ (26) 中，A^1 表示氢原子、取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环烷基、甲硅烷基或碳原子数 3 ～ 20 的取代甲硅烷基、取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基，或者成环原子数 3 ～ 24 的与 L^2 以碳 - 碳键连接的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。其中，L^2 为碳原子数 1 ～ 20 的亚烷基时，A^1 不存在为氢原子的情况。

式 (21) ～ (23) 中，A^2 表示氢原子、取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环烷基、甲硅烷基或碳原子数 3 ～ 20 的取代甲硅烷基、取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基、或者成环原子数 3 ～ 24 的与 L^3 以碳 - 碳键连接的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。其中，L^3 为碳原子数 1 ～ 20 的亚烷基时，A^2 不存在为氢原子的情况。

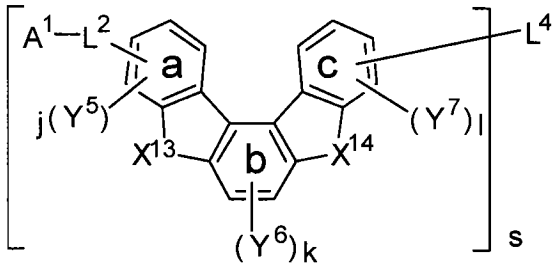
式 (21) ～ (26) 中，Y^5、Y^6 及 Y^7 表示碳原子数 1 ～ 20 的烷基、取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环烷基、碳原子数 1 ～ 20 的烷氧基、碳原子数 7 ～ 24 的芳烷基、甲硅烷基或碳原子数 3 ～ 20 的取代甲硅烷基、取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基，或者取代或无取代的成环原子数 3 ～ 24 的与苯环 a、b、c 以碳 - 碳键连接的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。j、1 为 0、1、2 或者 3，k 为 0、1 或者 2。其中，X^7 与 X^8、X^9 与 X^{10}，或者 X^{11} 与 X^{12} 为氧 (O)、硫 (S) 或 CR^2R^3，L^2、L^3 同时为单键，且 A^1 与 A^2 同时为氢原子时，不存在苯环 b 具有一个或者二个 Y^6，Y^6 为甲基或者无取代的苯基的情况。

式 (21) ～ (26) 中，A^1、A^2、L^2、L^3 及 L^4 不含羰基。]

[0116] 【化 37】



··· (27)



··· (28)

[0117] 式 (27) 及 (28) 中、X^{13}、X^{14} 各自独立地表示氧 (O)、硫 (S)、$N-R_1$ 或者 CR_2R_3。

上述 R^1、R^2 及 R^3 各自独立地表示碳原子数 1 ～ 20 的烷基、取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环烷基、碳原子数 7 ～ 24 的芳烷基、甲硅烷基或碳原子数 3 ～ 20 的取代甲硅烷基、取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基，或者取代或无取代的成环原子数 3 ～ 24 的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。其中，X^{13} 与 X^{14} 同时为 $N-R^1$ 时，R_1 的至少 1 个表示取代或无取代的成环原子数 8 ～ 24 的 1 价的稠合芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。

式 (28) 中，s 表示 2、3 或者 4，是各自以 L^4 为连接基的 2 聚体、3 聚体、4 聚体。

式 (27) 及 (28) 中，L^2 表示单键、碳原子数 1 ～ 20 的亚烷基、取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环亚烷基、2 价甲硅烷基或碳原子数 2 ～ 20 的 2 价甲硅烷基、取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的 2 价芳香族烃基或稠合芳香族烃基，或者成环原子数 3 ～ 24 的与苯环 a 以碳 - 碳键连接的取代或无取代的 2 价芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。

式 (27) 中，L^3 表示单键、碳原子数 1 ～ 20 的亚烷基、取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环亚烷基、2 价甲硅烷基或碳原子数 2 ～ 20 的 2 价取代甲硅烷基、取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的 2 价芳香族烃基或稠合芳香族烃基，或者成环原子数 3 ～ 24 的与苯环 c 以碳 - 碳键连接的取代或无取代的 2 价芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。其中，X^{13} 与 X^{14} 同时为 CR^2R^3，且 L^2、L^3 同时为取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的 2 价芳香族烃基或稠合芳香族烃基时，L^2、L^3 不存在同时相对于苯环 b 以对位连接的情况。

式 (28) 中，L^4 当 s 为 2 时，表示单键、碳原子数 1 ～ 20 的亚烷基、取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环亚烷基、2 价甲硅烷基或碳原子数 2 ～ 20 的 2 价取代甲硅烷基、取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的 2 价芳香族烃基或稠合芳香族烃基，或者成环原子数 3 ～ 24 的与苯环 c 以碳 - 碳键连接的取代或无取代的 2 价芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基，当 s 为 3 时，表示碳原子数 1 ～ 20 的 3 价饱和烃基、取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的 3 价环状饱和烃基、3 价甲硅烷基或碳原子数 1 ～ 20 的 3 价取代甲硅烷基、取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的 3 价芳香族烃基或稠合芳香族烃基，或者原子数 3 ～ 24 的

与苯环 c 以碳 - 碳键连接的取代或无取代的 3 价芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基，当 s 为 4 时，表示碳原子数 1 ～ 20 的 4 价饱和烃基、取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的 4 价环状饱和烃基、硅原子、取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的 4 价芳香族烃基或稠合芳香族烃基，或者成环原子数 3 ～ 24 的与苯环 c 以碳 - 碳键连接的取代或无取代的 4 价芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。其中，当 X^{13} 与 X^{14} 同时为 CR_2R_3，且 L^2、L^4 同时为取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的 2 价、3 价或 4 价芳香族烃基或稠合芳香族烃基时，L^2、L^4 不存在同时相对于苯环 b 以对位连接的情况。

式 (27) 及 (28) 中，A^1 表示氢原子、取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环烷基、甲硅烷基或碳原子数 3 ～ 20 的取代甲硅烷基、取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基，或者成环原子数 3 ～ 24 的与 L^2 以碳 - 碳键连接的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。其中，当 L^2 为碳原子数 1 ～ 20 的亚烷基时，不存在 A^1 为氢原子的情况。

式 (27) 中，A^2 表示氢原子、取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环烷基、甲硅烷基或碳原子数 3 ～ 20 的取代甲硅烷基、取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基，或者成环原子数 3 ～ 24 的与 L^3 以碳 - 碳键连接的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。其中，当 L^3 为碳原子数 1 ～ 20 的亚烷基时，不存在 A^2 为氢原子的情况。

式 (27) 及 (28) 中，Y^5、Y^6 及 Y^7 表示碳原子数 1 ～ 20 的烷基、取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环烷基、碳原子数 1 ～ 20 的烷氧基、碳原子数 7 ～ 24 的芳烷基、甲硅烷基或碳原子数 3 ～ 20 的取代甲硅烷基、取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基，或者取代或无取代的成环原子数 3 ～ 24 的与苯环 a、b、c 以碳 - 碳键连接的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。j、l 为 0、1、2 或者 3，k 为 0、1 或者 2。其中，当 X^{13} 与 X^{14} 为氧 (O)、硫 (S) 或 CR^2R^3，L^2、L^3 同时为单键，且 A^1 与 A^2 同时为氢原子时，不存在苯环 b 具有一个或者二个的 Y^6，Y^6 为甲基或者无取代的苯基的情况。

式 (27) 及 (28) 中，A^1、A^2、L^2、L^3 及 L^4 不含羰基。]

[0118] 上述式 (11) 至 (28) 中，各基团所表示的具体例的说明如下。

Ar^1 ～ Ar^3 所表示的取代或无取代的成环碳原子数 6 的芳香族烃基可列举，例如取代或无取代的苯基等，Y、Y^5 ～ Y^7、R^1 ～ R^3、L^2 ～ L^4 及 A^1 ～ A^2 所表示的取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 24 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基可列举，例如取代或无取代的苯、萘、联苯、三联苯、芴、菲、9,10- 苯并菲、芘、屈、荧蒽、苯并芴、苯并 9,10- 苯并菲、苯并屈、蒽等对应价数的残基，优选苯、萘、联苯、三联苯、芴、菲。

Ar^1 ～ Ar_3 所表示的取代或无取代的成环原子数 6 的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基可列举，例如取代或无取代的吡啶、哒嗪、嘧啶、吡嗪、1,3,5- 三嗪等，Y、Y^5 ～ Y^7、R^1 ～ R^3、L^2 ～ L^4 及 A^1 ～ A^2 所表示的取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 24 的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基可列举，例如取代或无取代的吡啶、哒嗪、嘧啶、吡嗪、1,3,5- 三嗪、呫唑、二苯并呋喃、二苯并噻吩、吩噁嗪、吩噻嗪、二羟吖啶对应价数的残基，优选吡啶、哒嗪、嘧啶、吡嗪、呫唑、二苯并呋喃、二苯并噻吩、吩噁嗪、二羟吖啶。此外，R^1 所表示的至少 1 个取代或无取代的成环原子数 8 ～ 24 的 1 价的稠合芳香族杂环基可列举，芳香族杂环基的例中具有稠合结构的例。

Y、Y^5 ～ Y^7、R^1 ～ R^3 及 L^2 ～ L^4 所表示的碳原子数 1 ～ 20 的烷基、亚烷基、3 价或 4 价饱和

烃基可列举，例如甲基、乙基、丙基、异丙基、正丁基、仲丁基、叔丁基、异丁基、正戊基、正己基、正庚基、正辛基、正壬基、正癸基、正十一烷基、正十二烷基、正十三烷基、正十四烷基、正十五烷基、正十六烷基、正十七烷基、正十八烷基、新戊基、1- 甲基戊基、2- 甲基戊基、1- 戊基己基、1- 丁基戊基、1- 庚基辛基、3- 甲基戊基等或这些的 2 ～ 4 价基团，优选甲基、乙基、丙基、异丙基、正丁基、仲丁基、异丁基、叔丁基、正戊基、正己基、正庚基、正辛基、正壬基、正癸基、正十一烷基、正十二烷基、正十三烷基、正十四烷基、正十五烷基、正十六烷基、正十七烷基、正十八烷基、新戊基、1- 甲基戊基、1- 戊基己基、1- 丁基戊基、1- 庚基辛基。

Y、Y^5 ～ Y^7、R^1 ～ R^3、L^2 ～ L^4 及 A^1 ～ A^2 所表示的取代或无取代的成环碳原子数 3 ～ 20 的环烷基、环亚烷基、3 价或 4 价环状饱和烃基可列举，例如环丙基、环丁基、环戊基、环己基等或者这些的 2 ～ 4 价基团，优选环丁基、环戊基、环己基。

Y、Y^5 ～ Y^7 所表示的碳原子数 1 ～ 20 的烷氧基可列举，例如甲氧基、乙氧基、甲氧基、异丙氧基、正丙氧基、正丁氧基、仲丁氧基、叔丁氧基等，优选甲氧基、乙氧基、甲氧基、异丙氧基、正丙氧基。

Y、Y^5 ～ Y^7、R^1 ～ R^3、L^2 ～ L^4 及 A^1 ～ A^2 所表示的碳原子数 1 ～ 20 的取代甲硅烷基可列举，例如三甲基甲硅烷基、三乙基甲硅烷基、三丁基甲硅烷基、三辛基甲硅烷基、三异丁基甲硅烷基、二甲基乙基甲硅烷基、二甲基异丙基甲硅烷基、二甲基丙基甲硅烷基、二甲基丁基甲硅烷基、二甲基叔丁基甲硅烷基、二乙基异丙基甲硅烷基、苯基二甲基甲硅烷基、二苯基甲基甲硅烷基、二苯基叔丁基、三苯基甲硅烷基等或者这些的 2 ～ 3 价基团，优选三甲基甲硅烷基、三乙基甲硅烷基、三丁基甲硅烷基。

Y、Y^5 ～ Y^7 及 R^1 ～ R^3 所表示的碳原子数 7 ～ 24 的芳烷基可列举，例如、苯甲基、苯乙基、苯丙基等。

[0119] 式 (11) ～ (28) 的上述各基可取代的取代基可列举，例如碳原子数 1 ～ 10 的烷基（甲基、乙基、丙基、异丙基、正丁基、仲丁基、异丁基、叔丁基、正戊基、正己基、正庚基、正辛基、羟甲基、1- 羟基乙基、2- 羟基乙基、2- 羟基异丁基、1,2- 二羟基乙基、1,3- 二羟基异丙基、2,3- 二羟基叔丁基、1,2,3- 三羟基丙基、氯甲基、1- 氯乙基、2- 氯乙基、2- 氯异丁基、1,2- 二氯乙基、1,3- 二氯异丙基、2,3- 二氯叔丁基、1,2,3- 三氯丙基、溴甲基、1- 溴乙基、2- 溴乙基、2- 溴异丁基、1,2- 二溴乙基、1,3- 二溴异丙基、2,3- 二溴叔丁基、1,2,3- 三溴丙基、碘甲基、1- 碘乙基、2- 碘乙基、2- 碘异丁基、1,2- 二碘乙基、1,3- 二碘异丙基、2,3- 二碘叔丁基、1,2,3- 三碘丙基、氨基甲基、1- 氨基乙基、2- 氨基乙基、2- 氨基异丁基、1,2- 二氨基乙基、1,3- 二氨基异丙基、2,3- 二氨基叔丁基、1,2,3- 三氨基丙基、氰甲基、1- 氰乙基、2- 氰乙基、2- 氰异丁基、1,2- 二氰乙基、1,3- 二氰异丙基、2,3- 二氰叔丁基、1,2,3- 三氰丙基、硝基甲基、1- 硝基乙基、2- 硝基乙基、2- 硝基异丁基、1,2- 二硝基乙基、1,3- 二硝基异丙基、2,3- 二硝基叔丁基、1,2,3- 三硝基丙基等）、成环碳原子数 3 ～ 40 的环烷基（环丙基、环丁基、环戊基、环己基、4- 甲基环己基、1- 金刚烷基、2- 金刚烷基、1- 降冰片基、2- 降冰片基等）、碳原子数 1 ～ 6 的烷氧基（甲氧基、乙氧基、异丙氧基、正丙氧基、仲丁氧基、叔丁氧基、戊氧基、己氧基等）、成环碳原子数 3 ～ 10 的环烷氧基（环戊氧基、环己氧基等）、成环碳原子数 6 ～ 40 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基、成环碳原子数 3 ～ 40 的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基、成环碳原子数 6 ～ 40 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基所取代的氨基、具有成环碳原子数 6 ～ 40 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基的酯基、具有碳原子数 1 ～ 6 的烷

基的酯基、氰基、硝基、卤原子等。

其中，优选碳原子数 1 ～ 6 的烷基、苯基、吡啶基、咔唑基、二苯并呋喃基，取代基的数量优选 1 ～ 2。

[0120] 式 (12)、(14)、(16)、(18)、(20)、(24) ～ (26)、(28) 的化合物中，s 优选为 2。

式 (13)、(15)、(17)(19)、(21)、(22)、(23) 或者 (27) 中，Y^5、Y^6 及 Y^7 所表示的取代基的总数在 3 以下，相对于 1 个式 (14)、(16)、(18)、(20)、(24)、(25)、(26)、(28) 中的 []s 内结构的 Y^5、Y^6 及 Y^7 所表示的取代基的总数优选在 3 以下。

[0121] 式 (11) 及 (12) 中，Ar^1 ～ Ar^3 的全体为取代或无取代的成环碳原子数 6 的芳香族烃基，或者取代或无取代的成环原子数 6 的芳香族杂环基。成环碳原子数 6 的芳香族烃基，或者成环原子数 6 的芳香族杂环基，相比于由稠环的存在而扩大共轭体系的情况，能扩大三线态能量。

[0122] 式 (11) ～ (26) 中，X^1 与 X^2、X^3 与 X^4、X^5 与 X^6、X^7 与 X^8、X^9 与 X^{10}、X^{11} 与 X^{12} 优选同时为 $N-R^1$ 所示的化合物。通过由 N 进行交联，可提高化合物的空穴输送性，进而促进元件的低电压化。特别地，适宜用作基质材料、空穴输送材料。

此外，R^1 的至少 1 个优选为二苯并呋喃残基或者咔唑残基，所有的 R^1 进一步优选二苯并呋喃残基或者咔唑残基。通过使之与二苯并呋喃及咔唑类的电子输送性稠合芳香族杂环成键，相比于嘧啶类的非稠环含氮杂环，可增加对空穴的稳定性（耐氧化性），进而长寿命化。此外，通过使二苯并呋喃及咔唑类的、能隙大的电子输送性稠合芳香族杂环与 N 成键，可防止作为磷光发光元件使用时的效率降低，增加对空穴的稳定性（耐氧化性）。

式 (11) 或者 (12) 中，X^1 与 X^2 或者 X^3 与 X^4 分别由 $N-R^1$ 表示，优选 X^1 的 $N-R^1$ 与 X^2 的 $N-R^1$，或者 X^3 的 $N-R^1$ 与 X^4 的 $N-R^1$ 不同。

式 (13) 至 (16) 中，X^5 与 X^6 分别由 $N-R^1$ 表示，优选 X^5 的 $N-R^1$ 与 X^6 的 $N-R^1$ 不同。

如此，式 (11) ～ (28) 为非对称结构时，相比于作为对称结构时的情况，可抑制晶体化，增加薄膜稳定性，提高元件的寿命。

[0123] 式 (13) 至 (20) 中的 X^5 与 X^6 优选同时为 CR^2R^3。

此外，式 (13)、(14)、(17)、(18) 那样的 X^5 与 X^6 相对于苯环 a、b、c，在同侧的化合物，相比于不同侧的情况，可适当扩大三线态能量，进而使发光效率得到提高。X^5 与 X^6 为 CR^2R^3 时也同样。

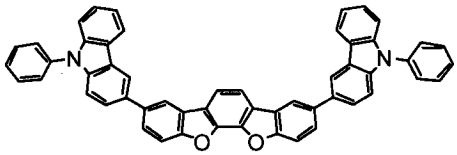
此外，式 (13) 至 (20) 那样的，苯环 a、c 相对于苯环 b 在对位成键，可提高电子输送性，进而实现元件的低电压化。

另，苯环 a、c 相对于苯环 b 在间位成键时，相比于在对位成键，可进一步扩大三线态能量，进而提高发光效率。

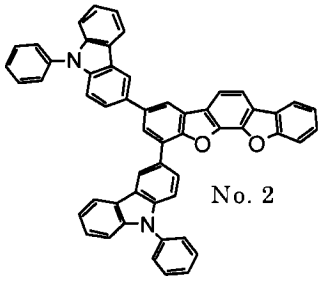
[0124] 式 (11) ～ (28) 中，X^1 与 X^2、X^3 与 X^4、X^5 与 X^6、X^7 与 X^8、X^9 与 X^{10}、X^{11} 与 X^{12} 的至少 1 个优选为氧原子，式 (13) ～ (20) 中，优选 X^5 与 X^6 之中的至少一方为氧原子，化合物具有苯并呋喃结构。进一步，特别优选 X^5 与 X^6 同时为氧原子，化合物具有苯并呋喃二苯并呋喃结构。氧原子的电负性高，可提高电子输送性，据此可实现元件的低电压化，特别地，适宜用作基质材料或电子输送材料。此外，同时为氧原子时，可扩大三线态能量，进而提高发光效率。此外，式 (11) ～ (28) 中，A^1、A^2、L^2、L^3 及 L^4 不含羰基，即，通过末端结构不含羰基，可抑制寿命变短。

