I849112

(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公告本　**(11)證書號數：TW I849112 B**

(45)公告日： 中華民國 113 (2024) 年 07 月 21 日

(21)申請案號：109113208　(22)申請日： 中華民國 109 (2020) 年 04 月 20 日

(51)Int. Cl.：　*C07F5/02 (2006.01)*　*C08G61/12 (2006.01)*
H05B33/14 (2006.01)　*C09K11/06 (2006.01)*
H10K50/00 (2023.01)　*C09D11/02 (2014.01)*
C09D11/10 (2014.01)

(30)優先權：2019/04/22　日本　2019-080882
2019/10/04　日本　2019-183417
2019/11/21　日本　2019-210200
2019/12/18　日本　2019-228391

(71)申請人：學校法人關西學院 (日本) KWANSEI GAKUIN EDUCATIONAL FOUNDATION (JP)
日本
南韓商愛思開新材料捷恩智股份有限公司 (南韓) SK MATERIALS JNC CO., LTD. (KR)
南韓

(72)發明人：畠山次　HATAKEYAMA, TAKUJI (JP)；枝連一志 SHIREN, KAZUSHI (JP)；影山明子 KAGEYAMA, AKIKO (JP)；田中裕之 TANAKA, HIROYUKI (JP)；水谷彰英 MIZUTANI, AKIHIDE (JP)；笹田康幸 SASADA, YASUYUKI (JP)

(74)代理人：葉璟宗；卓俊傑

(56)參考文獻：

CN　108358905A　KR　10-2018-0127918A
WO　2016/143624A1　WO　2016/152418A1
WO　2017/138526A1

審查人員：曾俊豪

申請專利範圍項數：34 項　圖式數：1　共 482 頁

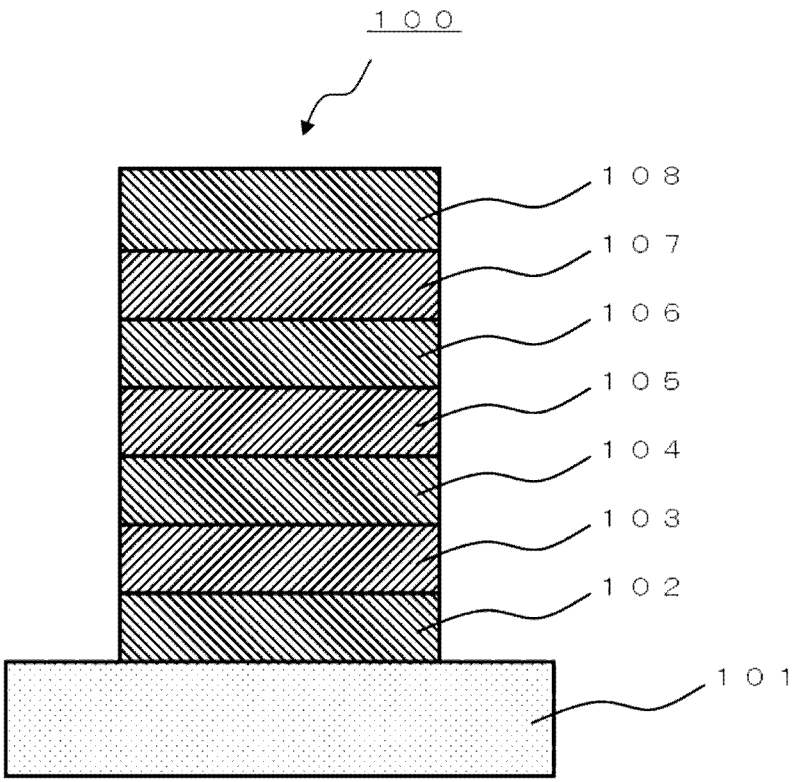
(54)名稱

多環芳香族化合物、反應性化合物、高分子化合物、懸掛型高分子化合物、有機元件用材料、油墨組成物、有機電致發光元件、顯示裝置及照明裝置

(57)摘要

本發明是有關於一種將環烷烴縮合於新穎的多環芳香族化合物中而成的化合物，所述新穎的多環芳香族化合物是利用硼原子與氧原子等將多個芳香族環連結而成。藉由本發明的化合物而可增加有機 EL 元件用材料等有機元件用材料的選擇項，另外，藉由將該化合物用作有機 EL 元件用材料而可提供例如發光效率或元件壽命優異的有機 EL 元件。

指定代表圖：



【圖1】

符號簡單說明：

100:有機電致發光元件(有機 EL 元件)

101:基板

102:陽極

103:電洞注入層

104:電洞傳輸層

105:發光層

106:電子傳輸層

107:電子注入層

108:陰極

109年6月15日 所提修正

公告本

I849112

【發明摘要】

【中文發明名稱】多環芳香族化合物、反應性化合物、高分子化合物、懸掛型高分子化合物、有機元件用材料、油墨組成物、有機電致發光元件、顯示裝置及照明裝置

【英文發明名稱】POLYCYCLIC AROMATIC COMPOUNDS, REACTIVE COMPOUNDS, POLYMER COMPOUNDS, SUSPENSION-TYPE POLYMER COMPOUNDS, MATERIAL FOR ORGANIC ELEMENTS, INK COMPOSITIONS, ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE ELEMENTS, DISPLAY DEVICES AND LIGHTING DEVICES

【中文】

本發明是有關於一種將環烷烴縮合於新穎的多環芳香族化合物中而成的化合物，所述新穎的多環芳香族化合物是利用硼原子與氧原