[0125] 式 (11) ～ (28) 所示的化合物的具体例如下所示，本发明不限于这些例示化合物。

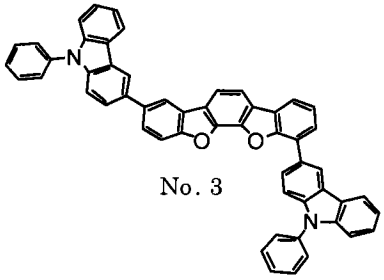
[0126] 【化 38】



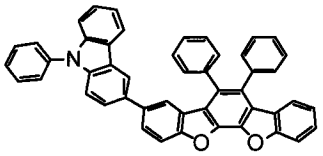
No. 1



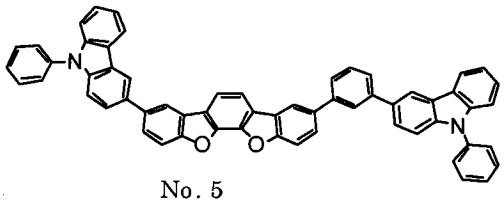
No. 2



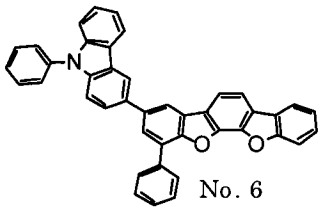
No. 3



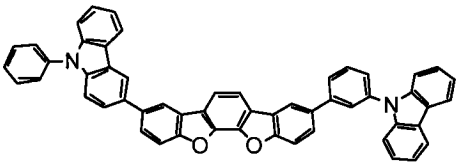
No. 4



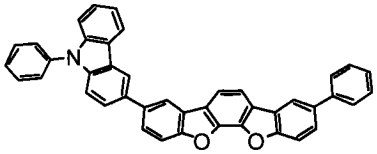
No. 5



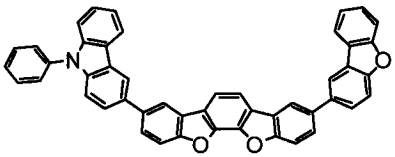
No. 6



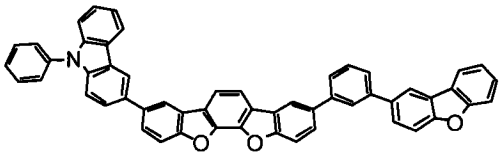
No. 7



No. 8

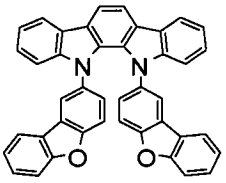


No. 9

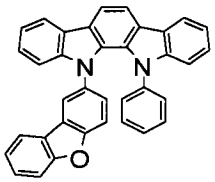


No. 10

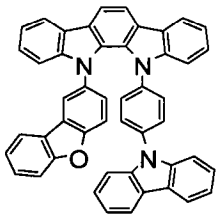
[0127] 【化 39】



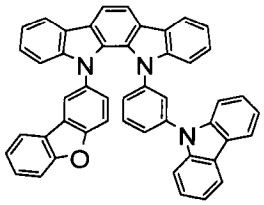
No. 11



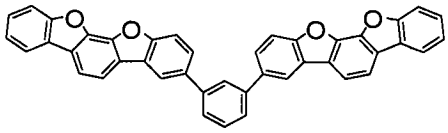
No. 12



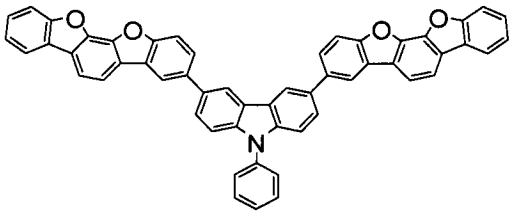
No. 13



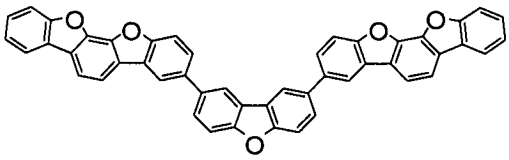
No. 14



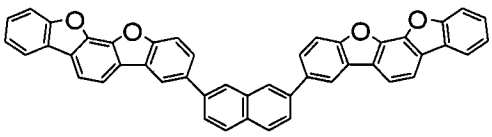
No. 15



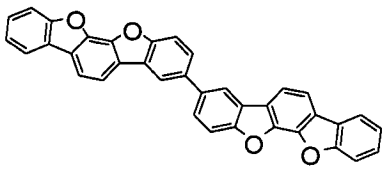
No. 16



No. 17



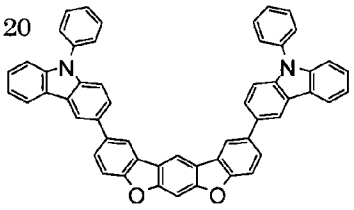
No. 18



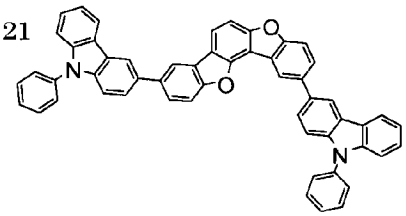
No. 19

[0128] 【化 40】

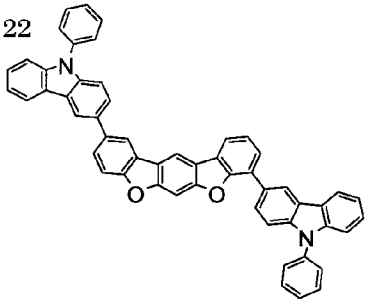
No. 20



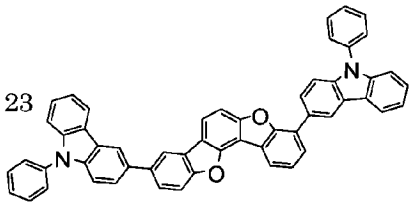
No. 21



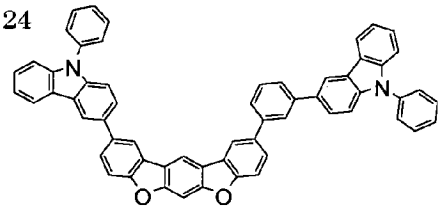
No. 22



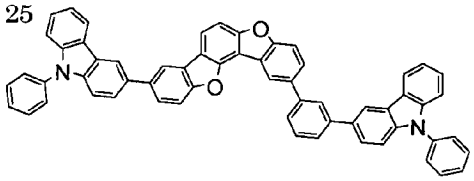
No. 23



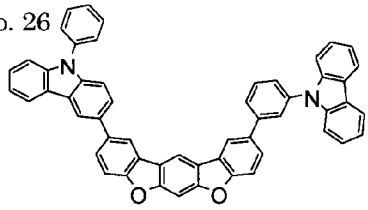
No. 24



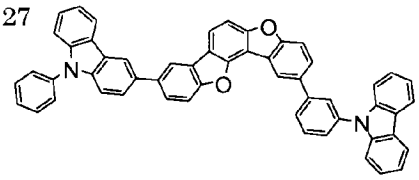
No. 25



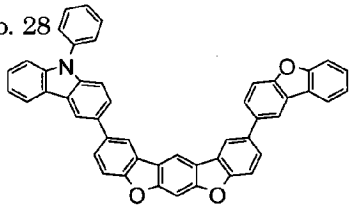
No. 26



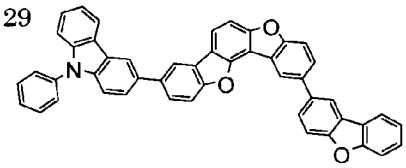
No. 27



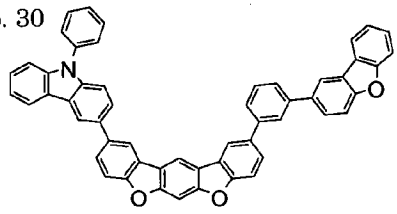
No. 28



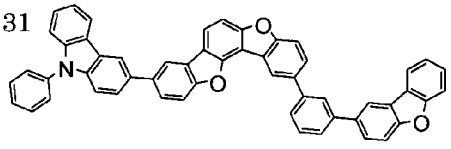
No. 29



No. 30

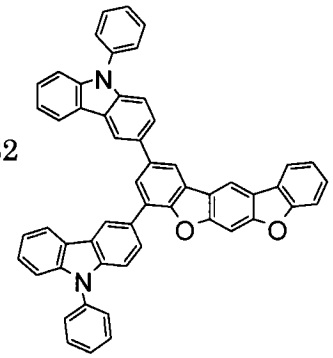


No. 31

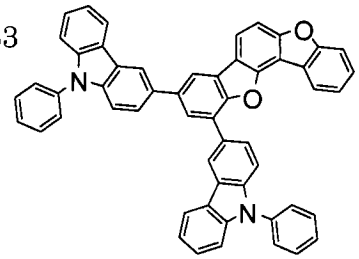


[0129] 【化 41】

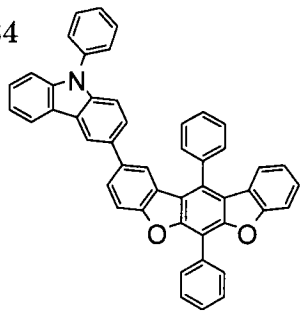
No. 32



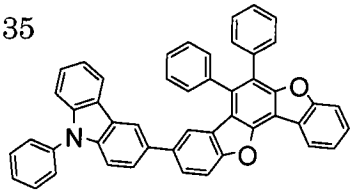
No. 33



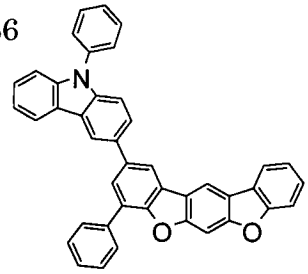
No. 34



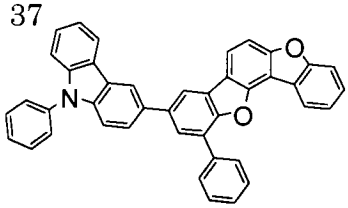
No. 35



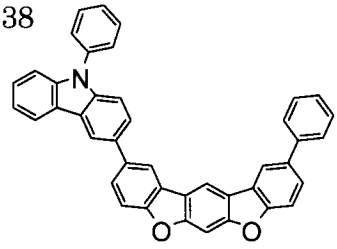
No. 36



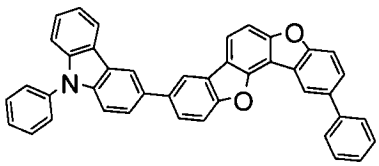
No. 37



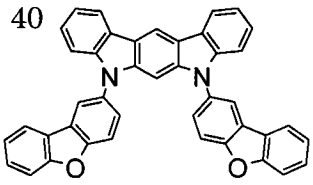
No. 38



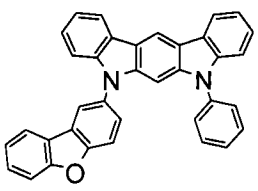
No. 39



No. 40

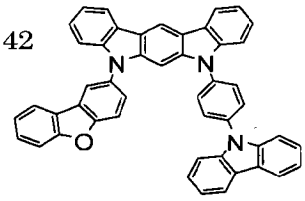


No. 41

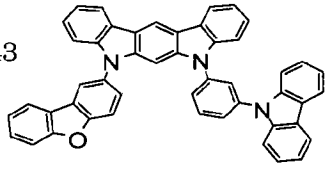


[0130] 【化 42】

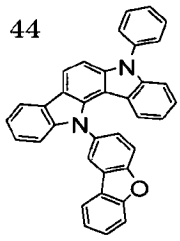
No. 42



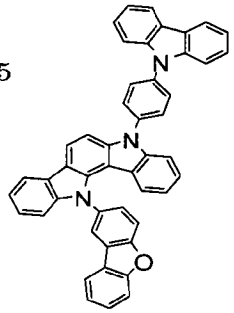
No. 43



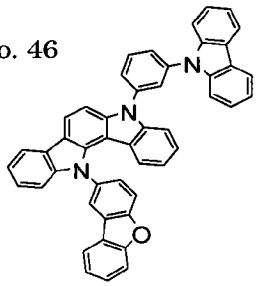
No. 44



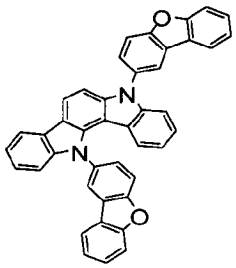
No. 45



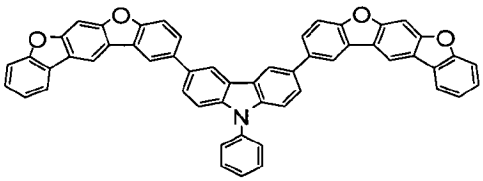
No. 46



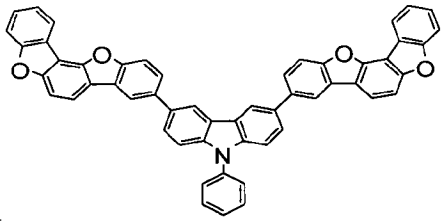
No. 47



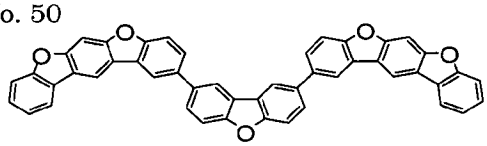
No. 48



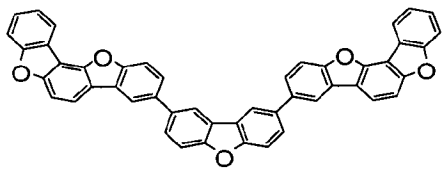
No. 49



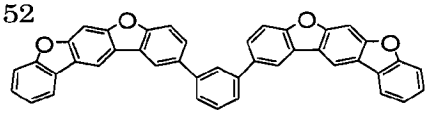
No. 50



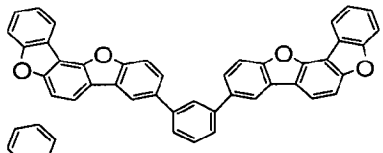
No. 51



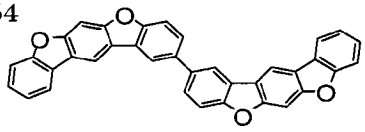
No. 52



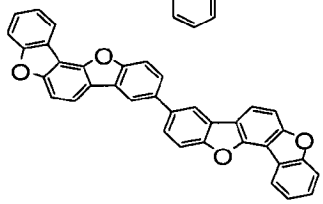
No. 53



No. 54

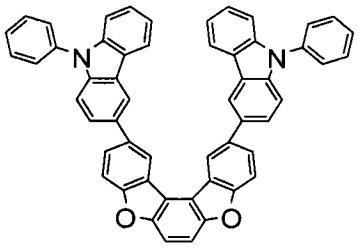


No. 55

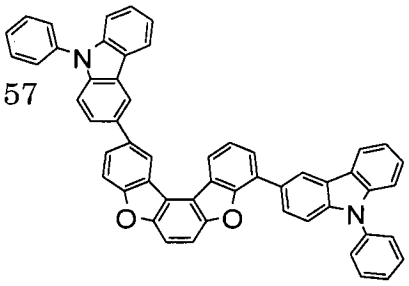


[0131] 【化 43】

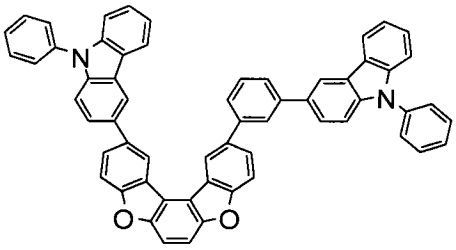
No. 56



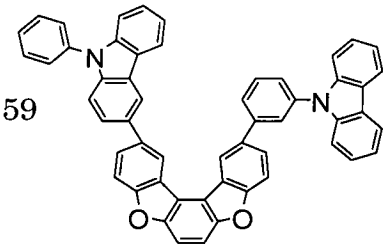
No. 57



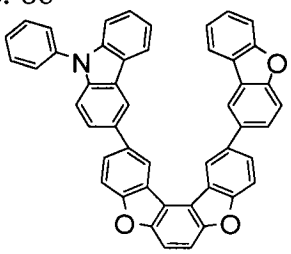
No. 58



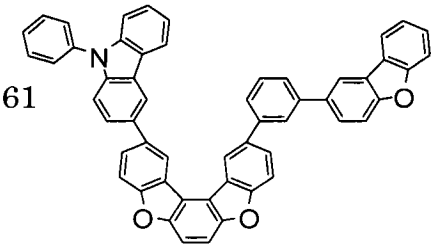
No. 59



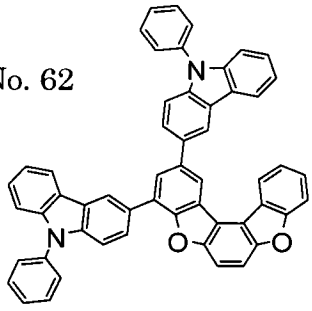
No. 60



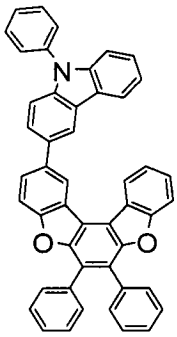
No. 61



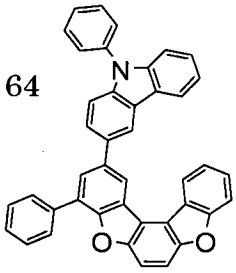
No. 62



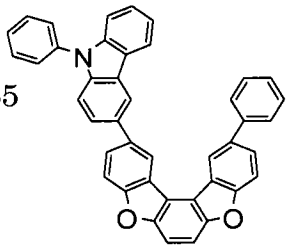
No. 63



No. 64

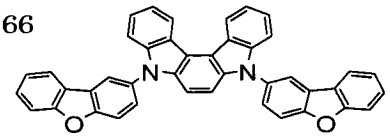


No. 65

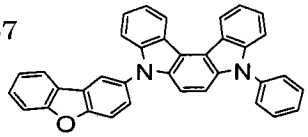


[0132] 【化 44】

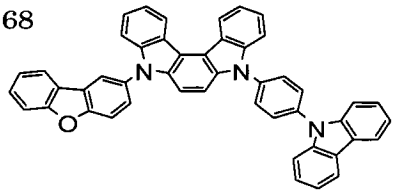
No. 66



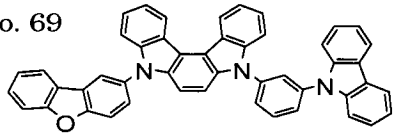
No. 67



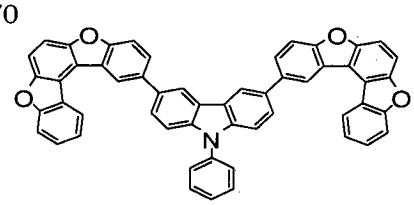
No. 68



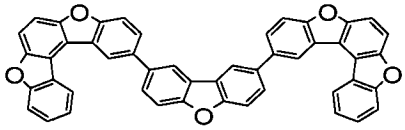
No. 69



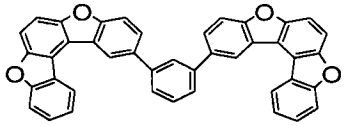
No. 70



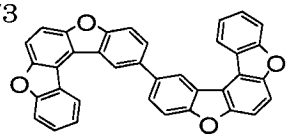
No. 71



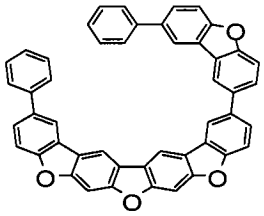
No. 72



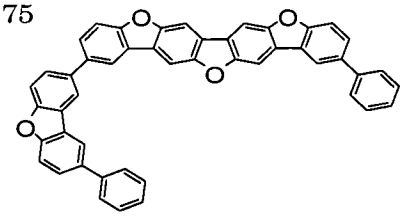
No. 73



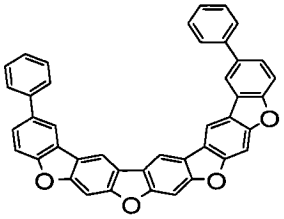
No. 74



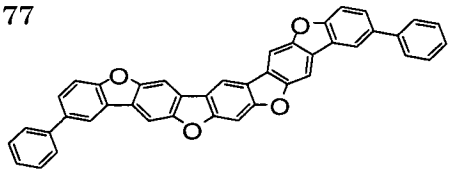
No. 75



No. 76

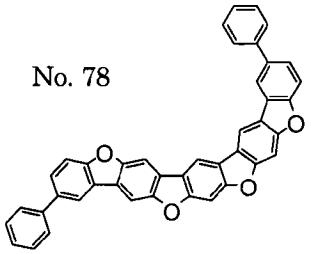


No. 77

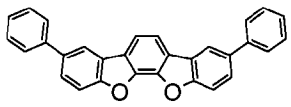


[0133] 【化 45】

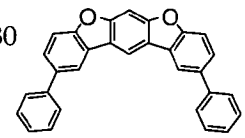
No. 78



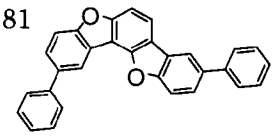
No. 79



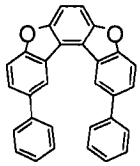
No. 80



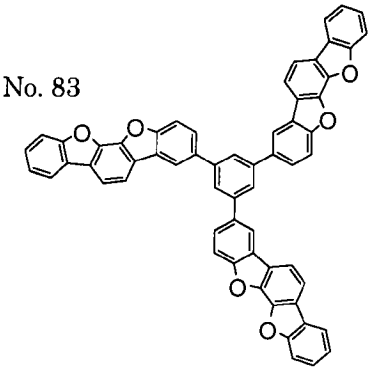
No. 81



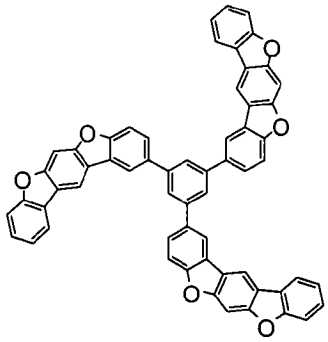
No. 82



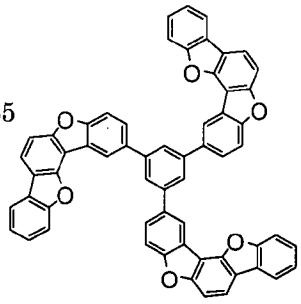
No. 83



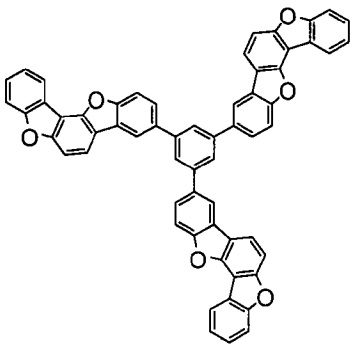
No. 84



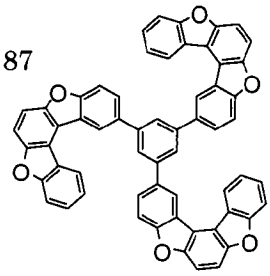
No. 85



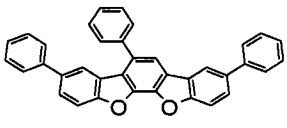
No. 86



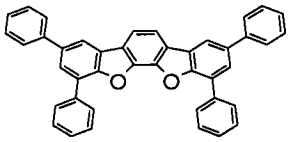
No. 87



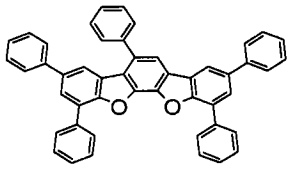
[0134] 【化 46】



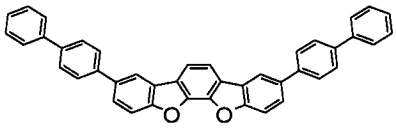
No. 88



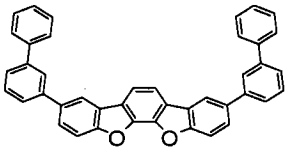
No. 89



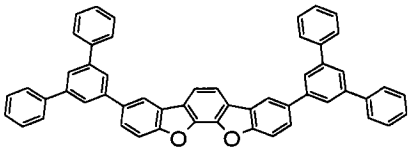
No. 90



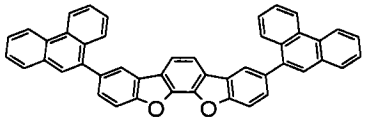
No. 91



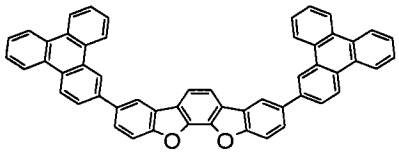
No. 92



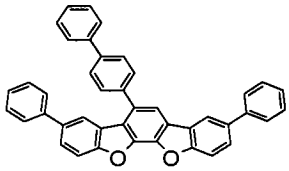
No. 93



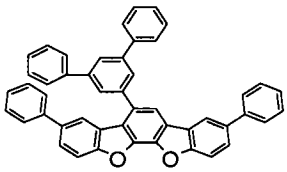
No. 94



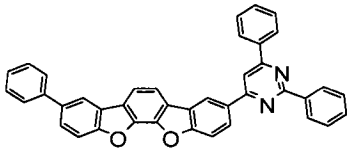
No. 95



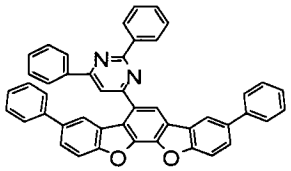
No. 96



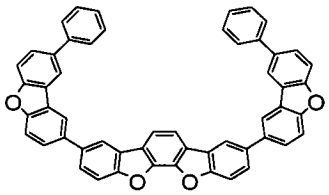
No. 97



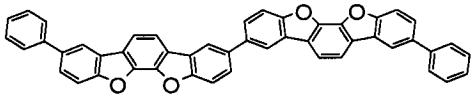
No. 98



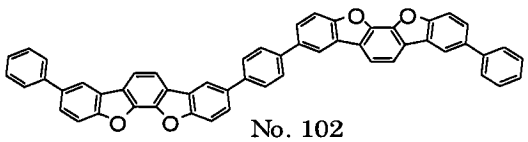
No. 99



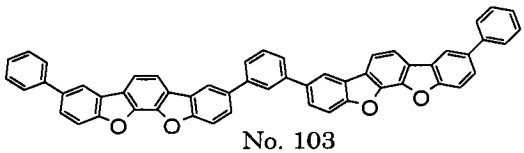
No. 100



No. 101

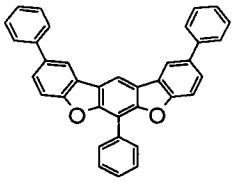


No. 102

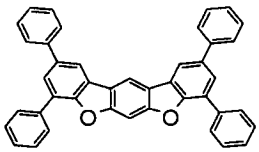


No. 103

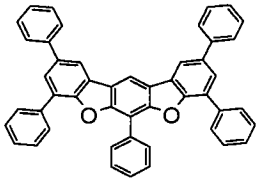
[0135] 【化 47】



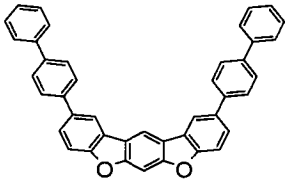
No. 104



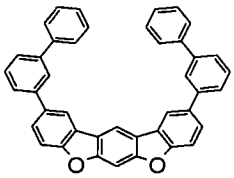
No. 105



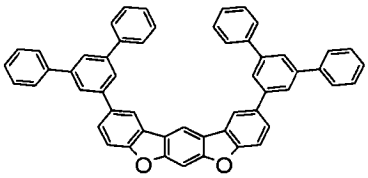
No. 106



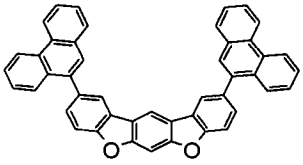
No. 107



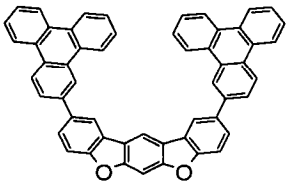
No. 108



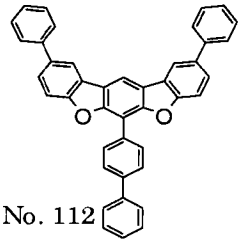
No. 109



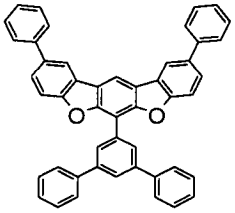
No. 110



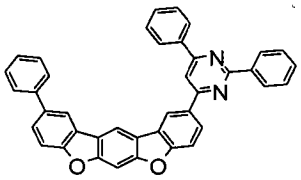
No. 111



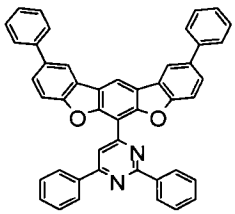
No. 112



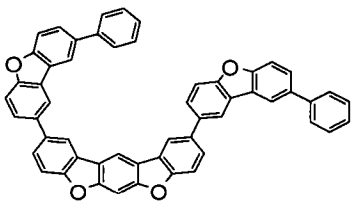
No. 113



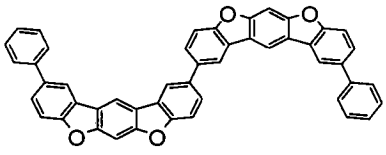
No. 114



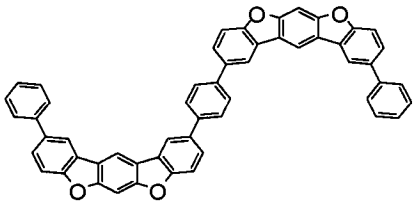
No. 115



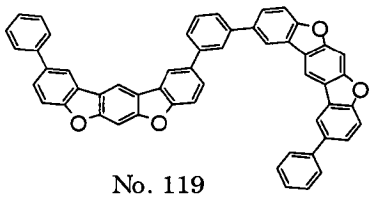
No. 116



No. 117

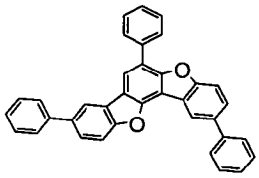


No. 118

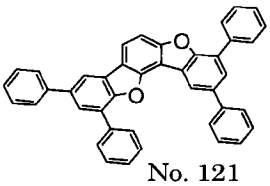


No. 119

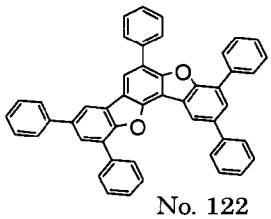
[0136] 【化 48】



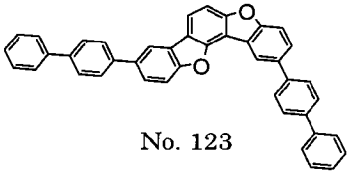
No. 120



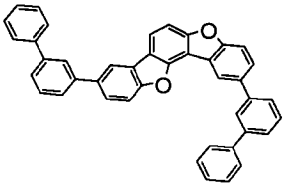
No. 121



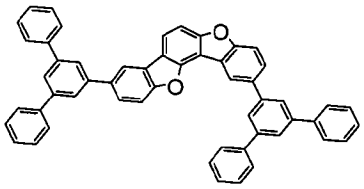
No. 122



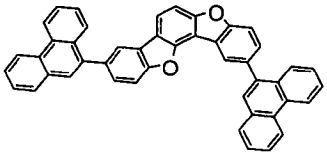
No. 123



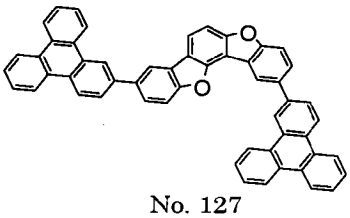
No. 124



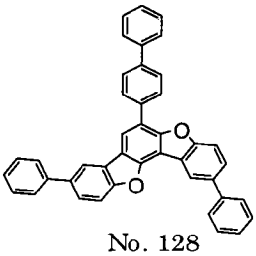
No. 125



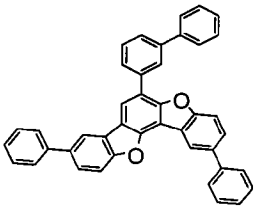
No. 126



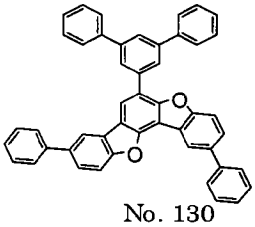
No. 127



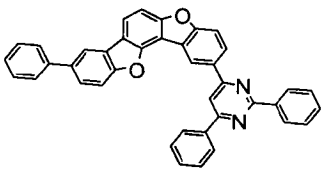
No. 128



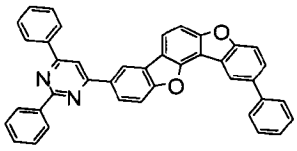
No. 129



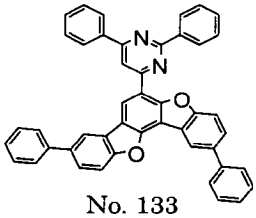
No. 130



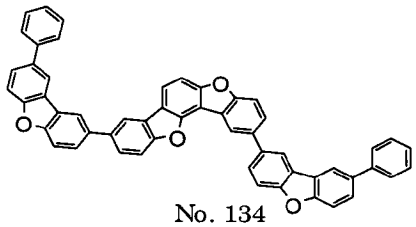
No. 131



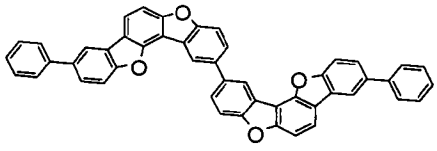
No. 132



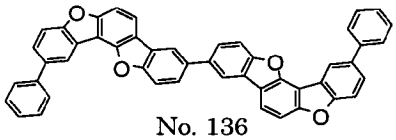
No. 133



No. 134

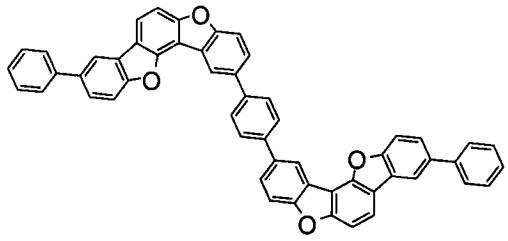


No. 135

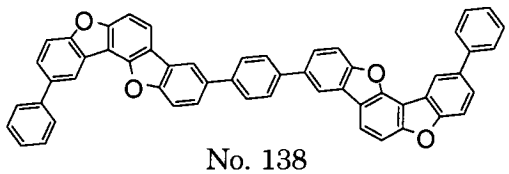


No. 136

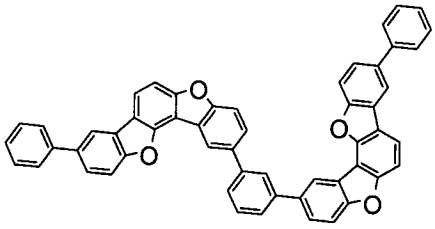
[0137] 【化 49】



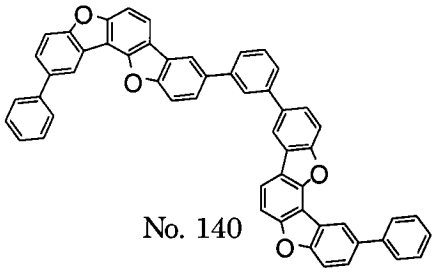
No. 137



No. 138

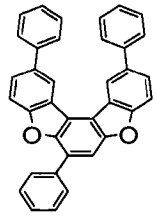


No. 139

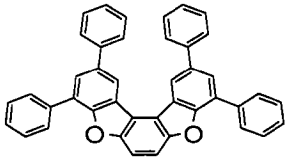


No. 140

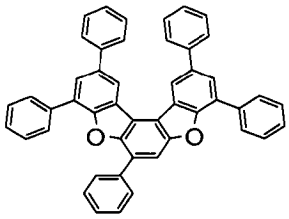
[0138] 【化 50】



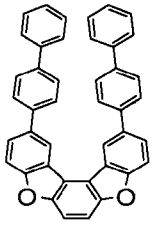
No. 141



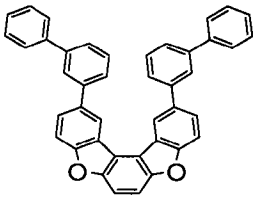
No. 142



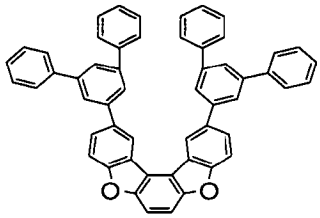
No. 143



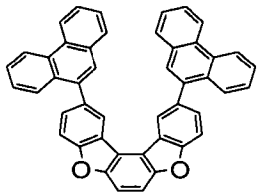
No. 144



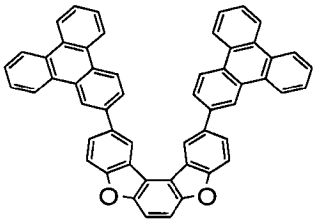
No. 145



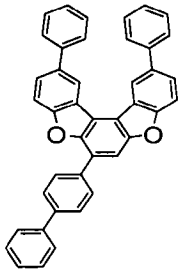
No. 146



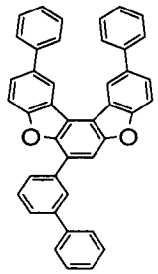
No. 147



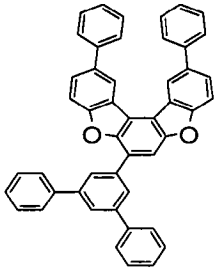
No. 148



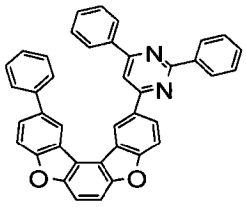
No. 149



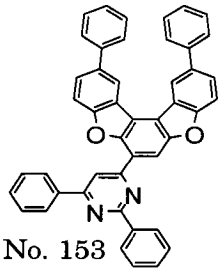
No. 150



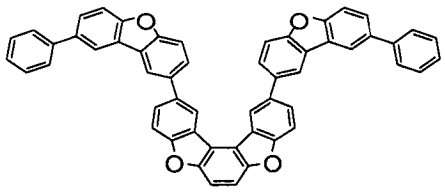
No. 151



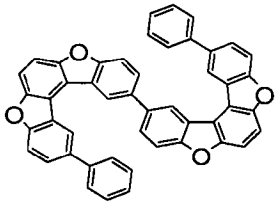
No. 152



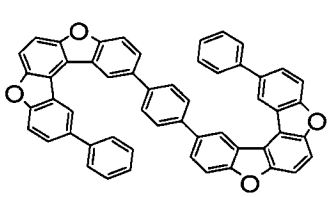
No. 153



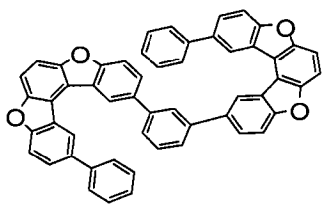
No. 154



No. 155

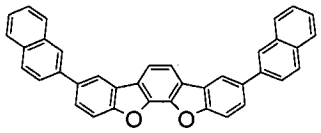


No. 156

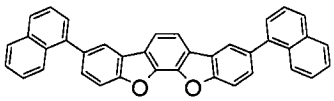


No. 157

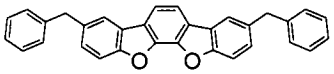
[0139] 【化 51】



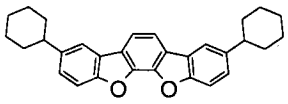
No. 158



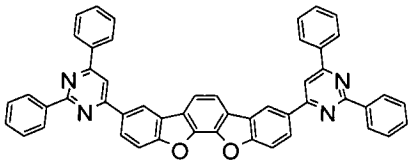
No. 159



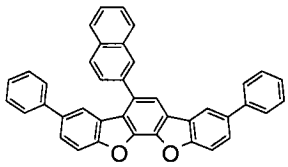
No. 160



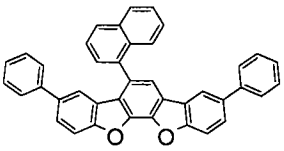
No. 161



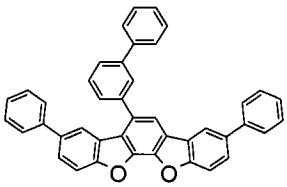
No. 162



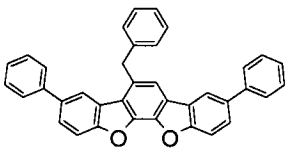
No. 163



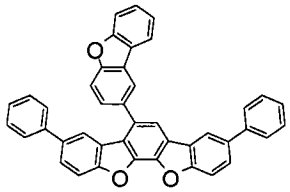
No. 164



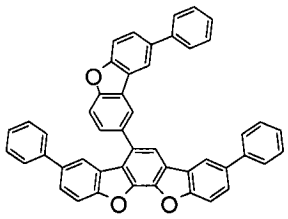
No. 165



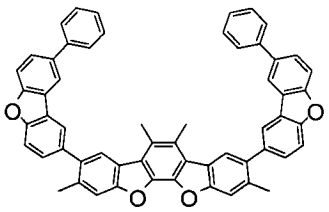
No. 166



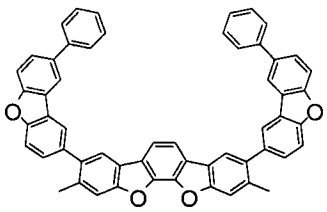
No. 167



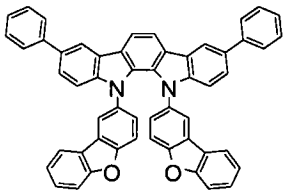
No. 168



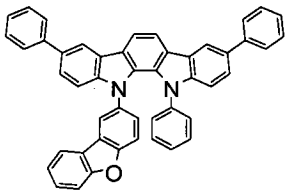
No. 169



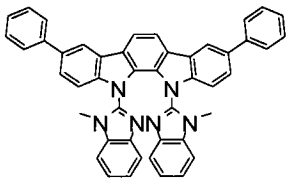
No. 170



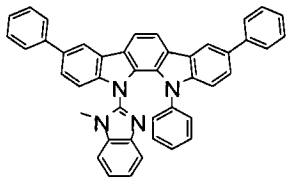
No. 171



No. 172

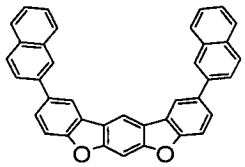


No. 173

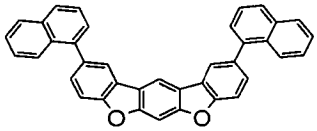


No. 174

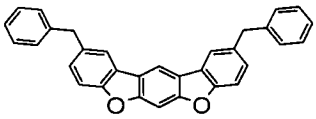
[0140] 【化 52】



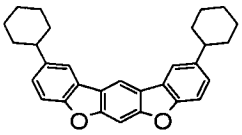
No. 175



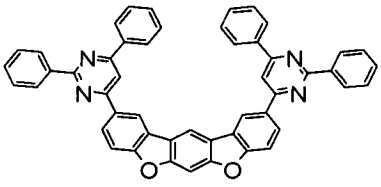
No. 176



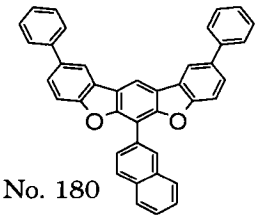
No. 177



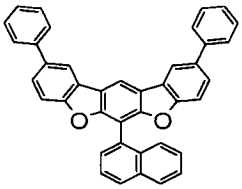
No. 178



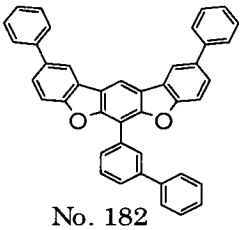
No. 179



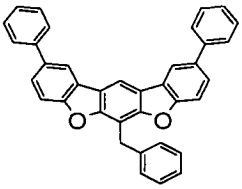
No. 180



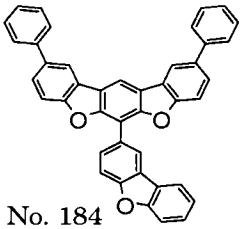
No. 181



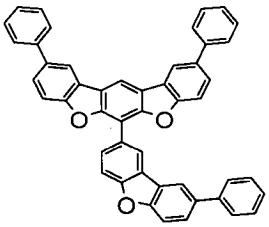
No. 182



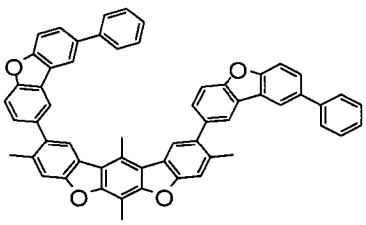
No. 183



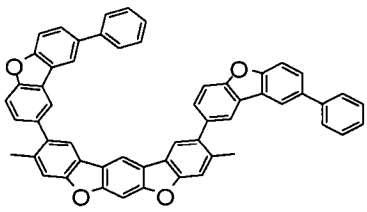
No. 184



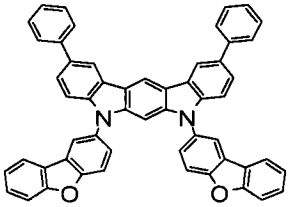
No. 185



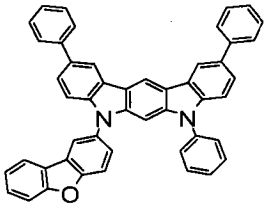
No. 186



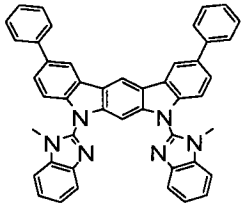
No. 187



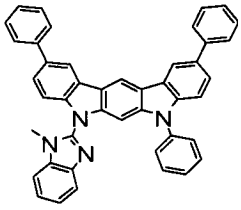
No. 188



No. 189

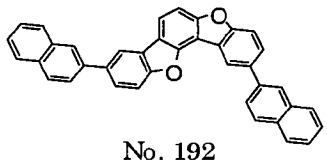


No. 190

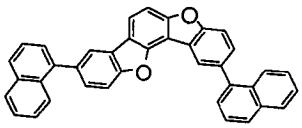


No. 191

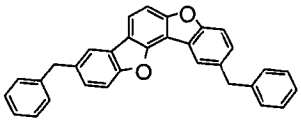
[0141] 【化 53】



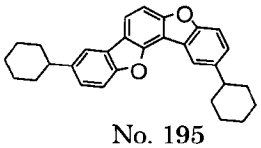
No. 192



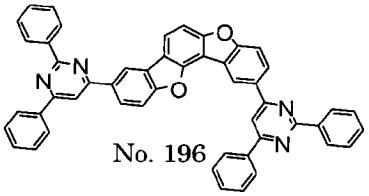
No. 193



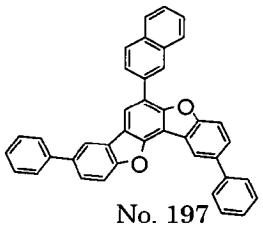
No. 194



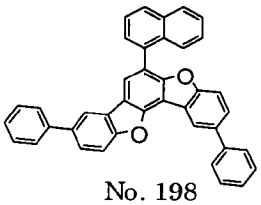
No. 195



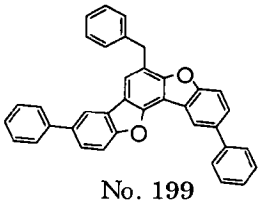
No. 196



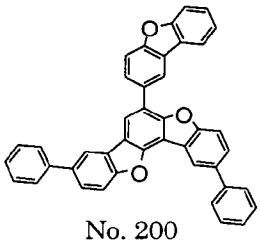
No. 197



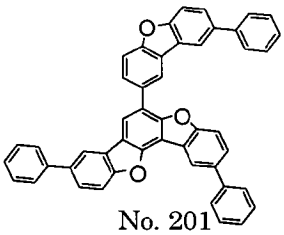
No. 198



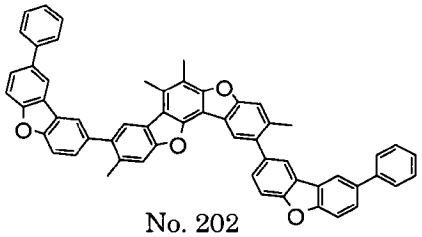
No. 199



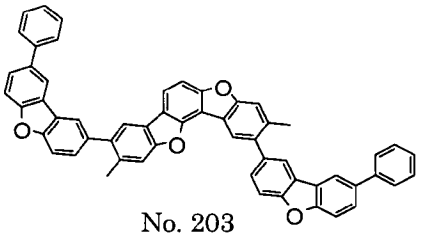
No. 200



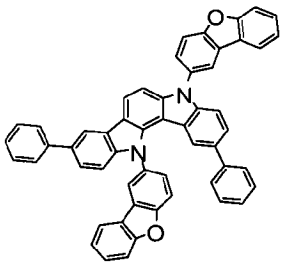
No. 201



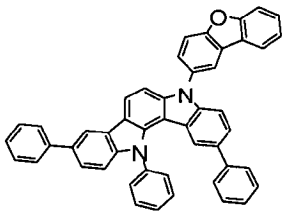
No. 202



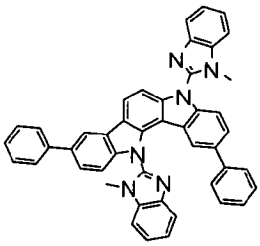
No. 203



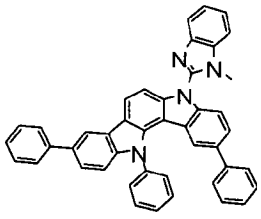
No. 204



No. 205

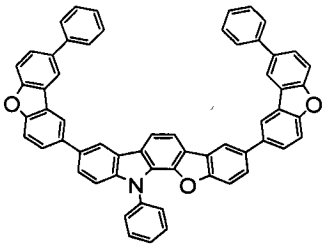


No. 206

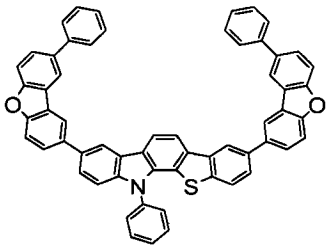


No. 207

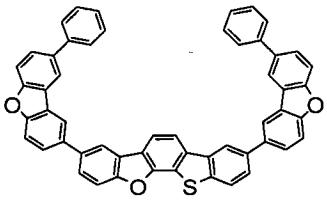
[0142] 【化 54】



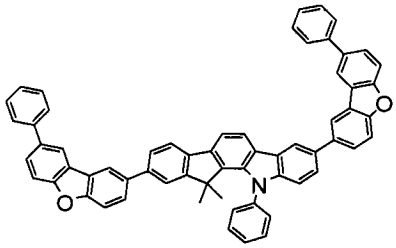
No. 208



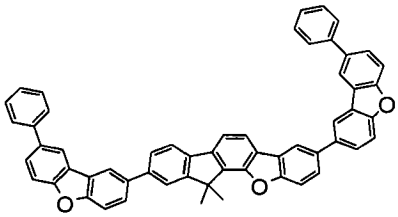
No. 209



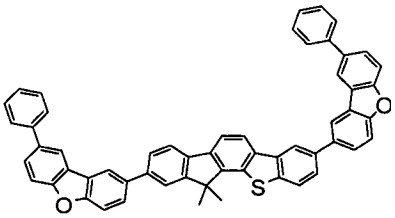
No. 210



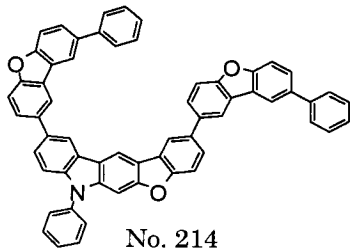
No. 211



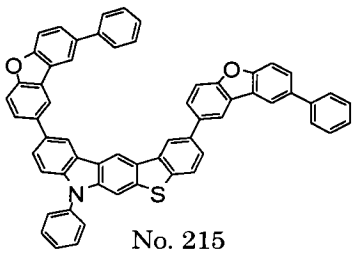
No. 212



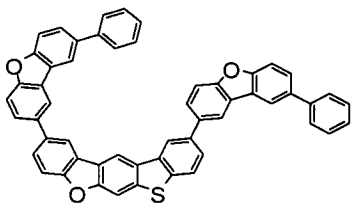
No. 213



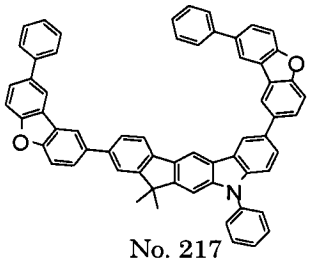
No. 214



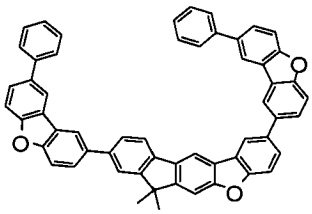
No. 215



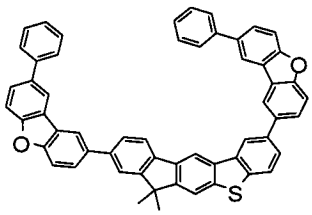
No. 216



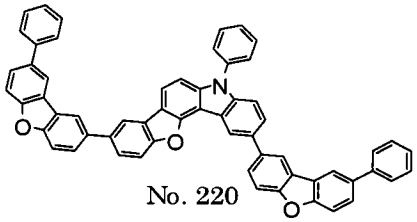
No. 217



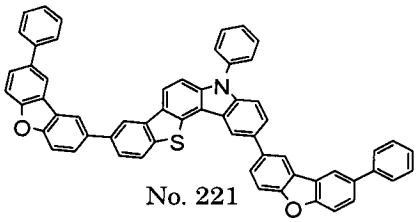
No. 218



No. 219

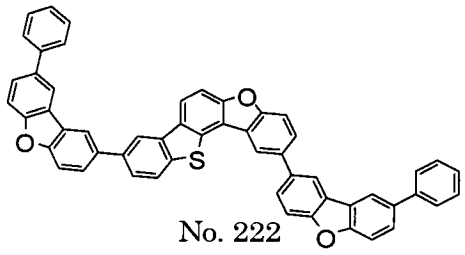


No. 220

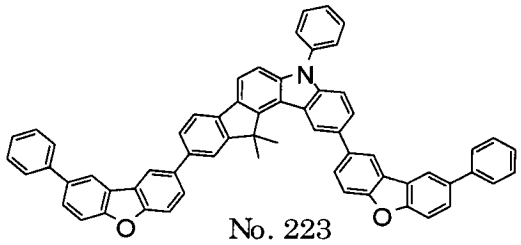


No. 221

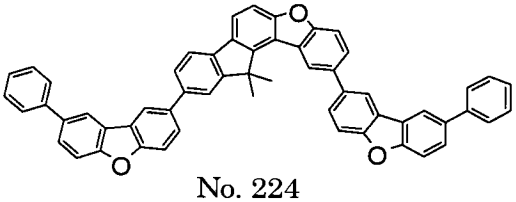
[0143] 【化 55】



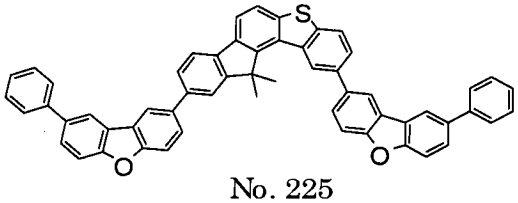
No. 222



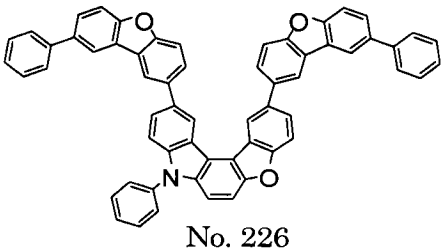
No. 223



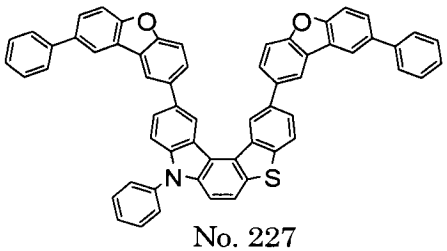
No. 224



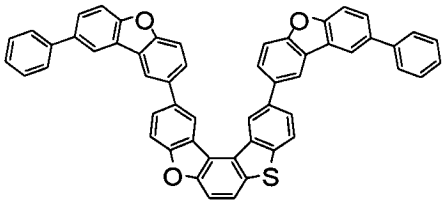
No. 225



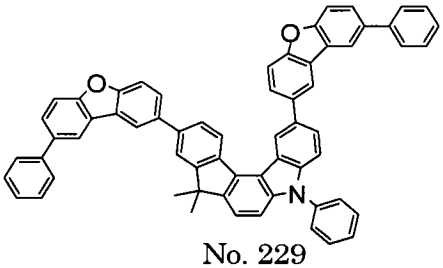
No. 226



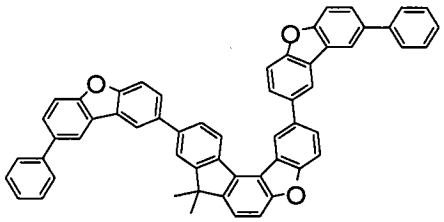
No. 227



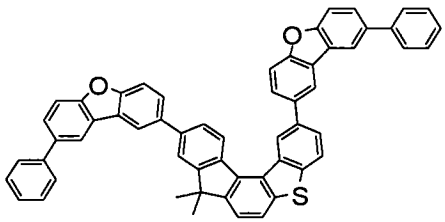
No. 228



No. 229

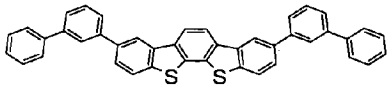


No. 230

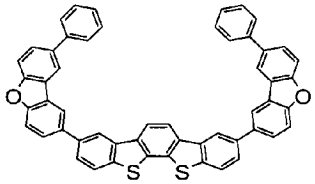


No. 231

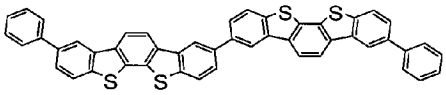
[0144] 【化 56】



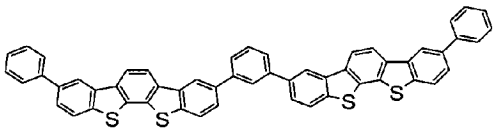
No. 232



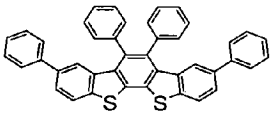
No. 233



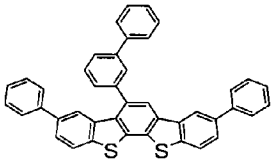
No. 234



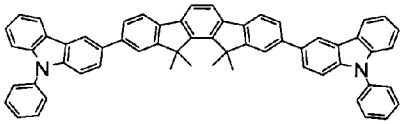
No. 235



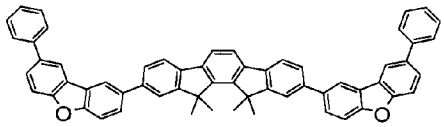
No. 236



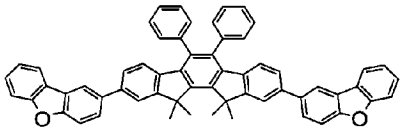
No. 237



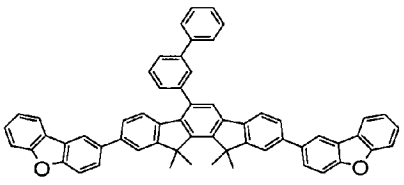
No. 238



No. 239

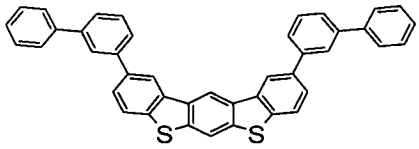


No. 240

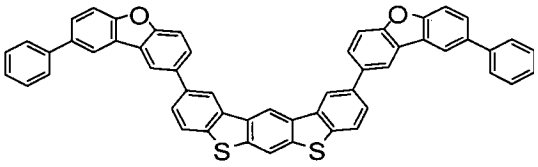


No. 241

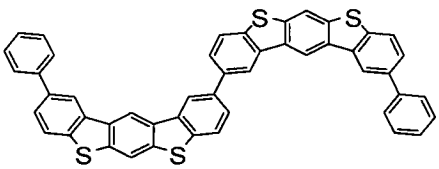
[0145] 【化 57】



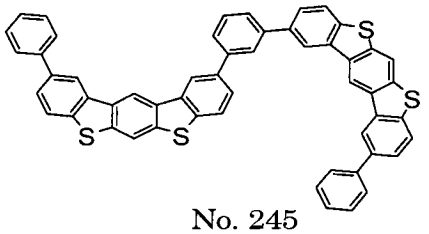
No. 242



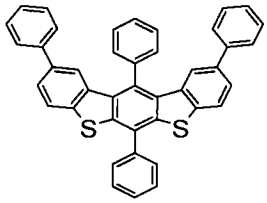
No. 243



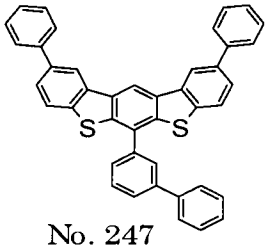
No. 244



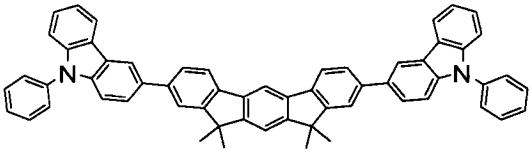
No. 245



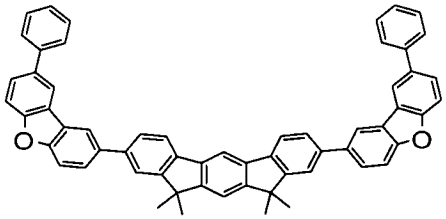
No. 246



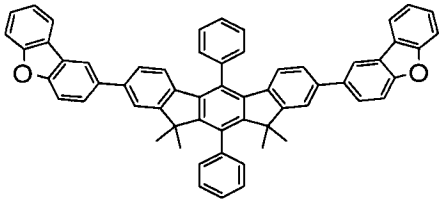
No. 247



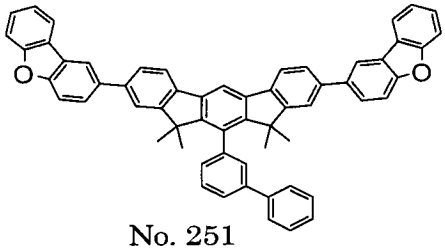
No. 248



No. 249

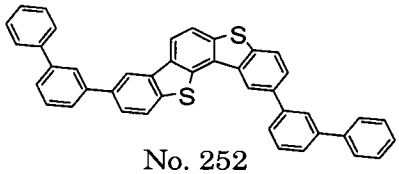


No. 250

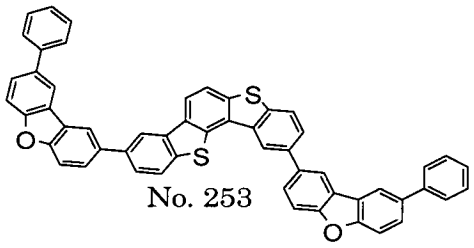


No. 251

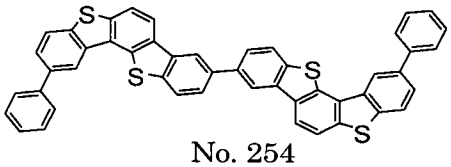
[0146] 【化 58】



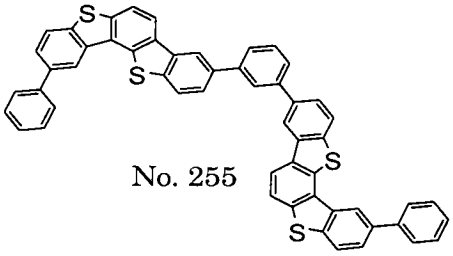
No. 252



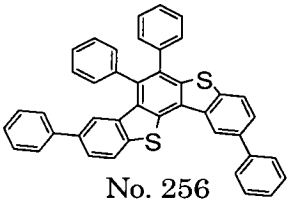
No. 253



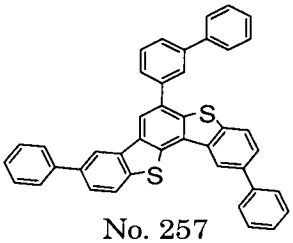
No. 254



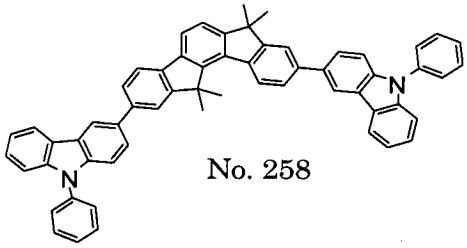
No. 255



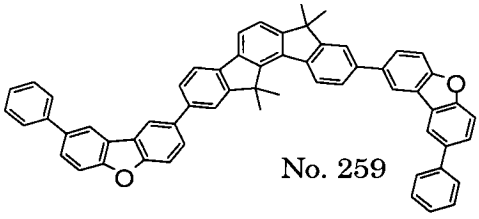
No. 256



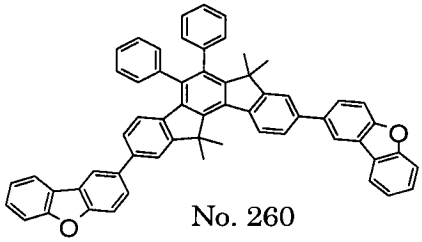
No. 257



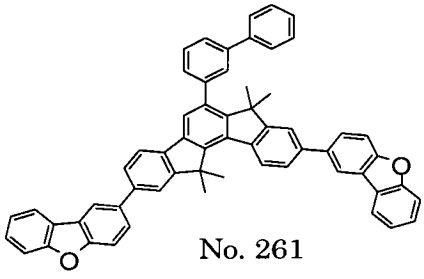
No. 258



No. 259

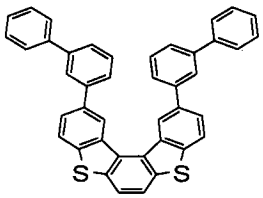


No. 260

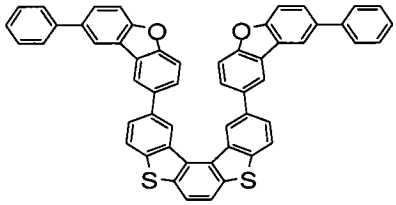


No. 261

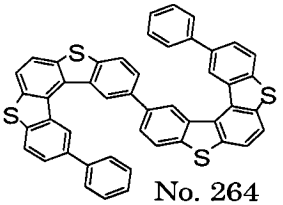
[0147] 【化 59】



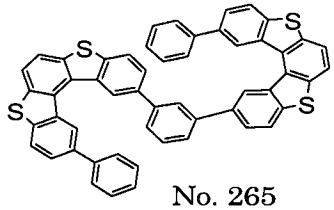
No. 262



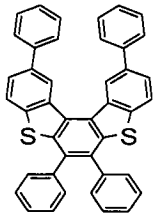
No. 263



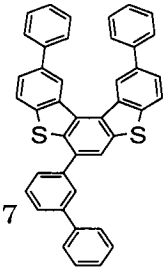
No. 264



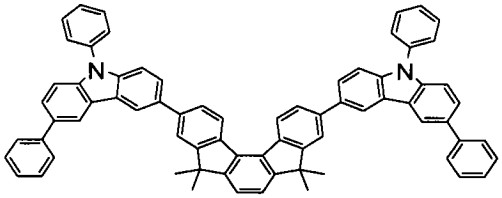
No. 265



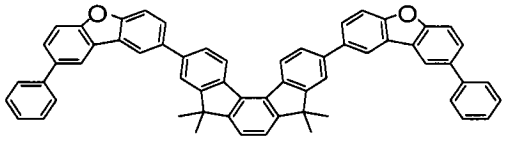
No. 266



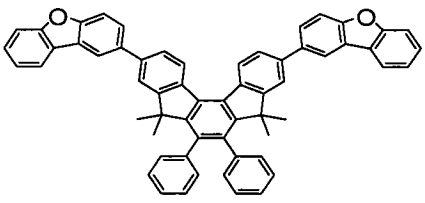
No. 267



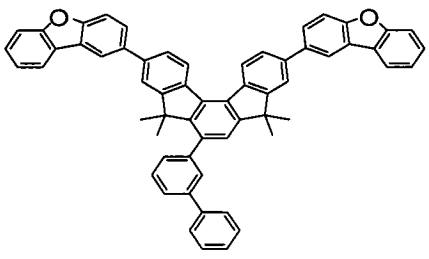
No. 268



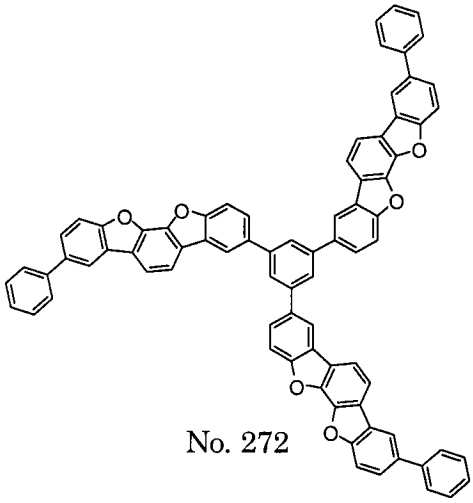
No. 269



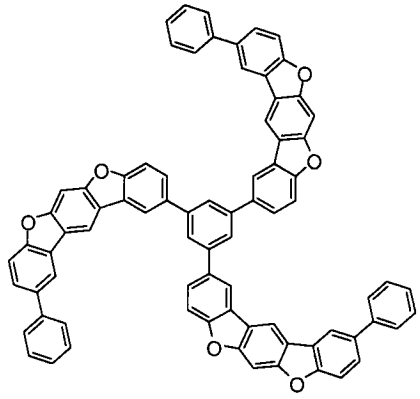
No. 270



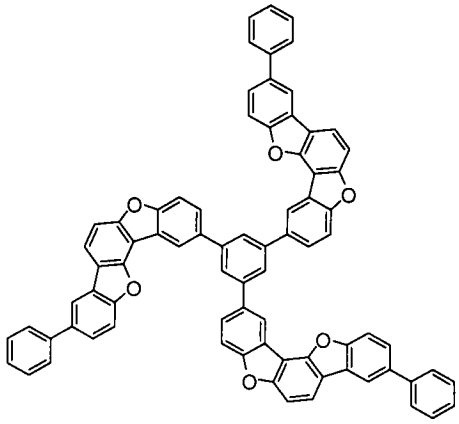
[0148] 【化 60】



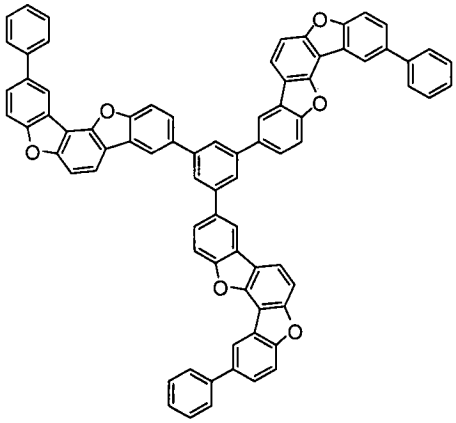
No. 272



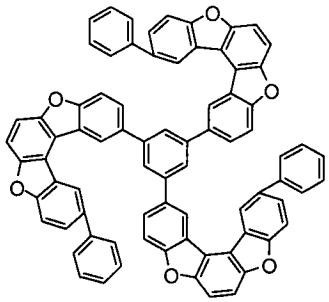
No. 273



No. 274

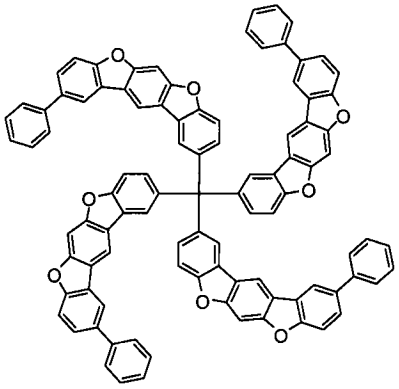


No. 275

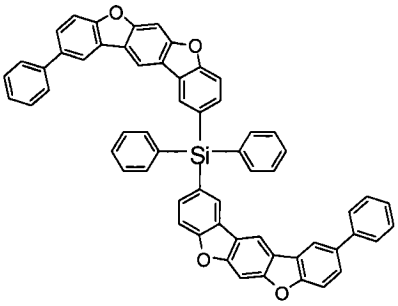


No. 276

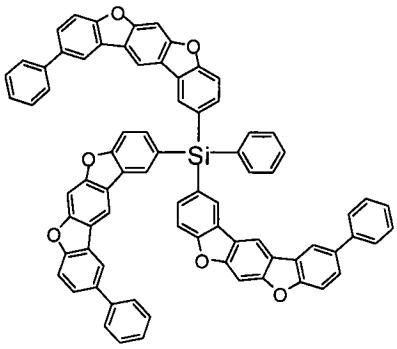
[0149] 【化 61】



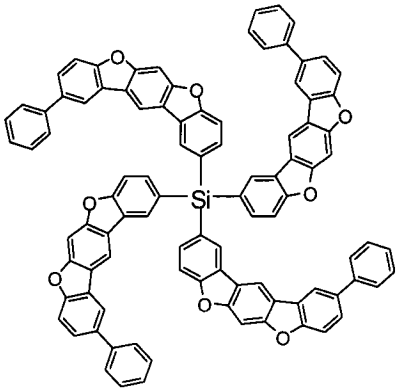
No. 277



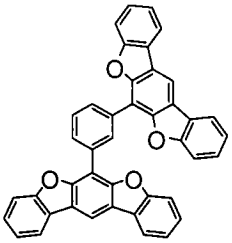
No. 278



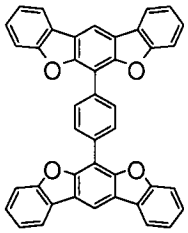
No. 279



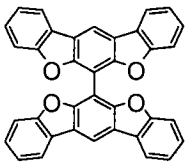
No. 280



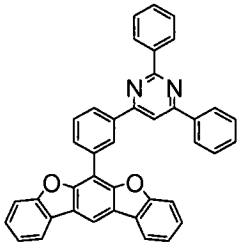
No. 281



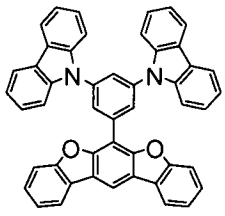
No. 282



No. 283

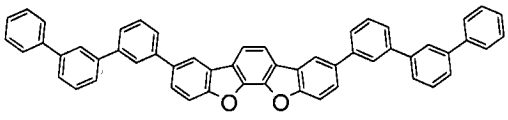


No. 284

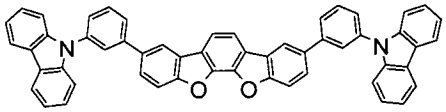


No. 285

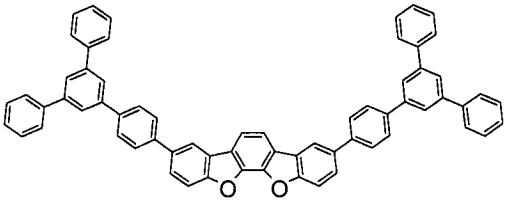
[0150] 【化 62】



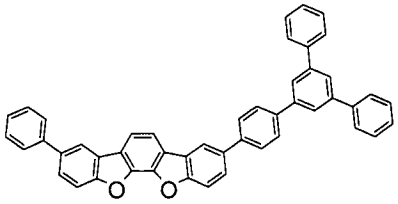
No. 286



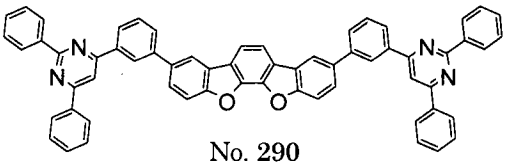
No. 287



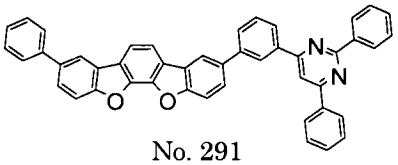
No. 288



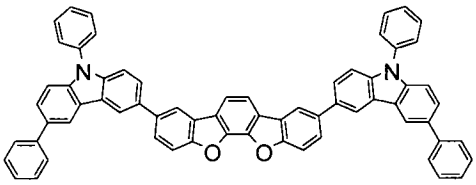
No. 289



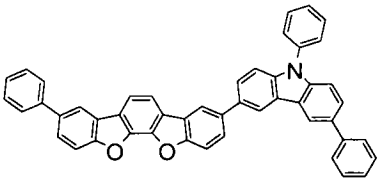
No. 290



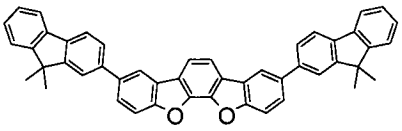
No. 291



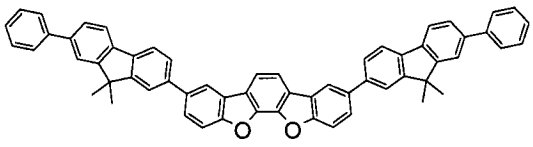
No. 292



No. 293

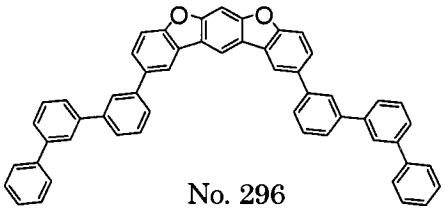


No. 294

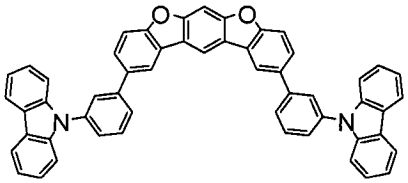


No. 295

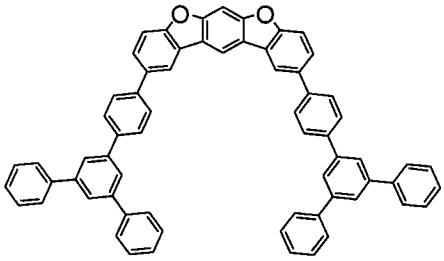
[0151] 【化 63】



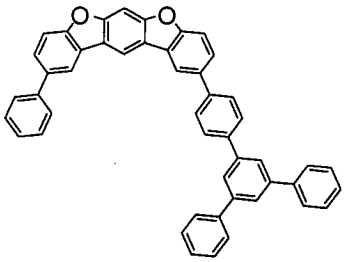
No. 296



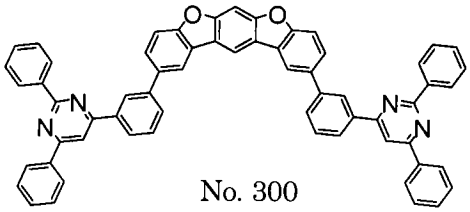
No. 297



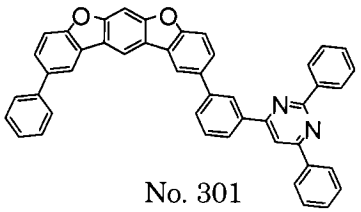
No. 298



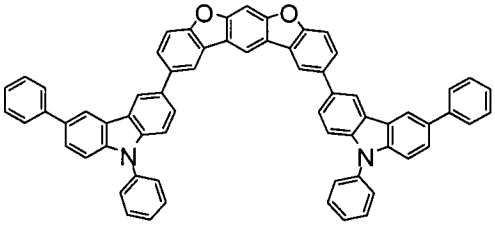
No. 299



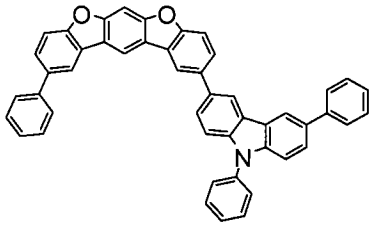
No. 300



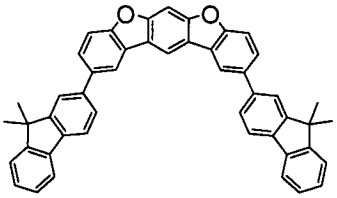
No. 301



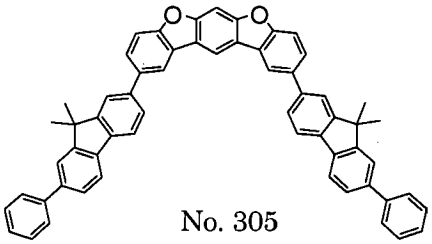
No. 302



No. 303

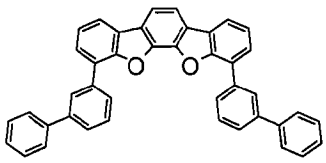


No. 304

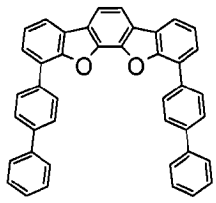


No. 305

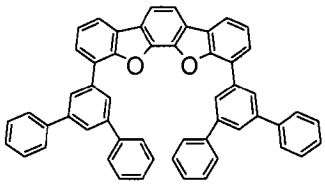
[0152] 【化 64】



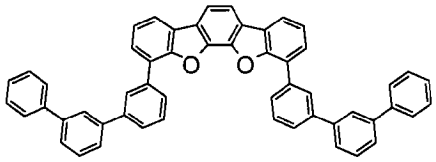
No. 306



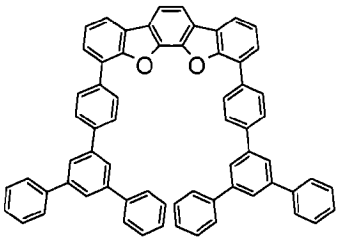
No. 307



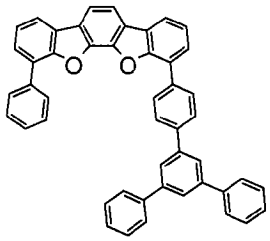
No. 308



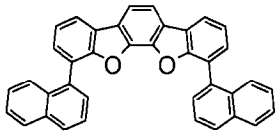
No. 309



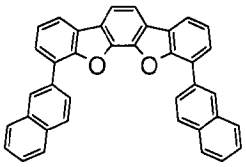
No. 310



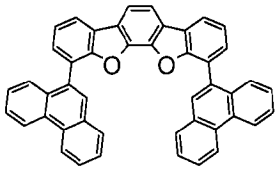
No. 311



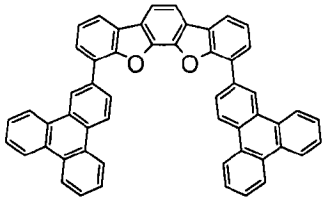
No. 312



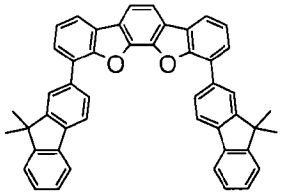
No. 313



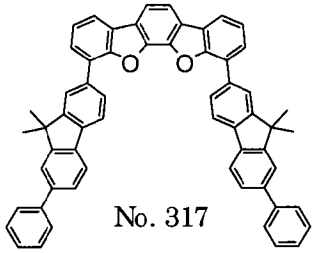
No. 314



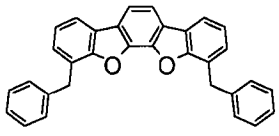
No. 315



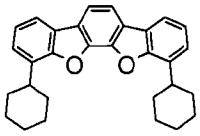
No. 316



No. 317

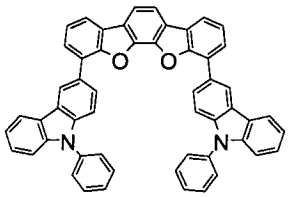


No. 318

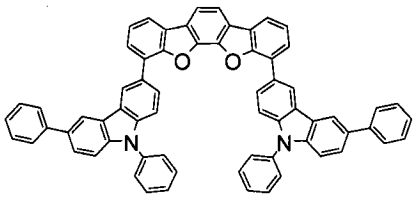


No. 319

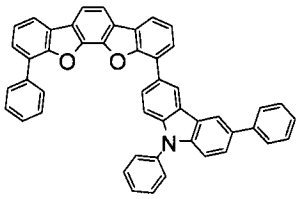
[0153] 【化 65】



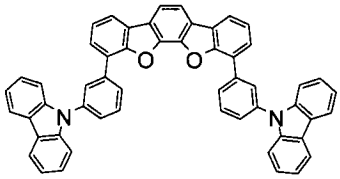
No. 320



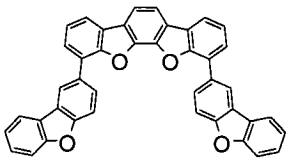
No. 321



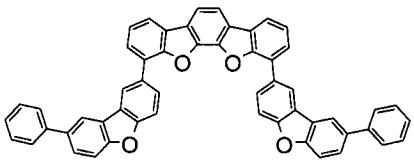
No. 322



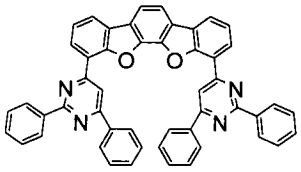
No. 323



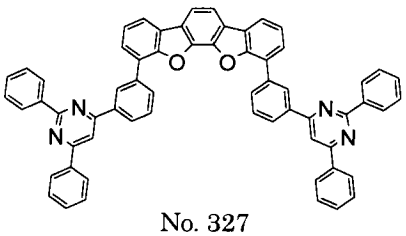
No. 324



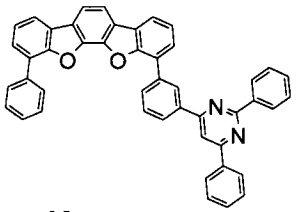
No. 325



No. 326

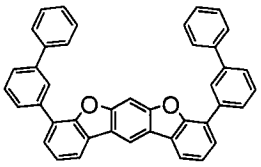


No. 327

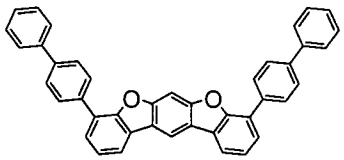


No. 328

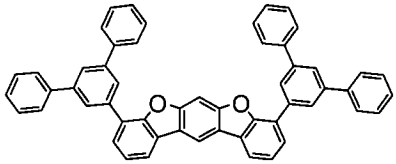
[0154] 【化 66】



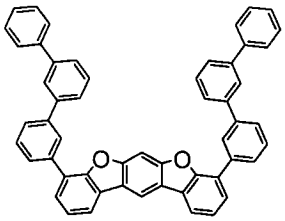
No. 329



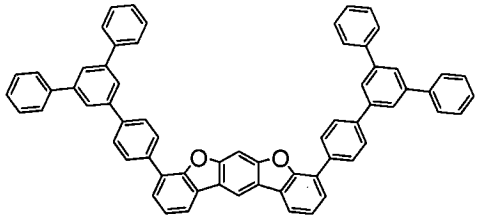
No. 330



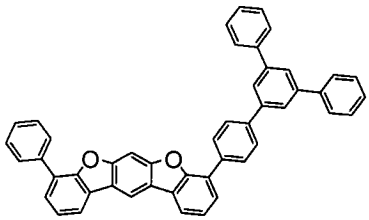
No. 331



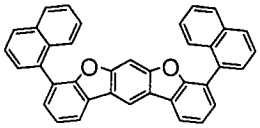
No. 332



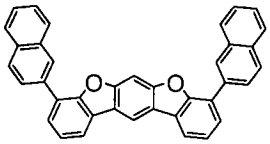
No. 333



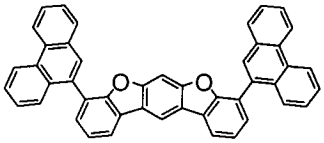
No. 334



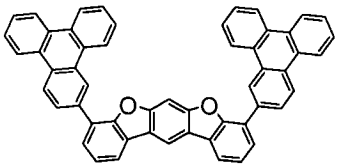
No. 335



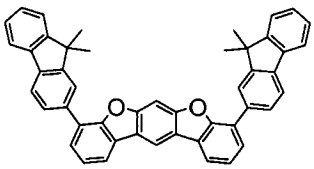
No. 336



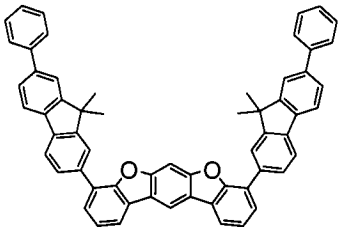
No. 337



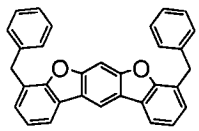
No. 338



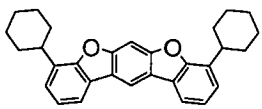
No. 339



No. 340

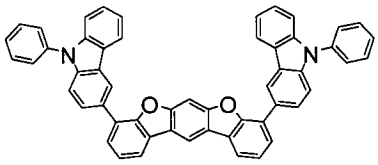


No. 341

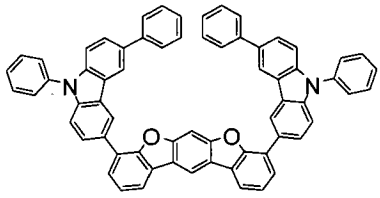


No. 342

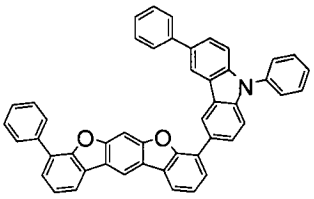
[0155] 【化 67】



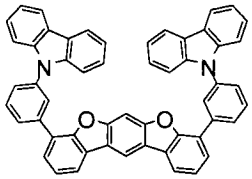
No. 343



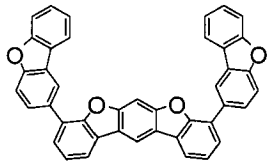
No. 344



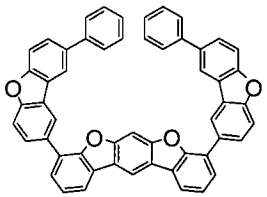
No. 345



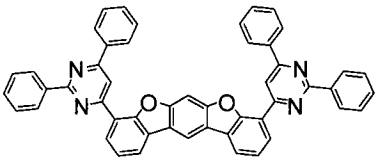
No. 346



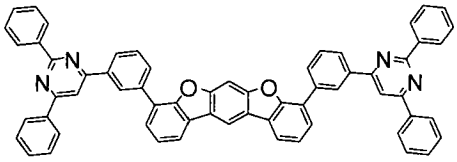
No. 347



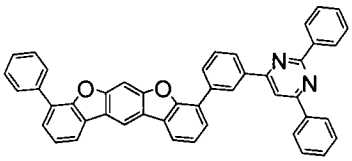
No. 348



No. 349

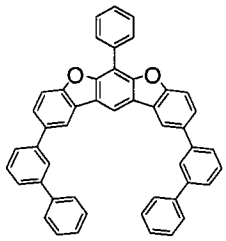


No. 350

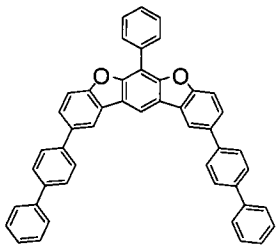


No. 351

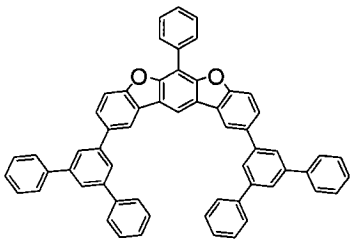
[0156] 【化 68】



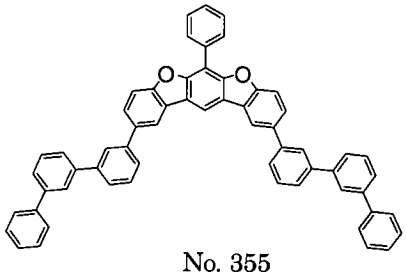
No. 352



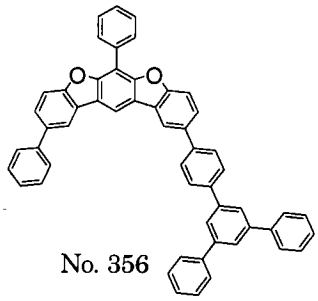
No. 353



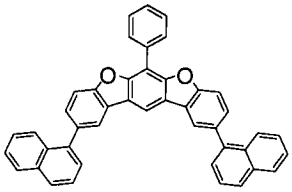
No. 354



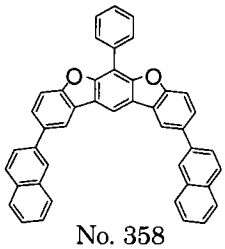
No. 355



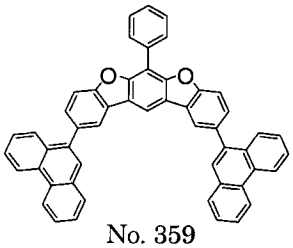
No. 356



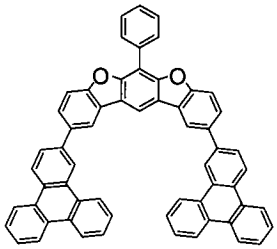
No. 357



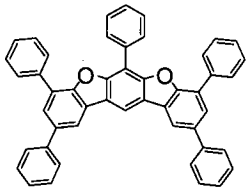
No. 358



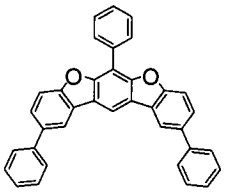
No. 359



No. 360

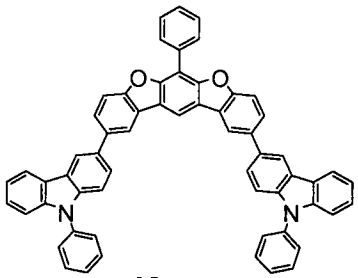


No. 361

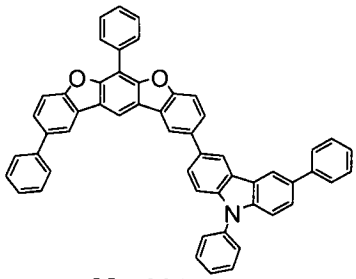


No. 362

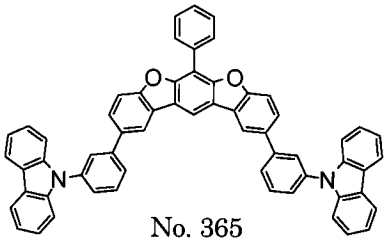
[0157] 【化 69】



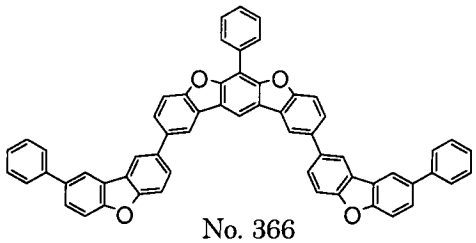
No. 363



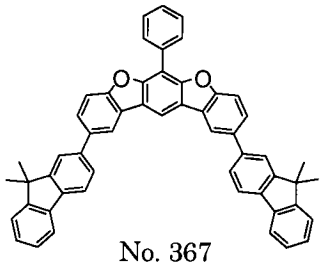
No. 364



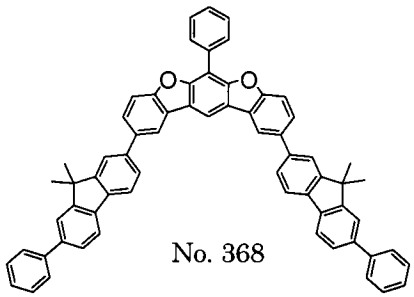
No. 365



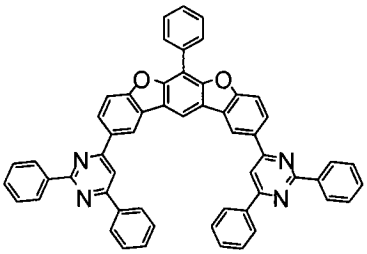
No. 366



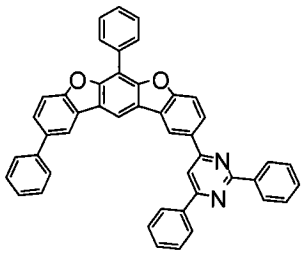
No. 367



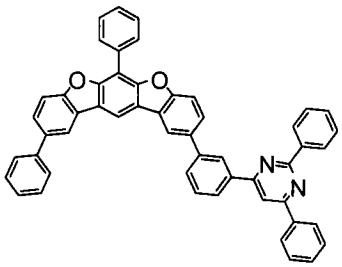
No. 368



No. 369

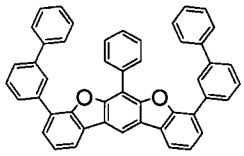


No. 370

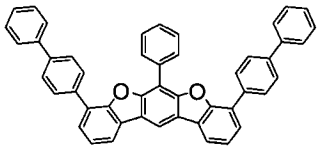


No. 371

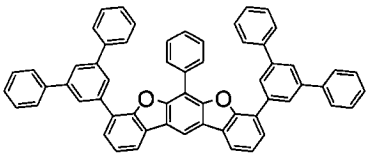
[0158] 【化 70】



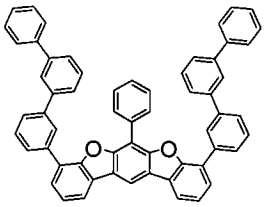
No. 372



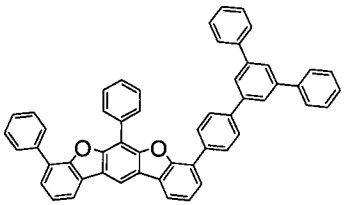
No. 373



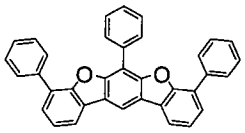
No. 374



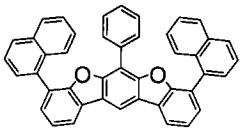
No. 375



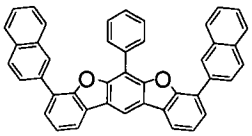
No. 376



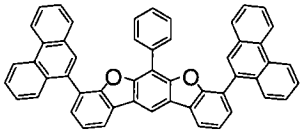
No. 377



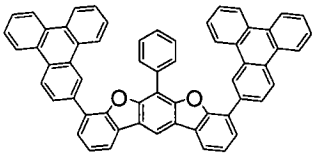
No. 378



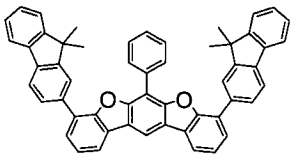
No. 379



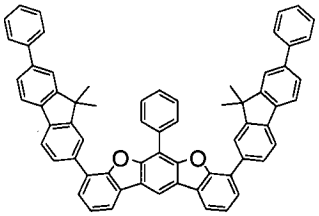
No. 380



No. 381

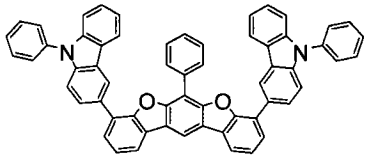


No. 382

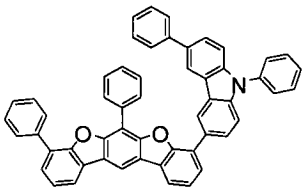


No. 383

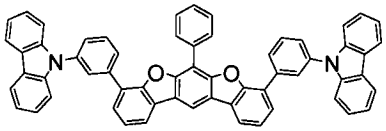
[0159] 【化 71】



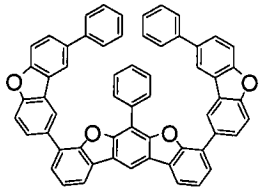
No. 384



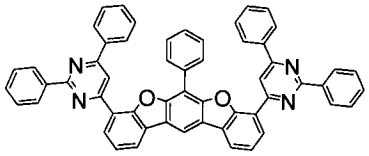
No. 385



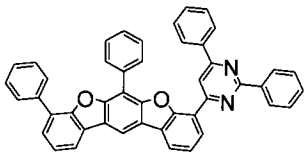
No. 386



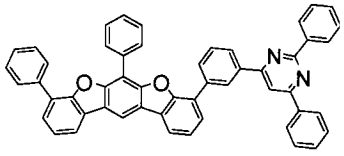
No. 387



No. 388

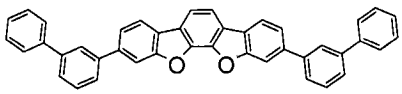


No. 389

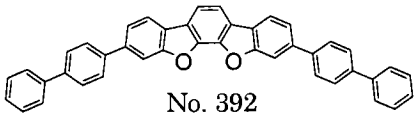


No. 390

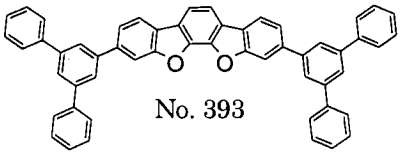
[0160] 【化 72】



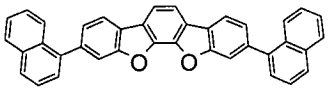
No. 391



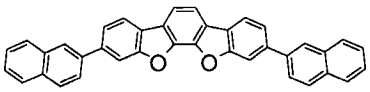
No. 392



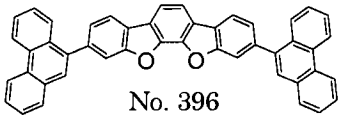
No. 393



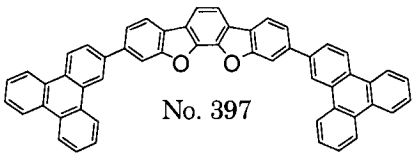
No. 394



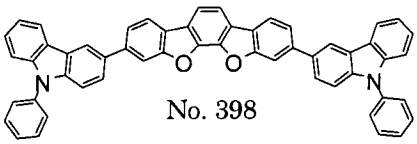
No. 395



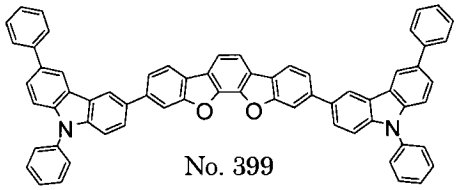
No. 396



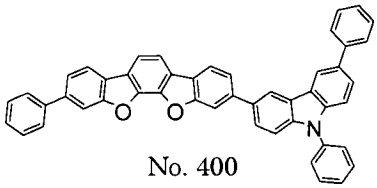
No. 397



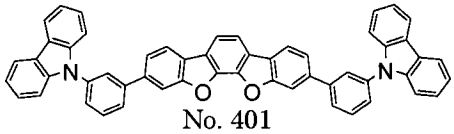
No. 398



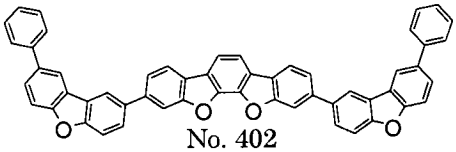
No. 399



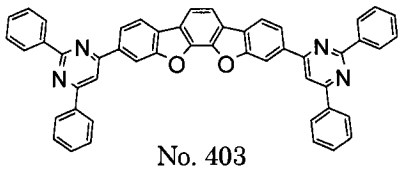
No. 400



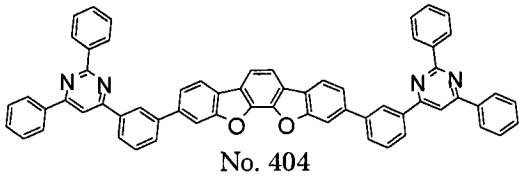
No. 401



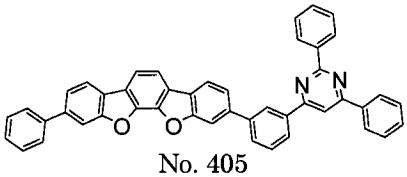
No. 402



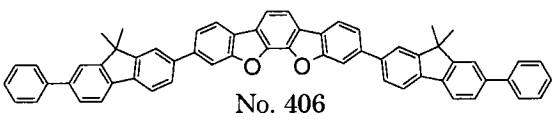
No. 403



No. 404

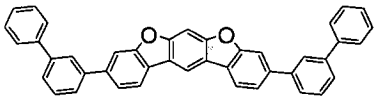


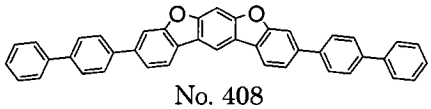
No. 405

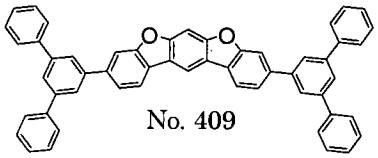


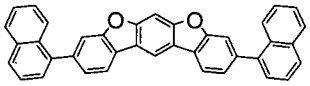
No. 406

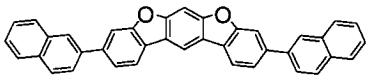
[0161] 【化 73】

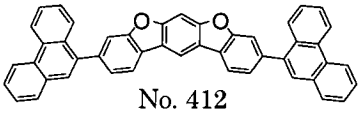

No. 407

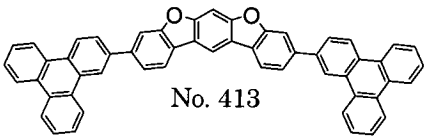

No. 408

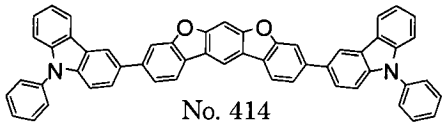

No. 409

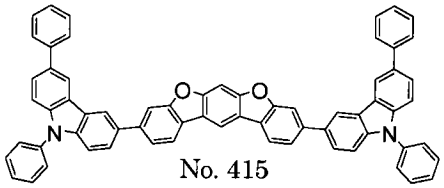

No. 410

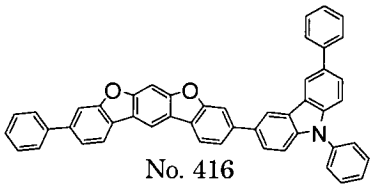

No. 411

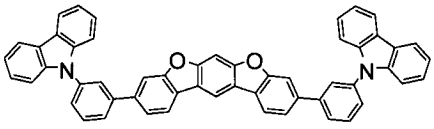

No. 412

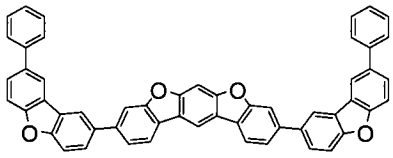

No. 413

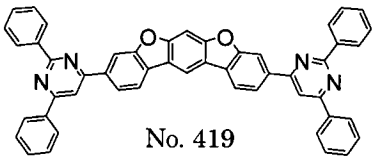

No. 414

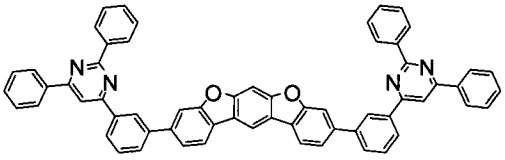

No. 415

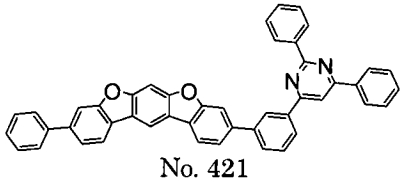

No. 416

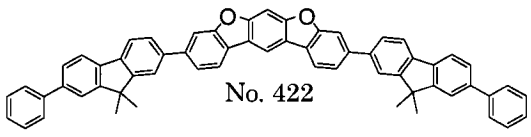

No. 417


No. 418

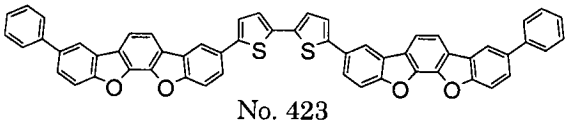

No. 419


No. 420

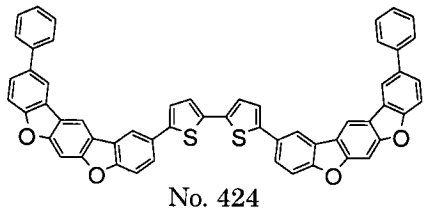

No. 421


No. 422

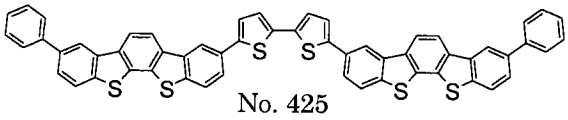
[0162] 【化 74】



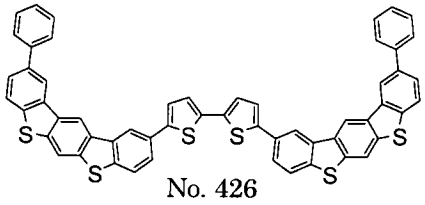
No. 423



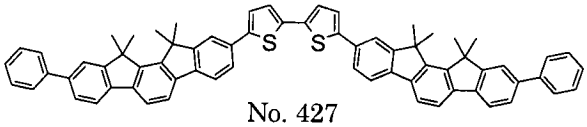
No. 424



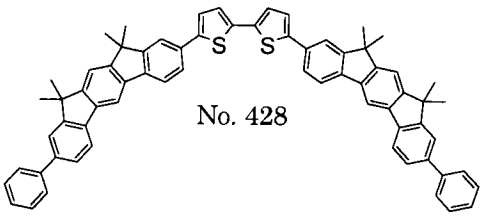
No. 425



No. 426



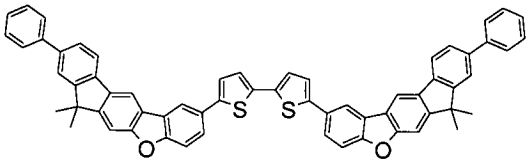
No. 427



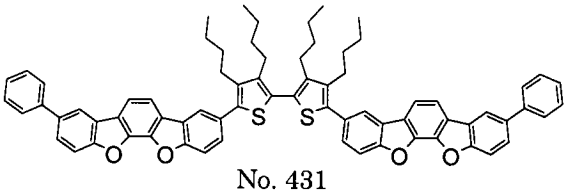
No. 428



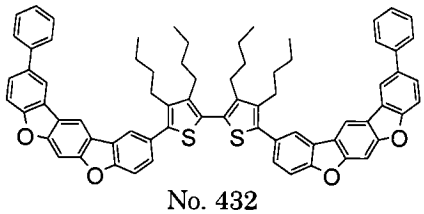
No. 429



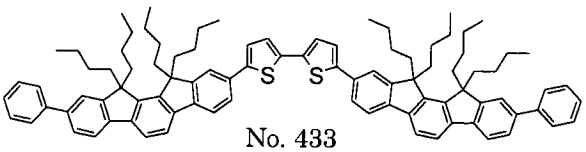
No. 430



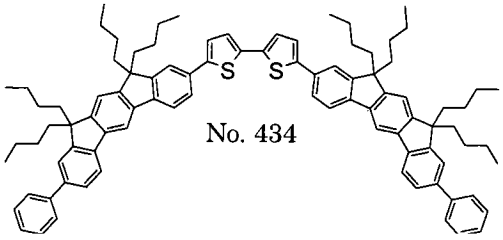
No. 431



No. 432

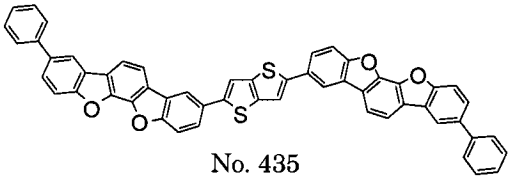


No. 433

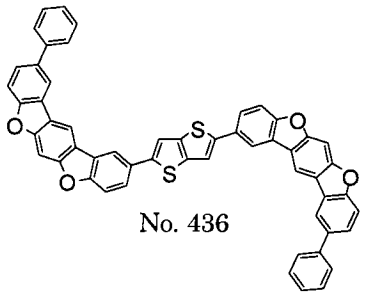


No. 434

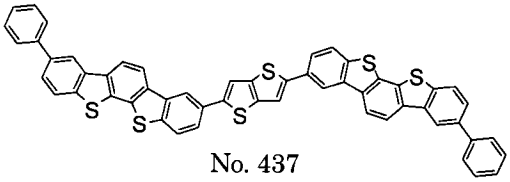
[0163] 【化 75】



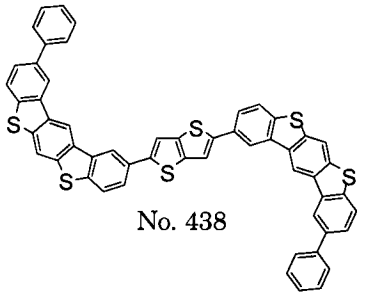
No. 435



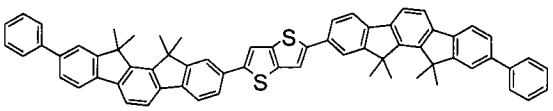
No. 436



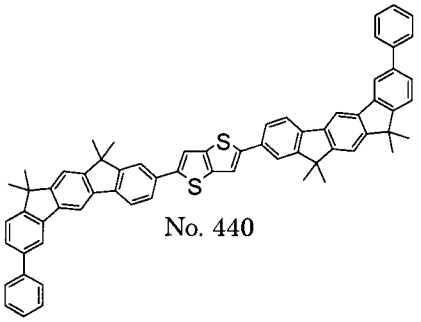
No. 437



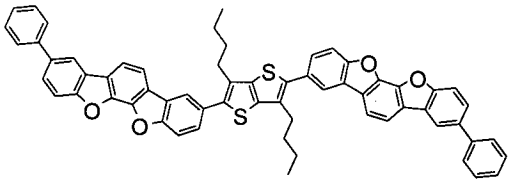
No. 438



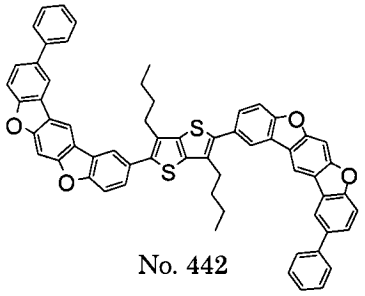
No. 439



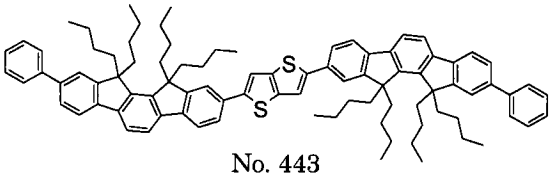
No. 440



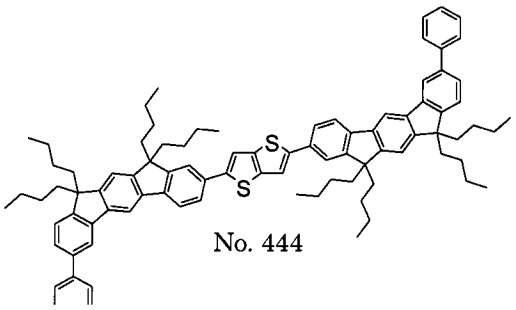
No. 441



No. 442

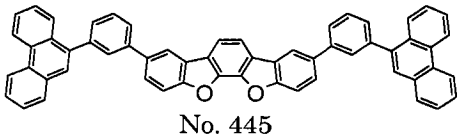


No. 443

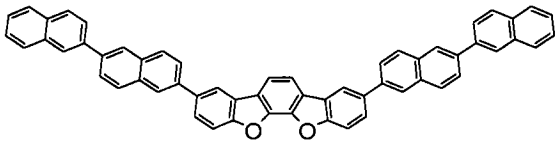


No. 444

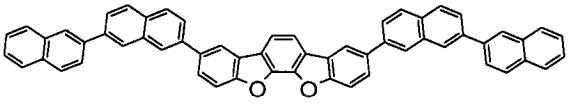
[0164] 【化 76】



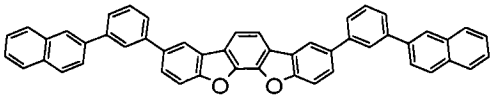
No. 445



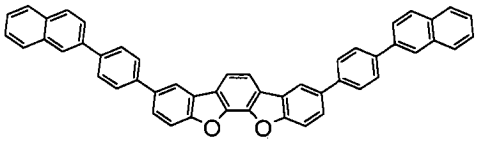
No. 446



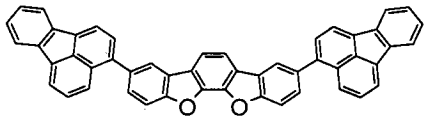
No. 447



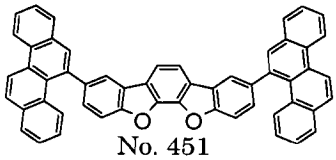
No. 448



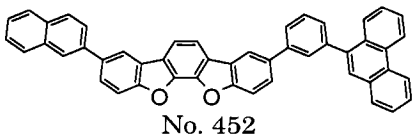
No. 449



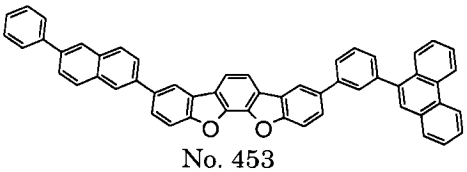
No. 450



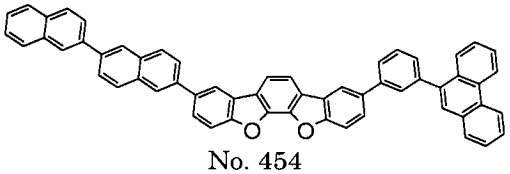
No. 451



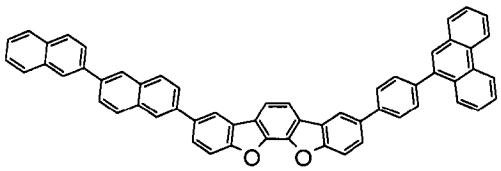
No. 452



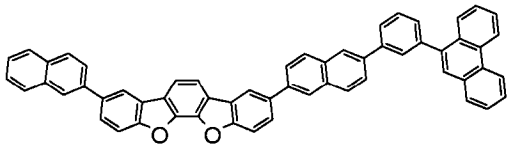
No. 453



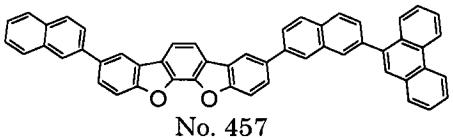
No. 454



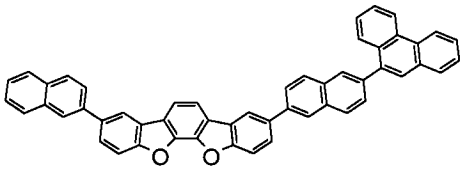
No. 455



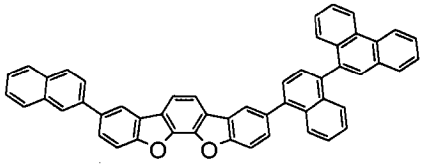
No. 456



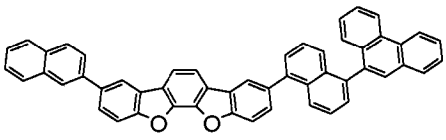
No. 457



No. 458

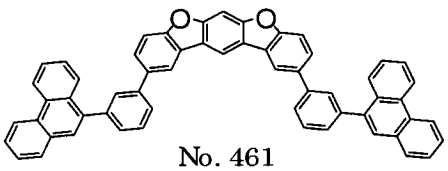


No. 459

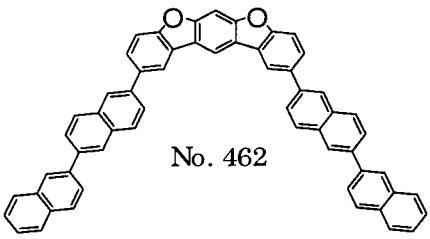


No. 460

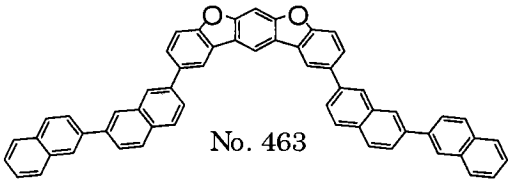
[0165] 【化 77】



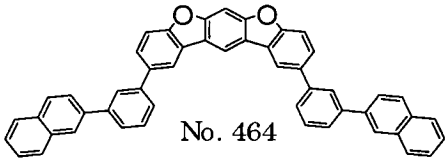
No. 461



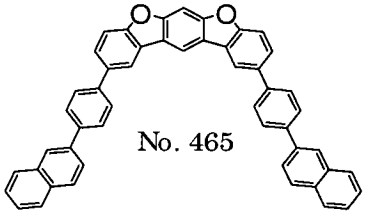
No. 462



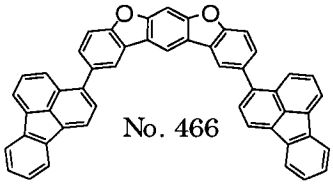
No. 463



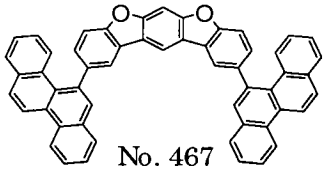
No. 464



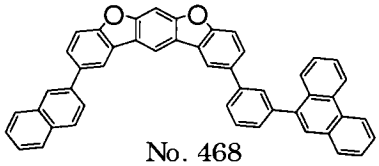
No. 465



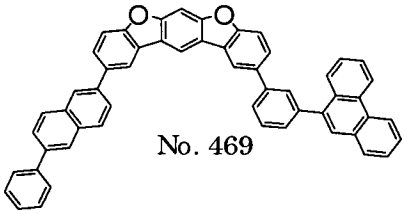
No. 466



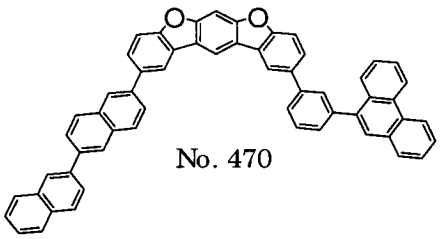
No. 467



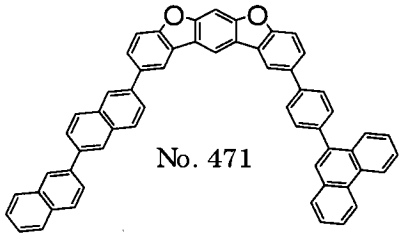
No. 468



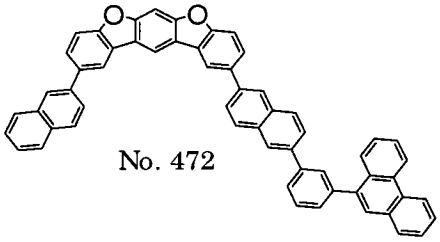
No. 469



No. 470

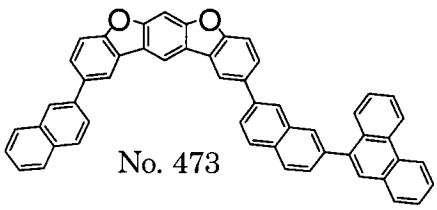


No. 471

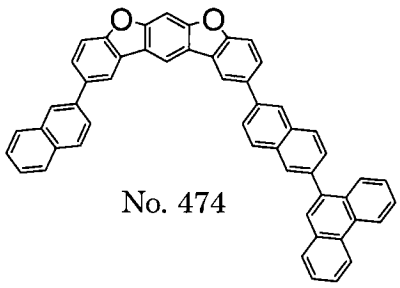


No. 472

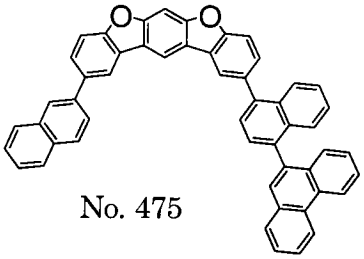
[0166] 【化 78】



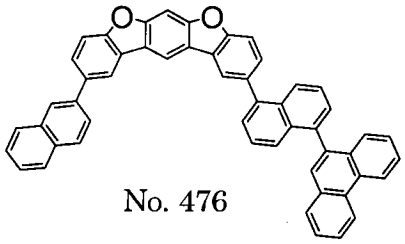
No. 473



No. 474

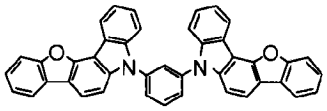


No. 475

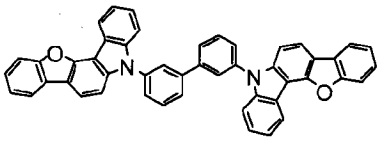


No. 476

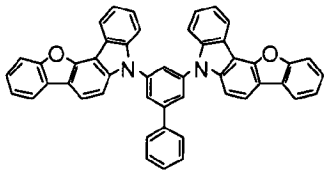
[0167] 【化 79】



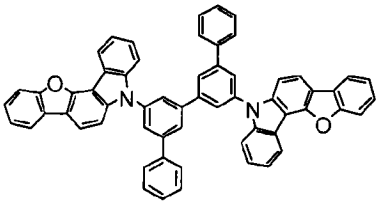
No. 477



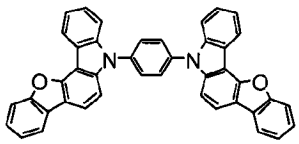
No. 478



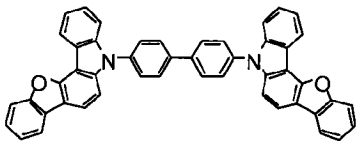
No. 479



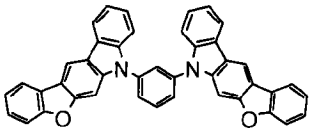
No. 480



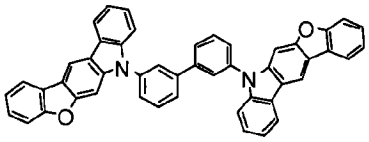
No. 481



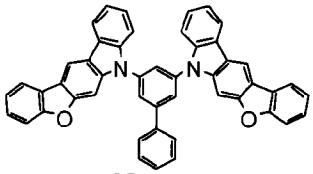
No. 482



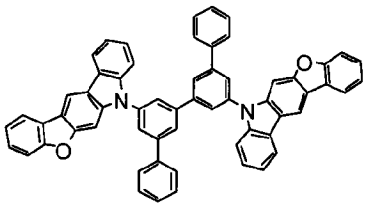
No. 483



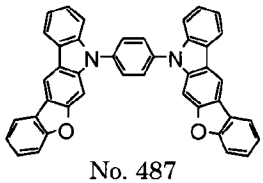
No. 484



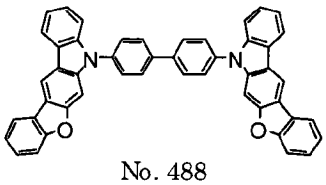
No. 485



No. 486

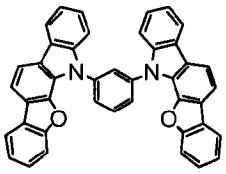


No. 487

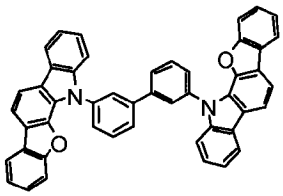


No. 488

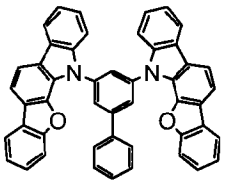
[0168] 【化 80】



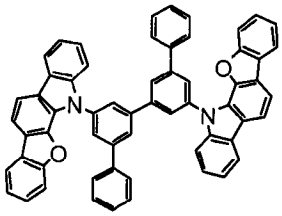
No. 489



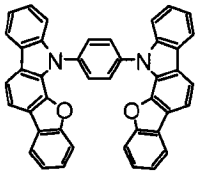
No. 490



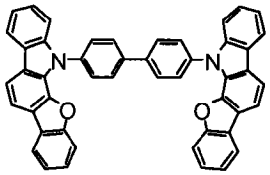
No. 491



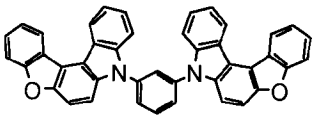
No. 492



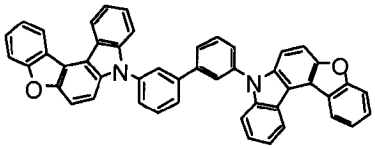
No. 493



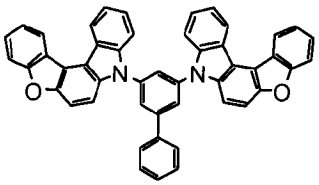
No. 494



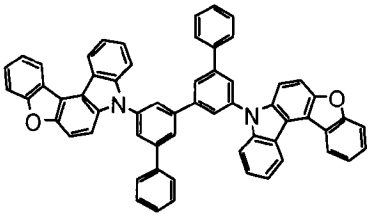
No. 495



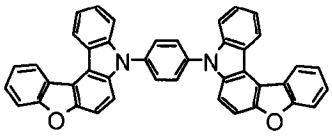
No. 496



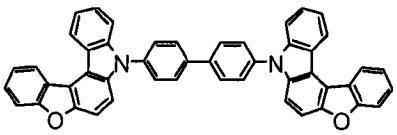
No. 497



No. 498

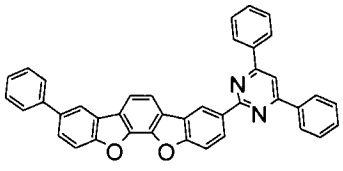


No. 499

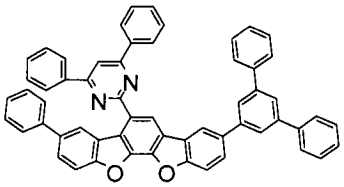


No. 500

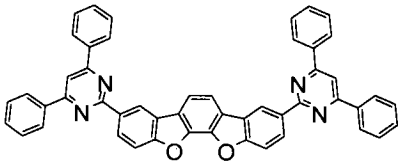
[0169] 【化 81】



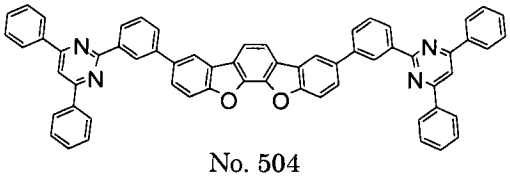
No. 501



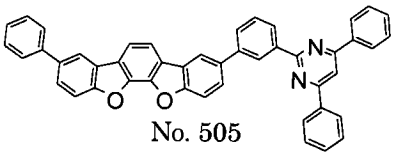
No. 502



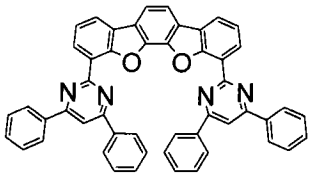
No. 503



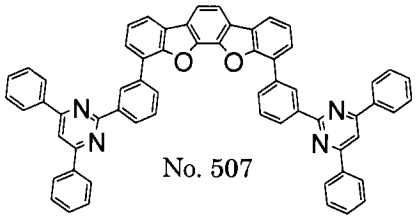
No. 504



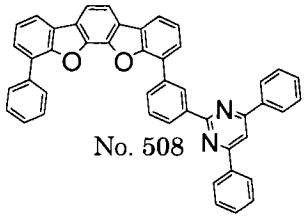
No. 505



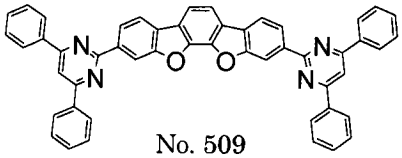
No. 506



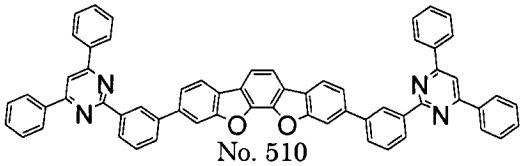
No. 507



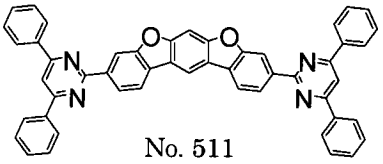
No. 508



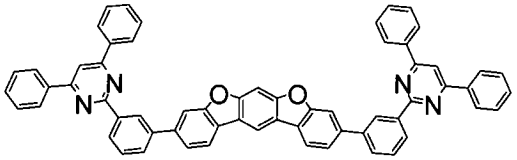
No. 509



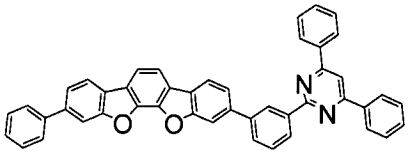
No. 510



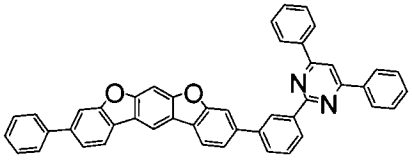
No. 511



No. 512

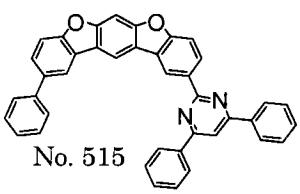


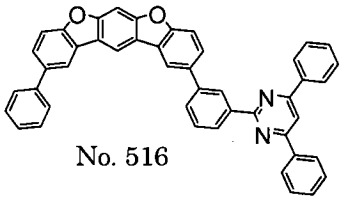
No. 513

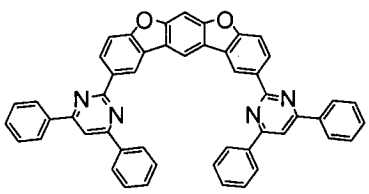


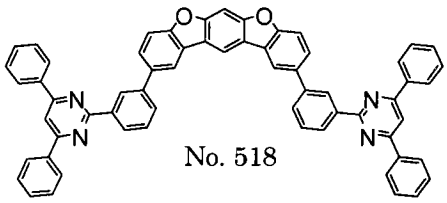
No. 514

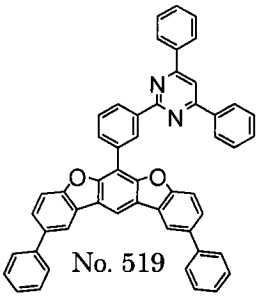
[0170] 【化 82】

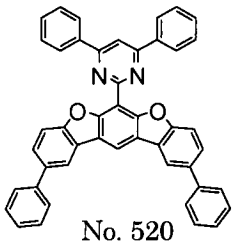

No. 515

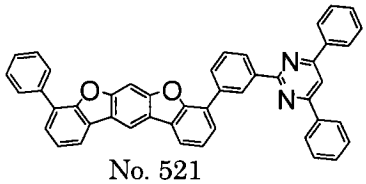

No. 516

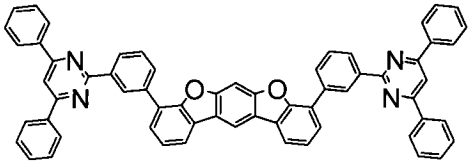

No. 517

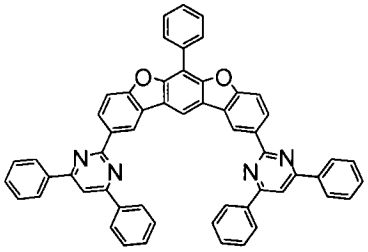

No. 518

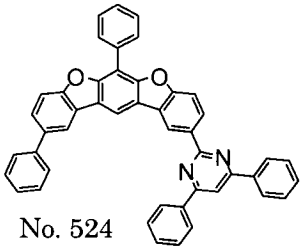

No. 519

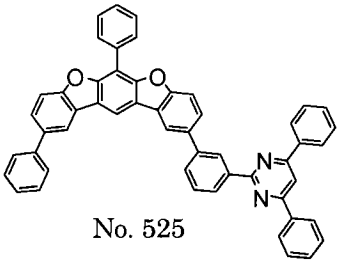

No. 520

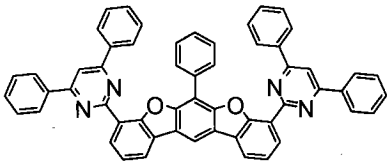

No. 521

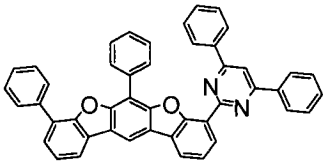

No. 522

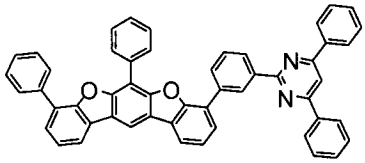

No. 523

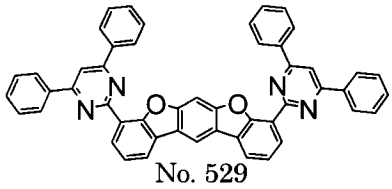

No. 524


No. 525

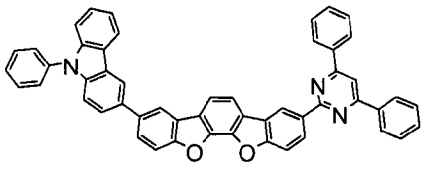

No. 526


No. 527

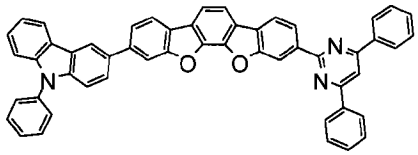

No. 528


No. 529

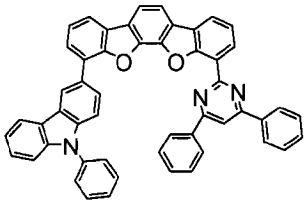
[0171] 【化 83】



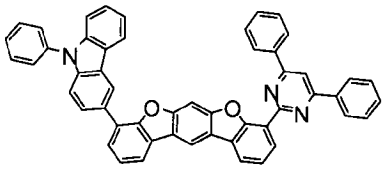
No. 530



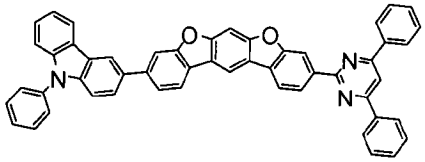
No. 531



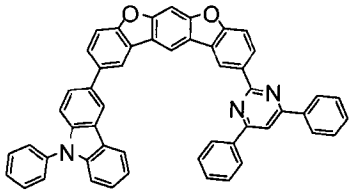
No. 532



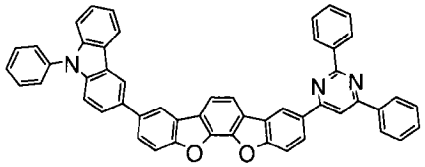
No. 533



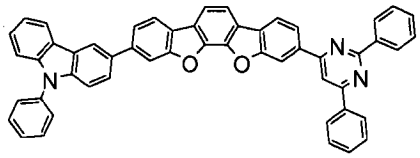
No. 534



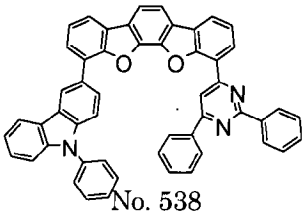
No. 535



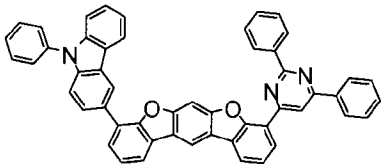
No. 536



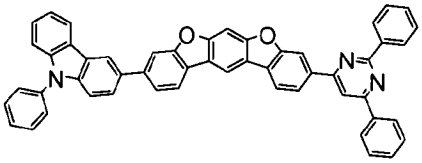
No. 537



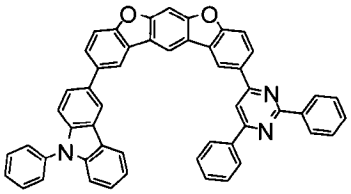
No. 538



No. 539

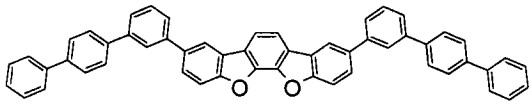


No. 540

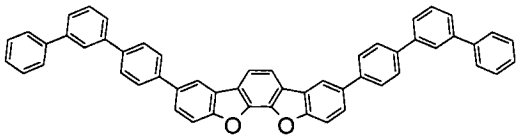


No. 541

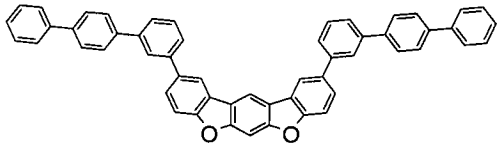
[0172] 【化 84】



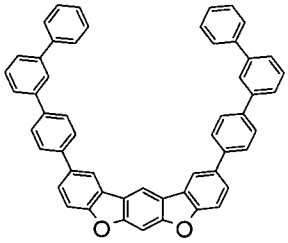
No. 569



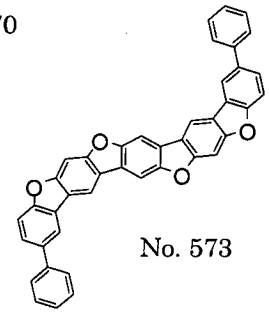
No. 570



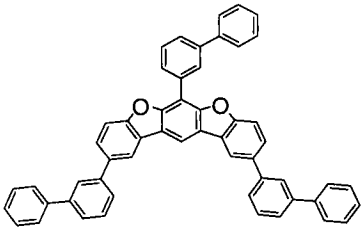
No. 571



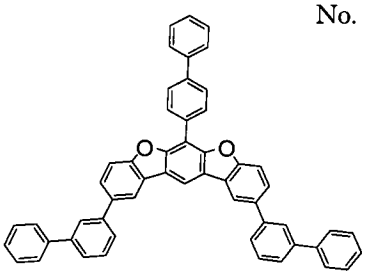
No. 572



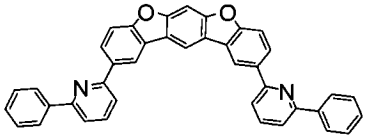
No. 573



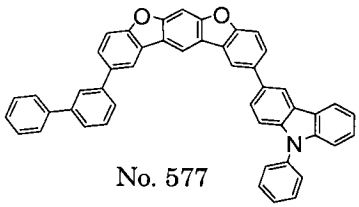
No. 574



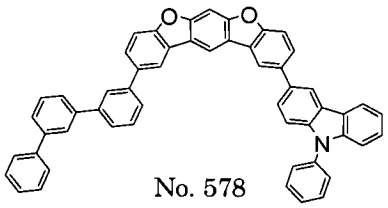
No. 575



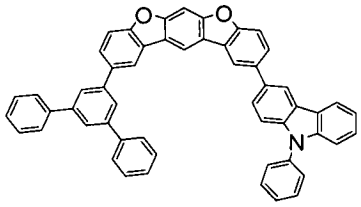
No. 576



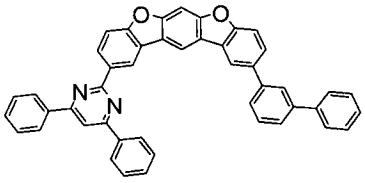
No. 577



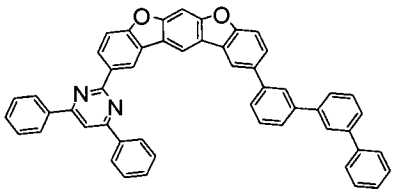
No. 578



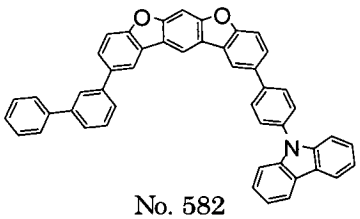
No. 579



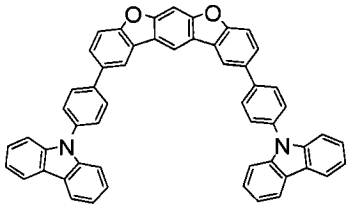
No. 580



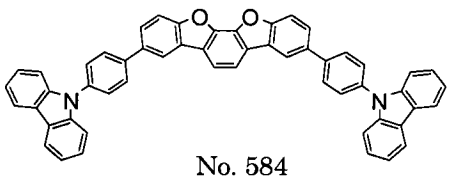
No. 581



No. 582

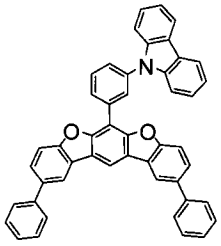


No. 583

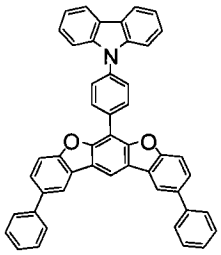


No. 584

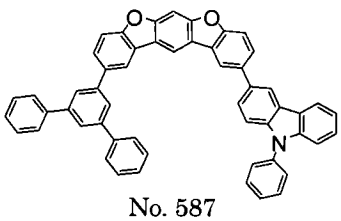
[0173] 【化 85】



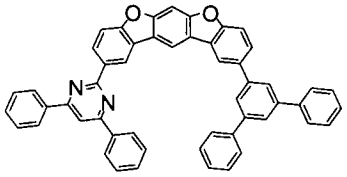
No. 585



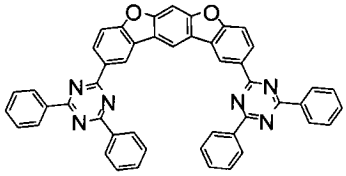
No. 586



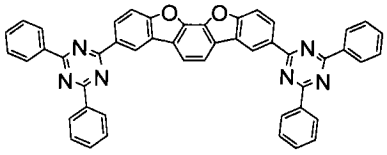
No. 587



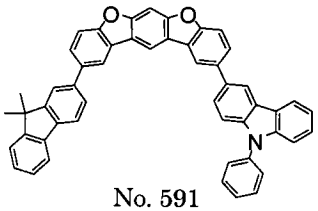
No. 588



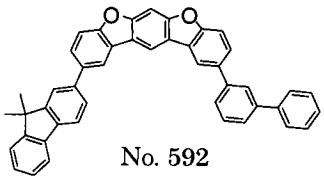
No. 589



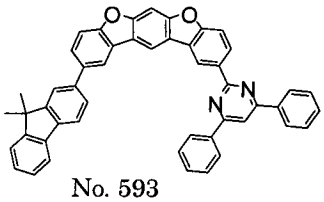
No. 590



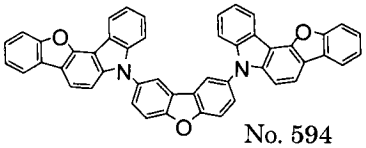
No. 591



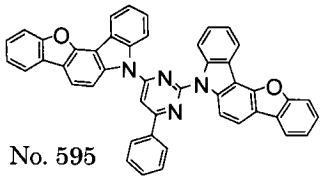
No. 592



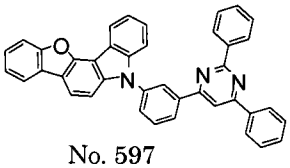
No. 593



No. 594

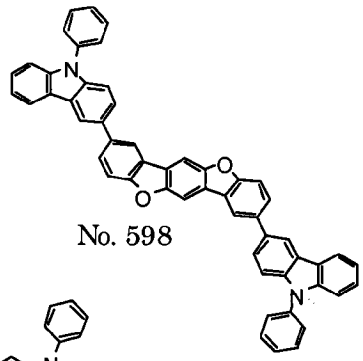


No. 595

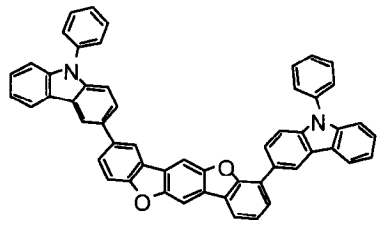


No. 597

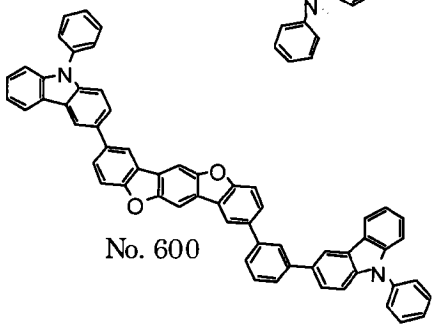
[0174] 【化 86】



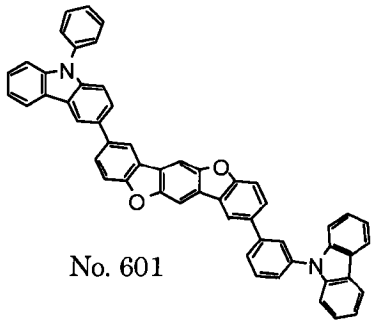
No. 598



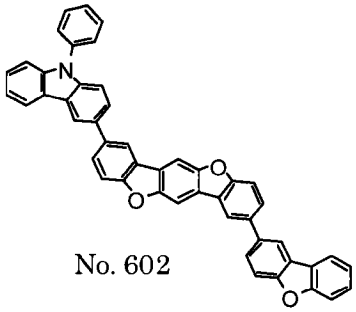
No. 599



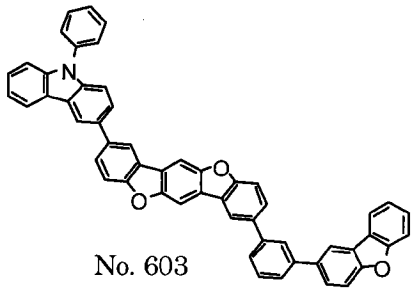
No. 600



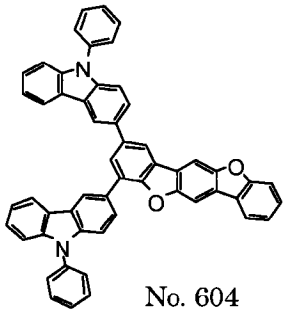
No. 601



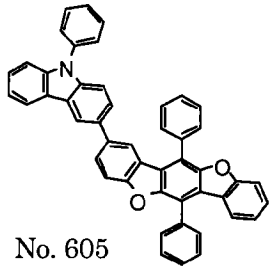
No. 602



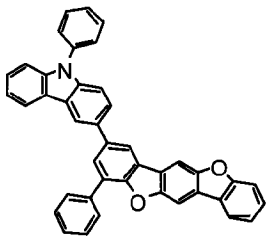
No. 603



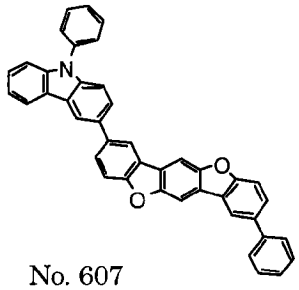
No. 604



No. 605



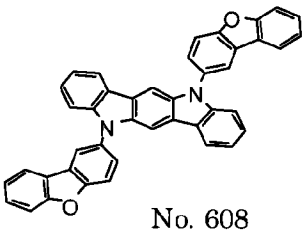
No. 606

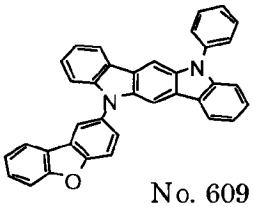


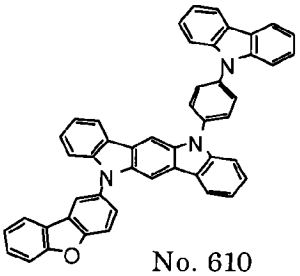
No. 607

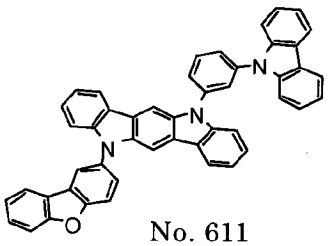
[0175]

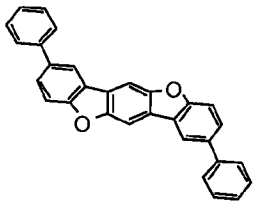
【化 87】

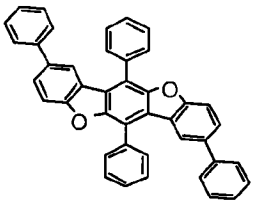

No. 608

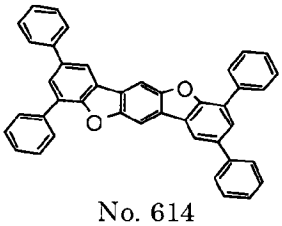

No. 609

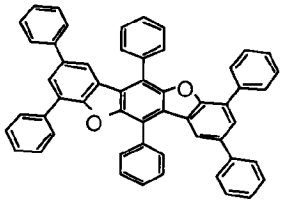

No. 610

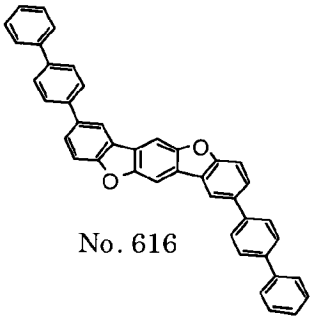

No. 611

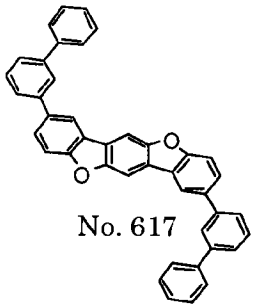

No. 612

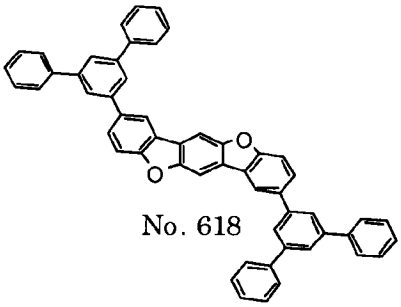

No. 613

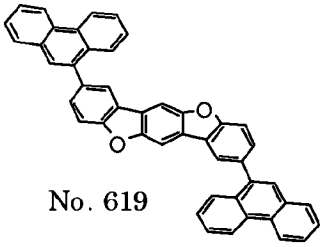

No. 614

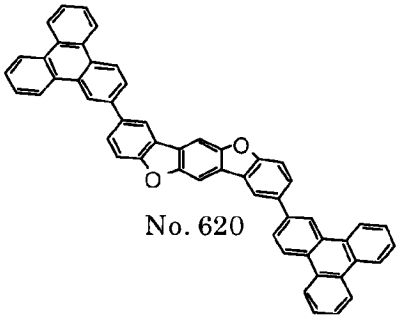

No. 615

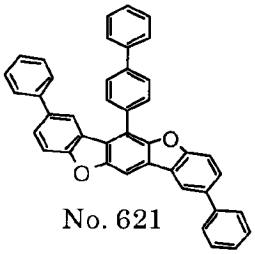

No. 616

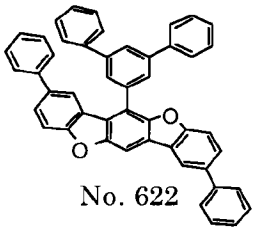

No. 617


No. 618


No. 619

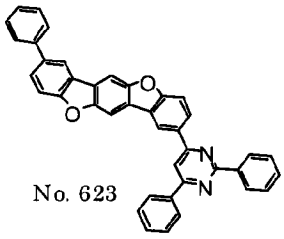

No. 620

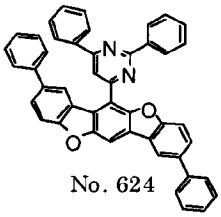

No. 621

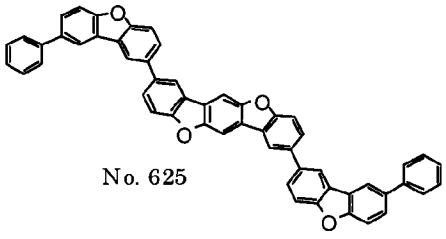

No. 622

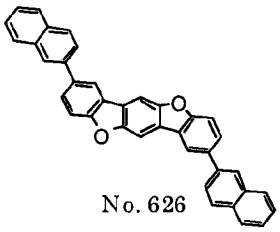
[0176]

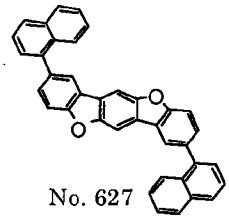
【化 88】

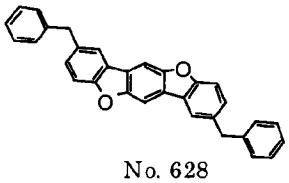

No. 623

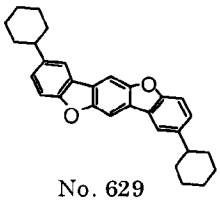

No. 624

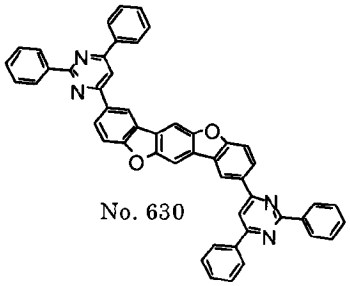

No. 625

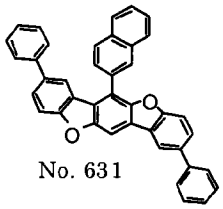

No. 626

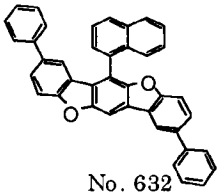

No. 627

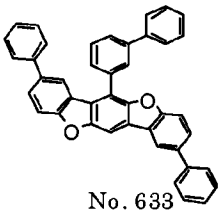

No. 628

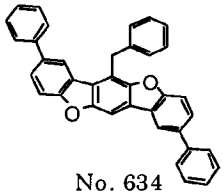

No. 629

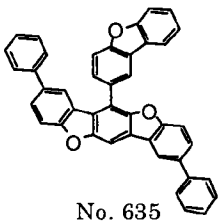

No. 630

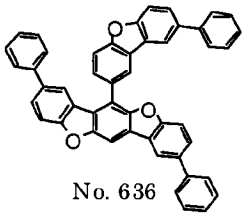

No. 631

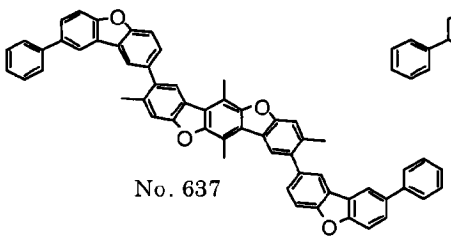

No. 632

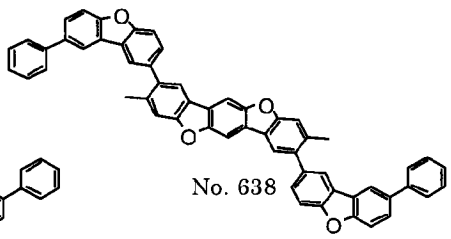

No. 633


No. 634


No. 635

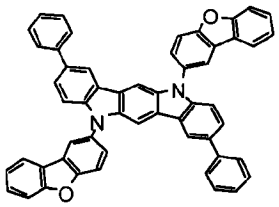

No. 636


No. 637

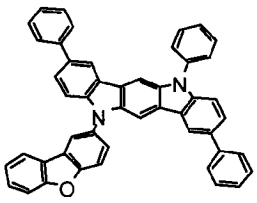

No. 638

[0177]

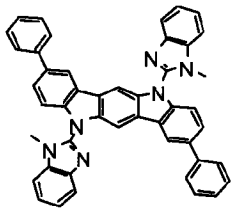
【化 89】



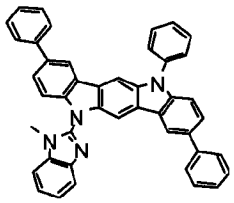
No. 639



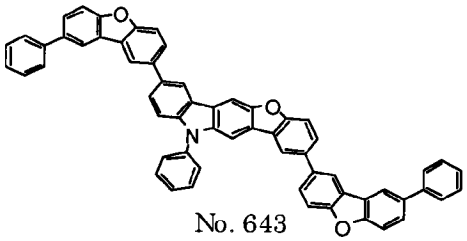
No. 640



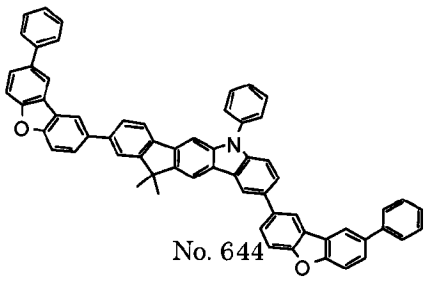
No. 641



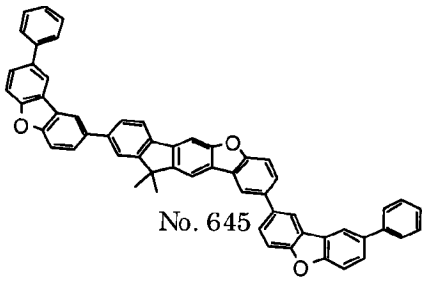
No. 642



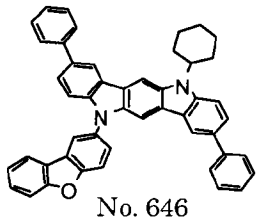
No. 643



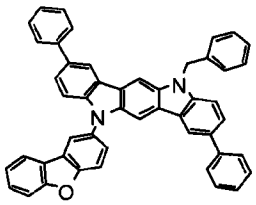
No. 644



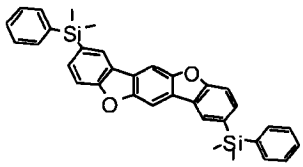
No. 645



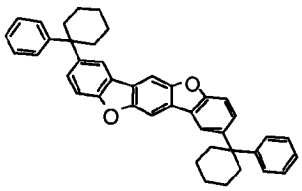
No. 646



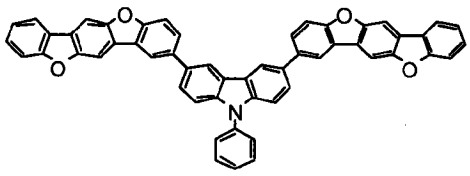
No. 647



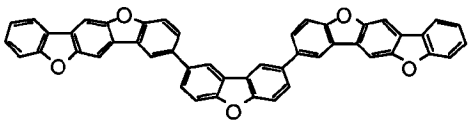
No. 648



No. 649



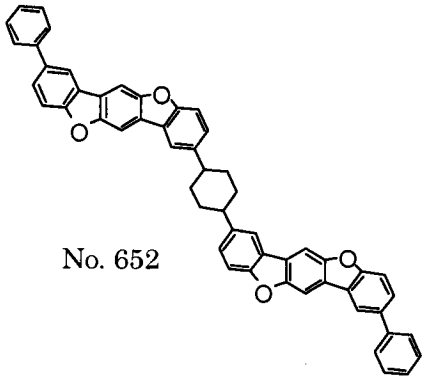
No. 650



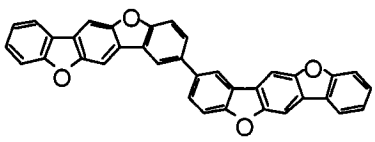
No. 651

[0178]

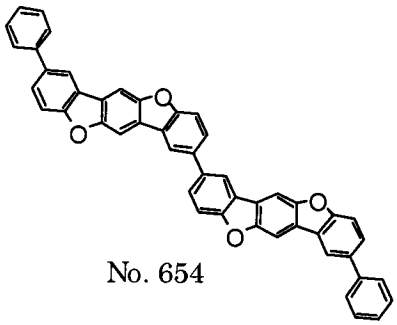
【化 90】



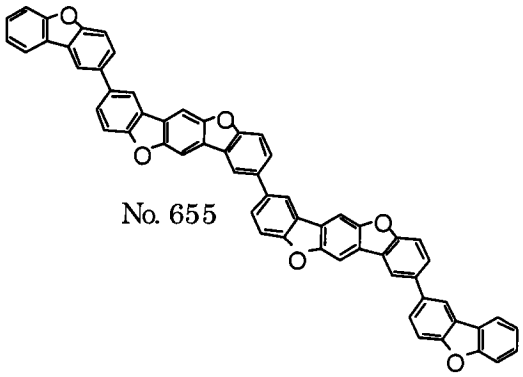
No. 652



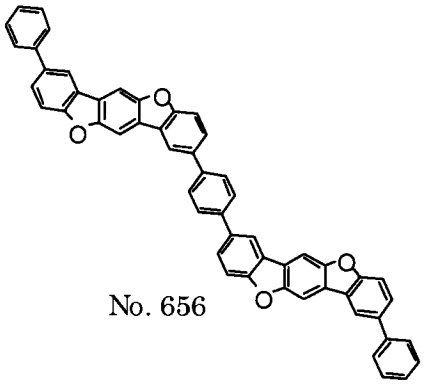
No. 653



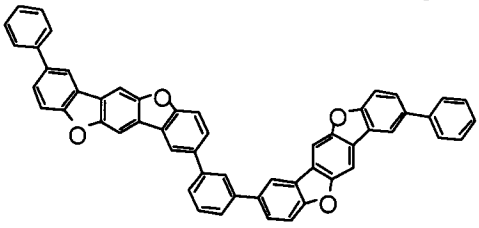
No. 654



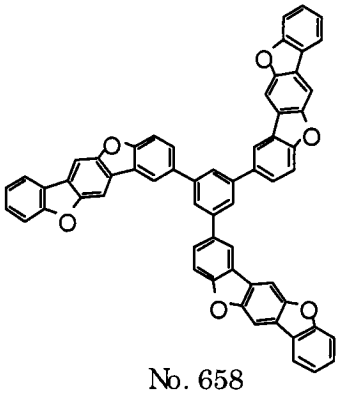
No. 655



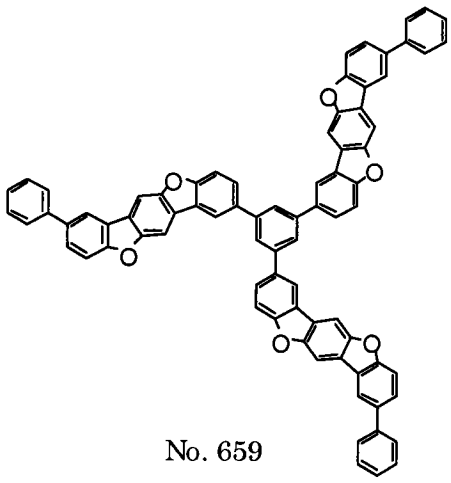
No. 656



No. 657



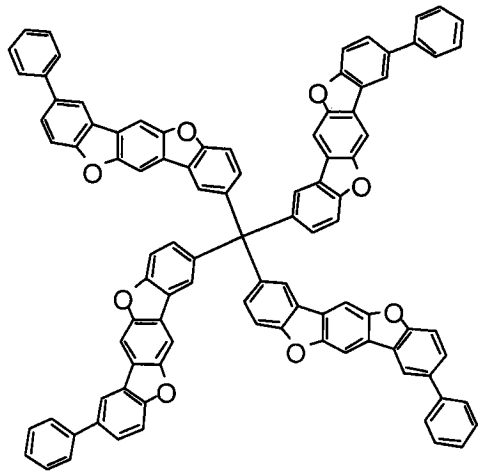
No. 658



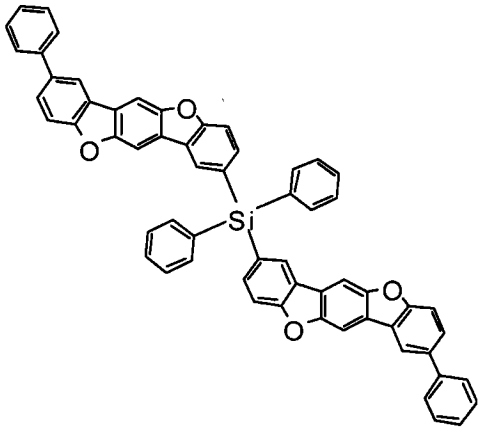
No. 659

[0179]

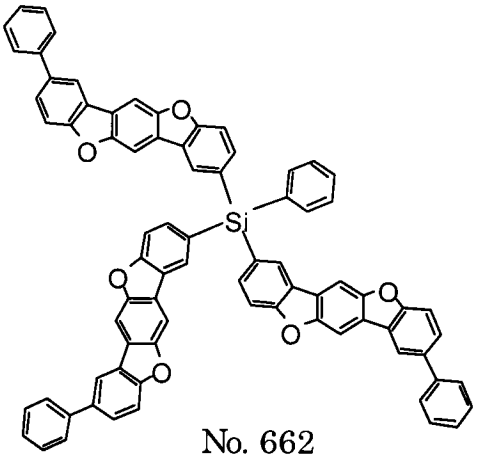
【化 91】



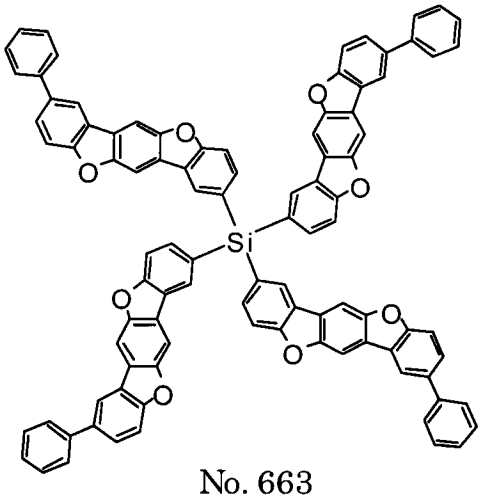
No. 660



No. 661



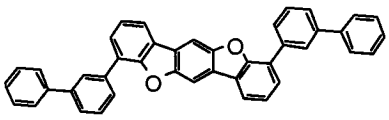
No. 662



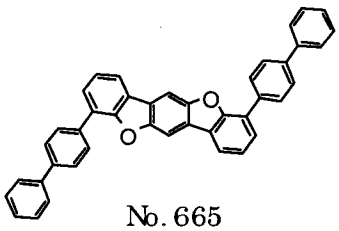
No. 663

[0180]

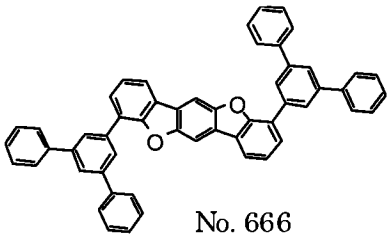
【化 92】



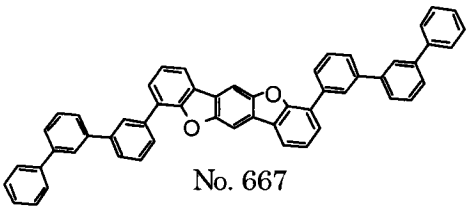
No. 664



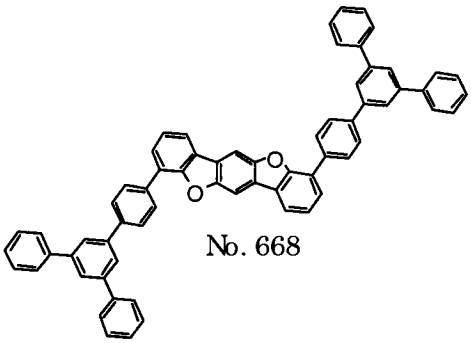
No. 665



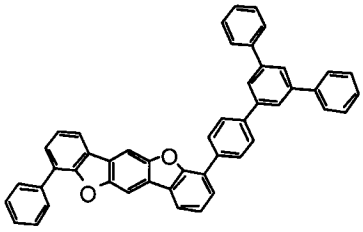
No. 666



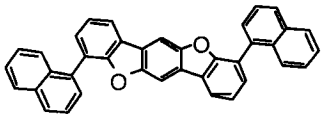
No. 667



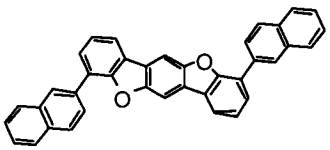
No. 668



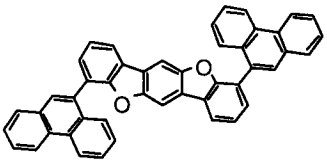
No. 669



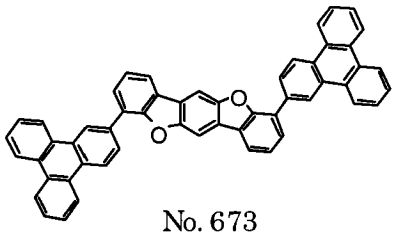
No. 670



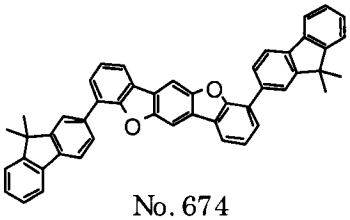
No. 671



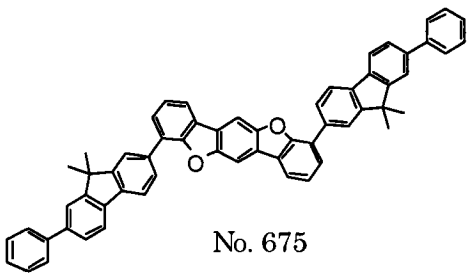
No. 672



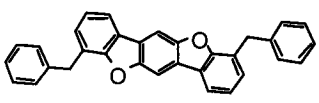
No. 673



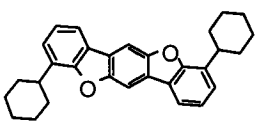
No. 674



No. 675



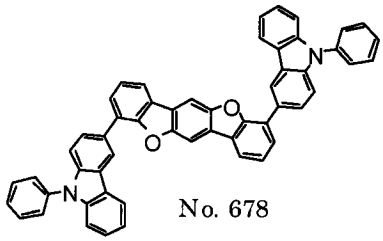
No. 676



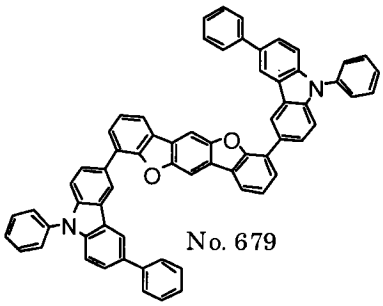
No. 677

[0181]

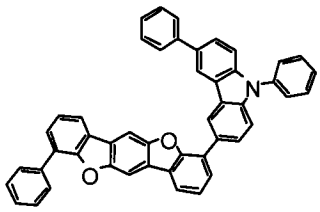
【化 93】



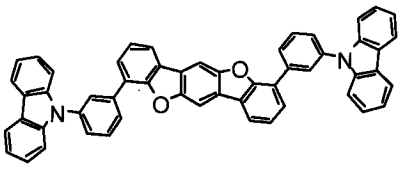
No. 678



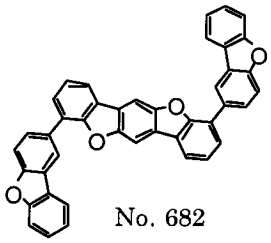
No. 679



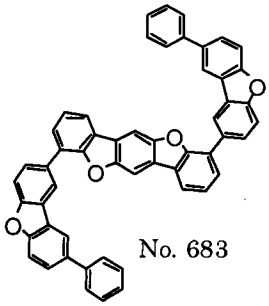
No. 680



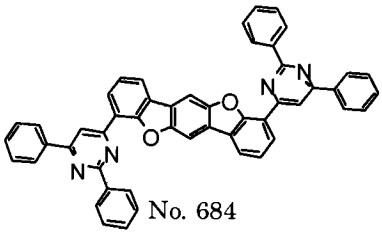
No. 681



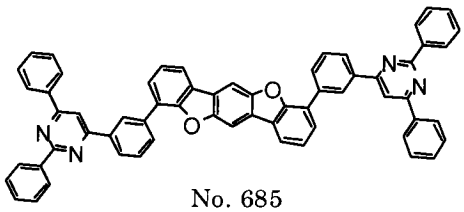
No. 682



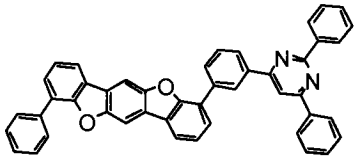
No. 683



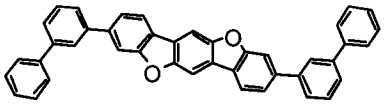
No. 684



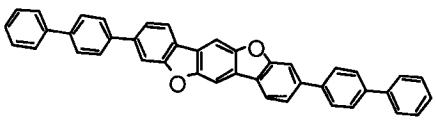
No. 685



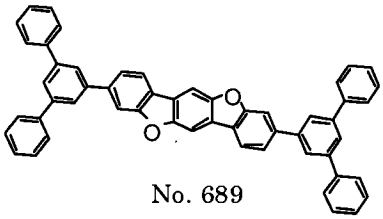
No. 686



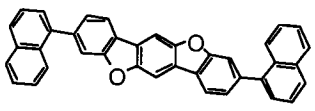
No. 687



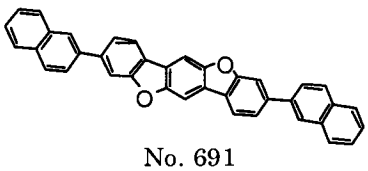
No. 688



No. 689



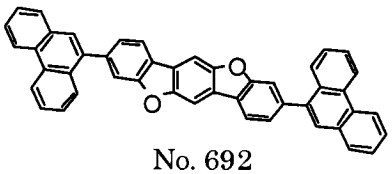
No. 690



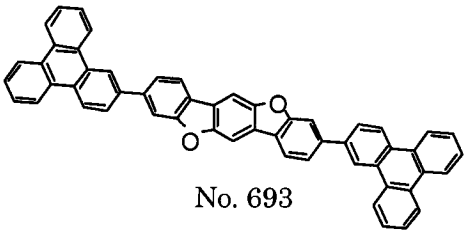
No. 691

[0182]

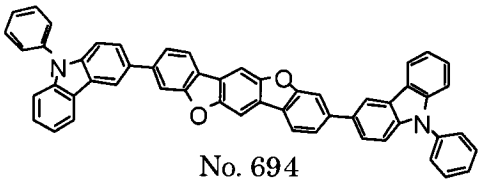
【化 94】



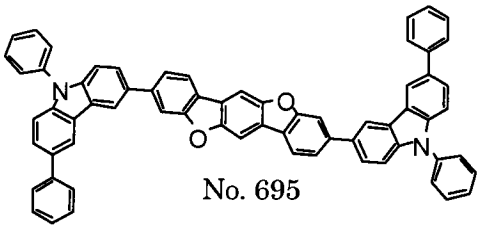
No. 692



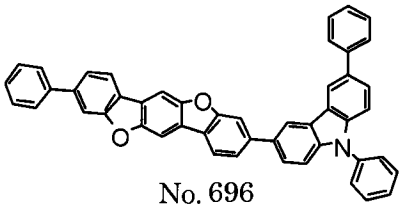
No. 693



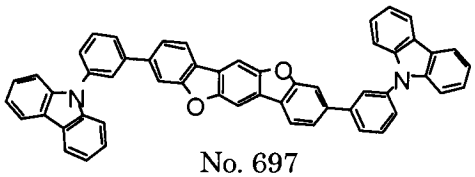
No. 694



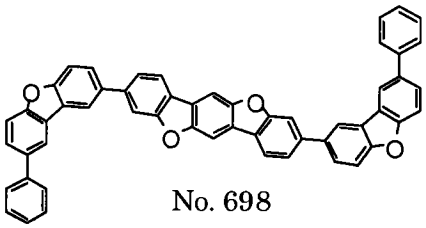
No. 695



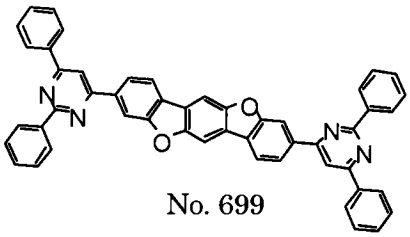
No. 696



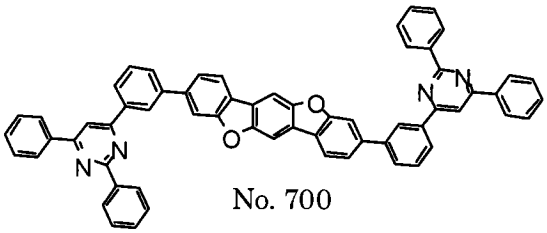
No. 697



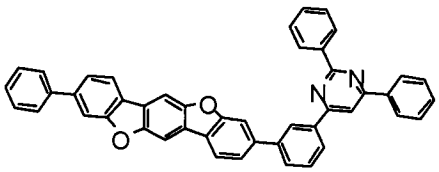
No. 698



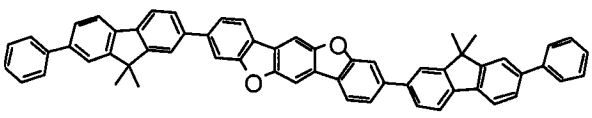
No. 699



No. 700



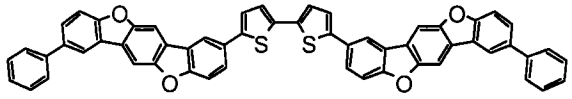
No. 701



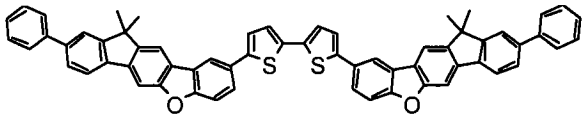
No. 702

[0183]

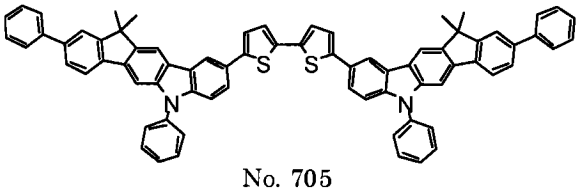
【化 95】



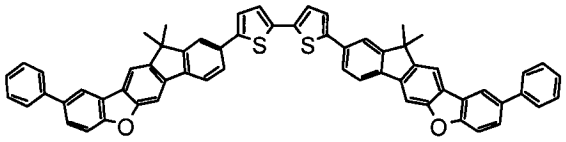
No. 703



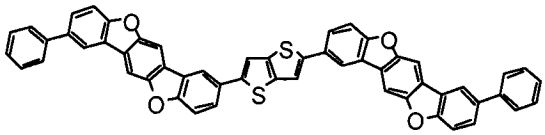
No. 704



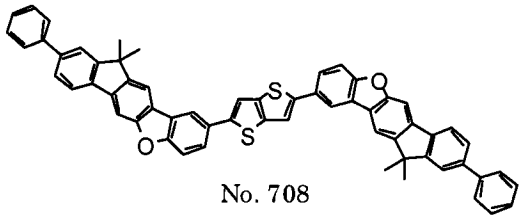
No. 705



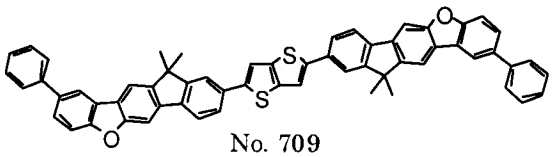
No. 706



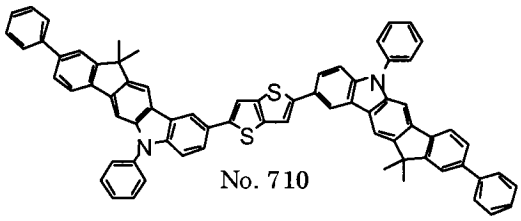
No. 707



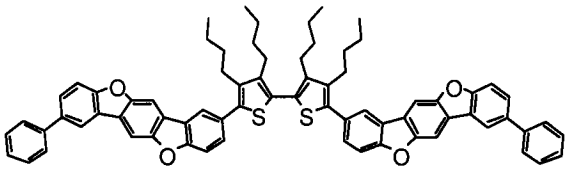
No. 708



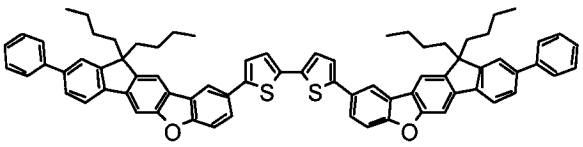
No. 709



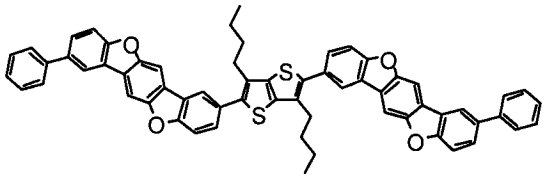
No. 710



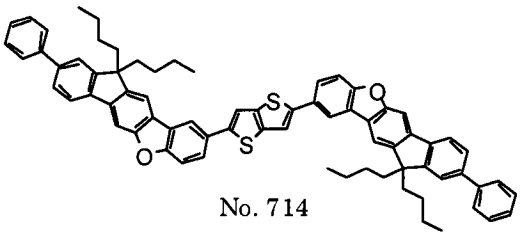
No. 711



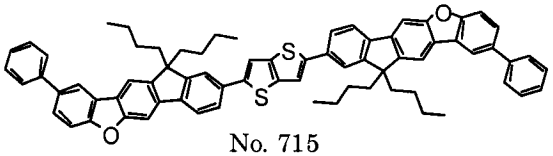
No. 712



No. 713



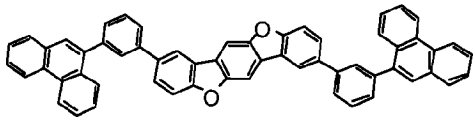
No. 714



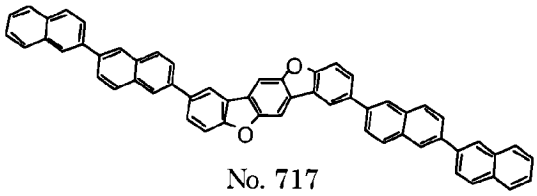
No. 715

[0184]

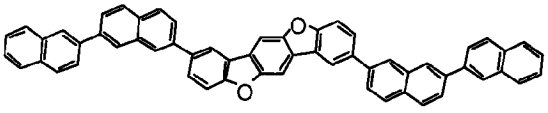
【化 96】



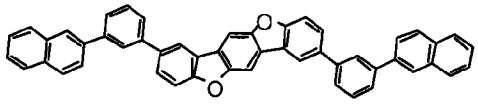
No. 716



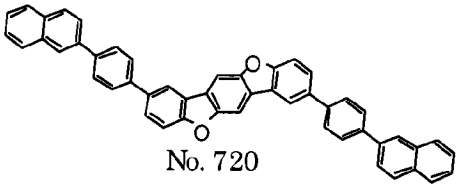
No. 717



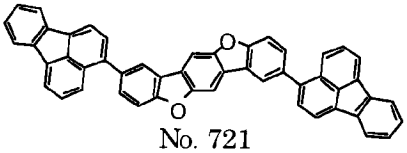
No. 718



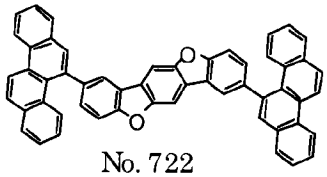
No. 719



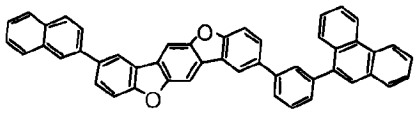
No. 720



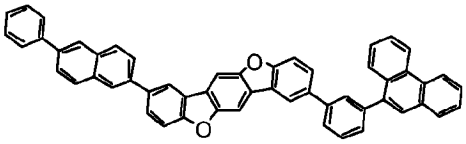
No. 721



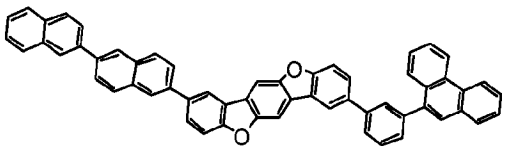
No. 722



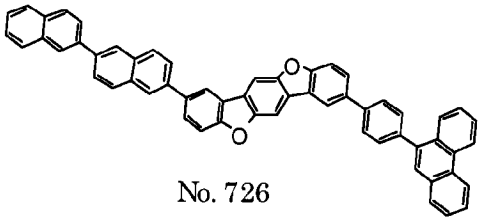
No. 723



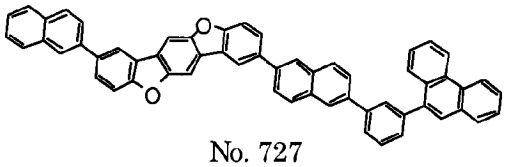
No. 724



No. 725



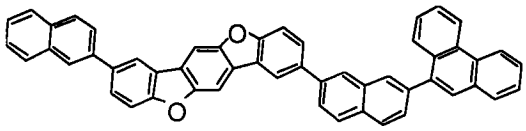
No. 726



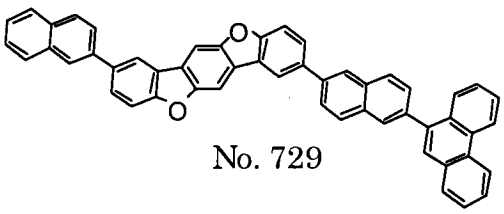
No. 727

[0185]

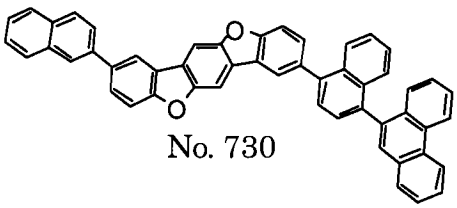
【化 97】



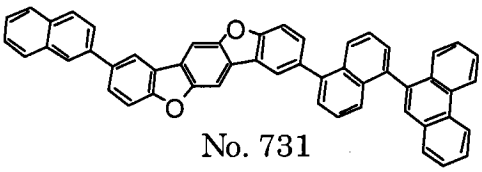
No. 728



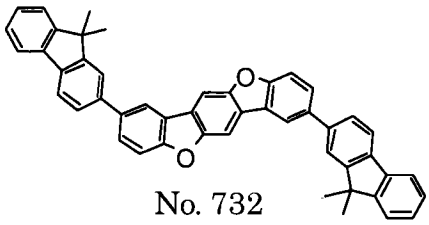
No. 729



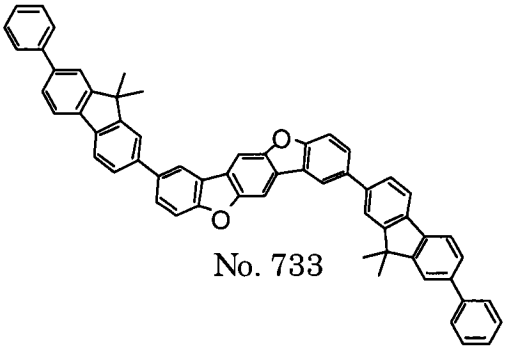
No. 730



No. 731



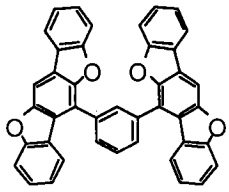
No. 732



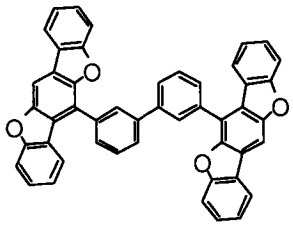
No. 733

[0186]

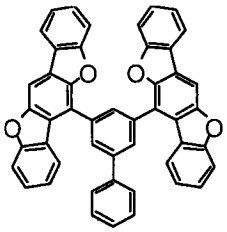
【化 98】



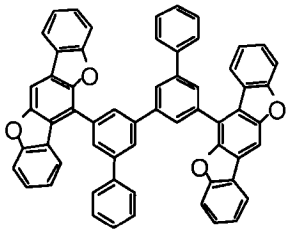
No. 734



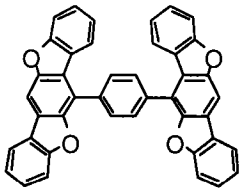
No. 735



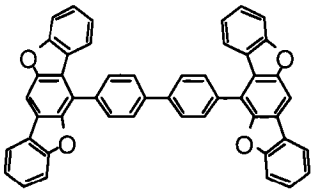
No. 736



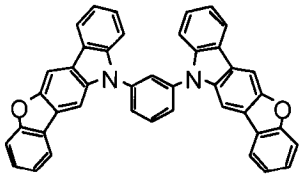
No. 737



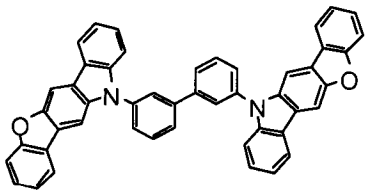
No. 738



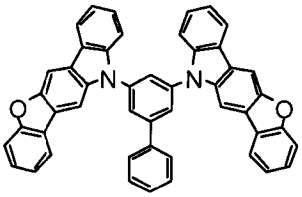
No. 739



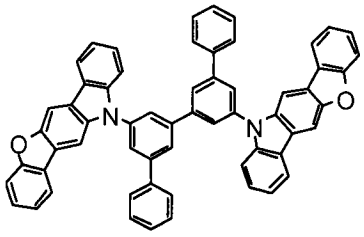
No. 740



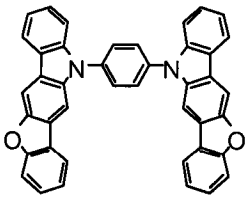
No. 741



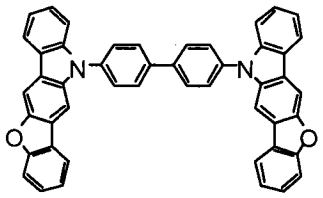
No. 742



No. 743



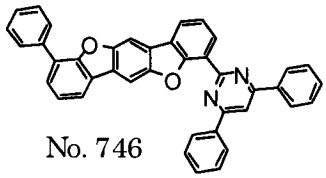
No. 744



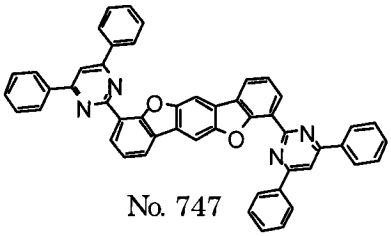
No. 745

[0187]

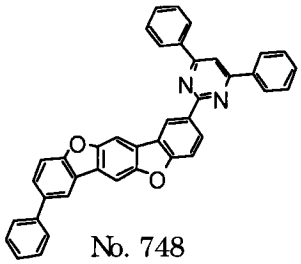
【化 99】



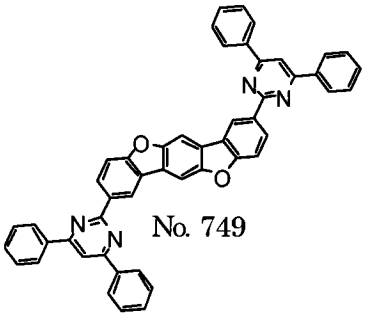
No. 746



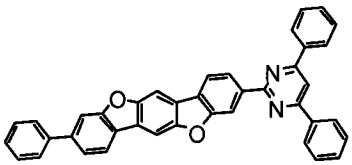
No. 747



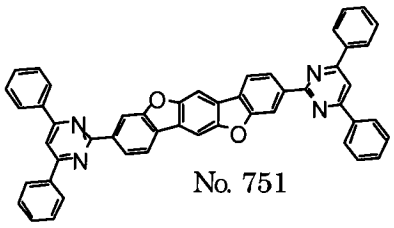
No. 748



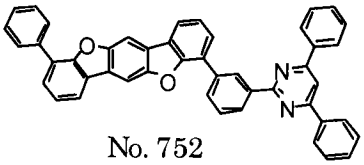
No. 749



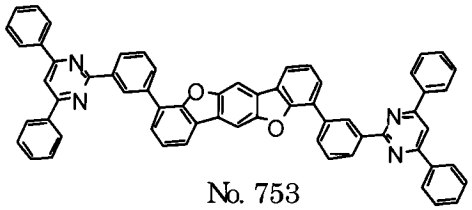
No. 750



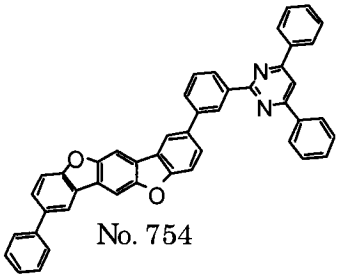
No. 751



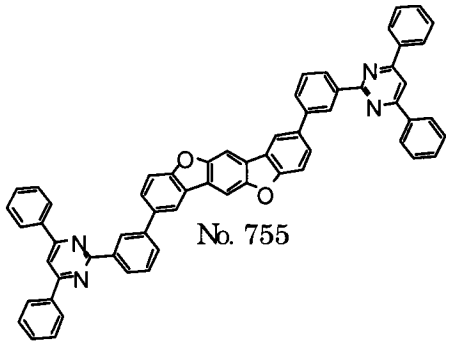
No. 752



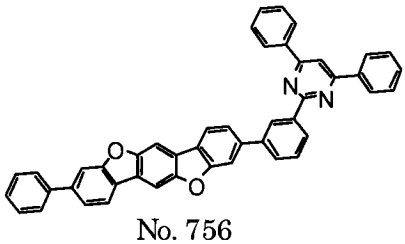
No. 753



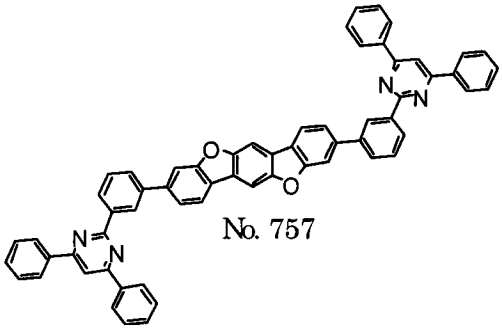
No. 754



No. 755



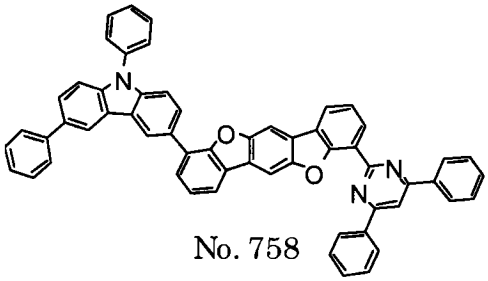
No. 756



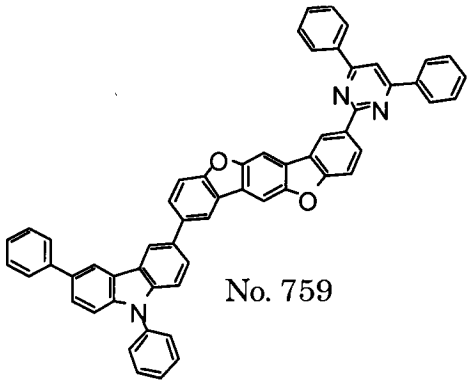
No. 757

[0188]

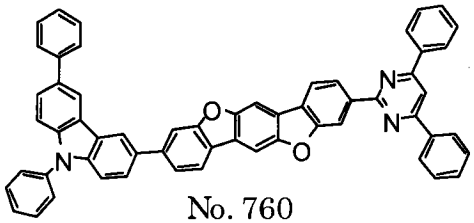
【化 100】



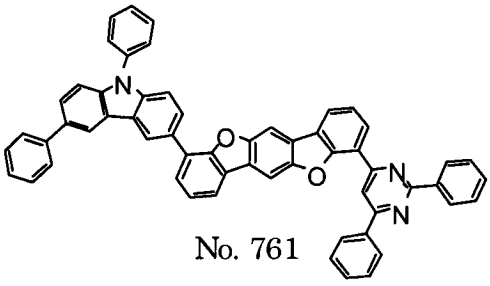
No. 758



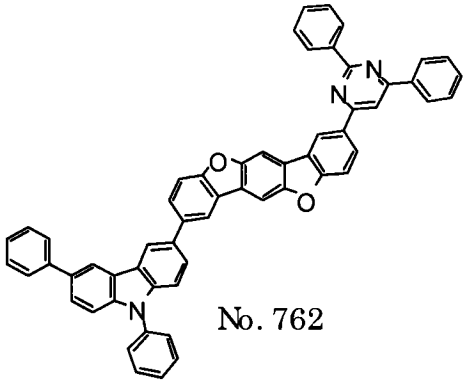
No. 759



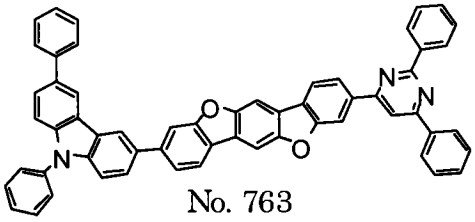
No. 760



No. 761



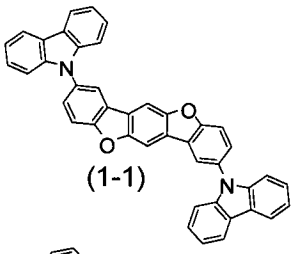
No. 762

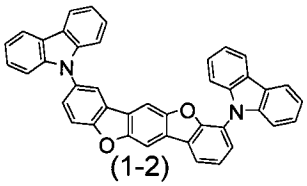


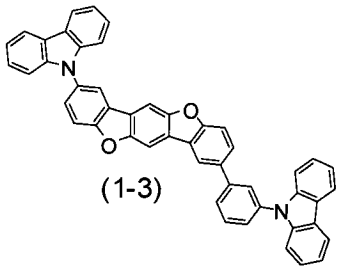
No. 763

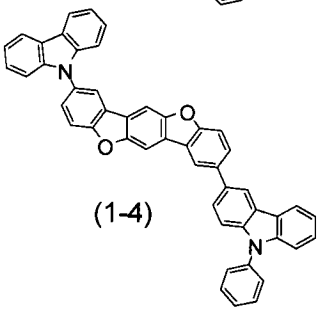
[0189]

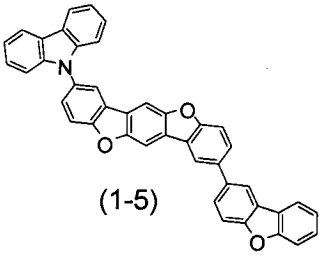
【化 101】

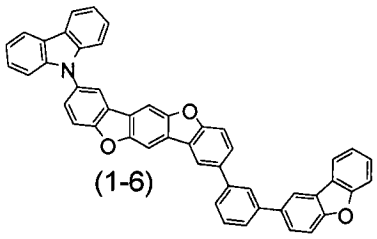

(1-1)

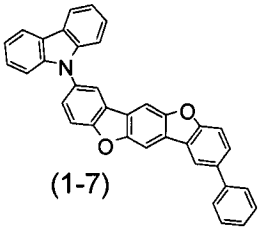

(1-2)

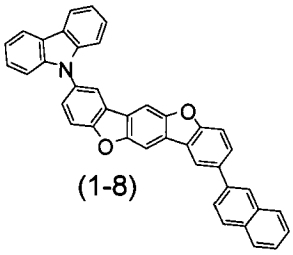

(1-3)

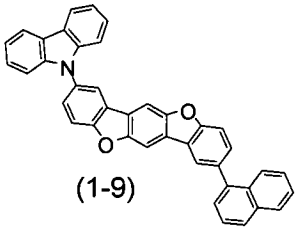

(1-4)

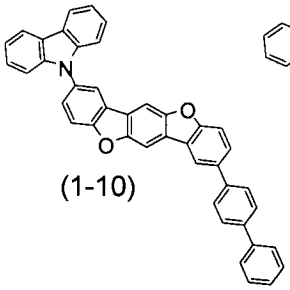

(1-5)

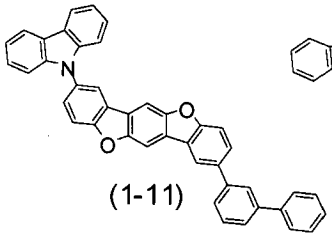

(1-6)

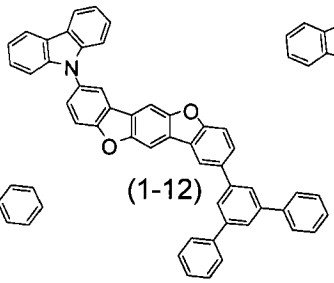

(1-7)

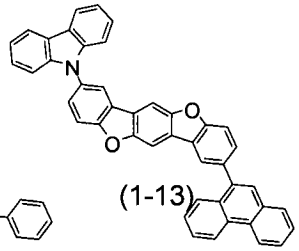

(1-8)

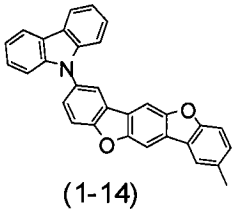

(1-9)

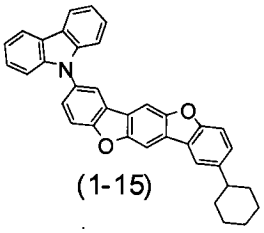

(1-10)

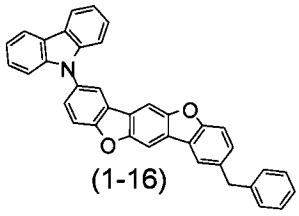

(1-11)

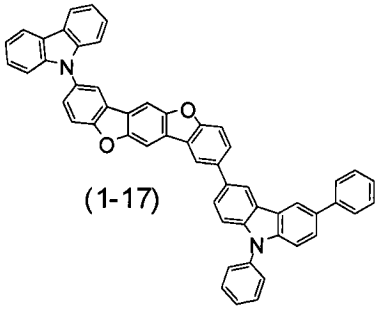

(1-12)

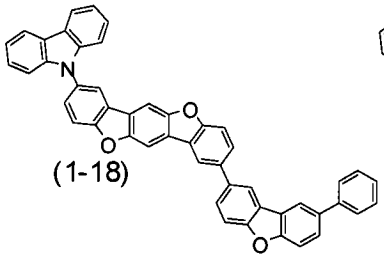

(1-13)

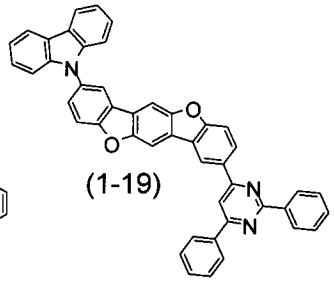

(1-14)


(1-15)


(1-16)

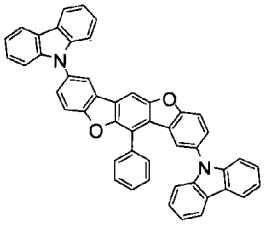

(1-17)

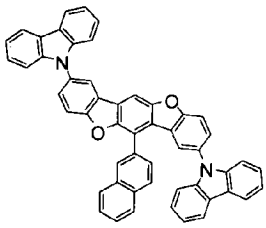

(1-18)

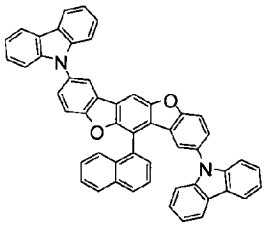

(1-19)

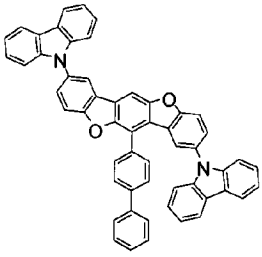
[0190]

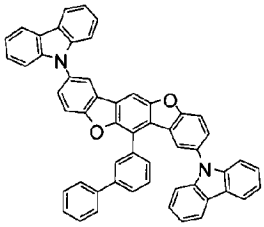
【化 102】

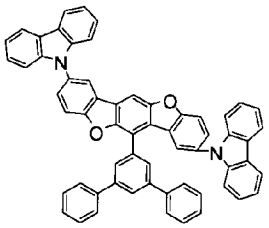

(1-20)

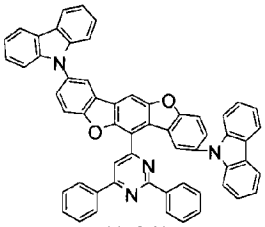

(1-21)

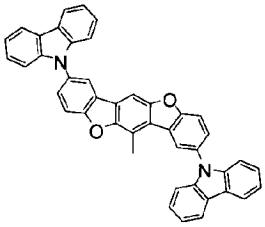

(1-22)

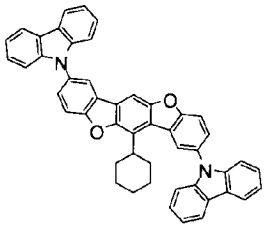

(1-23)

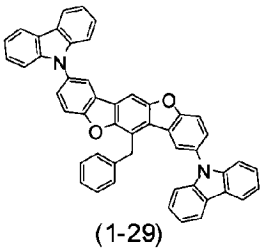

(1-24)

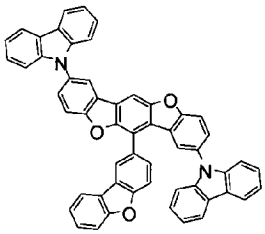

(1-25)

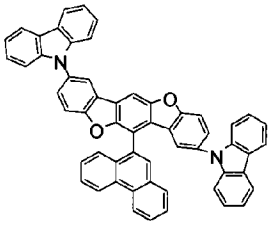

(1-26)

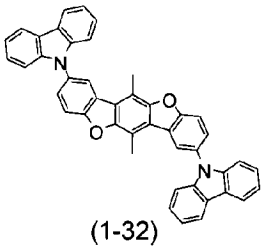

(1-27)

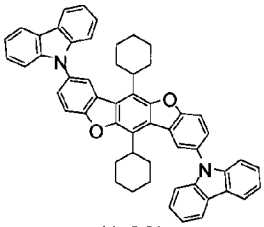

(1-28)

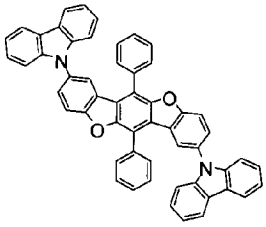

(1-29)


(1-30)


(1-31)

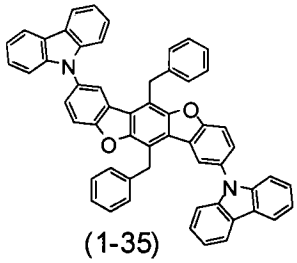

(1-32)


(1-33)

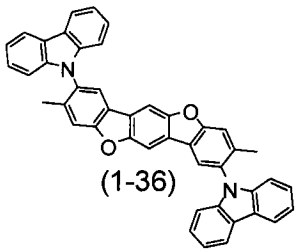

(1-34)

[0191]

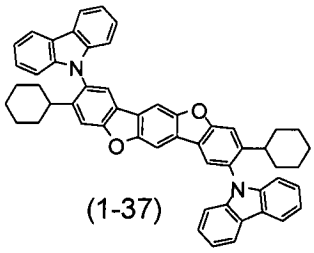
【化 103】



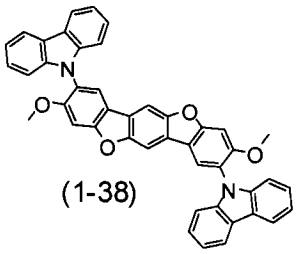
(1-35)



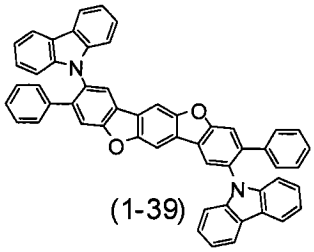
(1-36)



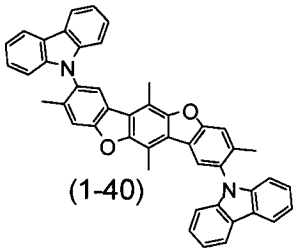
(1-37)



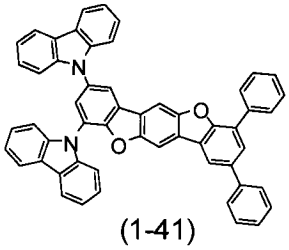
(1-38)



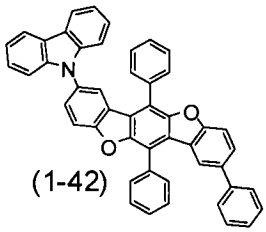
(1-39)



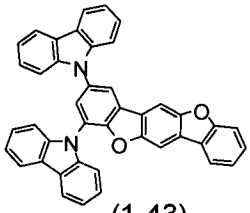
(1-40)



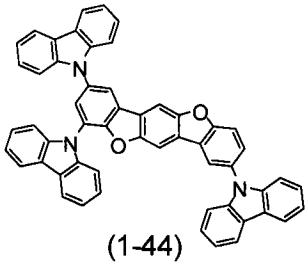
(1-41)



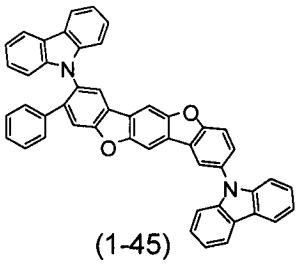
(1-42)



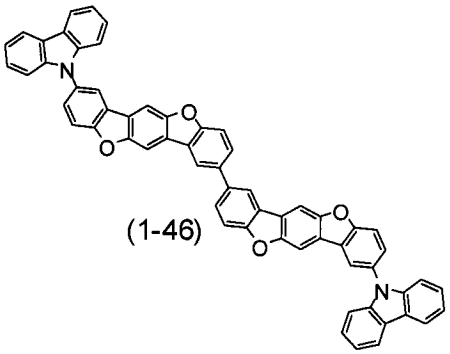
(1-43)



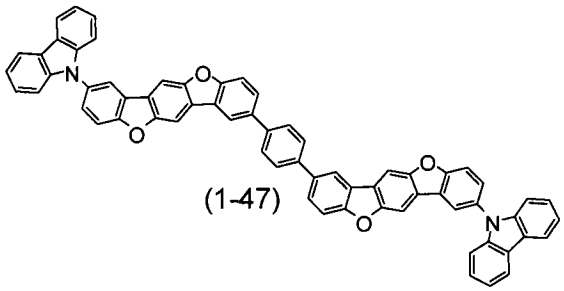
(1-44)



(1-45)



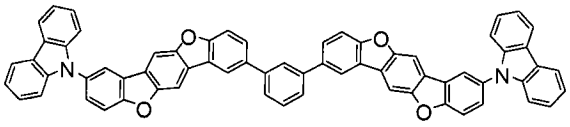
(1-46)



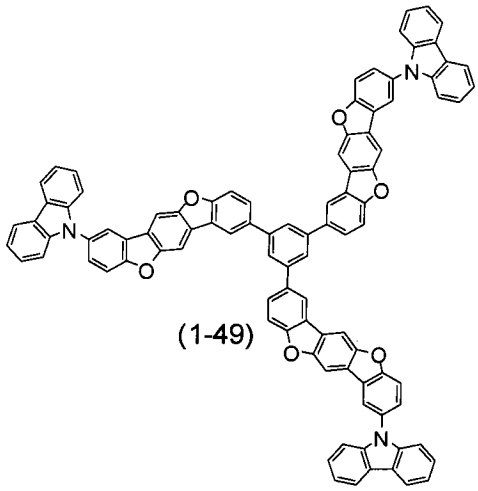
(1-47)

[0192]

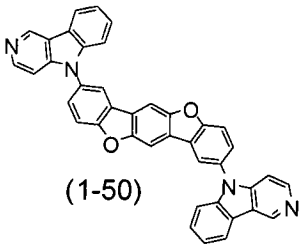
【化 104】



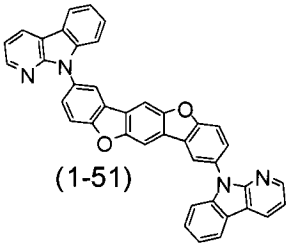
(1-48)



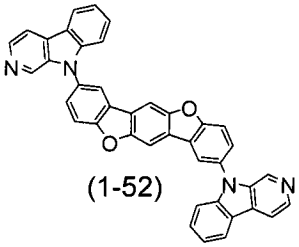
(1-49)



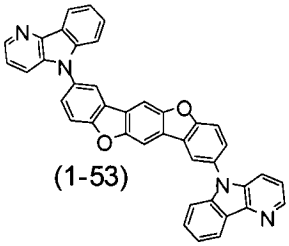
(1-50)



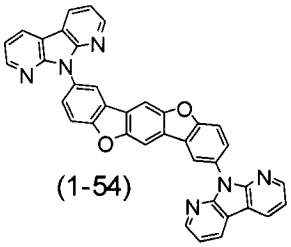
(1-51)



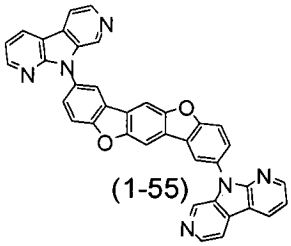
(1-52)



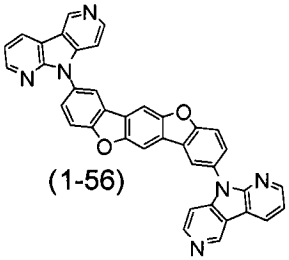
(1-53)



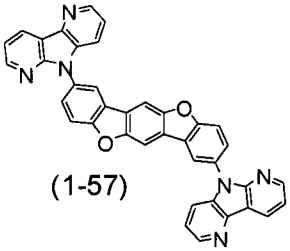
(1-54)



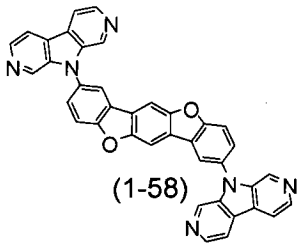
(1-55)



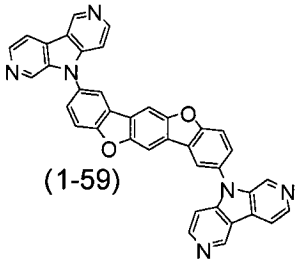
(1-56)



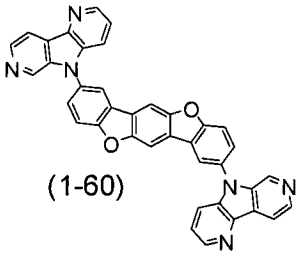
(1-57)



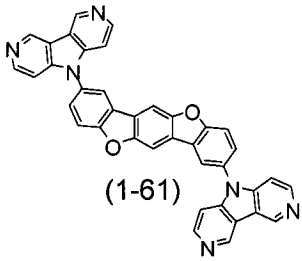
(1-58)



(1-59)



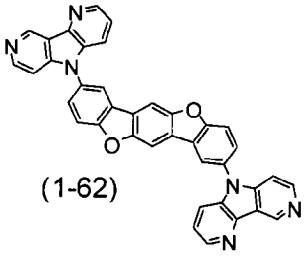
(1-60)



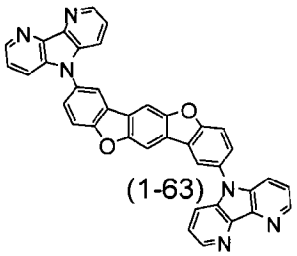
(1-61)

[0193]

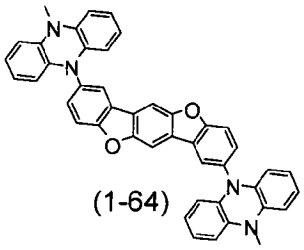
【化 105】



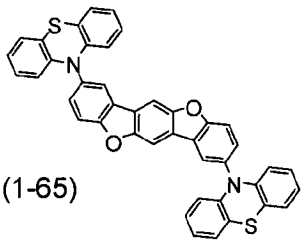
(1-62)



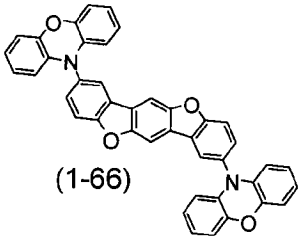
(1-63)



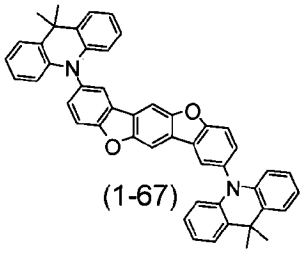
(1-64)



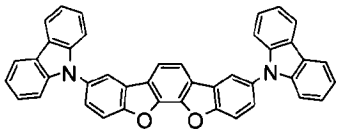
(1-65)



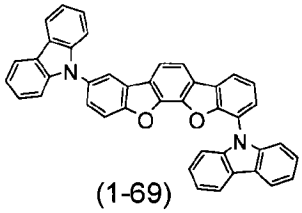
(1-66)



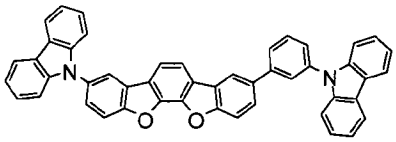
(1-67)



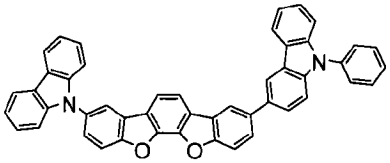
(1-68)



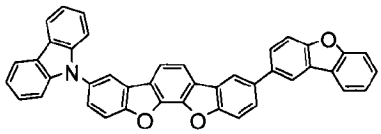
(1-69)



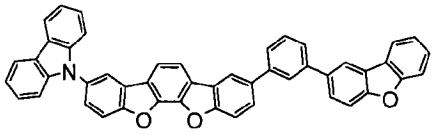
(1-70)



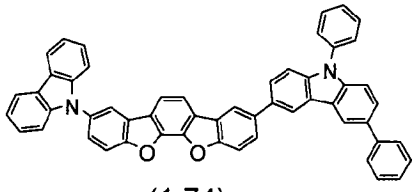
(1-71)



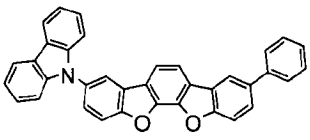
(1-72)



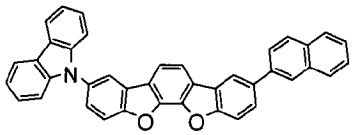
(1-73)



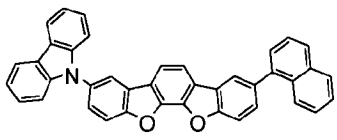
(1-74)



(1-75)



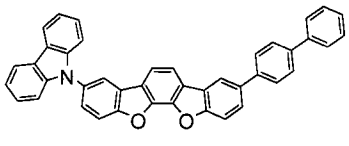
(1-76)

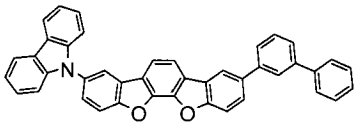


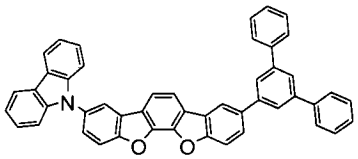
(1-77)

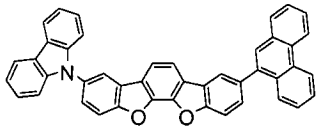
[0194]

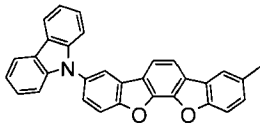
【化 106】

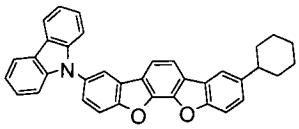

(1-78)

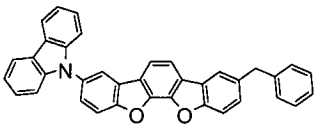

(1-79)

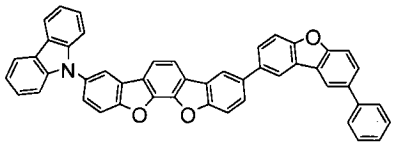

(1-80)

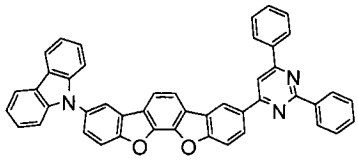

(1-81)

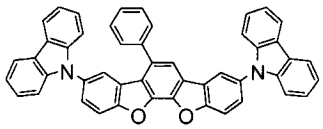

(1-82)

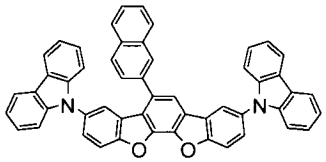

(1-83)

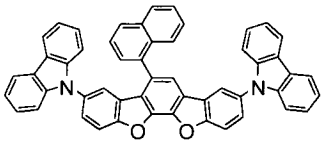

(1-84)

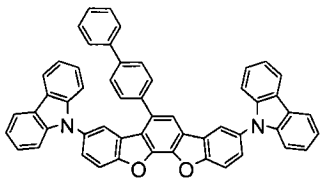

(1-85)

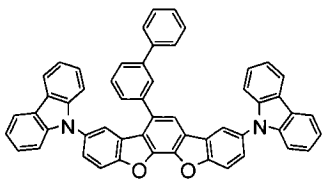

(1-86)

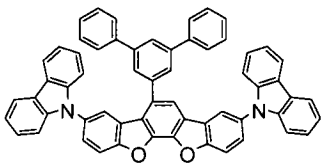

(1-87)

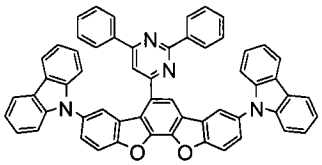

(1-88)

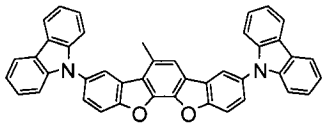

(1-89)

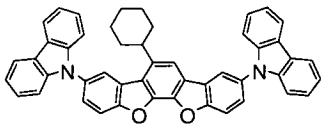

(1-90)

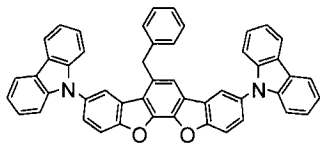

(1-91)

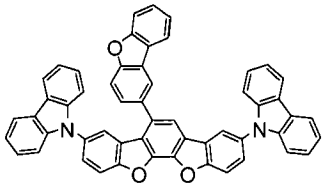

(1-92)

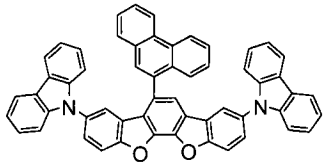

(1-93)


(1-94)


(1-95)

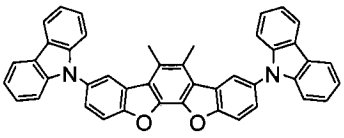

(1-96)


(1-97)

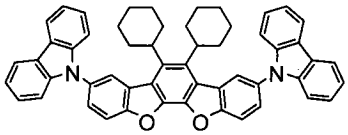

(1-98)

[0195]

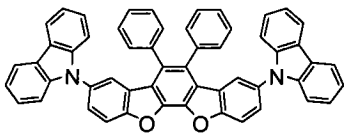
【化 107】



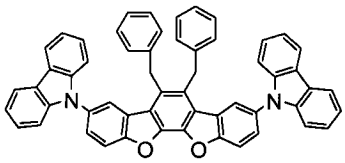
(1-99)



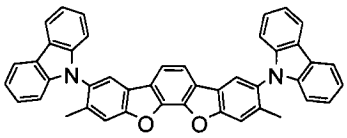
(1-100)



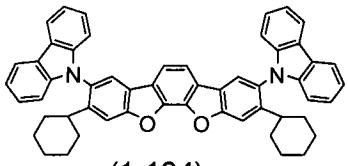
(1-101)



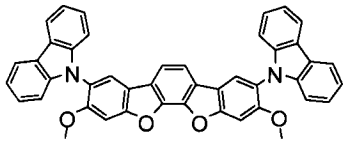
(1-102)



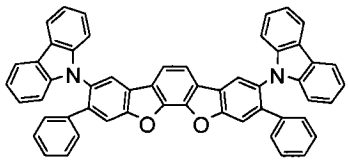
(1-103)



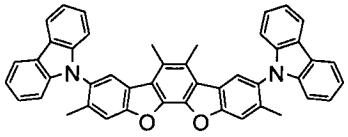
(1-104)



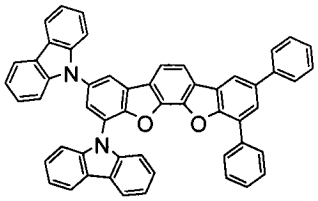
(1-105)



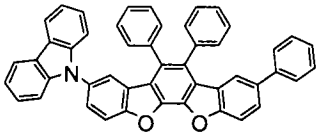
(1-106)



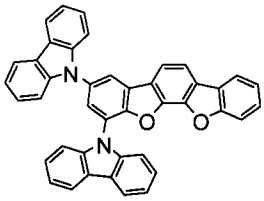
(1-107)



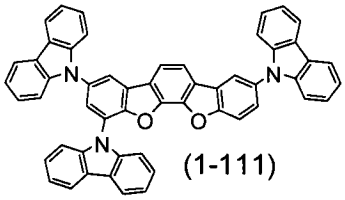
(1-108)



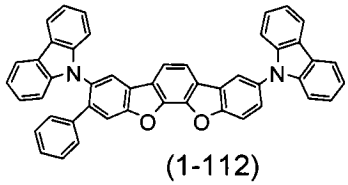
(1-109)



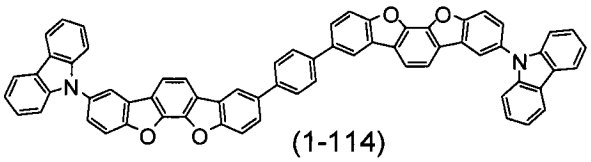
(1-110)



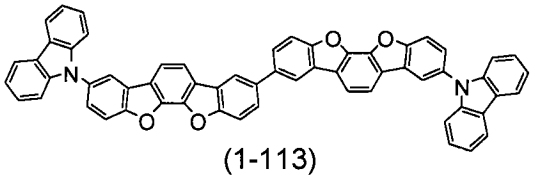
(1-111)



(1-112)



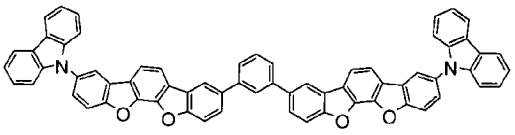
(1-114)



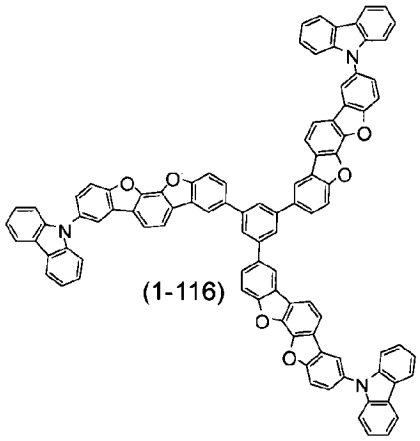
(1-113)

[0196]

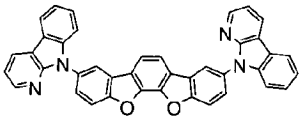
【化 108】



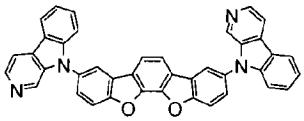
(1-115)



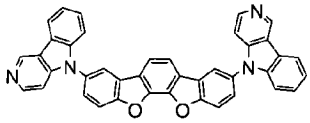
(1-116)



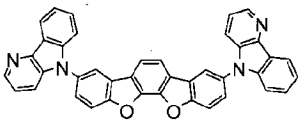
(1-117)



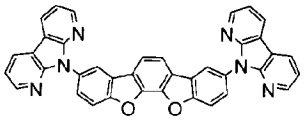
(1-118)



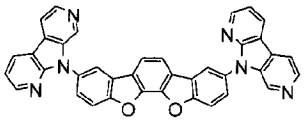
(1-119)



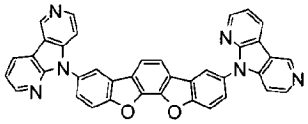
(1-120)



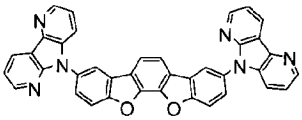
(1-121)



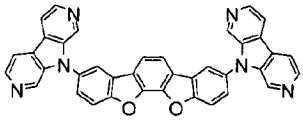
(1-122)



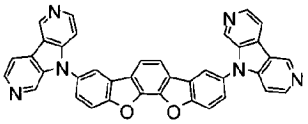
(1-123)



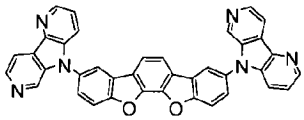
(1-124)



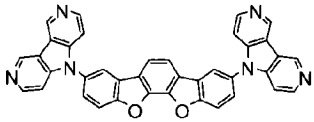
(1-125)



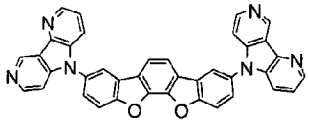
(1-126)



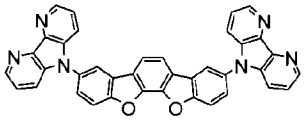
(1-127)



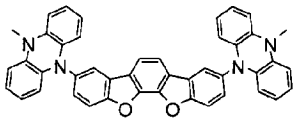
(1-128)



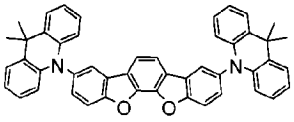
(1-129)



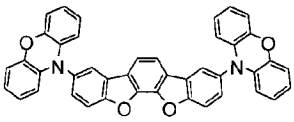
(1-130)



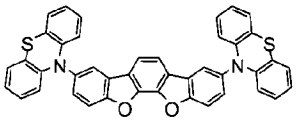
(1-131)



(1-132)



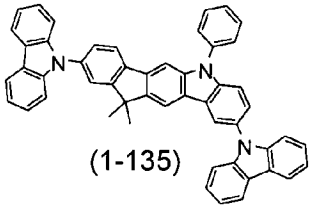
(1-133)

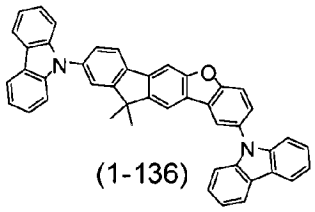


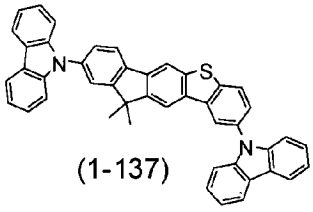
(1-134)

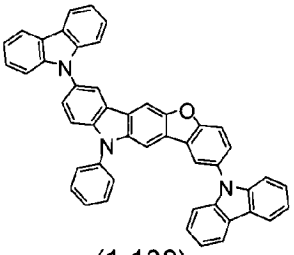
[0197]

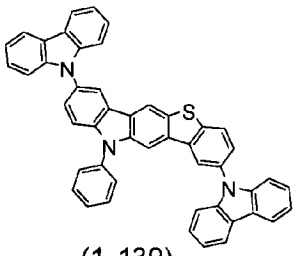
【化 109】

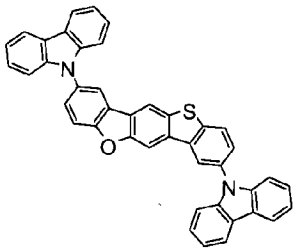

(1-135)

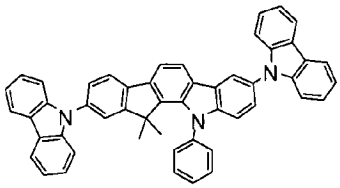

(1-136)

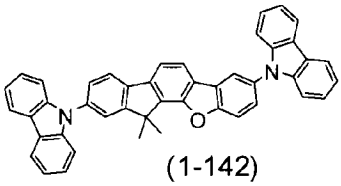

(1-137)

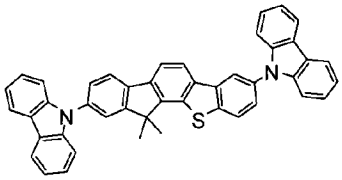

(1-138)

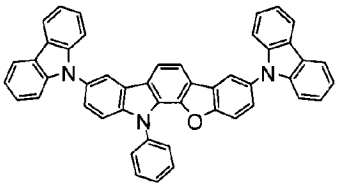

(1-139)

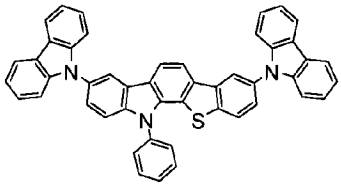

(1-140)

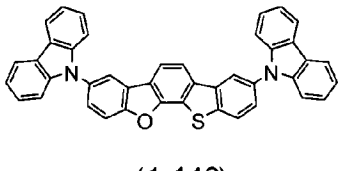

(1-141)


(1-142)


(1-143)

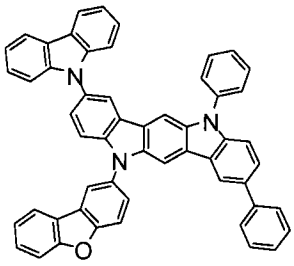

(1-144)


(1-145)

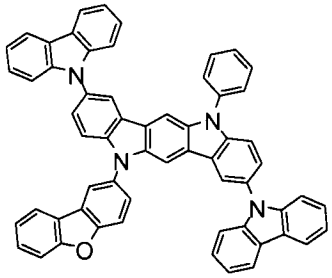

(1-146)

[0198]

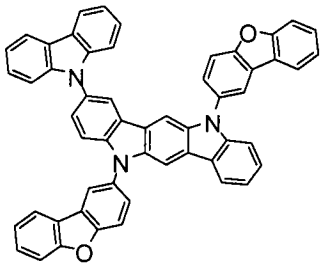
【化 110】



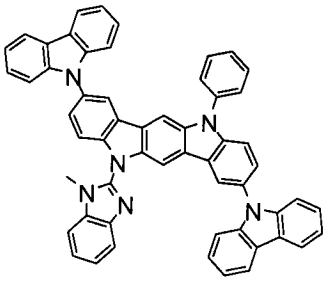
(1-147)



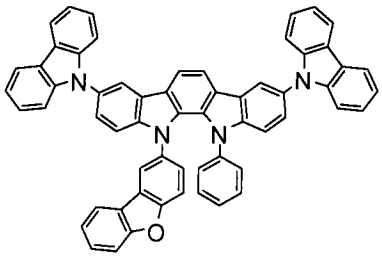
(1-148)



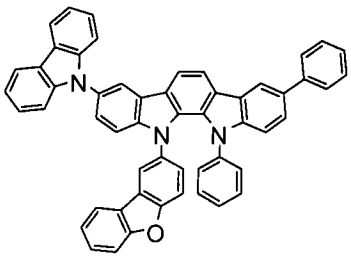
(1-149)



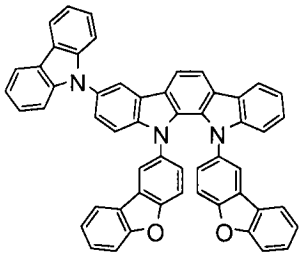
(1-150)



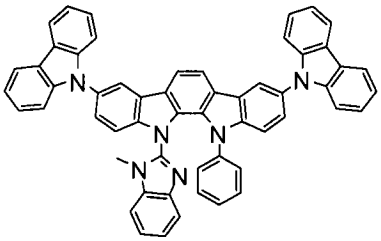
(1-151)



(1-152)



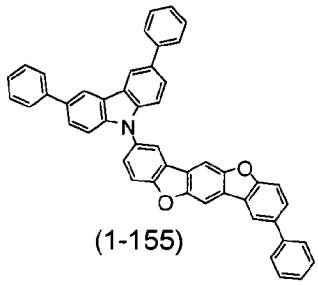
(1-153)



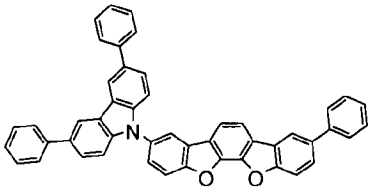
(1-154)

[0199]

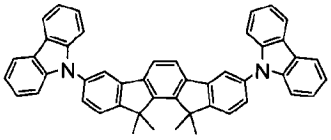
【化 111】



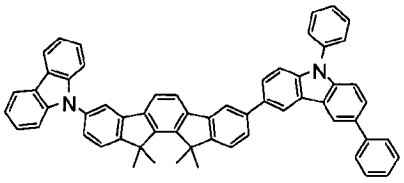
(1-155)



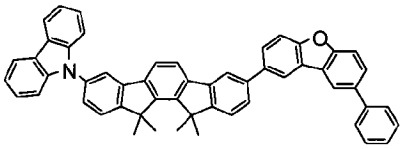
(1-156)



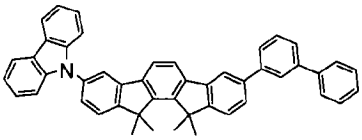
(1-157)



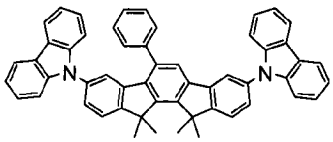
(1-158)



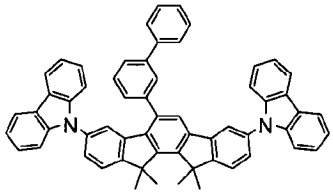
(1-159)



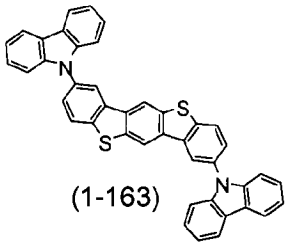
(1-160)



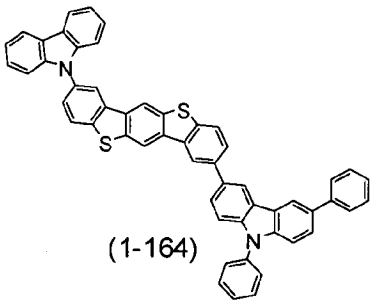
(1-161)



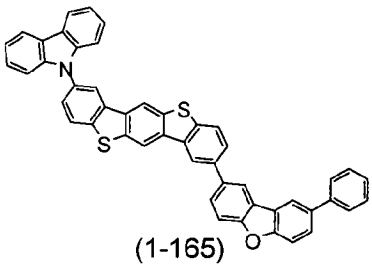
(1-162)



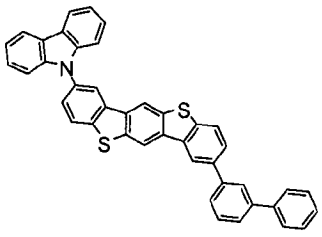
(1-163)



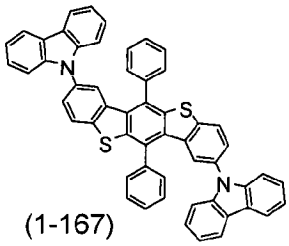
(1-164)



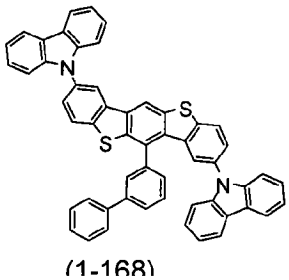
(1-165)



(1-166)



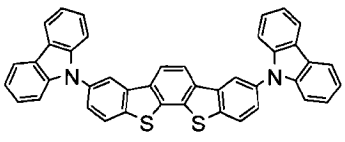
(1-167)



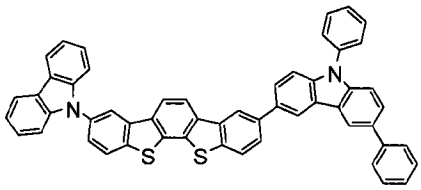
(1-168)

[0200]

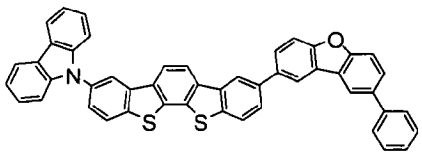
【化 112】



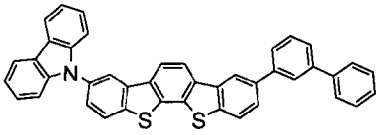
(1-169)



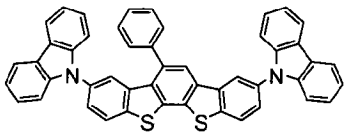
(1-170)



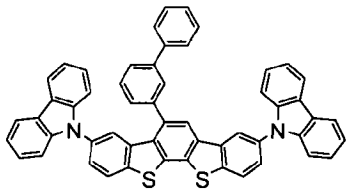
(1-171)



(1-172)



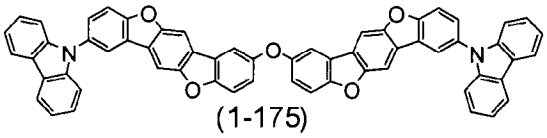
(1-173)



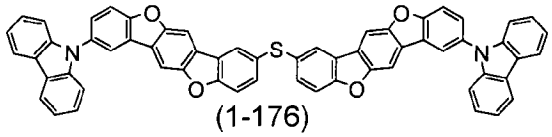
(1-174)

[0201]

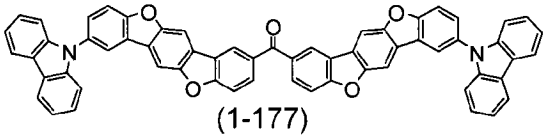
【化 113】



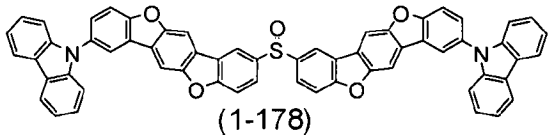
(1-175)



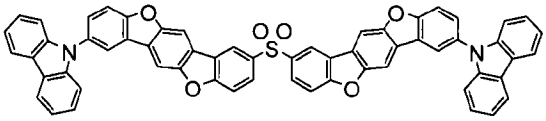
(1-176)



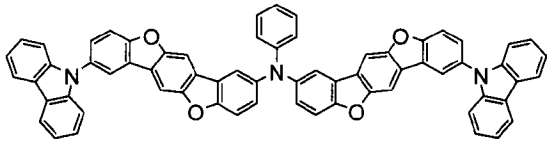
(1-177)



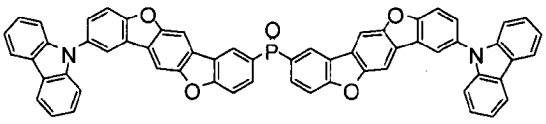
(1-178)



(1-179)



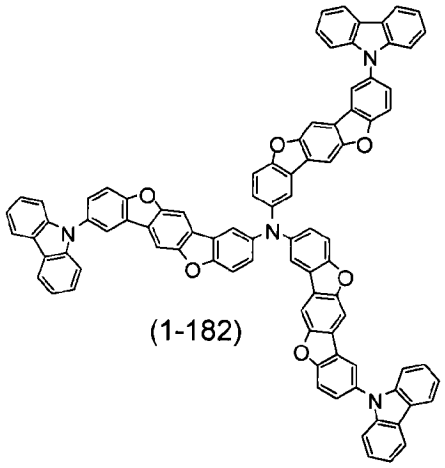
(1-180)



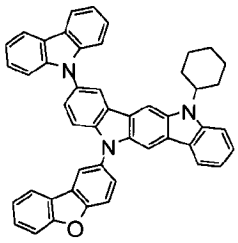
(1-181)

[0202]

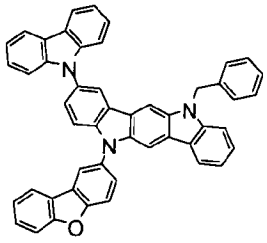
【化 114】



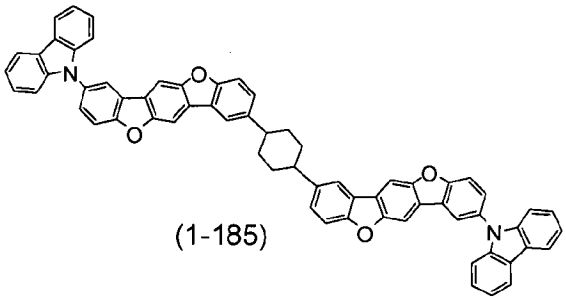
(1-182)



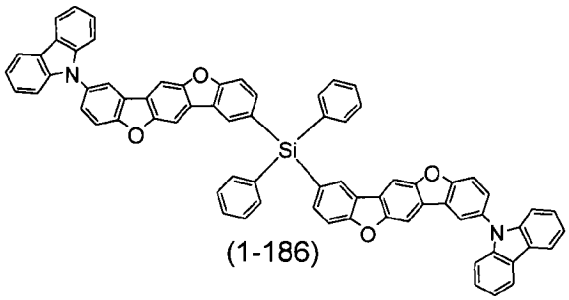
(1-183)



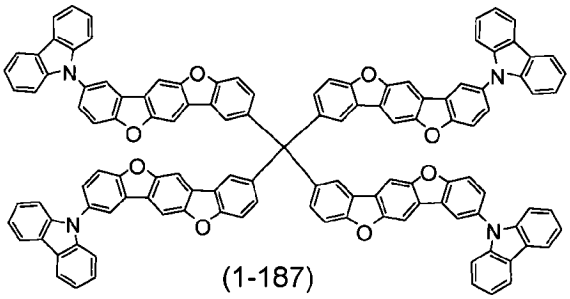
(1-184)



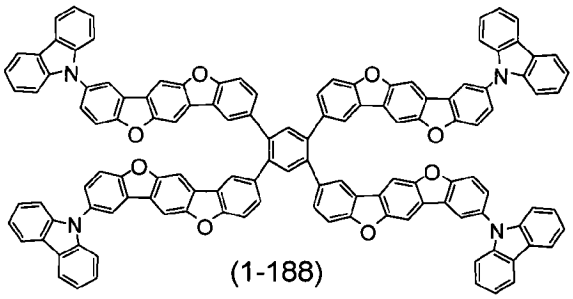
(1-185)



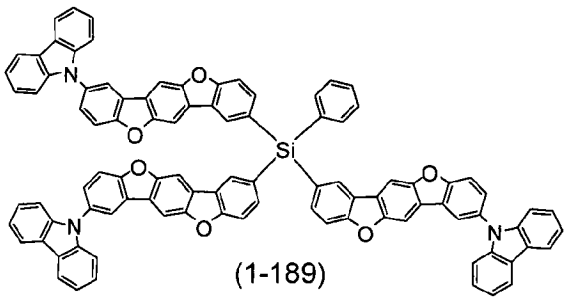
(1-186)



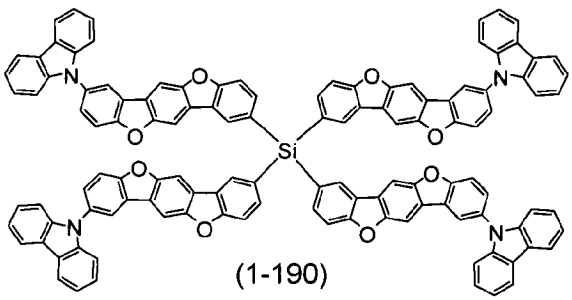
(1-187)



(1-188)



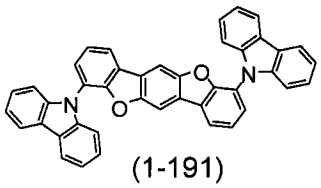
(1-189)

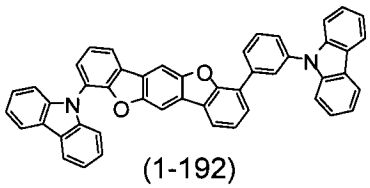


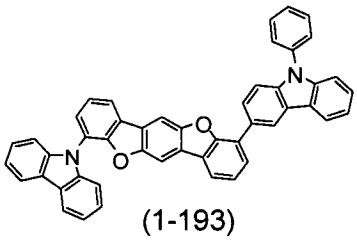
(1-190)

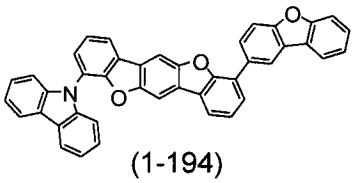
[0203]

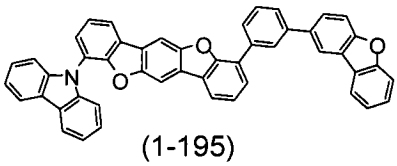
【化 115】

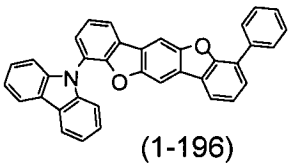

(1-191)

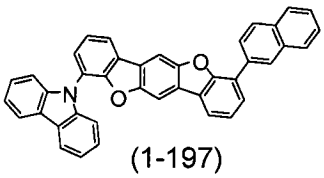

(1-192)

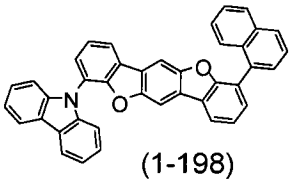

(1-193)

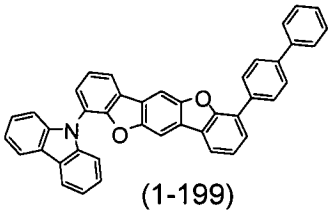

(1-194)

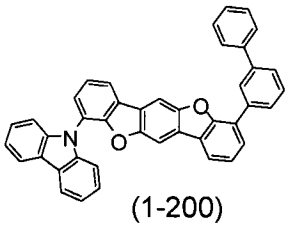

(1-195)

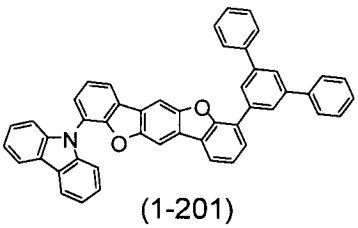

(1-196)

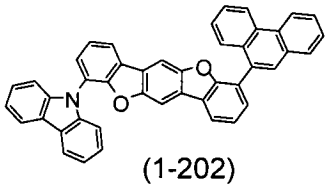

(1-197)

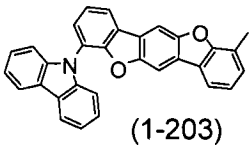

(1-198)

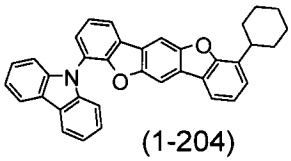

(1-199)

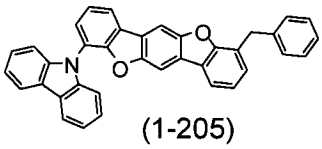

(1-200)

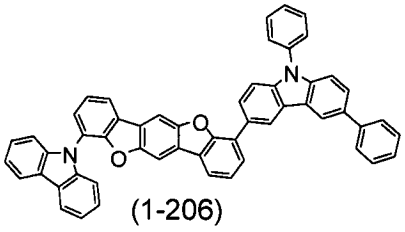

(1-201)

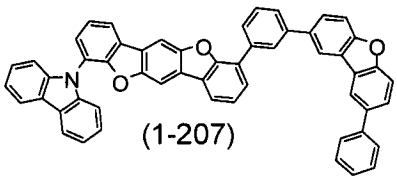

(1-202)

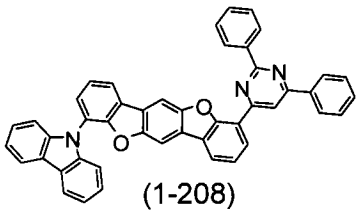

(1-203)


(1-204)


(1-205)

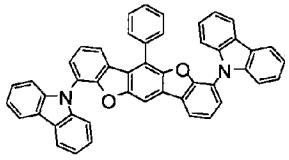

(1-206)

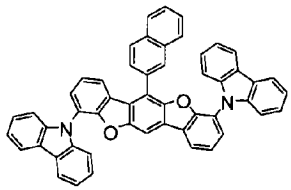

(1-207)

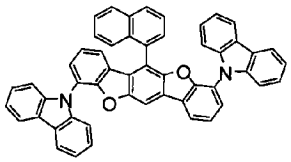

(1-208)

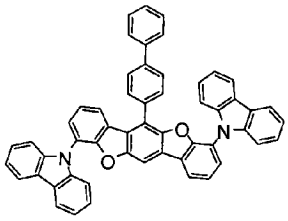
[0204]

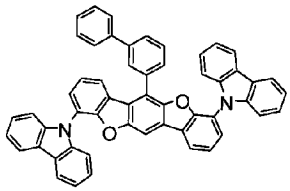
【化 116】

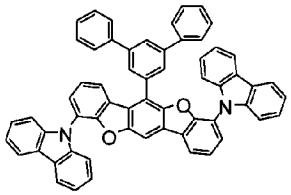

(1-209)

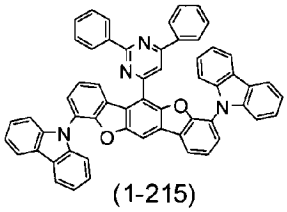

(1-210)

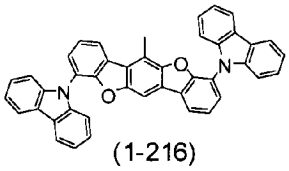

(1-211)

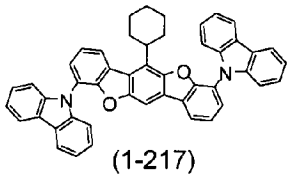

(1-212)

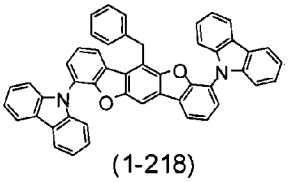

(1-213)

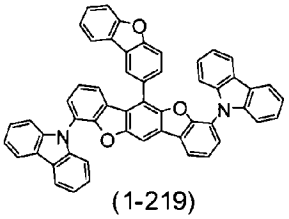

(1-214)

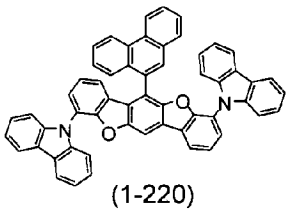

(1-215)

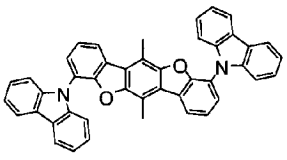

(1-216)

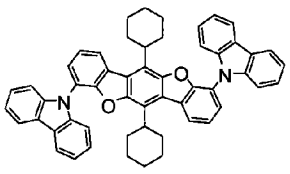

(1-217)

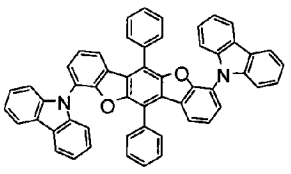

(1-218)


(1-219)


(1-220)

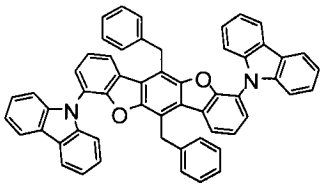

(1-221)


(1-222)

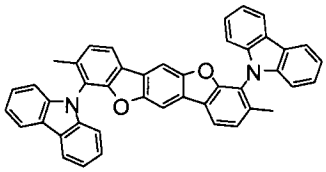

(1-223)

[0205]

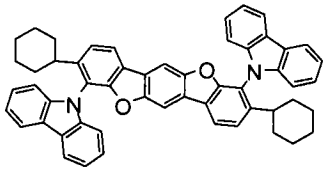
【化 117】



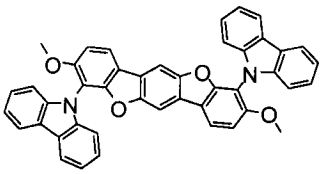
(1-224)



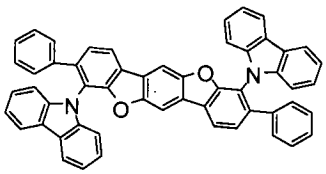
(1-225)



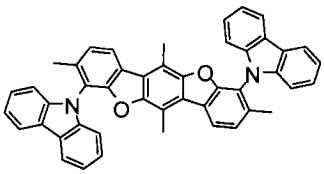
(1-226)



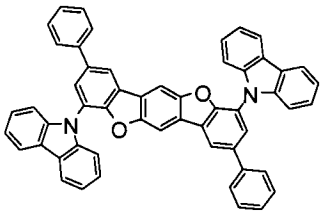
(1-227)



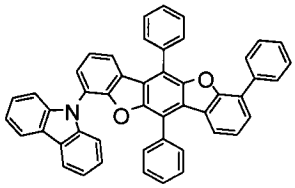
(1-228)



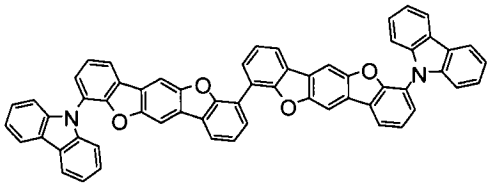
(1-229)



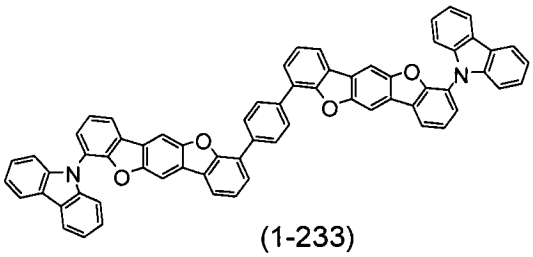
(1-230)



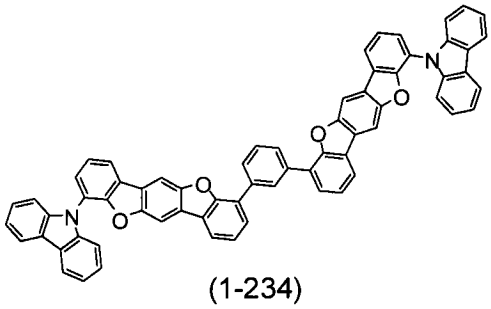
(1-231)



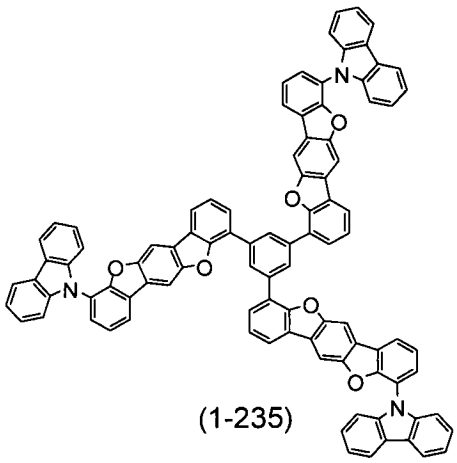
(1-232)



(1-233)



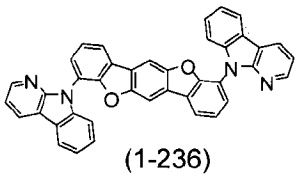
(1-234)

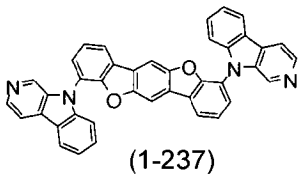


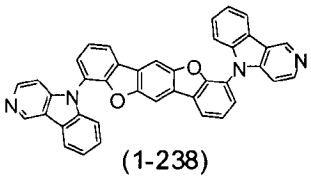
(1-235)

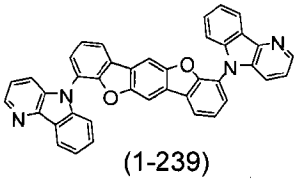
[0206]

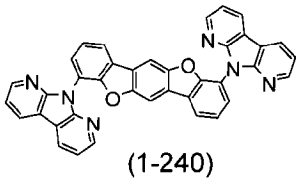
【化 118】

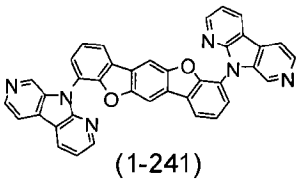

(1-236)

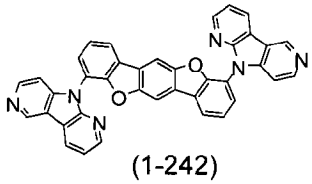

(1-237)

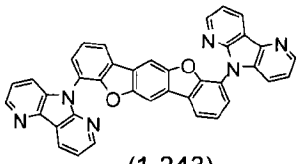

(1-238)

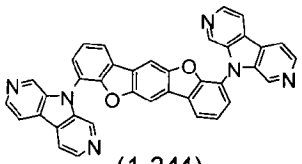

(1-239)

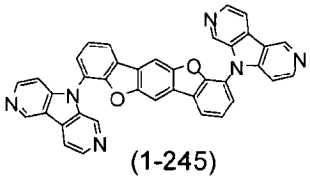

(1-240)

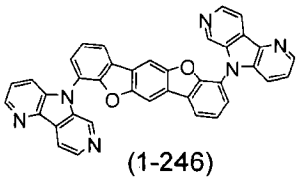

(1-241)

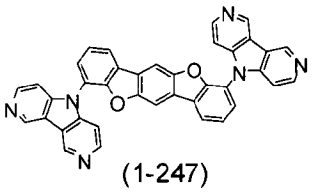

(1-242)

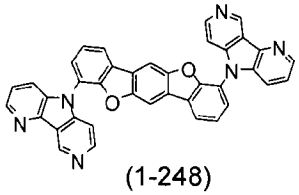

(1-243)

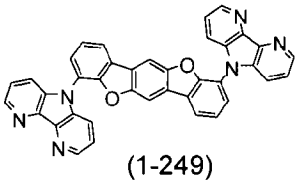

(1-244)

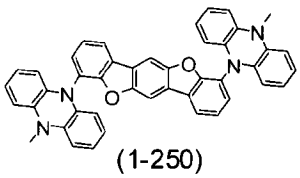

(1-245)

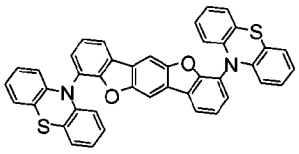

(1-246)

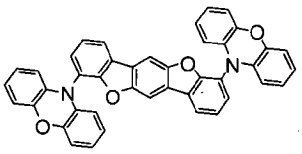

(1-247)

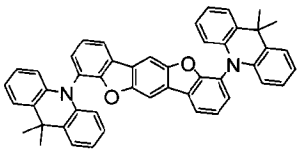

(1-248)

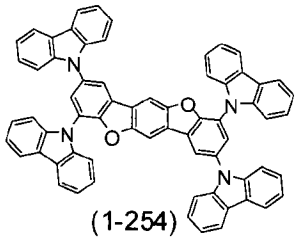

(1-249)

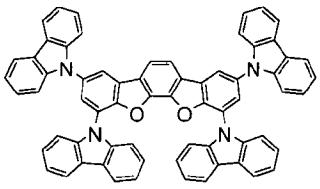

(1-250)


(1-251)


(1-252)

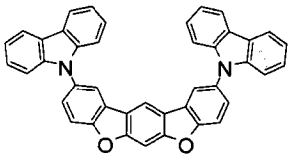

(1-253)

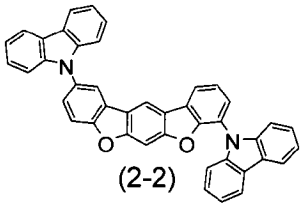

(1-254)

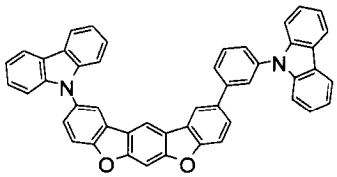

(1-255)

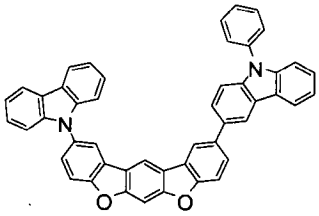
[0207]

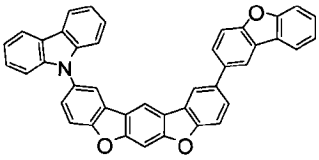
【化 119】

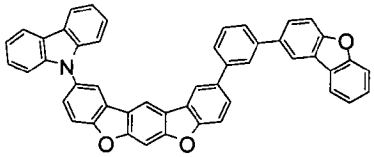

(2-1)

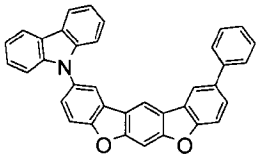

(2-2)

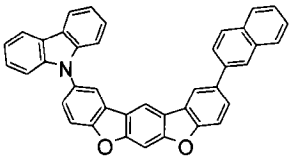

(2-3)

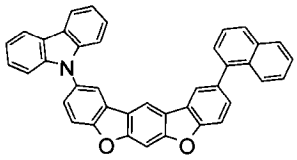

(2-4)

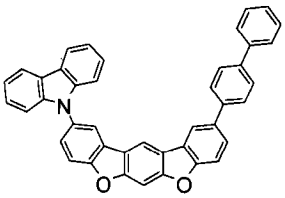

(2-5)

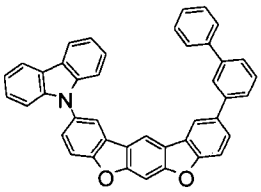

(2-6)

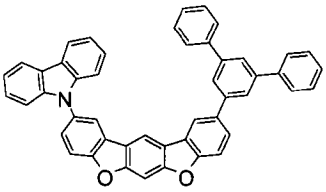

(2-7)

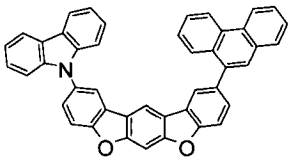

(2-8)

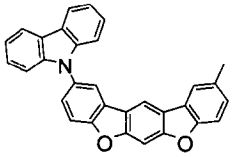

(2-9)

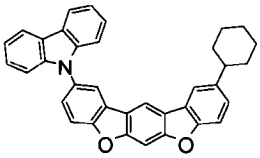

(2-10)

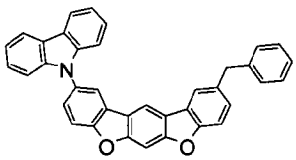

(2-11)

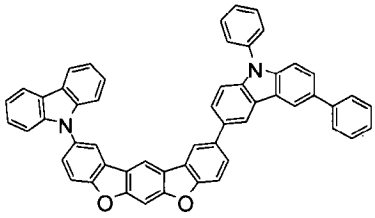

(2-12)

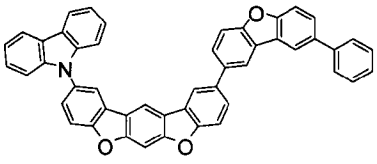

(2-13)

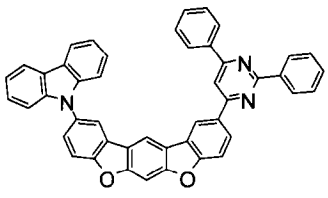

(2-14)


(2-15)


(2-16)

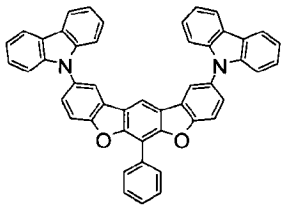

(2-17)


(2-18)

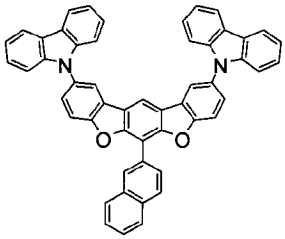

(2-19)

[0208]

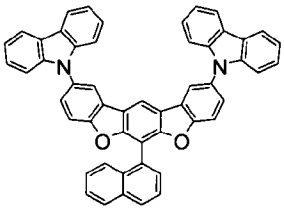
【化 120】



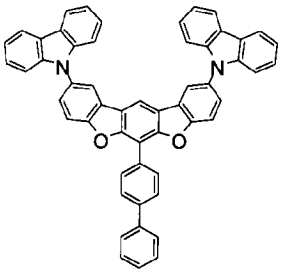
(2-20)



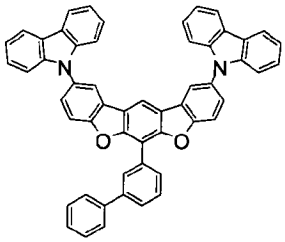
(2-21)



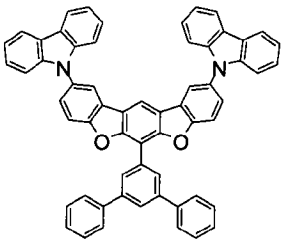
(2-22)



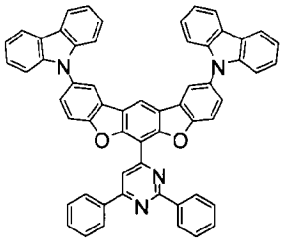
(2-23)



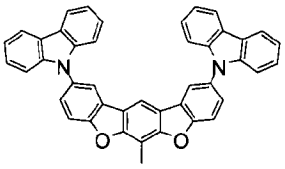
(2-24)



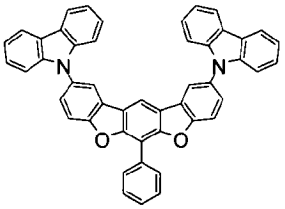
(2-25)



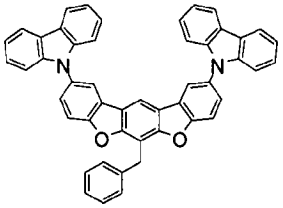
(2-26)



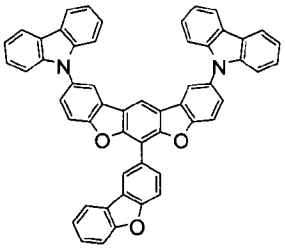
(2-27)



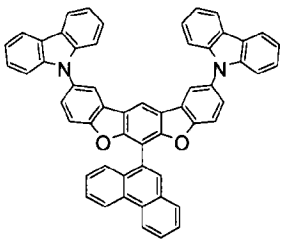
(2-28)



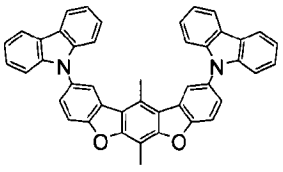
(2-29)



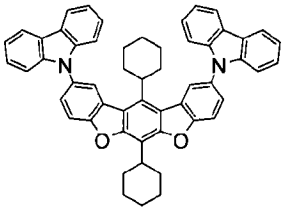
(2-30)



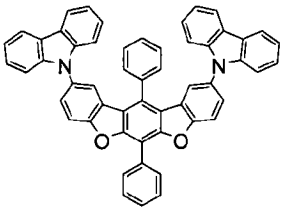
(2-31)



(2-32)



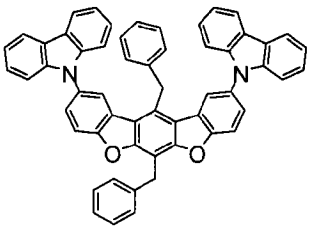
(2-33)



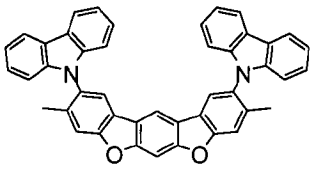
(2-34)

[0209]

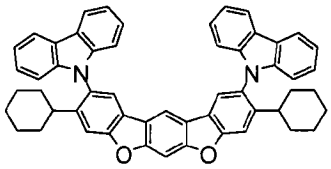
【化 121】



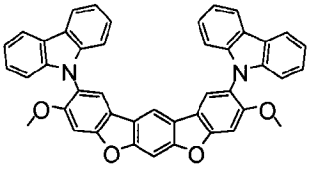
(2-35)



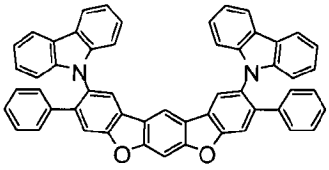
(2-36)



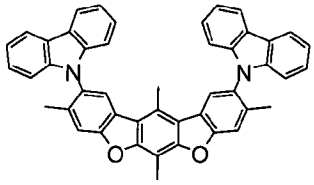
(2-37)



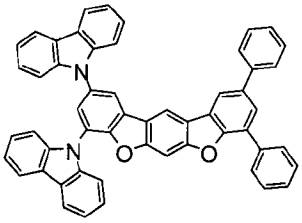
(2-38)



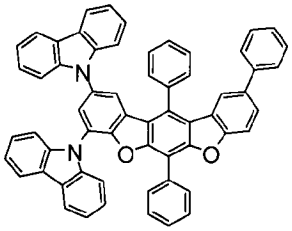
(2-39)



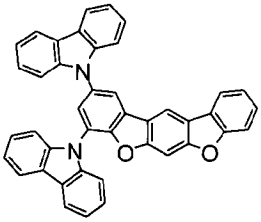
(2-40)



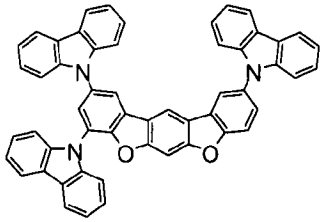
(2-41)



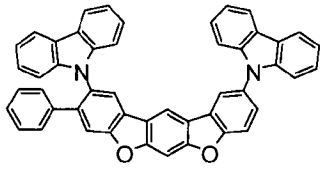
(2-42)



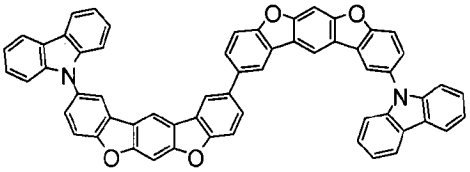
(2-43)



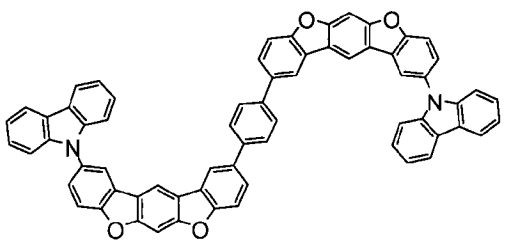
(2-44)



(2-45)



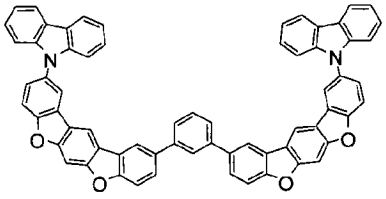
(2-46)



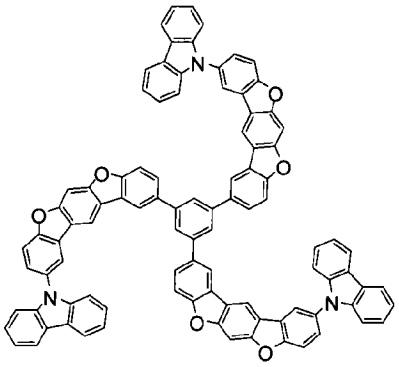
(2-47)

[0210]

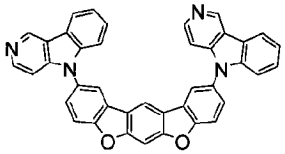
【化 122】



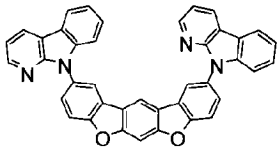
(2-48)



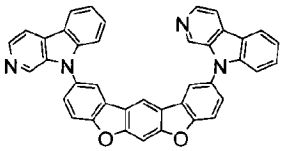
(2-49)



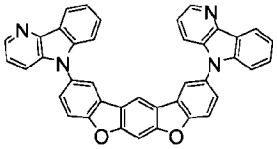
(2-50)



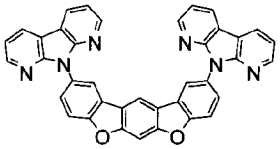
(2-51)



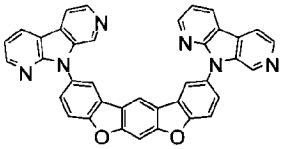
(2-52)



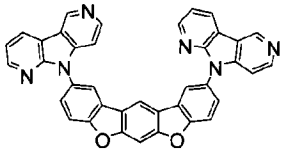
(2-53)



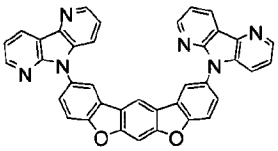
(2-54)



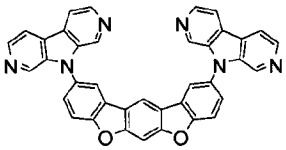
(2-55)



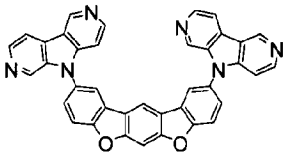
(2-56)



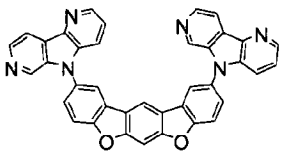
(2-57)



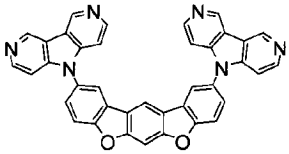
(2-58)



(2-59)



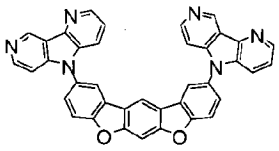
(2-60)

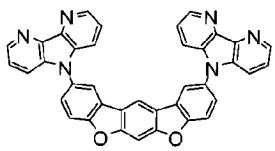


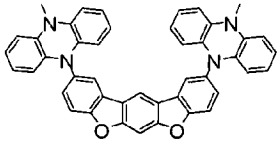
(2-61)

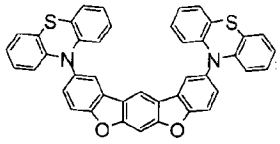
[0211]

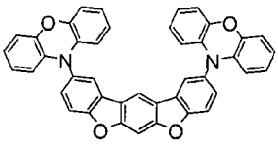
【化 123】

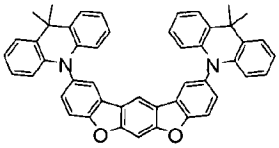

(2-62)

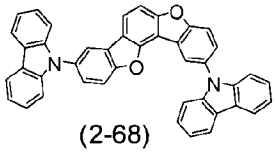

(2-63)

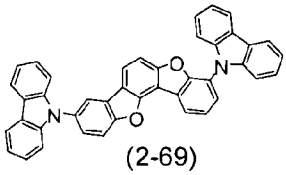

(2-64)

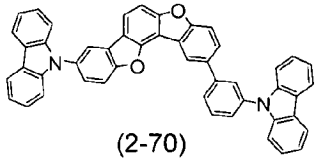

(2-65)

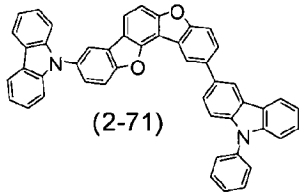

(2-66)

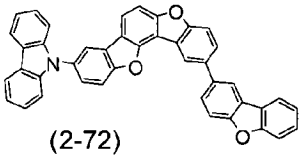

(2-67)

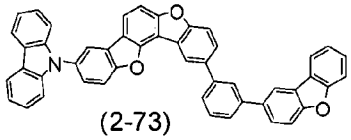

(2-68)

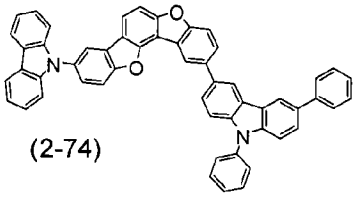

(2-69)

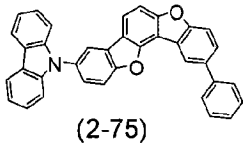

(2-70)

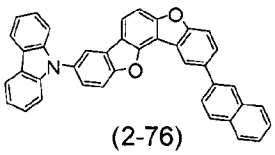

(2-71)

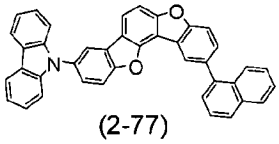

(2-72)


(2-73)


(2-74)

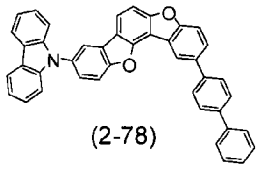

(2-75)

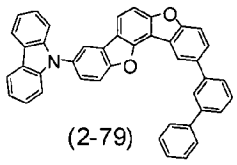

(2-76)

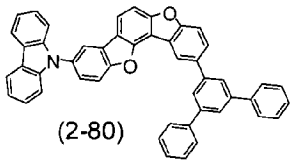

(2-77)

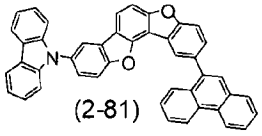
[0212]

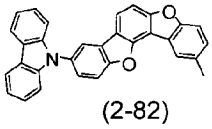
【化 124】

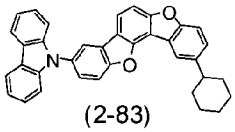

(2-78)

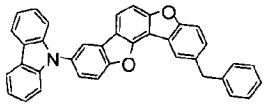

(2-79)

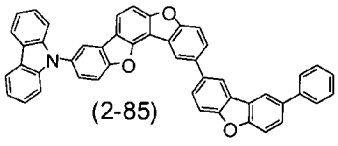

(2-80)

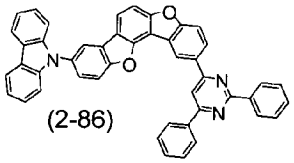

(2-81)

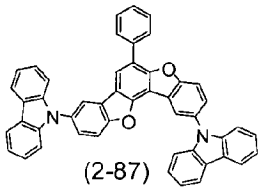

(2-82)

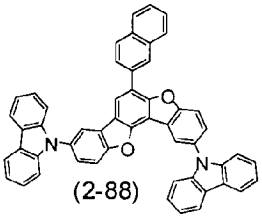

(2-83)

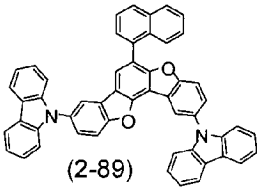

(2-84)

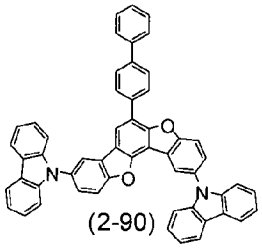

(2-85)

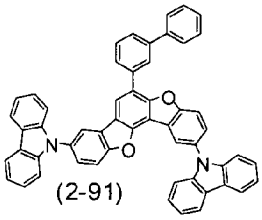

(2-86)

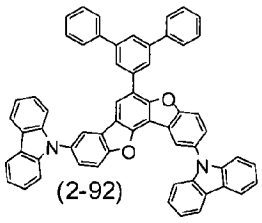

(2-87)

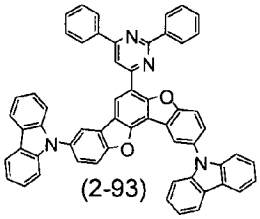

(2-88)

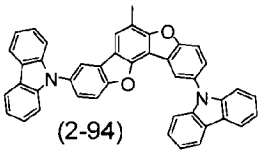

(2-89)

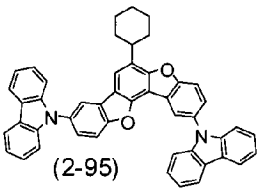

(2-90)

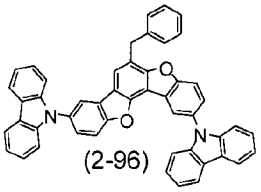

(2-91)

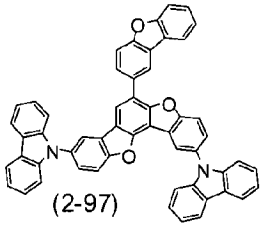

(2-92)

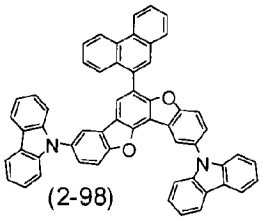

(2-93)


(2-94)


(2-95)

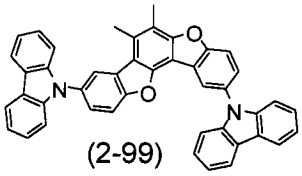

(2-96)

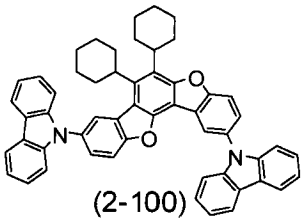

(2-97)

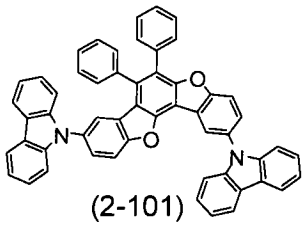

(2-98)

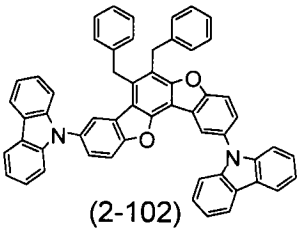
[0213]

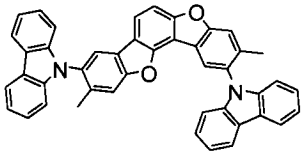
【化 125】

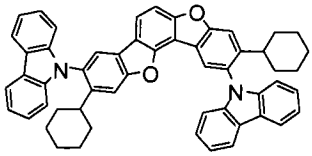

(2-99)

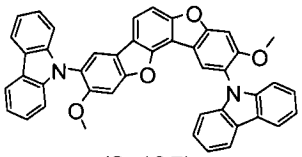

(2-100)

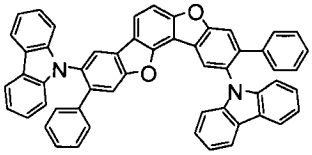

(2-101)

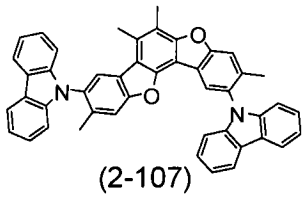

(2-102)

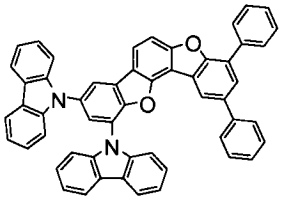

(2-103)

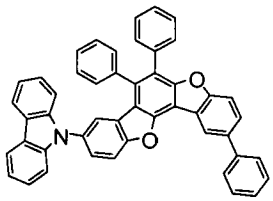

(2-104)

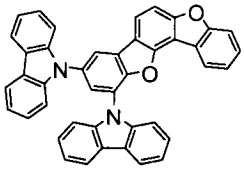

(2-105)

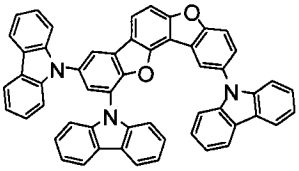

(2-106)

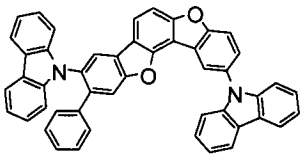

(2-107)

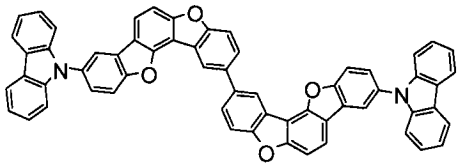

(2-108)

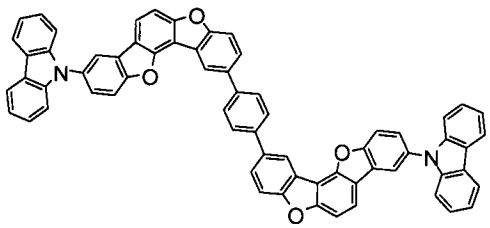

(2-109)


(2-110)


(2-111)

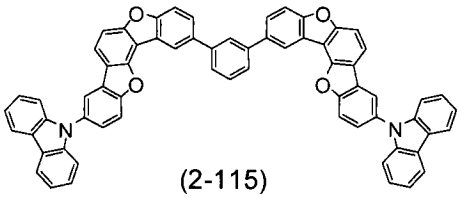

(2-112)

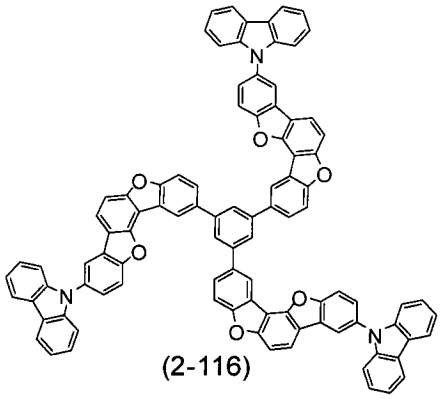

(2-113)

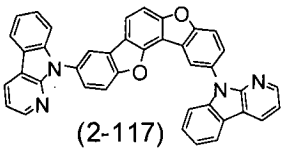

(2-114)

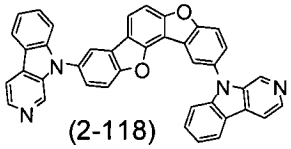
[0214]

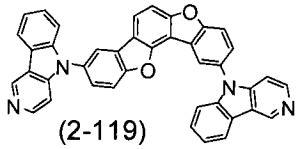
【化 126】

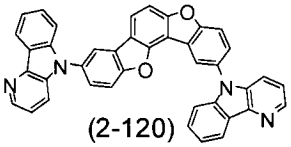

(2-115)

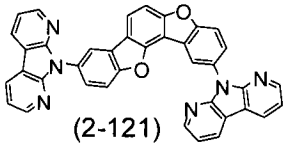

(2-116)

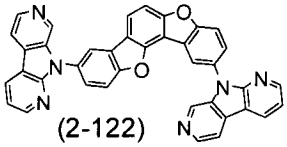

(2-117)

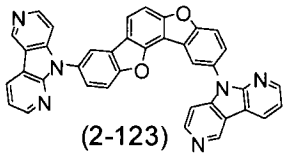

(2-118)

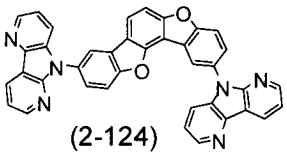

(2-119)

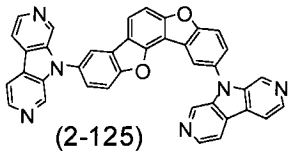

(2-120)

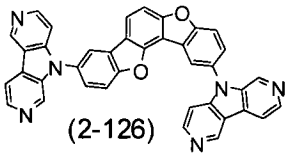

(2-121)

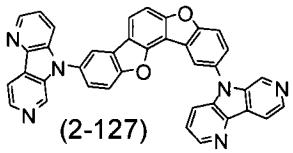

(2-122)

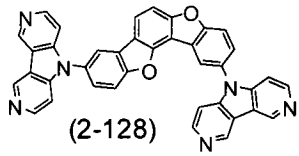

(2-123)

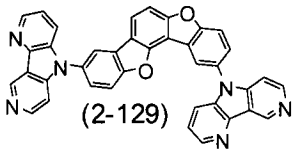

(2-124)

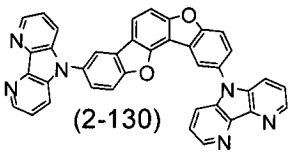

(2-125)

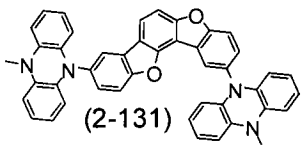

(2-126)

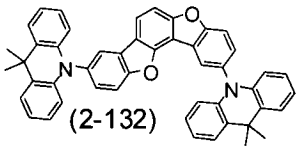

(2-127)

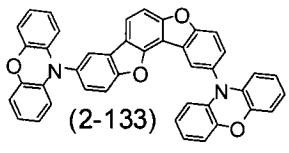

(2-128)

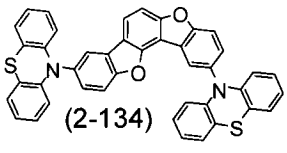

(2-129)


(2-130)


(2-131)

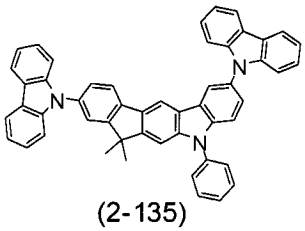

(2-132)

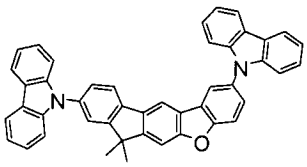

(2-133)

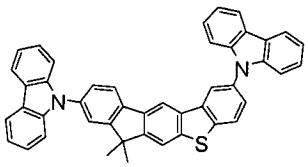

(2-134)

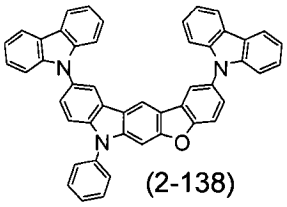
[0215]

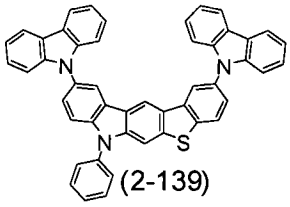
【化 127】

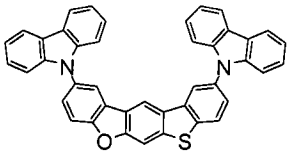

(2-135)

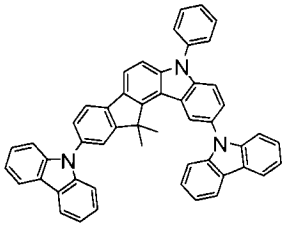

(2-136)

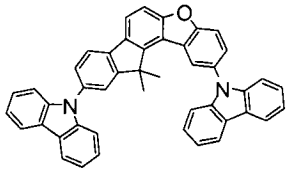

(2-137)

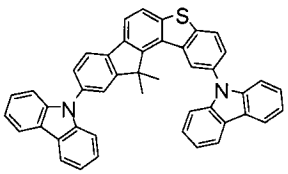

(2-138)

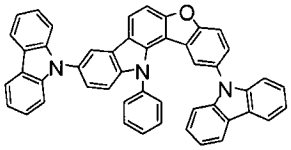

(2-139)

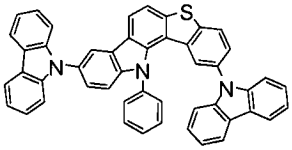

(2-140)

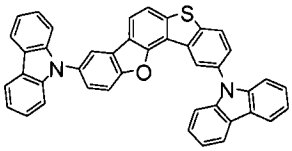

(2-141)


(2-142)


(2-143)

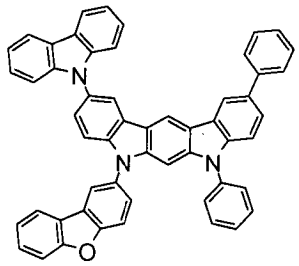

(2-144)


(2-145)

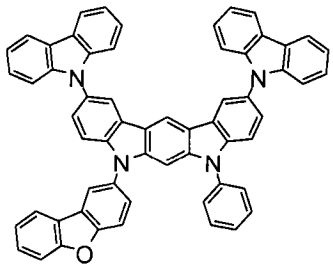

(2-146)

[0216]

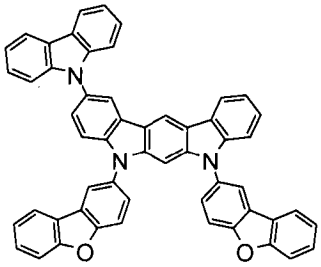
【化 128】



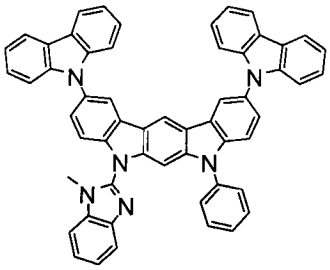
(2-147)



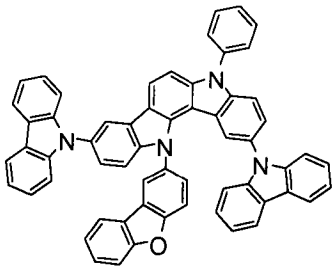
(2-148)



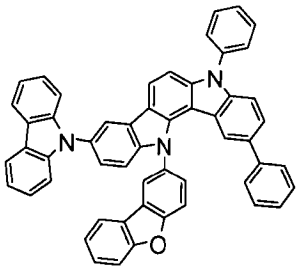
(2-149)



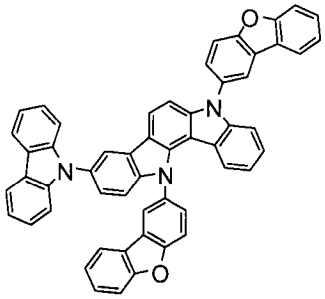
(2-150)



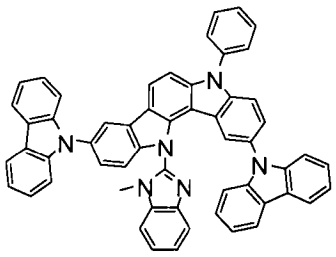
(2-151)



(2-152)



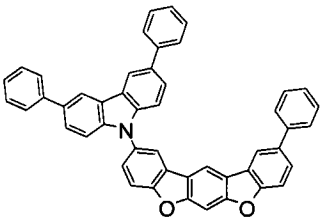
(2-153)

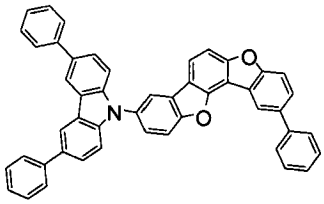


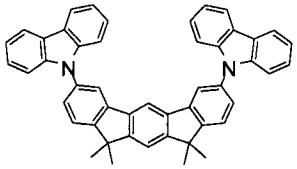
(2-154)

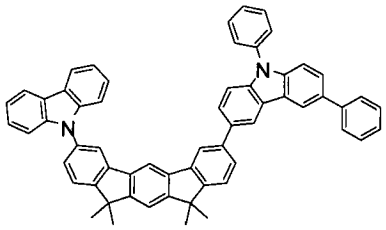
[0217]

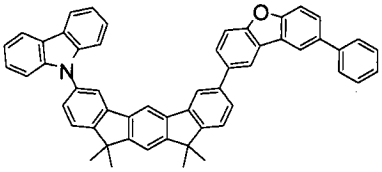
【化 129】

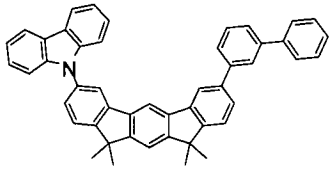

(2-155)

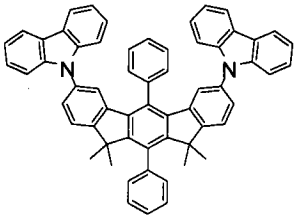

(2-156)

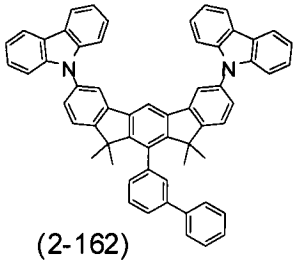

(2-157)

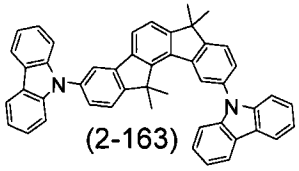

(2-158)

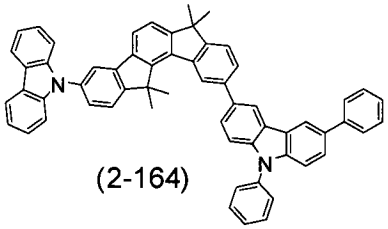

(2-159)

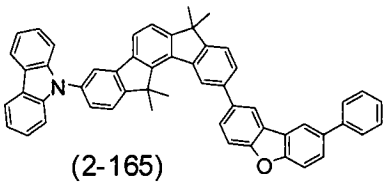

(2-160)

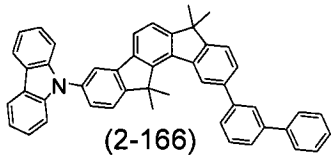

(2-161)

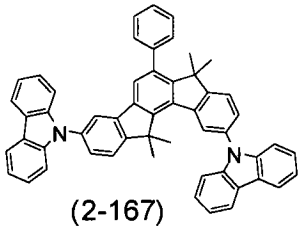

(2-162)

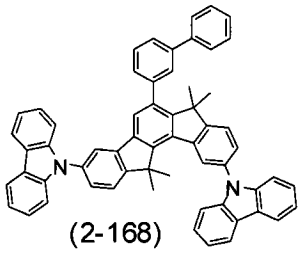

(2-163)


(2-164)


(2-165)

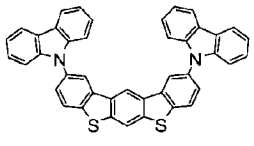

(2-166)

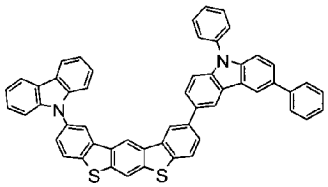

(2-167)

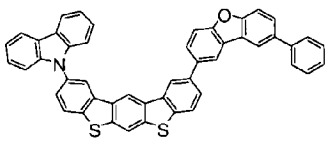

(2-168)

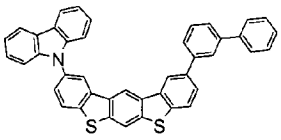
[0218]

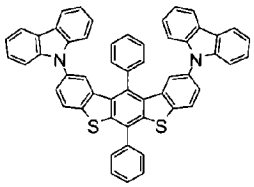
【化 130】

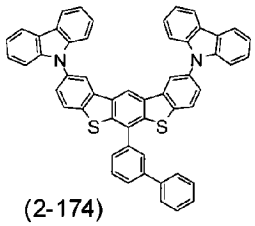

(2-169)

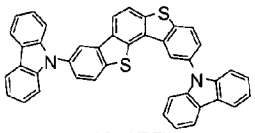

(2-170)

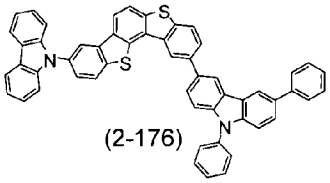

(2-171)

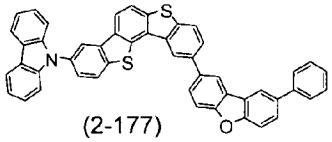

(2-172)

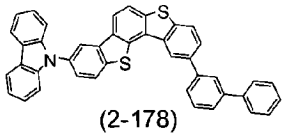

(2-173)

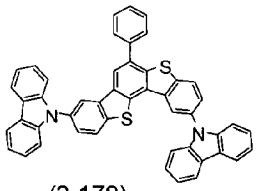

(2-174)

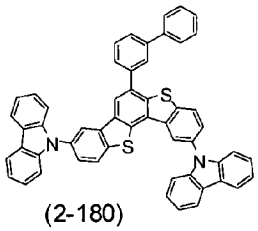

(2-175)


(2-176)


(2-177)

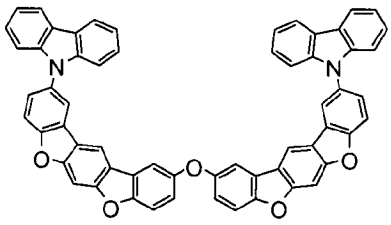

(2-178)


(2-179)

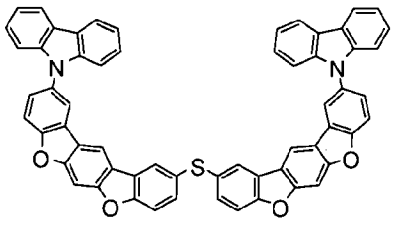

(2-180)

[0219]

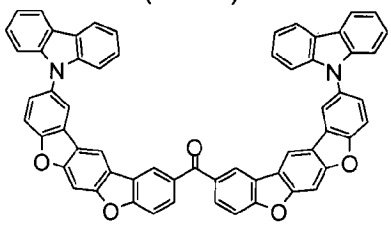
【化 131】



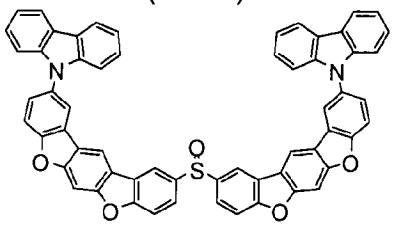
(2-181)



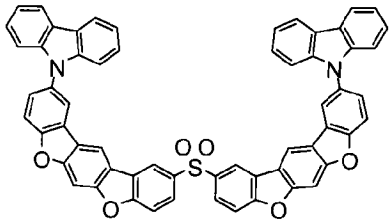
(2-182)



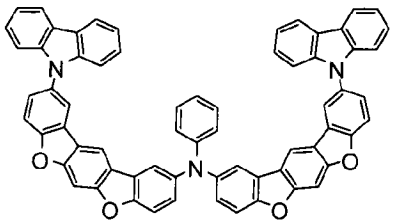
(2-183)



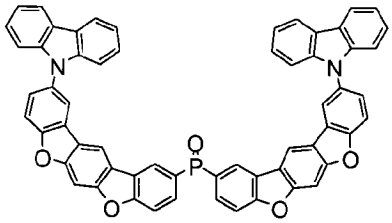
(2-184)



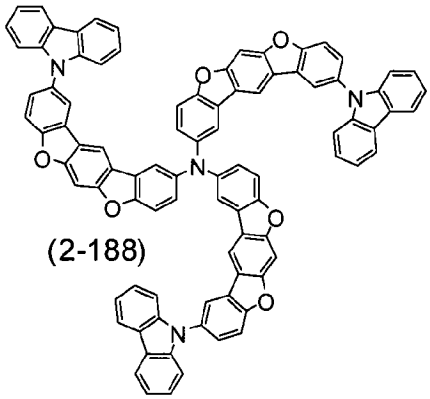
(2-185)



(2-186)



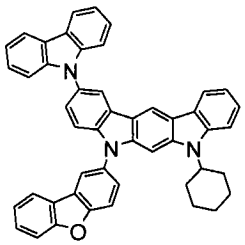
(2-187)



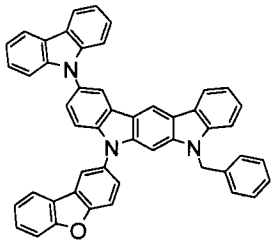
(2-188)

[0220]

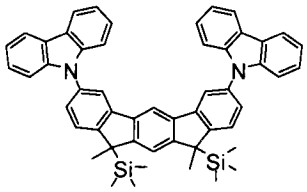
【化 132】



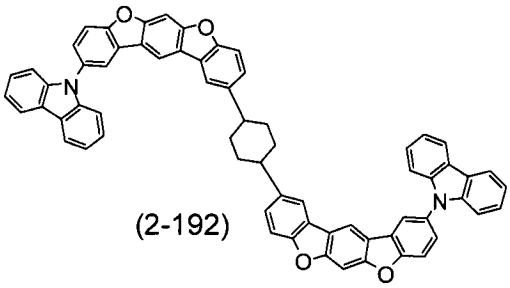
(2-189)



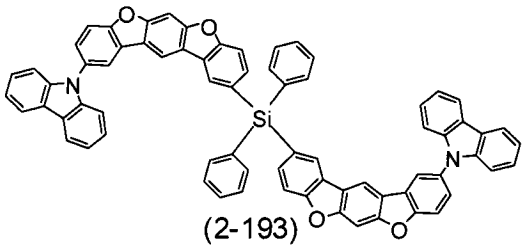
(2-190)



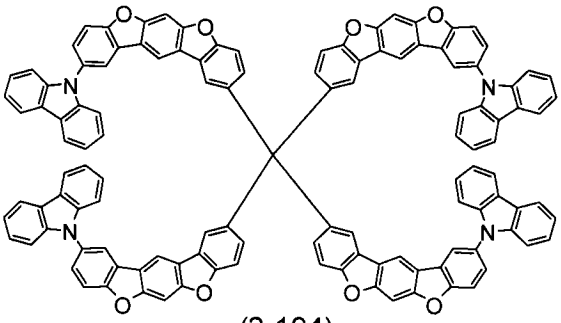
(2-191)



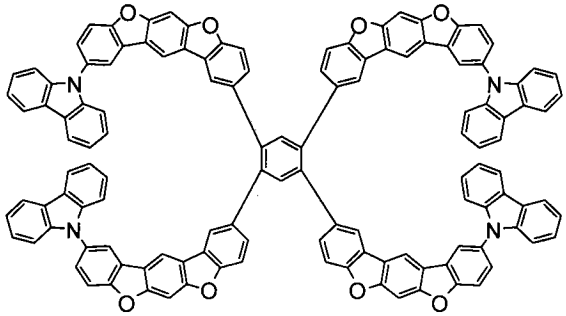
(2-192)



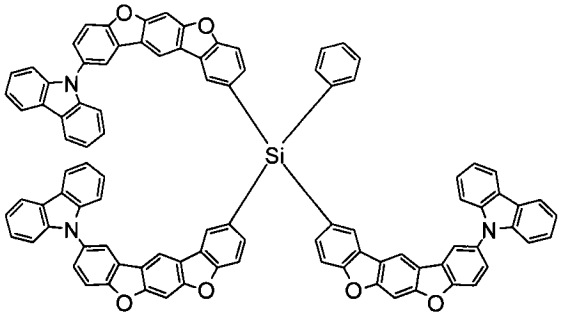
(2-193)



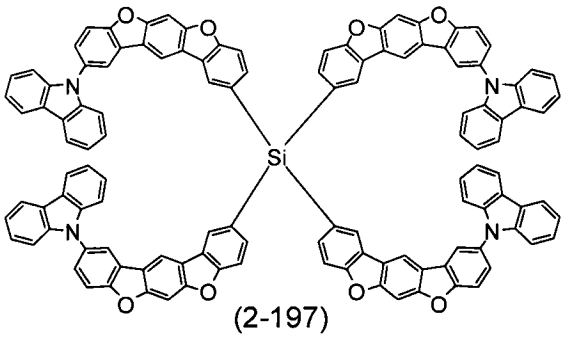
(2-194)



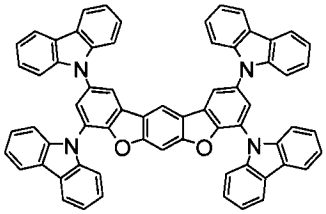
(2-195)



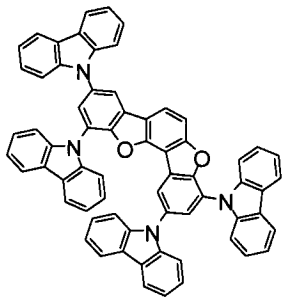
(2-196)



(2-197)



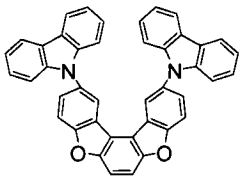
(2-198)

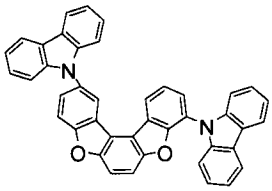


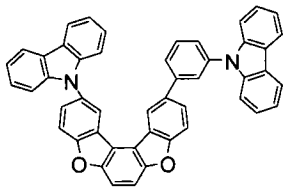
(2-199)

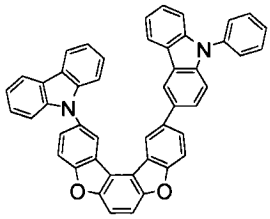
[0221]

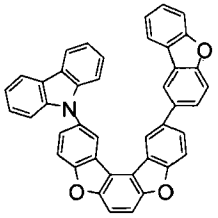
【化 133】

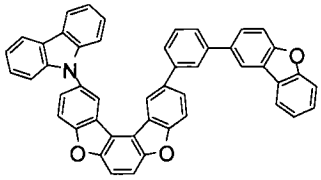

(3-1)

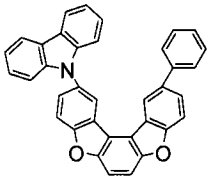

(3-2)

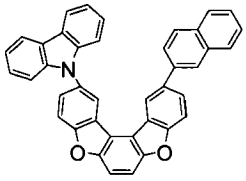

(3-3)

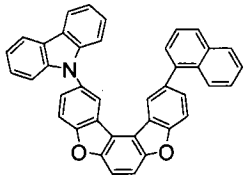

(3-4)

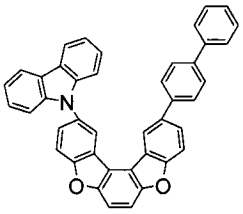

(3-5)

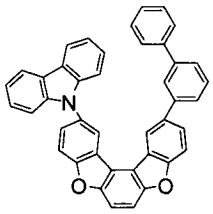

(3-6)

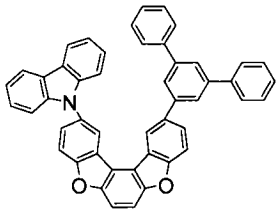

(3-7)

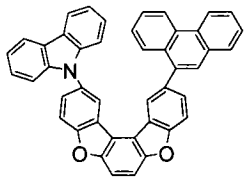

(3-8)

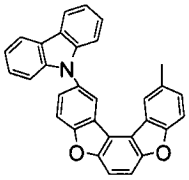

(3-9)

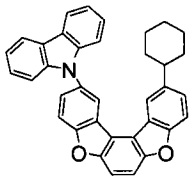

(3-10)

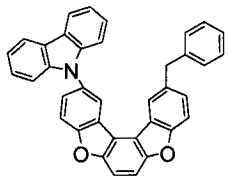

(3-11)

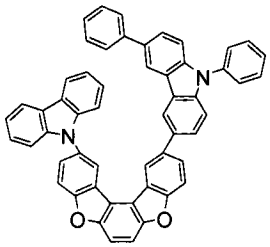

(3-12)

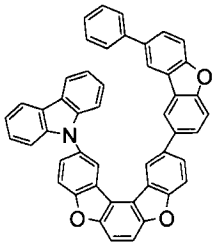

(3-13)

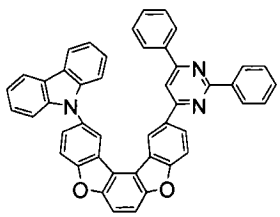

(3-14)


(3-15)


(3-16)

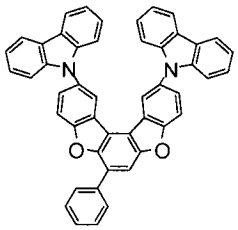

(3-17)


(3-18)

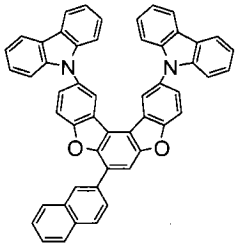

(3-19)

[0222]

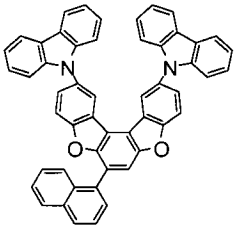
【化 134】



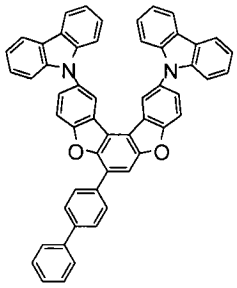
(3-20)



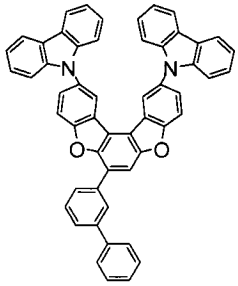
(3-21)



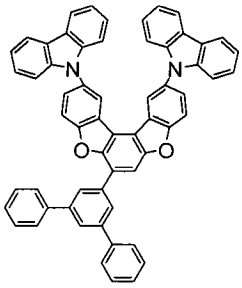
(3-22)



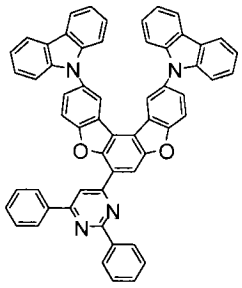
(3-23)



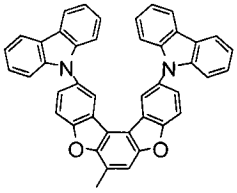
(3-24)



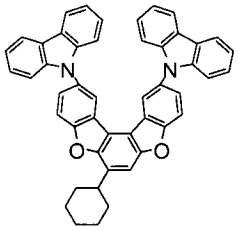
(3-25)



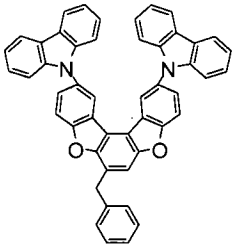
(3-26)



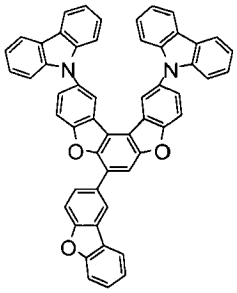
(3-27)



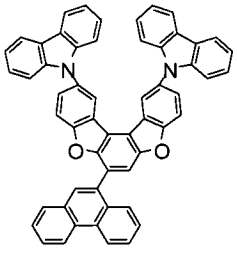
(3-28)



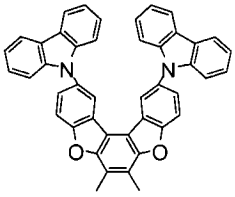
(3-29)



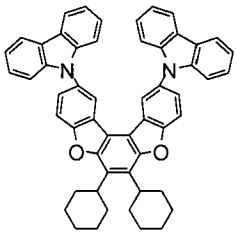
(3-30)



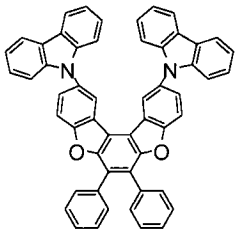
(3-31)



(3-32)



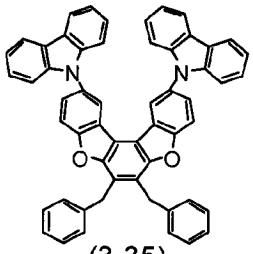
(3-33)



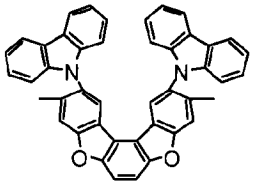
(3-34)

[0223]

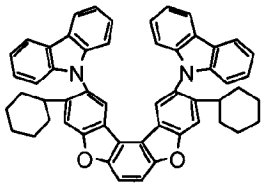
【化 135】



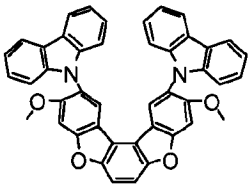
(3-35)



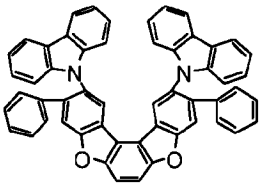
(3-36)



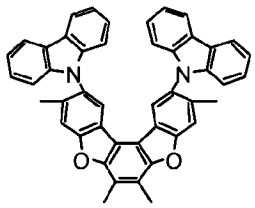
(3-37)



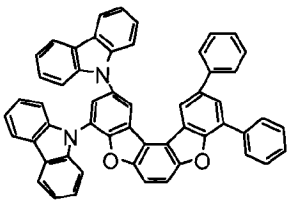
(3-38)



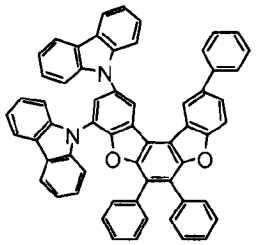
(3-39)



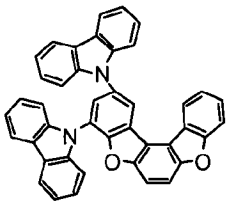
(3-40)



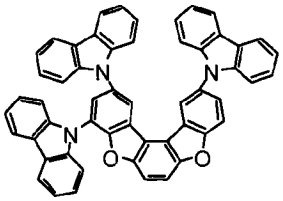
(3-41)



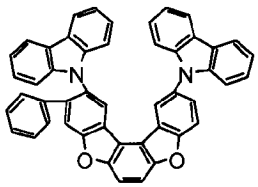
(3-42)



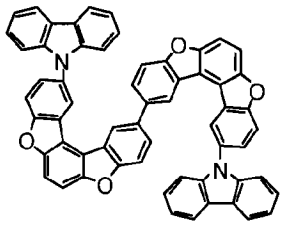
(3-43)



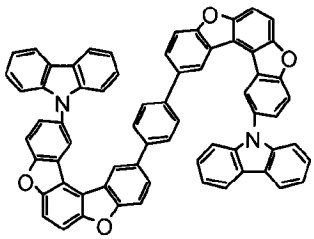
(3-44)



(3-45)



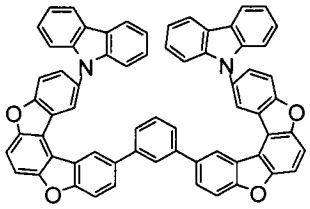
(3-46)



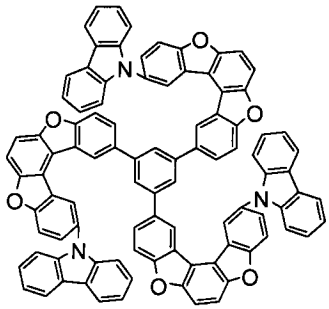
(3-47)

[0224]

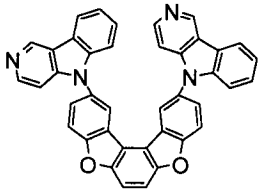
【化 136】



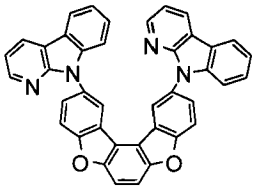
(3-48)



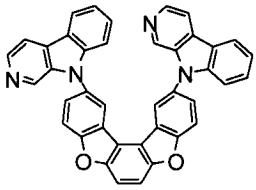
(3-49)



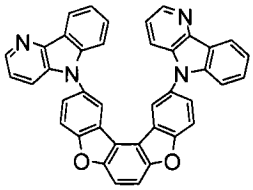
(3-50)



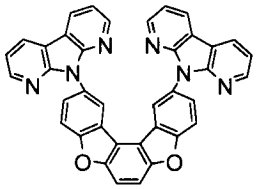
(3-51)



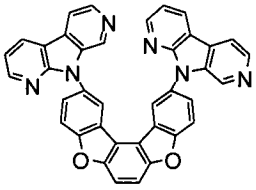
(3-52)



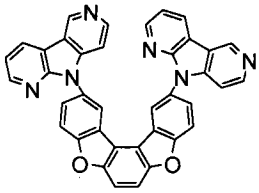
(3-53)



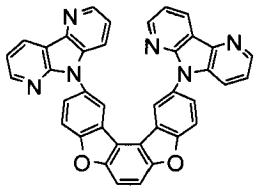
(3-54)



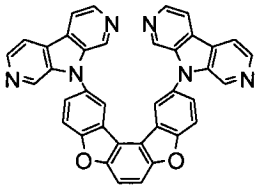
(3-55)



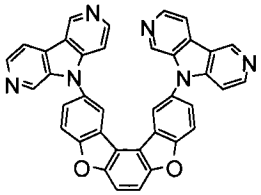
(3-56)



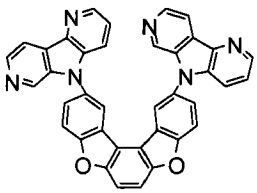
(3-57)



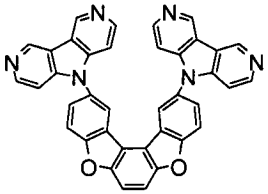
(3-58)



(3-59)



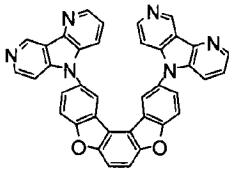
(3-60)



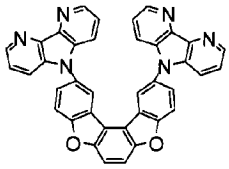
(3-61)

[0225]

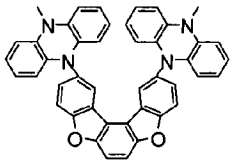
【化 137】



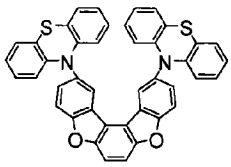
(3-62)



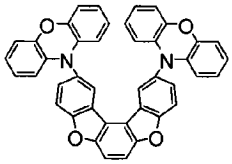
(3-63)



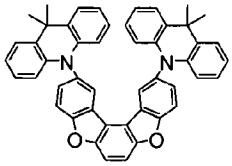
(3-64)



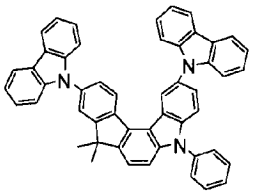
(3-65)



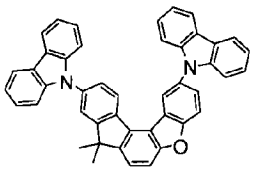
(3-66)



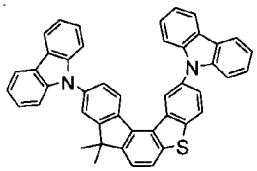
(3-67)



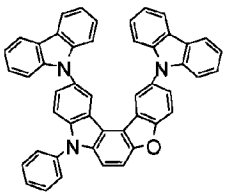
(3-68)



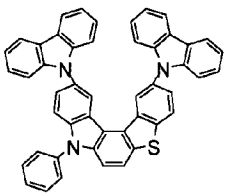
(3-69)



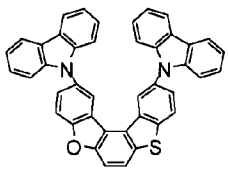
(3-70)



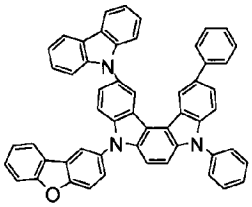
(3-71)



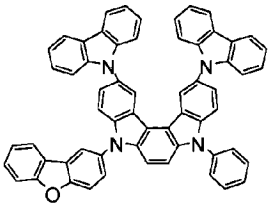
(3-72)



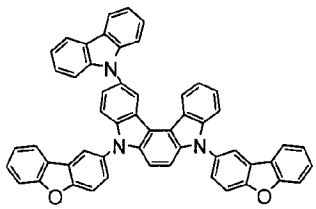
(3-73)



(3-74)



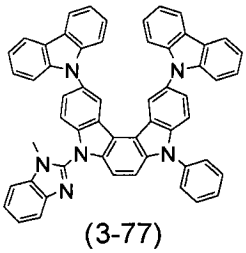
(3-75)



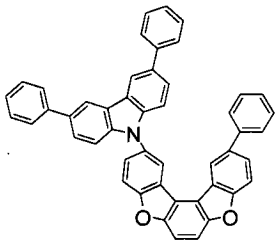
(3-76)

[0226]

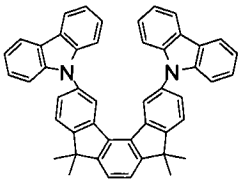
【化 138】



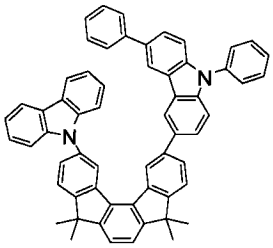
(3-77)



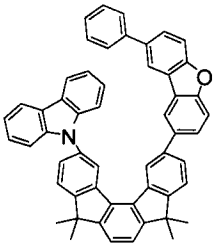
(3-78)



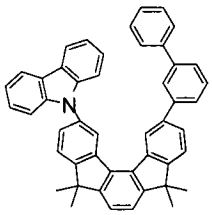
(3-79)



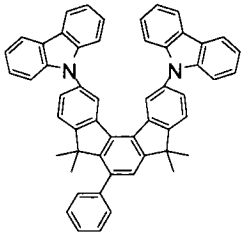
(3-80)



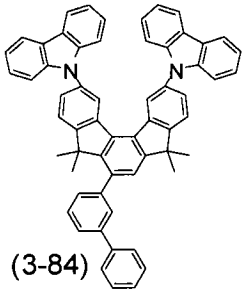
(3-81)



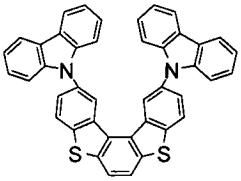
(3-82)



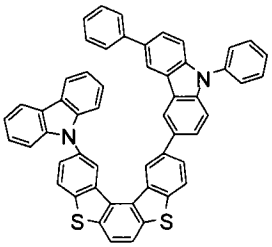
(3-83)



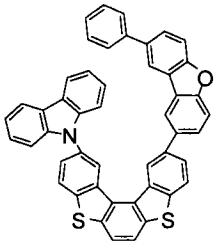
(3-84)



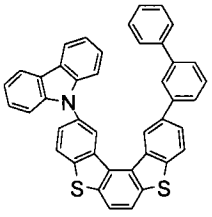
(3-85)



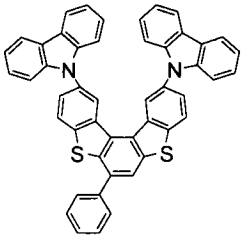
(3-86)



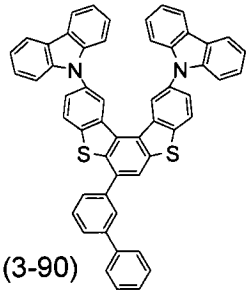
(3-87)



(3-88)



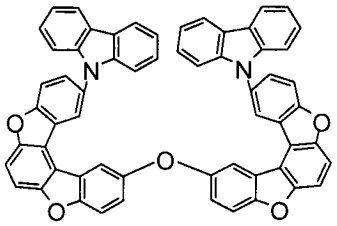
(3-89)



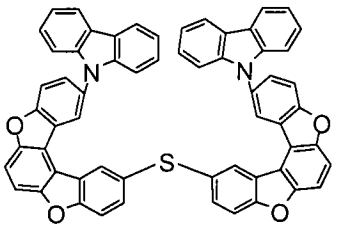
(3-90)

[0227]

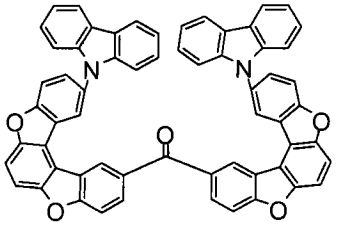
【化 139】



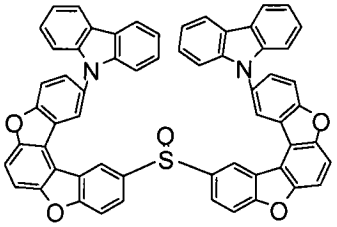
(3-91)



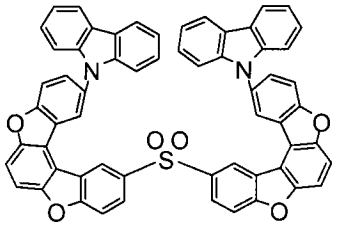
(3-92)



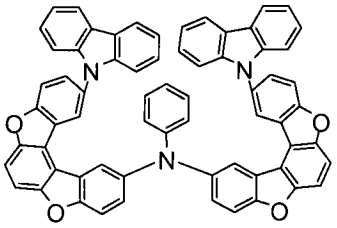
(3-93)



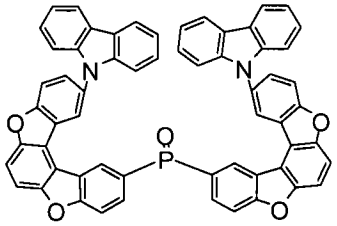
(3-94)



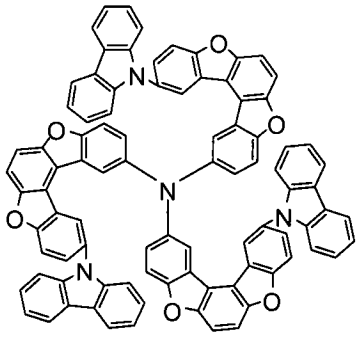
(3-95)



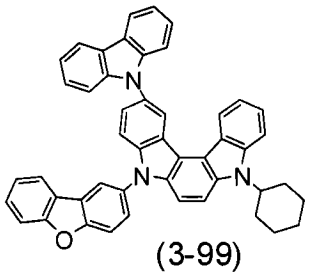
(3-96)



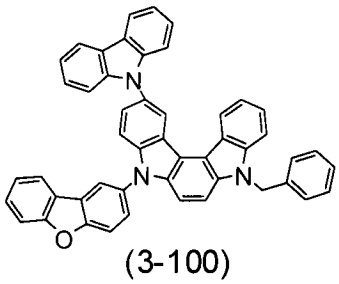
(3-97)



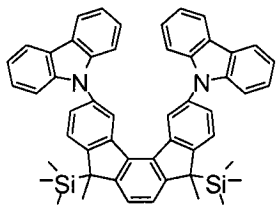
(3-98)



(3-99)



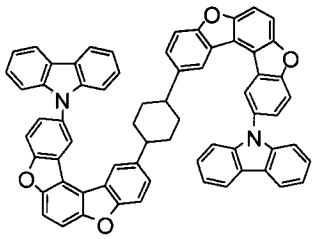
(3-100)



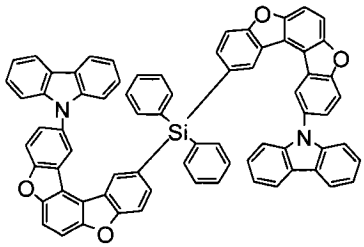
(3-101)

[0228]

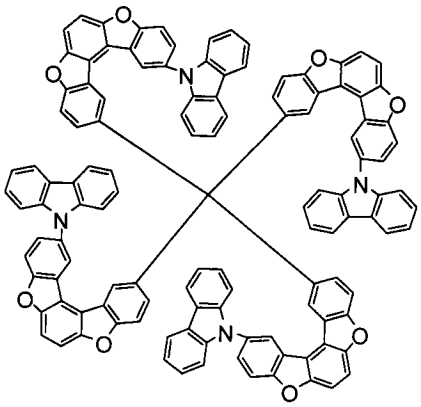
【化 140】



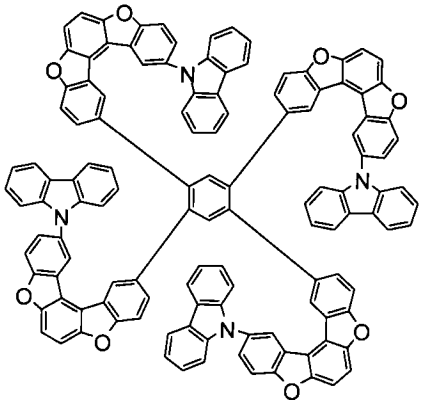
(3-102)



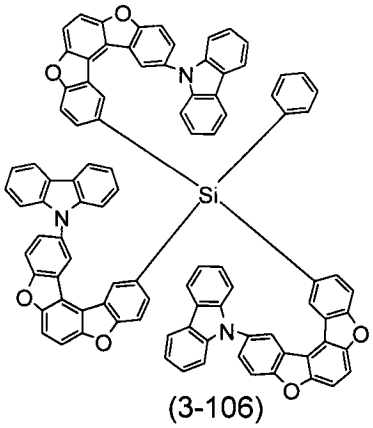
(3-103)



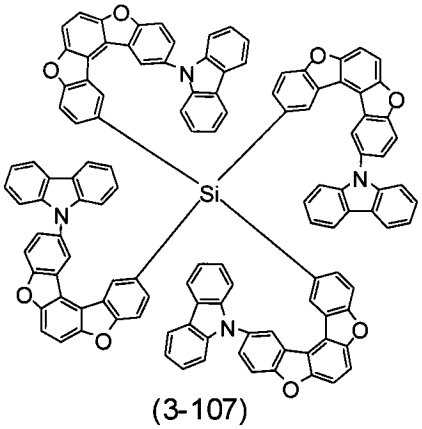
(3-104)



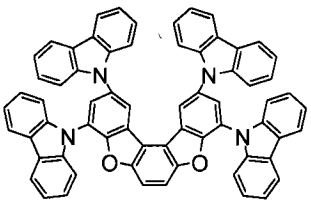
(3-105)



(3-106)



(3-107)



(3-108)

[0229] （磷光材料）

本发明中，发光层含有磷光材料作为掺杂剂。

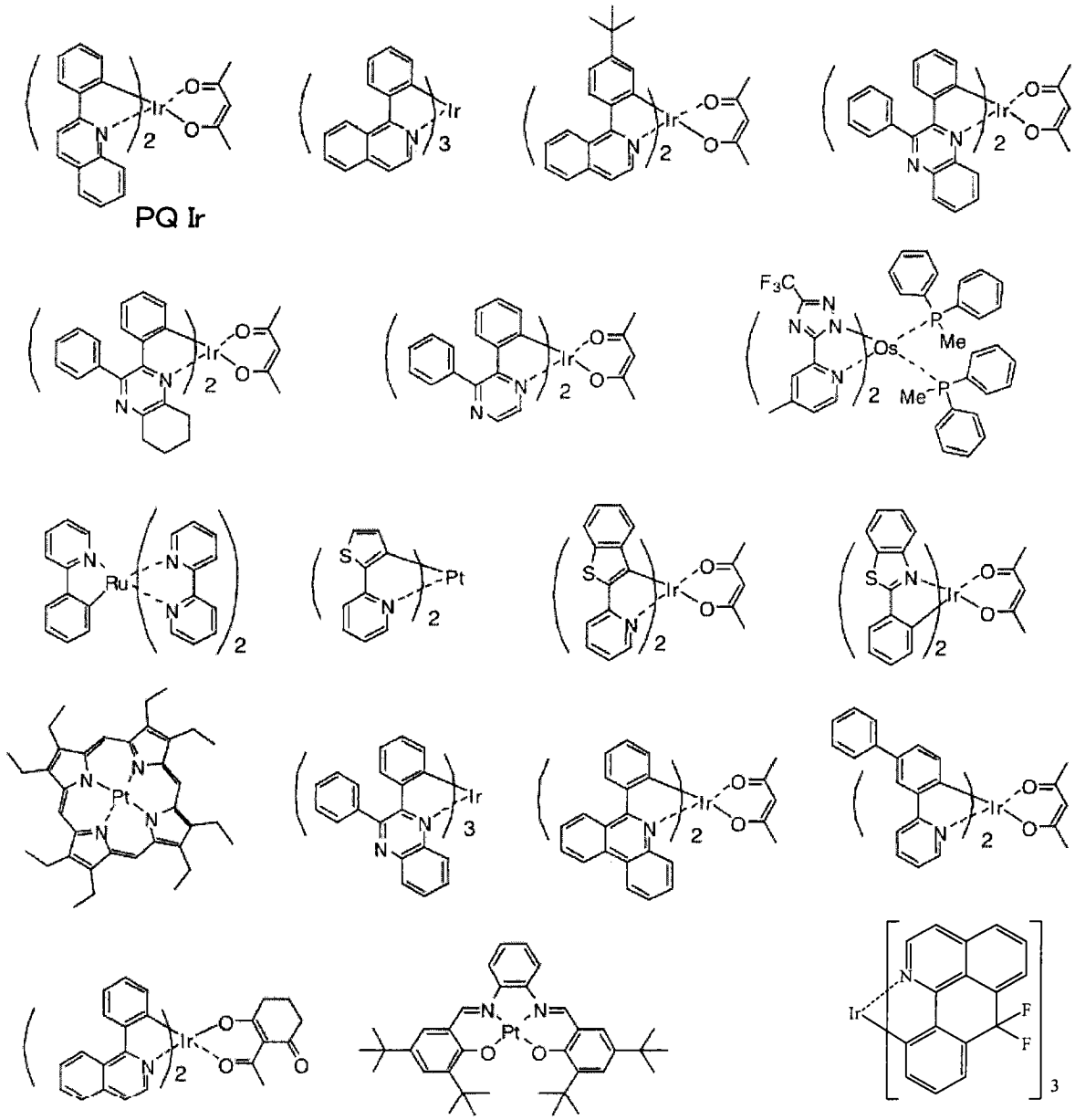
磷光材料基于磷光量子产率高，能更进一步提高发光元件的外部量子效率的点，更优

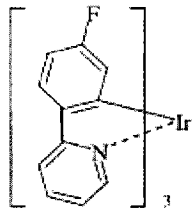
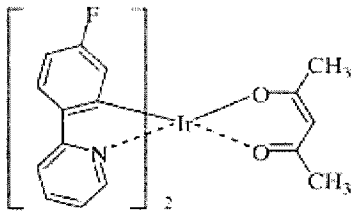
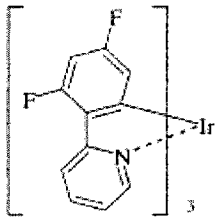
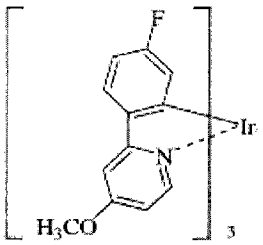
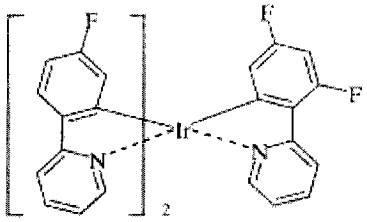
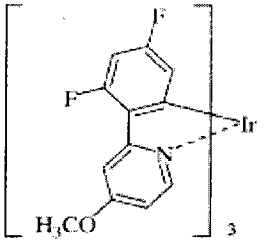
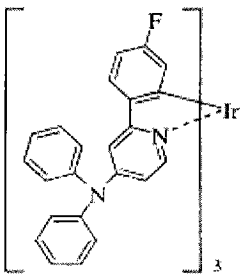
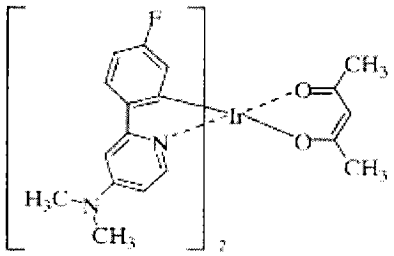
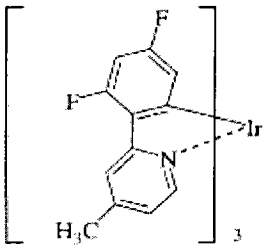
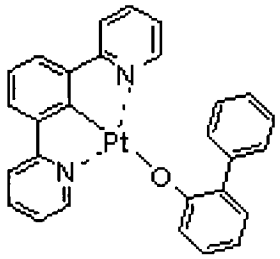
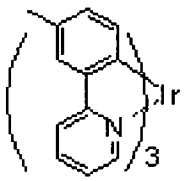
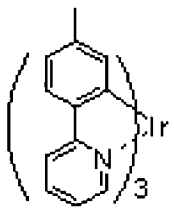
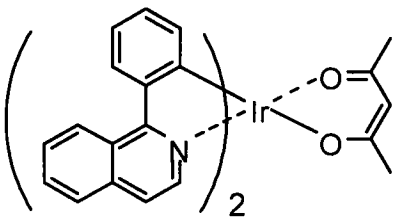
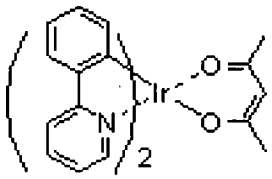
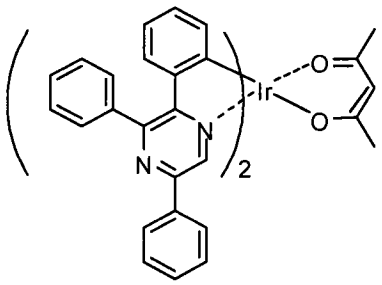
选含有选自 Ir、OS 及 Pt 的金属原子的化合物，进一步优选铱络合物、锇络合物、铂络合物等金属络合物，其中，更优选铱络合物及铂络合物，最优选邻位金属化铱络合物。

优选的金属络合物的具体例显示如下。

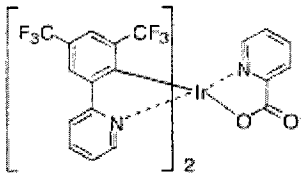
[0230] 【化 141】

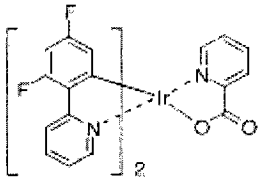
[0231] 【化 142】

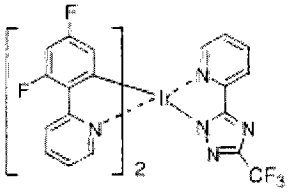


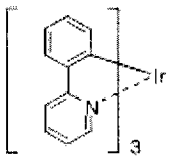
















[0232] 【化 143】

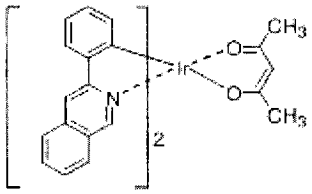


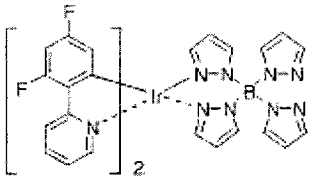


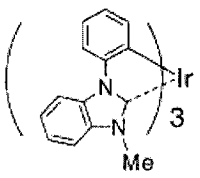


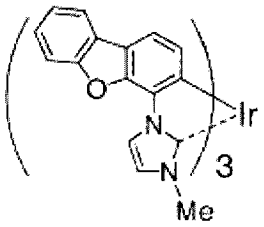


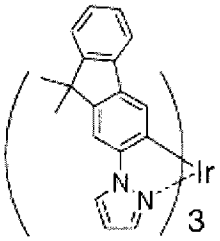
Ir (ppy) 3

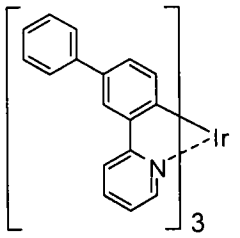


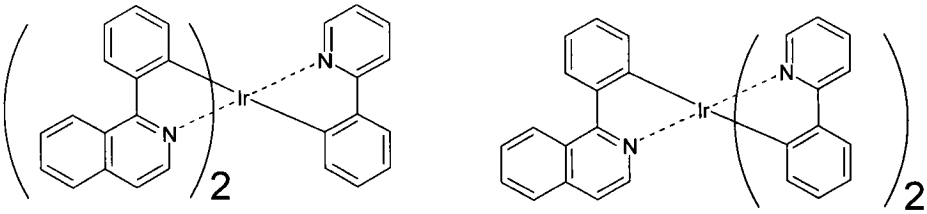




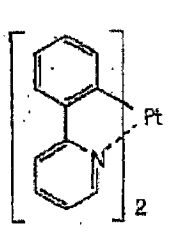
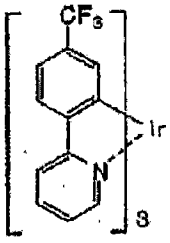
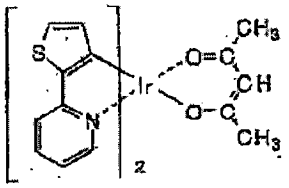
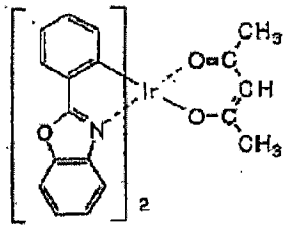
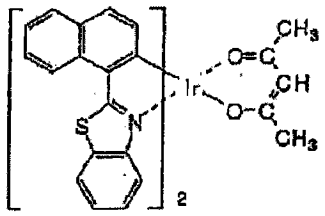
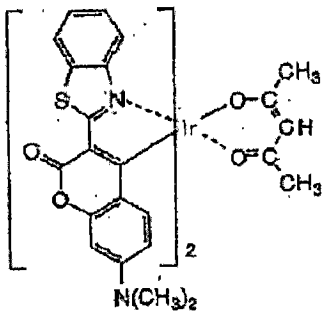
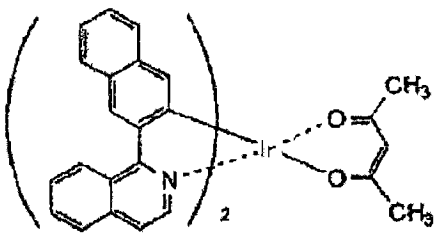
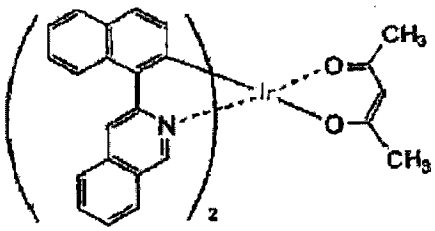
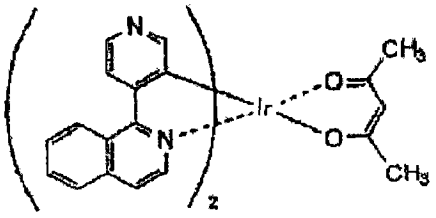
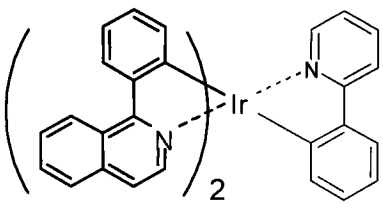
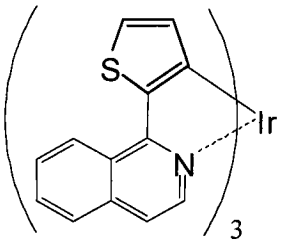








[0233] 【化 144】

[0234] 本发明中，上述发光层所包含的上述磷光材料之中的至少 1 种，优选发光波长的最大值为 450nm 以上 720nm 以下。

通过将这样的发光波长的磷光材料（磷光掺杂剂）掺杂于本发明所使用的特定基质材

料中构成发光层，可作成高效率的有机 EL 元件。

[0235] （还原性掺杂剂）

本发明的有机 EL 元件也优选在阴极与有机薄膜层的界面领域中具有还原性掺杂剂。

根据这样的构成，可实现提高有机 EL 元件中的发光亮度和长寿命化。

还原性掺杂剂可列举，选自碱金属、碱金属络合物、碱金属化合物、碱土类金属、碱土类金属络合物、碱土类金属化合物、稀土类金属、稀土类金属络合物及稀土类金属化合物等的至少一种。

[0236] 碱金属可列举，Na（功函数 :2.36eV）、K（功函数 :2.28eV）、Rb（功函数 :2.16eV）、Cs（功函数 :1.95eV）等，特别优选功函数在 2.9eV 以下的金属。其中优选 K、Rb、Cs，进一步优选 Rb 或 Cs，最优选 Cs。

碱土类金属可列举，Ca（功函数 :2.9eV）、Sr（功函数 :2.0eV ～ 2.5eV）、Ba（功函数 :2.52eV）等，特别优选功函数在 2.9eV 以下的金属。

稀土类金属可列举，Sc、Y、Ce、Tb、Yb 等，特别优选功函数在 2.9eV 以下的金属。

以上的金属之中优选的金属，其还原能力高，通过较少量的添加到电子注入域，可提高有机 EL 元件中的发光亮度和长寿命化。

[0237] 碱金属化合物可列举，Li_2O、Cs_2O、K_2O 等碱氧化物，LiF、NaF、CsF、KF 等碱卤化物等，优选 LiF、Li_2O、NaF。

碱土类金属化合物可列举，BaO、SrO、CaO 及混合了它们的 $Ba_xSr_{1-x}O(0 < X < 1)$、$Ba_xCa_{1-x}O(0 < X < 1)$ 等，优选 BaO、SrO、CaO。

稀土类金属化合物可列举，YbF_3、ScF_3、ScO_3、Y_2O_3、Ce_2O_3、GdF_3、TbF_3 等，优选 YbF_3、ScF_3、TbF_3。

[0238] 碱金属络合物、碱土类金属络合物、稀土类金属络合物分别只要是含有碱金属离子、碱土类金属离子、稀土类金属离子的至少之一作为金属离子，即没有特别的限定。此外，配位体虽优选羟基喹啉、苯并羟基喹啉、羟基吖啶、羟基菲啶、羟苯基噁唑、羟苯基噻唑、羟基二芳基噁二唑、羟基二芳基噻二唑、羟苯基吡啶、羟苯基苯并咪唑、羟基苯并三唑、全羟基硼烷、联二吡啶、菲绕啉、酞菁、卟啉、环戊二烯、β－二酮类、甲亚胺类及它们的衍生物等，但并不限定于此。

[0239] 还原性掺杂剂的理想添加形态是在界面区域形成层状或岛状。形成方法理想的是以下的方法 :在通过电阻加热蒸镀法对还原性掺杂剂进行蒸镀的同时，对形成界面区域的发光材料和作为电子注入材料的有机物进行蒸镀，在有机物中分散还原掺杂剂。分散浓度以摩尔比为有机物：还原性掺杂剂＝ 100 ： 1 ～ 1 ： 100，理想的是 5 ： 1 ～ 1 ： 5。

在还原性掺杂剂形成层状时，将作为界面有机层的发光材料或电子注入材料形成为层状，然后，通过电阻加热蒸镀法对还原掺杂剂单独进行蒸镀，理想的是层的厚度形成为 0.1 ～ 15nm。

在还原性掺杂剂形成岛状时，将作为界面有机层的发光材料或电子注入材料形成为岛状，然后，通过电阻加热蒸镀法对还原掺杂剂单独进行蒸镀，理想的是岛的厚度形成为 0.05 ～ 1nm。

此外，本发明的有机 EL 元件中的主成分和还原性掺杂剂的比例，优选是以摩尔比计为，主成分：还原性掺杂剂＝ 5 ： 1 ～ 1 ： 5，更优选是 2 ： 1 ～ 1 ： 2。

[0240] （电子注入层和电子输送层）

电子注入层或电子输送层是帮助电子向发光层注入的层，其电子迁移率大。电子注入层是为了缓和能级的急剧变化等、调整能级而设置的。

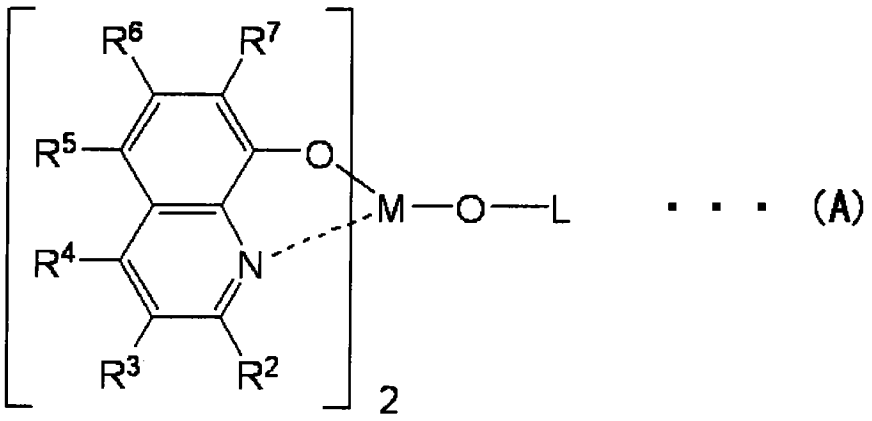
本发明的有机 EL 元件在发光层和阴极之间具有电子注入层，上述电子注入层理想的是含有含氮环衍生物作为主成分。此处，电子注入层也可以是发挥电子输送层的功能的层。

另外，“作为主成分”是指电子注入层含有 50 质量％以上的含氮环衍生物。

[0241] 作为用于电子注入层的电子输送性材料，理想的是使用分子内含有 1 个以上杂原子的芳香族杂环化合物，尤其理想的是含氮环衍生物。另外，含氮环衍生物，优选是具有含氮六元环或者五元环骨架的芳香族环或者具有含氮六元环或者五元环骨架的稠合芳香族环化合物。

该含氮环衍生物理想的是例如下述式 (A) 所示的含氮环金属螯合物。

[0242] 【化 145】



[0243] 通式 (A) 中的 R^2 ～ R^7 各自独自立地是氢原子、卤原子、氧基、氨基、碳原子数 1 ～ 40 的烃基、烷氧基、芳氧基、烷氧羰基，或者，芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基，这些也可被取代。

卤原子可列举，例如氟、氯、溴、碘等。此外，可以被取代的氨基的例子举例有烷基氨基、芳基氨基、芳烷基氨基。

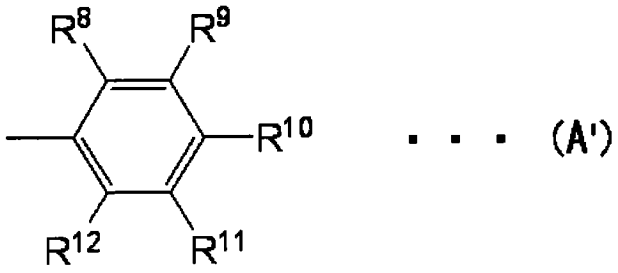
[0244] 烷氧基羰基表示为 -COOY′，Y′ 的例子可列举与上述烷基相同的基团。烷基氨基及芳烷基氨基表示为 $-NQ^1Q^2$。Q^1 及 Q^2 的具体例，各自独立地可列举与上述烷基、上述芳烷基中说明的基团相同的基团，理想例也一样。Q^1 及 Q^2 中的一个可以是氢原子。

芳基氨基表示为 $-NAr^1Ar^2$，Ar^1 及 Ar^2 的具体例各自独立地为与上述非稠合芳香族烃基及稠合芳香族烃基中说明的基团相同的基团。Ar^1 及 Ar^2 中的一个可以是氢原子。

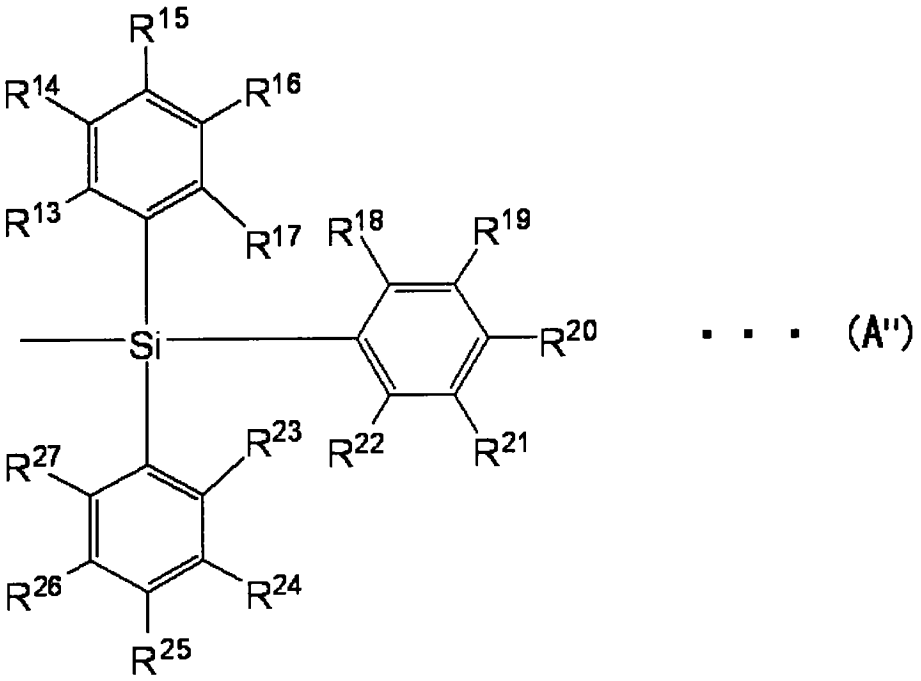
[0245] M 为铝 (Al)、镓 (Ga) 或铟 (In)，优选为 In。

上述式 (A) 中的 L 是由下述式 (A′) 或 (A″) 所表示的基团。

[0246] 【化 146】



· · · (A')



· · · (A'')

[0247] 上述式 (A′) 中，R^8 ～ R^{12} 各自独立地为氢原子或取代或无取代的碳原子数 1 ～ 40 的烃基，互相邻接的基可以形成环状结构。此外，上述式 (A″) 中，R^{13} ～ R^{27} 各自独立地为氢原子，或者取代或无取代的碳原子数 1 ～ 40 的烃基，互相邻接的基可以形成环状结构。

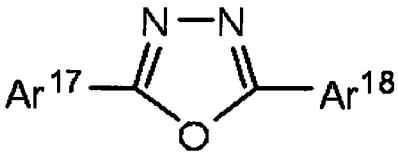
上述式 (A′) 及式 (A″) 中的 R^8 ～ R^{12} 及 R^{13} ～ R^{27} 表示的碳原子数 1 ～ 40 的烃基可列举与上述式 (A) 中的 R^2 ～ R^7 的具体例一样的基团。

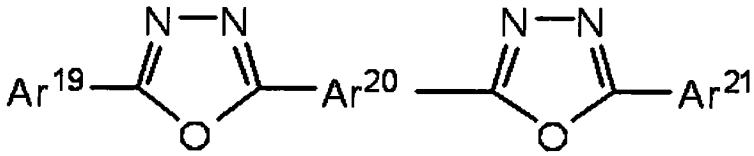
此外，R^8 ～ R^{12} 及 R^{13} ～ R^{27} 的互相邻接的基团形成环状结构时的 2 价基团举例有四亚甲基、五亚甲基、六亚甲基、二苯基甲烷 -2,2′ - 二基、二苯基乙烷 -3,3′ - 二基、二苯基丙烷 -4,4′ - 二基等。

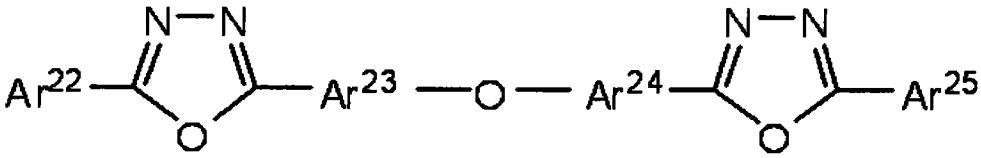
[0248] 另一方面，本发明的电子输送层可含有上述式 (1) 至 (3)(或 (4) 至 (6)) 所示的双咔唑衍生物。

[0249] 电子注入层或电子输送层所使用的电子传递性化合物合适的有 8- 羟基喹啉或其衍生物的金属络合物、噁二唑衍生物、含氮杂环衍生物。上述 8- 羟基喹啉或其衍生物的金属络合物的具体例，可以使用含有 8- 羟基喹啉 (一般 8-quinolinol 或者 8-hydroxyquinoline) 的螯合物的金属螯合喹啉类 (oxinoid) 化合物，例如三 (8- 羟基喹啉) 铝。另，噁二唑衍生物可以举例下述的化合物。

[0250] 【化 147】







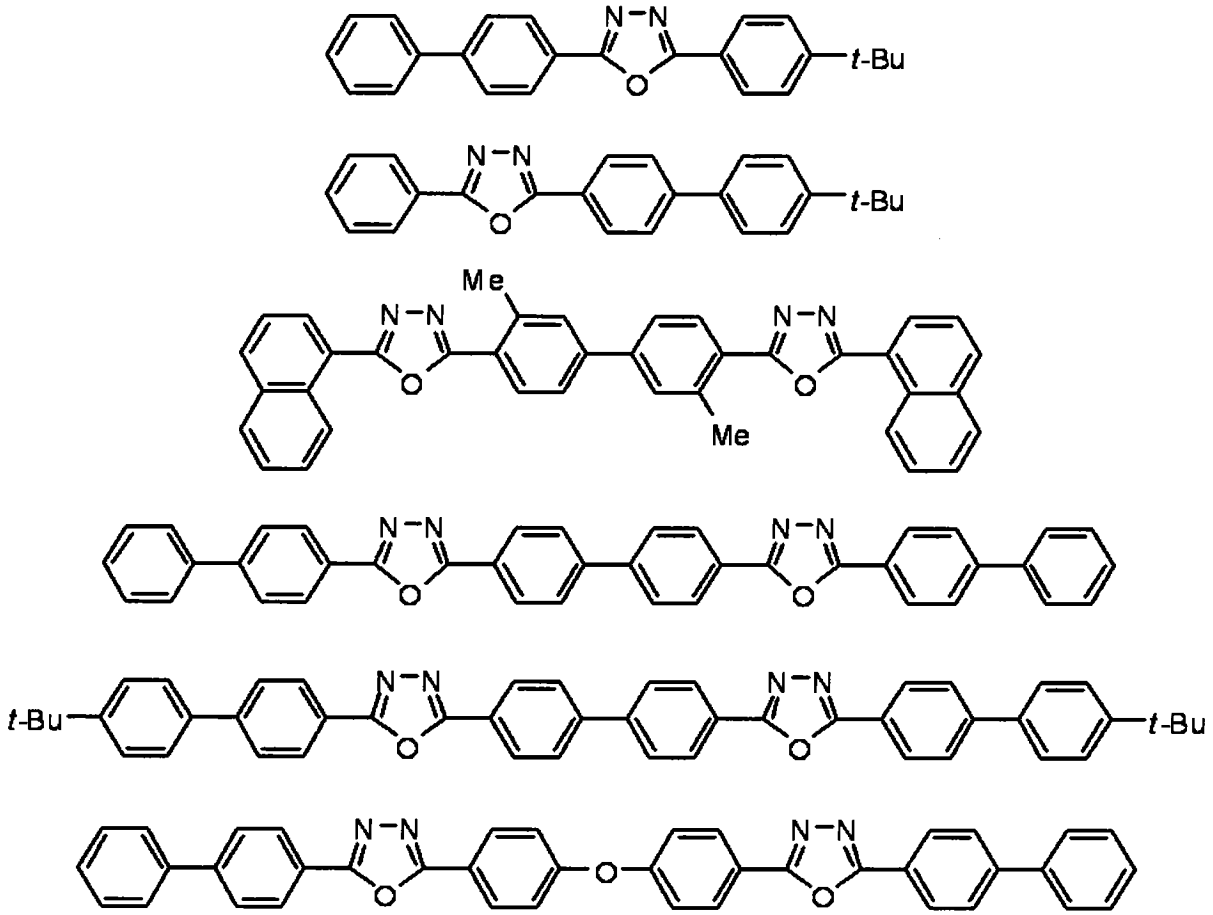
[0251] 上述式中，Ar^{17}、Ar^{18}、Ar^{19}、Ar^{21}、Ar^{22} 及 Ar^{25} 分别表示具有取代基或不具有取代基的成环碳原子数 6 ～ 40 的芳香族烃基或者稠合芳香族烃基，Ar^{17} 与 Ar^{18}、Ar^{19} 与 Ar^{21}、Ar^{22} 与 Ar^{25} 相互可以相同也可以不同。成环碳原子数 6 ～ 40 的芳香族烃基或者稠合芳香族烃基可列举，苯基、萘基、联苯基、蒽基、菲基、芘基等。而且，它们的取代基可列举碳原子数 1 ～ 10 的烷基、碳原子数 1 ～ 10 的烷氧基或氰基等。

Ar^{20}、Ar^{23} 及 Ar^{24} 各自表示具有取代基或没有取代基的成环碳原子数 6 ～ 40 的 2 价芳香族烃基或者稠合芳香族烃基，Ar^{23} 和 Ar^{24} 相互之间可以相同也可以不同。

该 2 价芳香族烃基或者稠合芳香族烃基可列举，亚苯基、亚萘基、亚联苯基、亚蒽基、亚菲基、亚芘基等。而且，它们的取代基可列举碳原子数 1 ～ 10 的烷基、碳原子数 1 ～ 10 的烷氧基或氰基等。

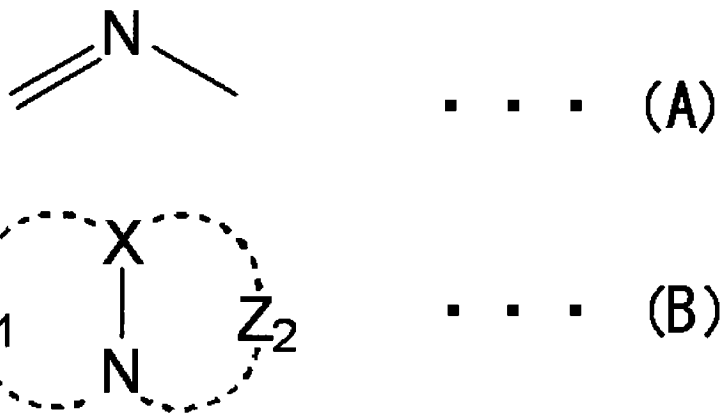
[0252] 这些电子传递性化合物优选使用薄膜形成性良好的化合物。并且，这些电子传递性化合物的具体例可以举例下述的化合物。

[0253] 【化 148】



[0254] 作为电子传递性化合物的含氮杂环衍生物为由具有以下通式的有机化合物构成的含氮杂环衍生物，可列举不是金属络合物的含氮化合物。例如，含有下述式 (A) 所示骨架的五元环或六元环，或者下述式 (B) 所示结构的化合物。

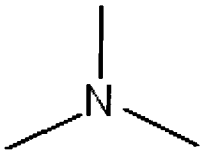
[0255] 【化 149】



[0256] 上述式 (B) 中，X 表示碳原子或氮原子。Z_1 以及 Z_2 各自独立地表示可形成含氮杂环的原子群。

[0257] 含氮杂环衍生物更优选具有由五元环或六元环构成的含氮芳香多环族的有机化合物。进一步，当为这样的具有多个氮原子的含氮芳香多环族时，优选为具有组合上述式 (A) 与 (B) 或上述式 (A) 与下述式 (C) 的骨架的含氮芳香多环有机化合物。

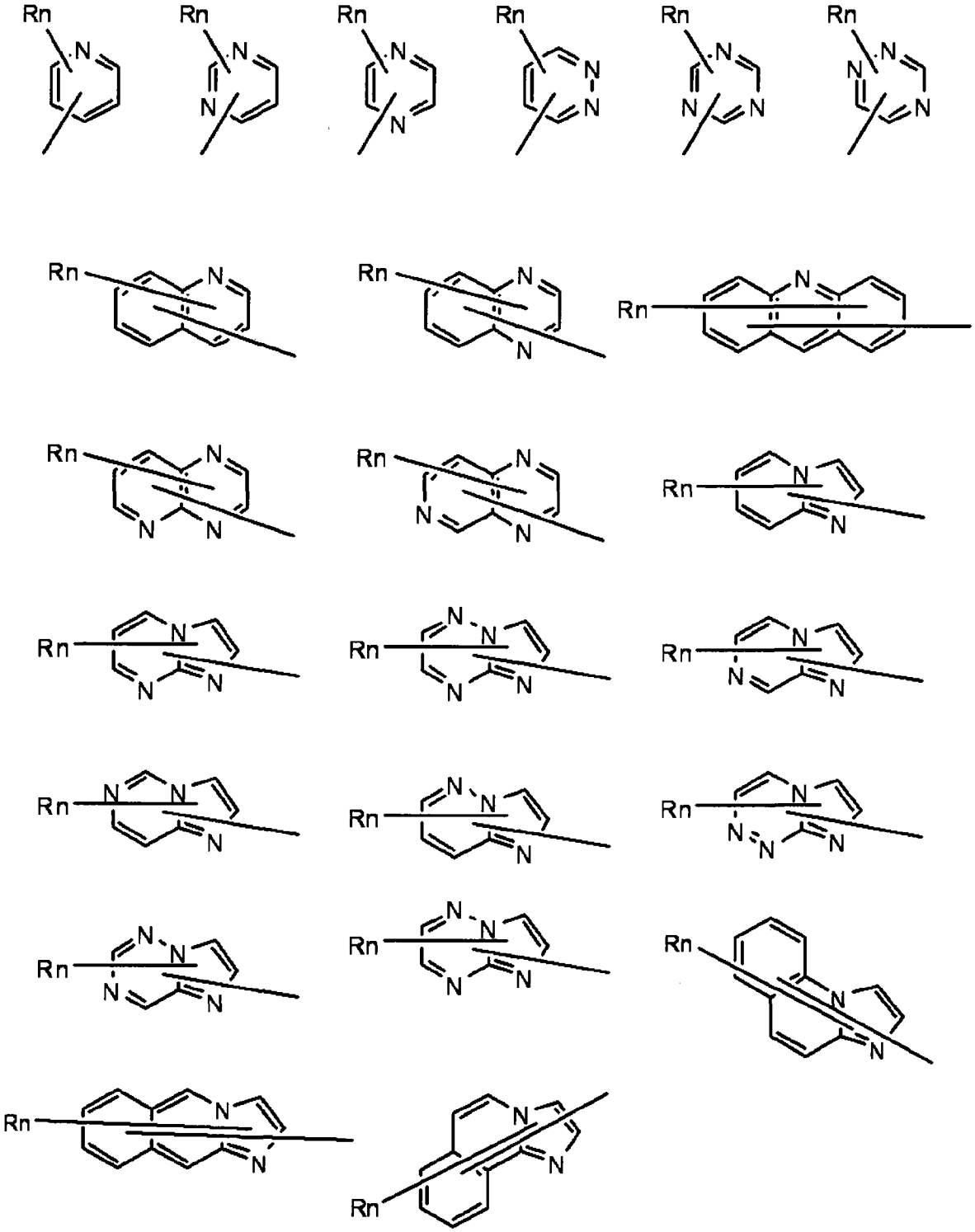
[0258] 【化 150】



· · · (C)

[0259] 上述的含氮芳香多环有机化合物的含氮基选自例如，以下的通式所示的含氮杂环基。

[0260] 【化 151】



[0261] 上述各式中，R 为成环碳原子数 6 ～ 40 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基、成环碳原子数 2 ～ 40 的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基、碳原子数 1 ～ 20 的烷基，或者碳原子数 1 ～ 20 的烷氧基，n 为 0 ～ 5 的整数，当 n 为 2 以上的整数时，多个 R 相互之间可相同或不同。

[0262] 进一步，优选的具体化合物可列举，下述式所示的含氮杂环衍生物。

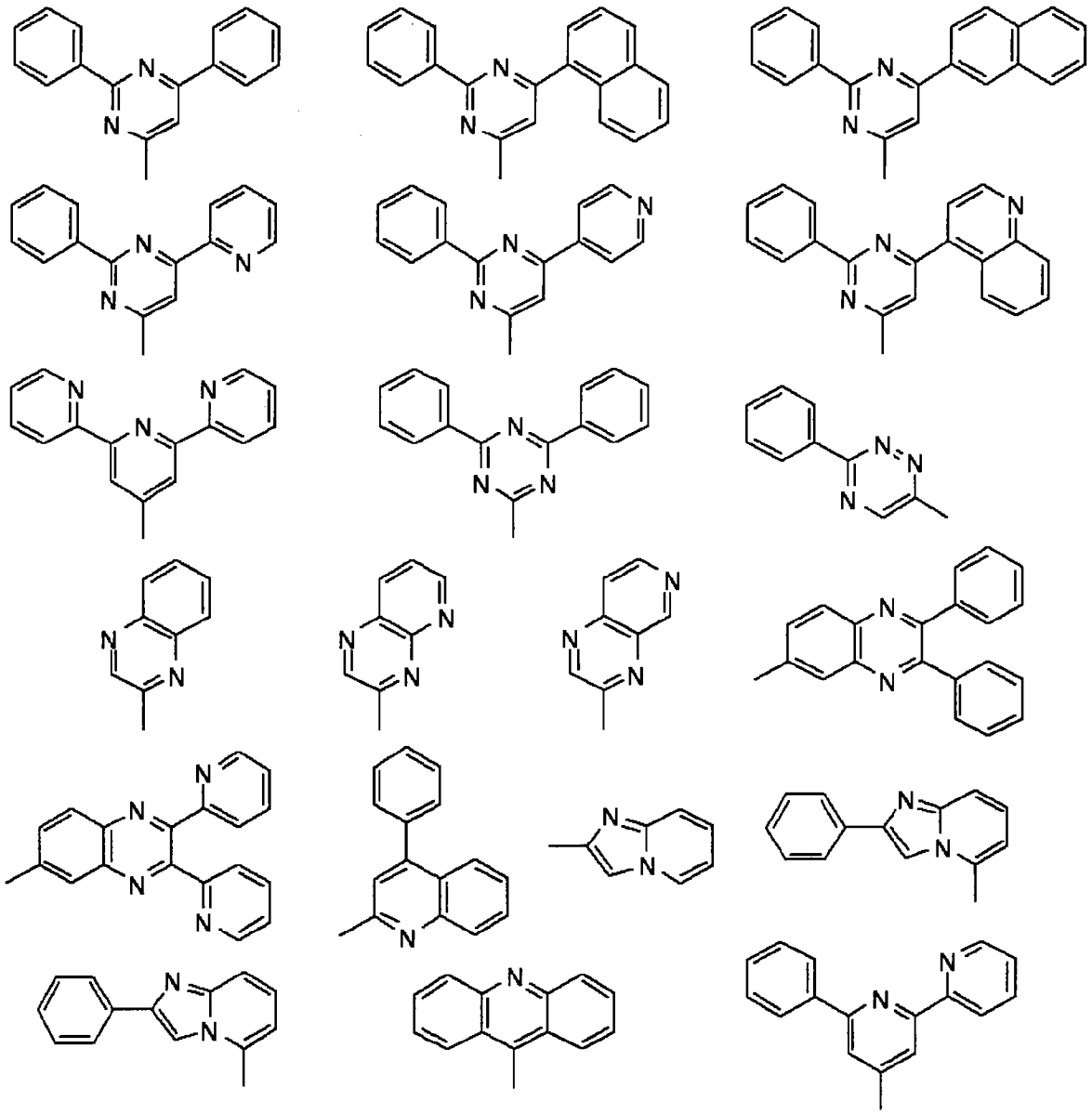
$HAr\text{-}L^1\text{-}Ar^1\text{-}Ar^2$

上述式中，HAr 为可具有取代基的成环碳原子数 1 ～ 40 的含氮杂环基，L^1 为单键、可具有取代基的成环碳原子数 6 ～ 40 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基或者可具有取代基的成

环碳原子数 2 ～ 40 的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基，Ar^1 为可具有取代基的成环碳原子数 6 ～ 40 的 2 价芳香族烃基，Ar^2 为可具有取代基的成环碳原子数 6 ～ 40 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基或者可具有取代基的成环碳原子数 2 ～ 40 的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。

HAr 选自例如下述的群。

[0263] 【化 152】



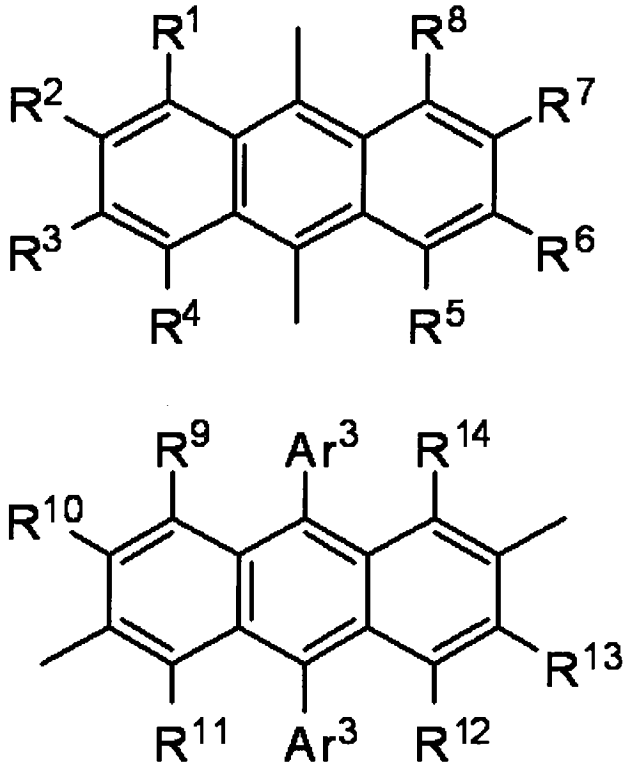
[0264] L^1 选自例如下述的群。

[0265] 【化 153】



[0266] Ar^1 选自例如下述的芳基蒽基。

[0267] 【化 154】

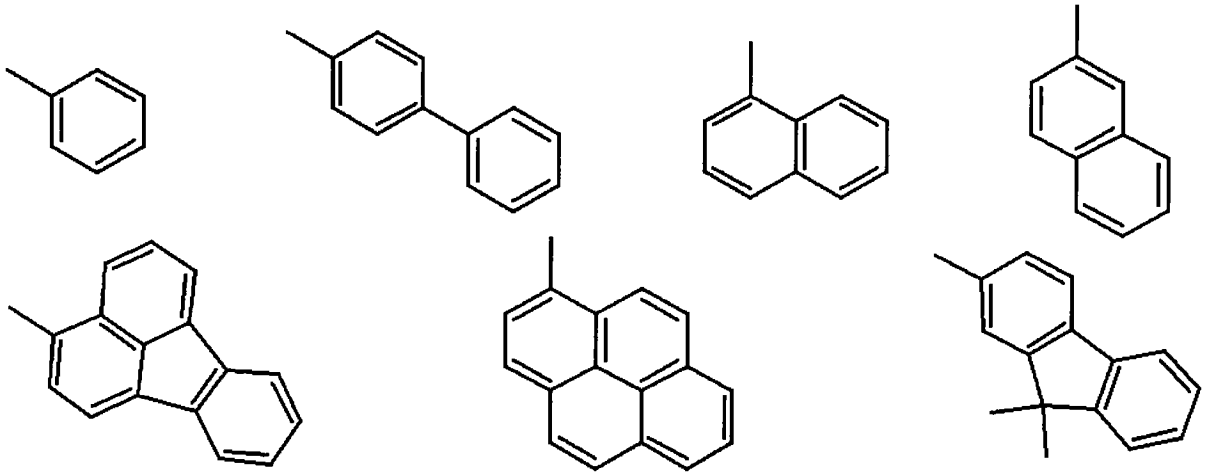


[0268] 上述式中，R^1 ～ R^{14} 各自独立地为氢原子、卤原子、碳原子数 1 ～ 20 的烷基、碳原子数 1 ～ 20 的烷氧基、成环碳原子数 6 ～ 40 的芳氧基、可具有取代基的成环碳原子数 6 ～ 40 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基，或者成环碳原子数 2 ～ 40 的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基，Ar^3 为可具有取代基的成环碳原子数 6 ～ 40 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基或者成环碳原子数 2 ～ 40 的芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基。

此外，也可为 R^1 ～ R^8 均为氢原子的含氮杂环衍生物。

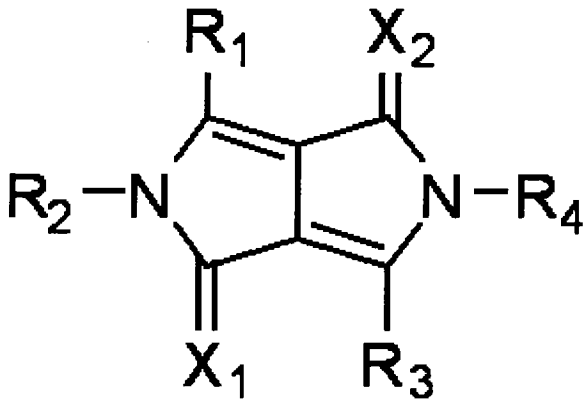
[0269] Ar^2 选自例如下述的群。

[0270] 【化 155】



[0271] 作为电子传递性化合物的含氮芳香多环有机化合物，除此之外，也可适宜地使用下述的化合物（参考日本专利特开平 9-3448 号公报）。

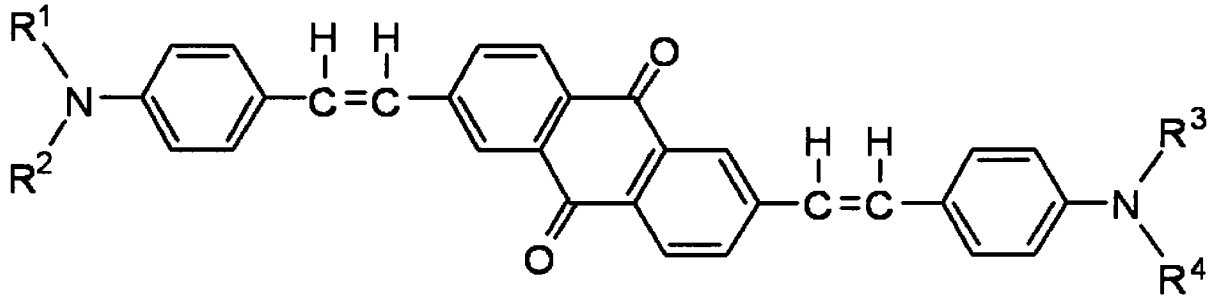
[0272] 【化 156】



[0273] 上述式中，R_1 ～ R_4 各自独立地表示氢原子、取代或无取代的脂肪族基、取代或无取代的脂肪族式环基、取代或无取代的碳环式芳香族环基、取代或无取代的杂环基，X_1、X_2 各自独立地表示氧原子、硫原子或二氰基亚甲基。

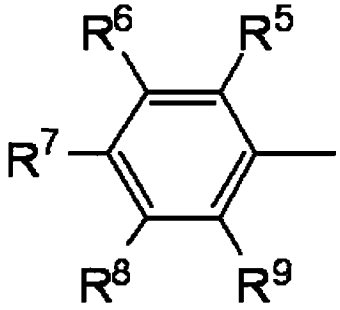
[0274] 此外，作为电子传递性化合物，也适宜使用下述的化合物（参考日本专利特开2000-173774 号公报）。

[0275] 【化 157】



[0276] 上述式中，R^1、R^2、R^3 及 R^4 为相互之间相同或不同的基团，为下述式表示的芳香族烃基或者稠合芳香族烃基。

[0277] 【化 158】



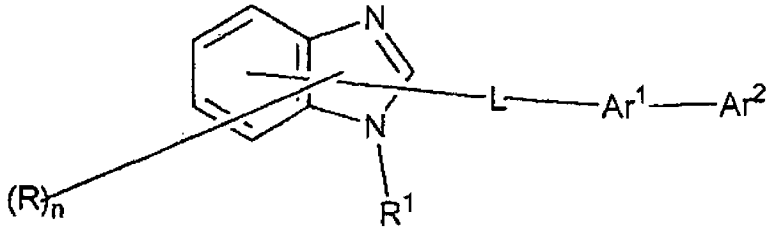
上述式中，R^5、R^6、R^7、R^8 及 R^9 为互相之间相同或不同的基团，为氢原子或者它们中的至少一个是饱和或不饱和烷氧基、烷基、氨基或烷基氨基。

[0278] 进一步，电子传递性化合物还可以是含有该含氮杂环基或含氮杂环衍生物的高分子化合物。

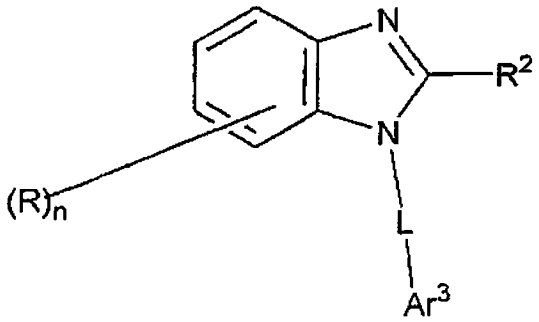
[0279] 此外，电子输送层优选含有下述式 (201) ～ (203) 所示的含氮杂环衍生物中的至

少任一个。

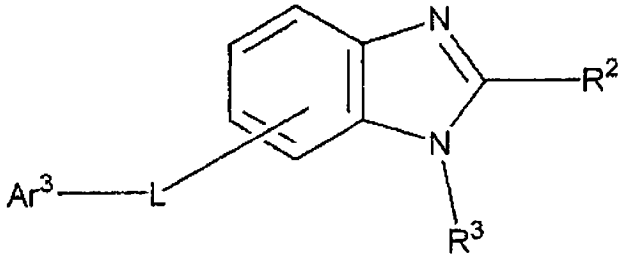
[0280] 【化 159】



…（201）



…（202）



…（203）

[0281] 上述式（201）～（203）中，R 为氢原子、可具有取代基的成环碳原子数 6 ～ 60 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基、可具有取代基的吡啶基、可具有取代基的喹啉基、可具有取代基的碳原子数 1 ～ 20 的烷基，或者可具有取代基的碳原子数 1 ～ 20 的烷氧基，

n 为 0 ～ 4 的整数，

R^1 为可具有取代基的成环碳原子数 6 ～ 60 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基、可具有取代基的吡啶基、可具有取代基的喹啉基、可具有取代基的碳原子数 1 ～ 20 的烷基。或者碳原子数 1 ～ 20 的烷氧基，

R^2 及 R^3 各自独立地为氢原子、可具有取代基的成环碳原子数 6 ～ 60 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基、可具有取代基的吡啶基、可具有取代基的喹啉基、可具有取代基的碳原子数 1 ～ 20 的烷基，或者可具有取代基的碳原子数 1 ～ 20 的烷氧基，

L 为可具有取代基的成环碳原子数 6 ～ 60 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基、可具有取代基的亚吡啶基、可具有取代基的亚喹啉基，或者可具有取代基的亚芴基，

Ar^1 为可具有取代基的成环碳原子数 6 ～ 60 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基、可具有取代基的亚吡啶基或可具有取代基的亚喹啉基，Ar^2 为可具有取代基的成环碳原子数 6 ～ 60 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基、可具有取代基的吡啶基、可具有取代基的喹啉基、可具

有取代基的碳原子数 1 ～ 20 的烷基，或者可具有取代基的碳原子数 1 ～ 20 的烷氧基。

[0282] Ar^3 为可具有取代基的成环碳原子数 6 ～ 60 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基、可具有取代基的吡啶基、可具有取代基的喹啉基、可具有取代基的碳原子数 1 ～ 20 的烷基、可具有取代基的碳原子数 1 ～ 20 的烷氧基，或者 $-Ar^1-Ar^2$ 所示的基团（Ar^1 及 Ar^2 各自同上）。

另，上述式 (201) ～ (203) 中，R 为氢原子、可具有取代基的成环碳原子数 6 ～ 60 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基、可具有取代基的吡啶基、可具有取代基的喹啉基、可具有取代基的碳原子数 1 ～ 20 的烷基，或者可具有取代基的碳原子数 1 ～ 20 的烷氧基。

[0283] 另，电子注入层或电子输送层的膜厚无特别限定，但优选 1nm ～ 100nm。

此外，作为电子注入层的构成成分，除了含氮环衍生物之外，理想的是使用作为无机化合物的绝缘体或半导体。电子注入层由绝缘体或半导体构成的话，可以有效地防止电流泄漏，提高电子注入性。

[0284] 这样的绝缘体优选使用选自碱金属硫族化物、碱土类金属硫族化物、碱金属的卤化物及碱土类金属的卤化物中的至少一个金属化合物。电子注入层由这些碱金属硫族化物等构成的话，可以进一步提高电子注入性，因此理想。具体地，理想的碱金属硫族化物可列举，例如 Li_2O、K_2O、Na_2S、Na_2Se 以及 Na_2O，理想的碱土类金属硫族化物可列举，例如 CaO、BaO、SrO、BeO、BaS 以及 CaSe。此外，理想的碱金属卤化物可列举，例如 LiF、NaF、KF、LiCl、KCl 及 NaCl 等。此外，理想的碱土类金属卤化物可列举，例如 CaF_2、BaF_2、SrF_2、MgF_2 及 BeF_2 等氟化物或氟化物之外的卤化物。

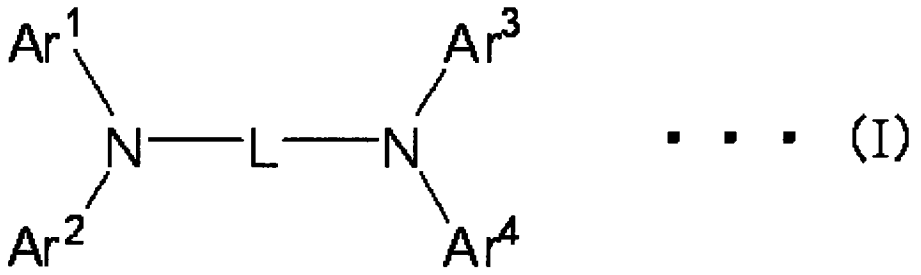
[0285] 此外，半导体可列举，含有 Ba、Ca、Sr、Yb、Al、Ga、In、Li、Na、Cd、Mg、Si、Ta、Sb 及 Zn 中至少一个元素的氧化物、氮化物或氧化氮化物等的单独一种或两种以上的组合。此外，构成电子注入层的无机化合物理想的是微晶或非晶质绝缘性薄膜。电子注入层由这些绝缘性薄膜构成的话，因为形成了更均质的薄膜，所以可以减少暗点等像素缺陷。另外，这样的无机化合物举例有碱金属硫族化物、碱土类金属硫族化物、碱金属卤化物及碱土类金属卤化物等。

使用这样的绝缘体或半导体时，该层的理想的厚度为 0.1nm ～ 15nm 左右。此外，本发明中的电子注入层也优选含有上述的还原性掺杂剂。

[0286] （空穴注入层和空穴输送层）

空穴注入层或空穴输送层（也包含空穴注入输送层）适宜使用芳香族胺化合物，例如可使用下述通式 (I) 所示的芳香族胺衍生物。

[0287] 【化 160】



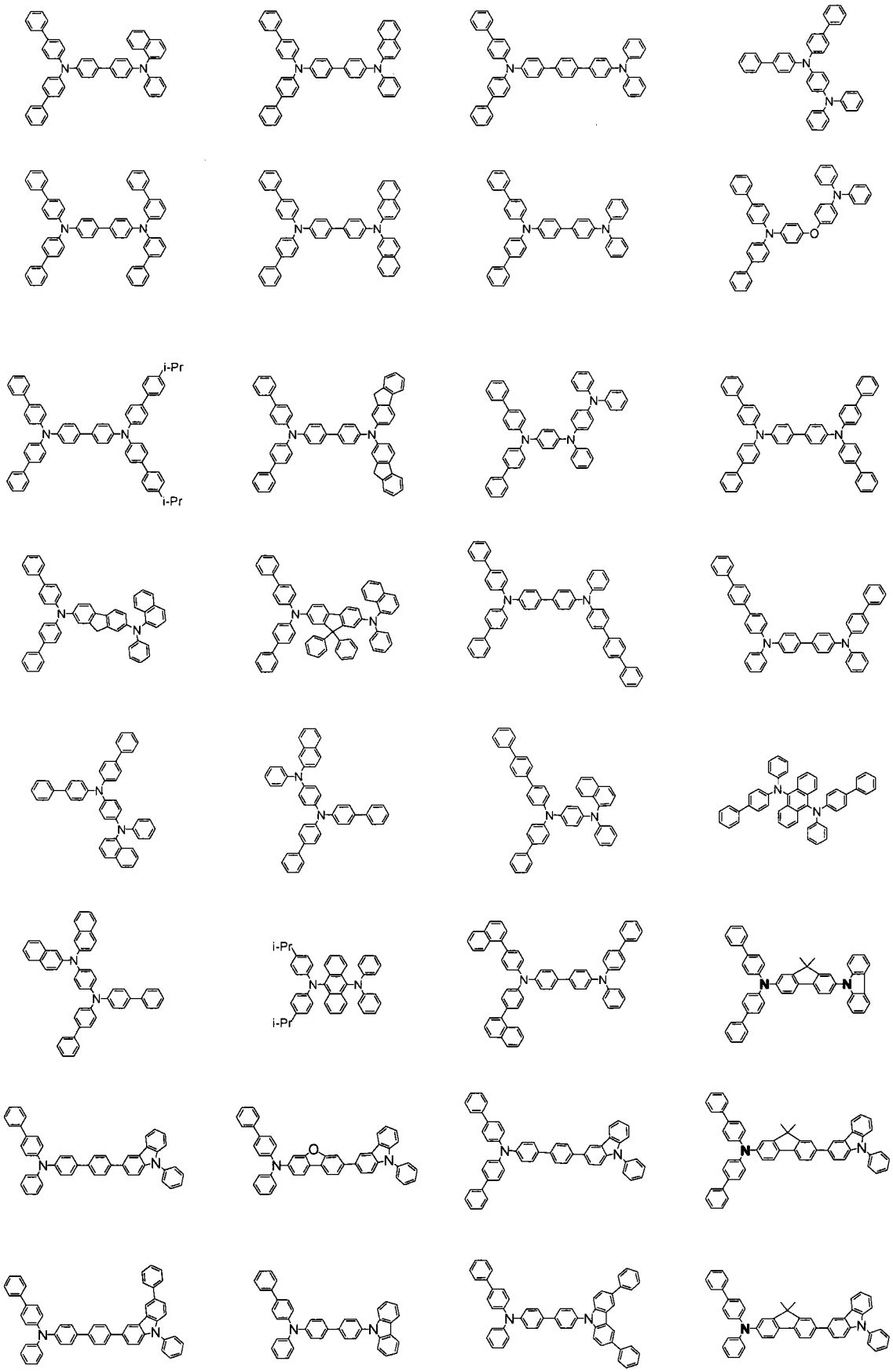
(I)

[0288] 上述通式 (I) 中，Ar^1 ～ Ar^4 表示取代或无取代的成环碳原子数 6 ～ 50 的芳香族烃基或稠合芳香族烃基、取代或无取代的成环碳原子数 2 ～ 40 的芳香族杂环基或稠合芳香

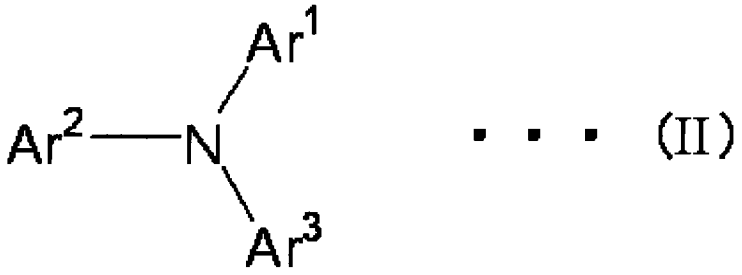
族杂环基，或者，这些芳香族烃基或稠合芳香族烃基与芳香族杂环基或稠合芳香族杂环基成键得到的基团。

[0289] 上述通式 (I) 的化合物的具体例如下，但不限定于此。

[0290] 【化 161】



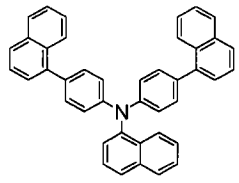
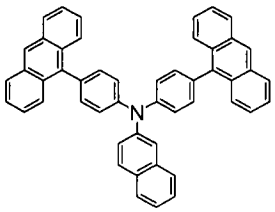
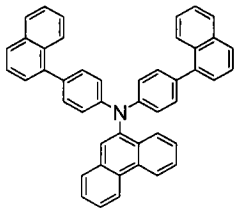
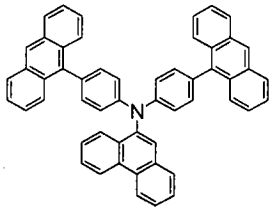
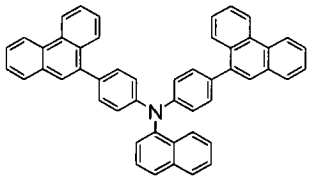
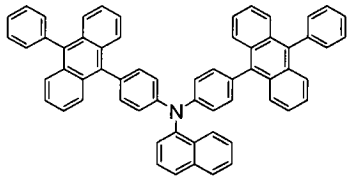
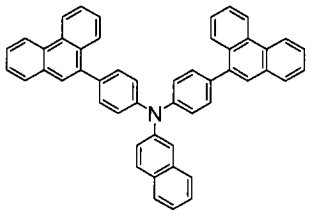
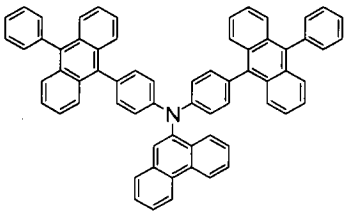
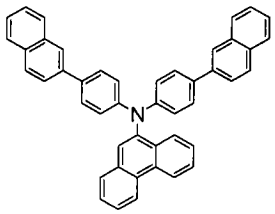
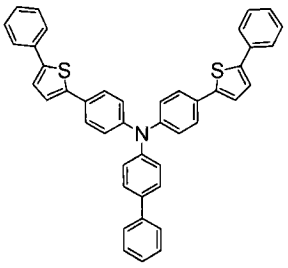
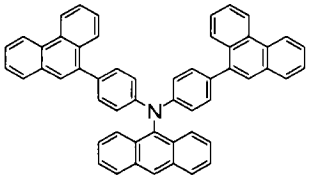
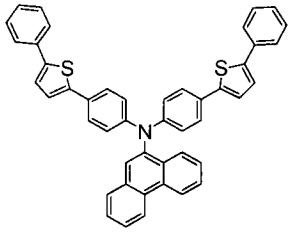
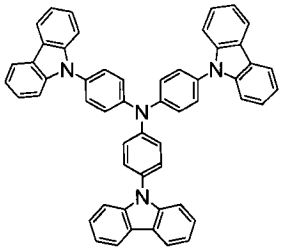
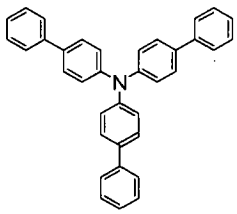
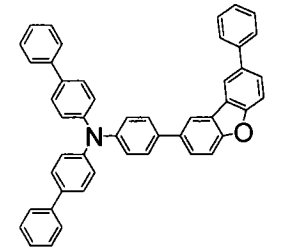
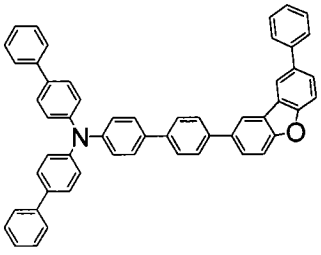
[0291] 此外，下述通式（II）的芳香族胺也适用于形成空穴注入层或空穴输送层。



[0292] 【化 162】

[0293] 上述通式 (II) 中，Ar^1 ～ Ar^3 的定义与上述通式 (I) 的 Ar^1 ～ Ar^4 的定义相同。以下记载有通式 (II) 的化合物的具体例，但不限于此。

[0294] 【化 163】

[0295] 另，本发明不限于上述说明，在不超过本发明主旨的范围内的变更也包含于本发明内。

例如以下的变更也是本发明适宜的变形例。

[0296] 本发明中，也优选上述发光层含有电荷注入辅助材料。

当使用能隙宽的基质材料形成发光层时，基质材料的电离势（Ip）与空穴注入·输送层等的 Ip 之差变大，使得空穴向发光层注入变得困难，用于得到充分亮度的驱动电压恐怕会上升。

此时，通过使发光层含有空穴注入·输送性的电荷注入辅助剂，可以使空穴向发光层的注入变得容易，使驱动电压下降。

[0297] 电荷注入辅助剂可以使用例如，一般的空穴注入·输送材料等。

具体例可列举，三唑衍生物（参照美国专利 3,112,197 号说明书等）、噁二唑衍生物（参照美国专利 3,189,447 号说明书等）、咪唑衍生物（参照日本专利特公昭 37-16096 号公报等）、聚芳基烷烃衍生物（参照美国专利 3,615,402 号说明书、同第 3,820,989 号说明书、同第 3,542,544 号说明书、日本专利特公昭 45-555 号公报、同 51-10983 号公报、日本专利特开昭 51-93224 号公报、同 55-17105 号公报、同 56-4148 号公报、同 55-108667 号公报、同 55-156953 号公报、同 56-36656 号公报等）、吡唑啉衍生物及吡唑啉酮衍生物（参照美国专利第 3,180,729 号说明书、同第 4,278,746 号说明书、特开昭 55-88064 号公报、同 55-88065 号公报、同 49-105537 号公报、同 55-51086 号公报、同 56-80051 号公报、同 56-88141 号公报、同 57-45545 号公报、同 54-112637 号公报、同 55-74546 号公报等）、苯二胺衍生物（参照美国专利第 3,615,404 号说明书、日本专利特公昭 51-10105 号公报、同 46-3712 号公报、同 47-25336 号公报、日本专利特开昭 54-53435 号公报、同 54-110536 号公报、同 54-119925 号公报等）、芳胺衍生物（参照美国专利第 3,567,450 号说明书、同第 3,180,703 号说明书、同第 3,240,597 号说明书、同第 3,658,520 号说明书、同第 4,232,103 号说明书、同第 4,175,961 号说明书、同第 4,012,376 号说明书、日本专利特公昭 49-35702 号公报、同 39-27577 号公报、日本专利特开昭 55-144250 号公报、同 56-119132 号公报、同 56-22437 号公报、西德专利第 1,110,518 号说明书等）、氨基取代查尔酮衍生物（参照美国专利第 3,526,501 号说明书等）、噁唑衍生物（美国专利第 3,257,203 号说明书等公开的物质）、苯乙烯基蒽衍生物（参照日本专利特开昭 56-46234 号公报等）、芴酮衍生物（参照日本专利特开昭 54-110837 号公报等）、腙衍生物（参照美国专利第 3,717,462 号说明书、日本专利特开昭 54-59143 号公报、同 55-52063 号公报、同 55-52064 号公报、同 55-46760 号公报、同 55-85495 号公报、同 57-11350 号公报、同 57-148749 号公报、日本专利特开平 2-311591 号公报等）、芪衍生物（参照日本专利特开昭 61-210363 号公报、同第 61-228451 号公报、同 61-14642 号公报、同 61-72255 号公报、同 62-47646 号公报、同 62-36674 号公报、同 62-10652 号公报、同 62-30255 号公报、同 60-93455 号公报、同 60-94462 号公报、同 60-174749 号公报、同 60-175052 号公报等）、硅氮烷衍生物（美国专利第 4,950,950 号说明书）、聚硅烷系（日本专利特开平 2-204996 号公报）、苯胺系共聚物（日本专利特开平 2-282263 号公报）、日本专利特开平 1-211399 号公报所公开的导电性高分子低聚物（尤其是噻吩低聚物）等。

[0298] 空穴注入性材料可列举以上物质，但优选卟啉化合物（日本专利特开昭 63-295695 号公报等公开的物质）、芳香族叔胺化合物及苯乙烯胺化合物（参照美国专利第 4,127,412 号说明书、日本专利特开昭 53-27033 号公报、同 54-58445 号公报、同 54-149634 号公报、同 54-64299 号公报、同 55-79450 号公报、同 55-144250 号公报、同 56-119132 号公

报、同61-295558号公报、同61-98353号公报、同63-295695号公报等）、特别优选芳香族叔胺化合物。

[0299] 此外，还可列举美国专利第5,061,569号记载的分子内具有2个芳香稠环的，如4,4′-双(N-(1-萘基)-N-苯基氨基）联苯（以下简称为NPD)，或日本专利特开平4-308688号公报记载的将三苯胺单元连结成3个星爆(star burst)型得到的4,4′,4″-三(N-(3-甲基苯基)-N-苯基氨基）三苯胺（以下简称为MTDATA)等

此外，专利公报第3614405号、3571977号或美国专利4,780,536所记载的六氮杂9,10-苯并菲衍生物等也适用于空穴注入性材料。

此外，p型Si、p型SiC等的无机化合物也可以用作空穴注入材料。

[0300] 本发明的有机EL元件的各层的形成方法无特别限定。可以使用现有公知的真空蒸镀法、旋涂法等形成方法。本发明的有机EL元件所使用的含有上述式(1)所示化合物的有机薄膜层，可以通过真空蒸镀法、分子射线蒸镀法(MBE法）或溶解于溶剂的溶液浸渍法、旋涂法、浇注法、棒式涂布法、辊式涂布法等涂布法的公知的方法形成。

[0301] 本发明的有机EL元件的各有机层的膜厚并无特别限制，一般，膜厚太薄的话，容易产生气孔等缺陷，反之，若太厚，则必须外加高电压而使效率变差，因此，通常理想的是数nm至1μm的范围。

实施例

[0302] 接着，列举实施例及比较例对本发明进行更详细的说明，但这些实施例的记载内容并不对本发明有任何的限制。

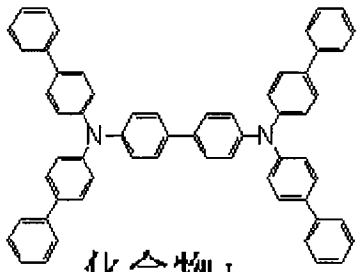
[0303] 实施例1（有机EL元件1的作成）

将25mm×75mm×1.1mm的带有ITO透明电极的玻璃基板（ジオマティック公司制)，在异丙醇中用超声波清洗5分钟，然后，进行30分钟的UV(Ultraviolet)臭氧清洗。

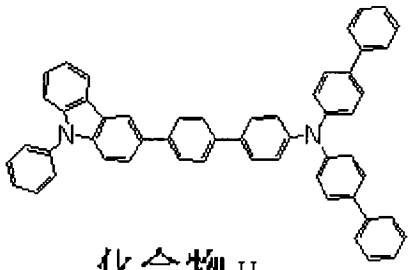
将这样清洗后的带透明电极的玻璃基板安装在真空蒸镀装置的基板架上，首先在玻璃基板的形成有透明电极线的那一侧的面上，蒸镀厚40nm的化合物I使其覆盖透明电极，获得空穴注入层。接着，在该膜上，蒸镀厚20nm的化合物II，获得空穴输送层。

该空穴输送层上，共蒸镀作为磷光用基质的化合物No.A-1、磷光用基质的化合物No.B-1和磷光用掺杂剂的$Ir(ppy)_3$，其总共厚度为50nm，获得磷光发光层。磷光发光层内中的化合物A-1的浓度为42.5质量%、化合物B-1的浓度为42.5质量%、$Ir(ppy)_3$的浓度为15质量%。接着，在该磷光发光层上依次层压厚30nm的化合物III、厚1nm的LiF、厚80nm的金属Al，获得阴极。另，对于电子注入性电极的LiF，以1Å/min的速度形成。

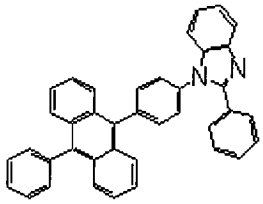
[0304] 【化164】



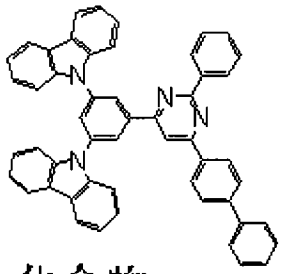
化合物 I



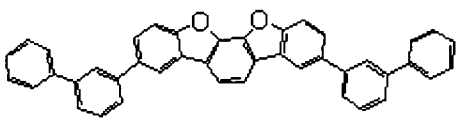
化合物 II



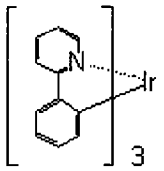
化合物 III



化合物 A-1



化合物 B-1



Ir(ppy)$_3$

[0305] （有机 EL 元件的发光性能评价）

通过直流电流驱动如上制作的有机 EL 元件使之发光，测定亮度、电流密度，求得电流密度 1mA/cm^2 时的电压及发光效率。进一步求得初期亮度 20000cd/m^2 时的亮度减半寿命。本实施例 1 及后述实施例 2 ～ 7 及比较例 1 ～ 2 的发光性能评价结果见表 4。

[0306] 实施例 2

使用基质化合物 B-2 代替实施例 1 中所使用的基质化合物 B-1，除此之外，同实施例 1 进行有机 EL 元件的制作、评价。

[0307] 实施例 3

使用基质化合物 B-3 代替实施例 1 中所使用的基质化合物 B-1，除此之外，同实施例 1 进行有机 EL 元件的制作、评价。

[0308] 实施例 4

使用基质化合物 A-2 代替实施例 1 中所使用的基质化合物 A-1，除此之外，同实施例 1 进行有机 EL 元件的制作、评价。

[0309] 实施例 5

使用基质化合物 A-3 代替实施例 1 中所使用的基质化合物 A-1，除此之外，同实施例 1 进行有机 EL 元件的制作、评价。

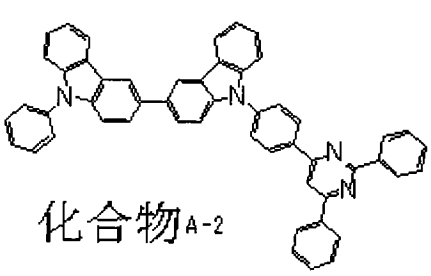
[0310] 实施例 6

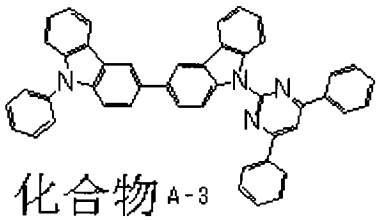
分别使用基质化合物 A-4 代替实施例 1 中所使用的基质化合物 A-1、基质化合物 B-2 代替实施例 1 中所使用的基质化合物 B-1，除此之外，同实施例 1 进行有机 EL 元件的制作、评价。发光性能评价结果见表 4。

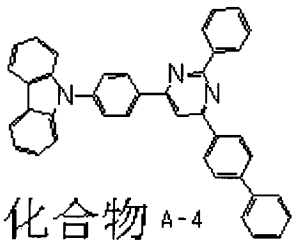
[0311] 实施例 7

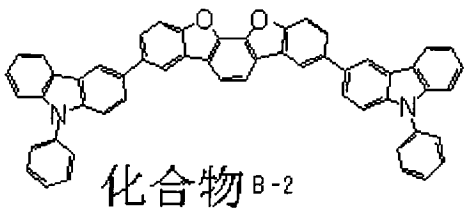
分别使用基质化合物 A-4 代替实施例 1 中所使用的基质化合物 A-1、基质化合物 B-4 代替实施例 1 中所使用的基质化合物 B-1，除此之外，同实施例 1 进行有机 EL 元件的制作、评价。

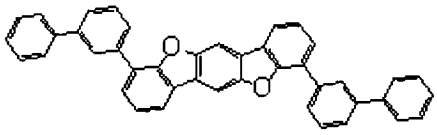
[0312] 【化 165】

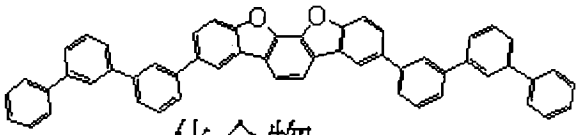

化合物A-2


化合物A-3


化合物A-4


化合物B-2


化合物B-3


化合物B-4

[0313] 比较例 1

将 25mm×75mm×1.1mm 的带有 ITO 透明电极的玻璃基板（ジオマティック公司制），在异丙醇中用超声波清洗 5 分钟，然后，进行 30 分钟的 UV(Ultraviolet) 臭氧清洗。

将这样清洗后的带透明电极的玻璃基板安装在真空蒸镀装置的基板架上，首先在玻璃基板的形成有透明电极线的那一侧的面上，蒸镀厚 40nm 的化合物 I 使其覆盖透明电极，获得空穴注入层。接着，在该膜上，蒸镀厚 20nm 的化合物 II，获得空穴输送层。

该空穴输送层上，共蒸镀作为磷光用基质的化合物 A-1 和磷光用掺杂剂的 $Ir(ppy)_3$，其总共厚度为 50nm，获得磷光发光层。磷光发光层内中的化合物 A-1 的浓度为 85 质量%、$Ir(ppy)_3$ 的浓度为 15 质量%。

接着，在该磷光发光层上依次层压厚 30nm 的化合物 III、厚 1nm 的 LiF、厚 80nm 的金属 Al，获得阴极。另，对于电子注入性电极的 LiF，以1Å/min的速度形成。

[0314] 比较例 2

使用基质化合物 B-1 代替比较例 1 中所使用的基质化合物 A-1，除此之外，同比较例 1 进行有机 EL 元件的制作、评价。

[0315] 【表 4】

	基质化合物	电压(V) @1mA/cm^2	发光效率(cd/A) @1mA/cm^2	亮度减半寿命(hrs) @初期亮度 20000cd/m^2
实施例1	A-1 B-1	3.1	56	500
实施例2	A-1 B-2	3.2	54	400
实施例3	A-1 B-3	3.0	54	400
实施例4	A-2 B-1	3.5	55	500
实施例5	A-3 B-1	3.8	55	500
实施例6	A-4 B-2	2.9	52	300
实施例7	A-4 B-4	3.1	57	200
比较例1	A-1	2.8	58	50
比较例2	B-1	5.2	31	300

[0316] 如表4所示，实施例的有机EL元件相比于比较例的有机EL元件，其亮度减半寿命非常长。在发光层中仅使用化合物B-1那样的分子内具有苯并呋喃二苯并呋喃结构的本申请所记载的化合物的有机EL元件，相比于本发明的实施例所记载的有机EL元件，其驱动电压高。

如以上的详细说明，使用本发明记载的化合物组合，可获得亮度减半寿命非常长的有机EL元件。此外，还可以获得发光效率高，且能在低电压下发光的有机EL元件。因此，本发明的有机EL元件作为各种电子机器的光源等非常有用。此外，本发明的化合物也能有效地活用作有机电子元件用材料，在有机太阳电池、有机半导体激光器、使用有机物的传感器、有机TFT中也是非常地有用。

产业上的可利用性

本发明能用作寿命长、发光效率高，可在省耗电力化所必要的低电压下驱动的有机EL元件。

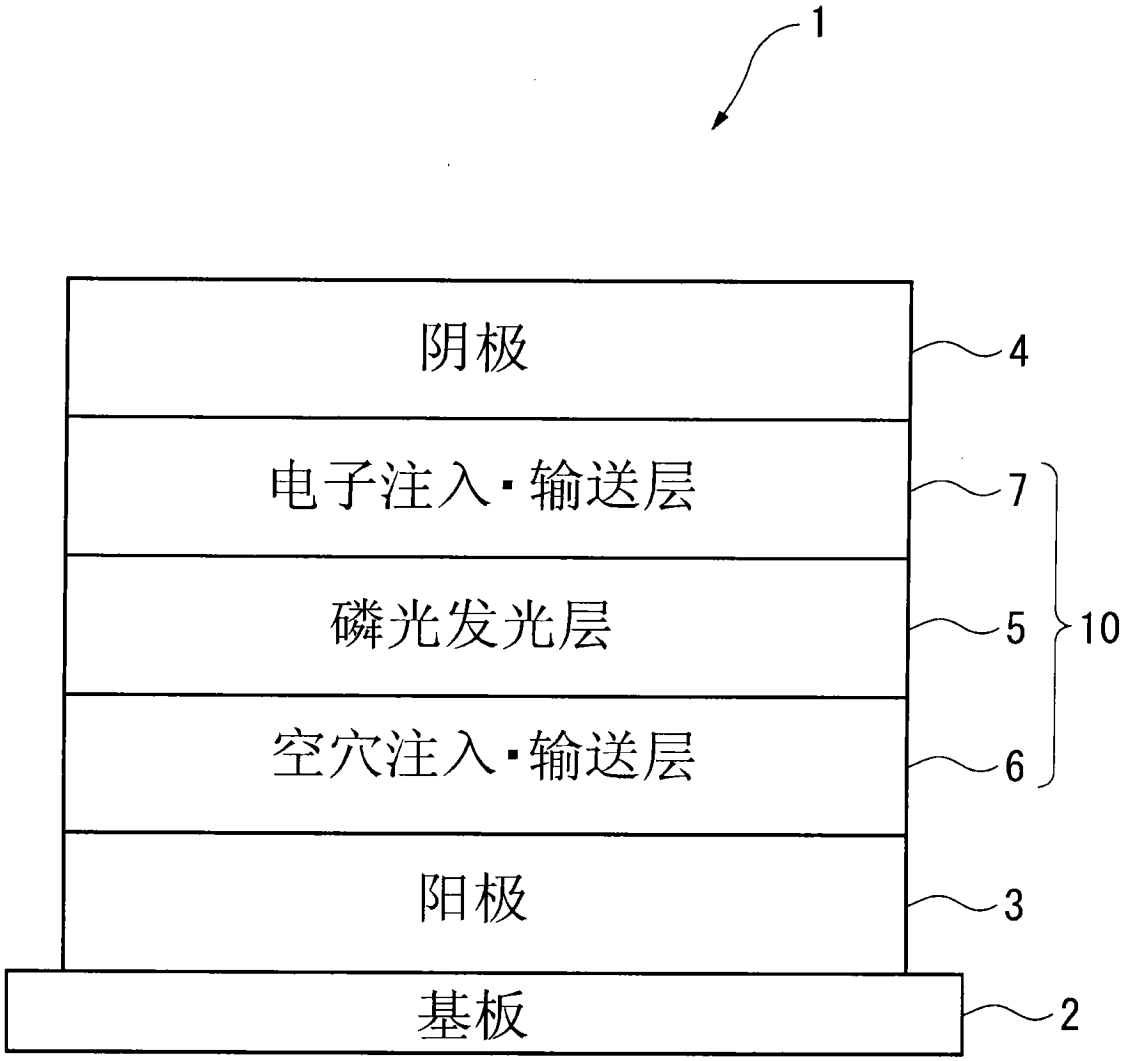


图 1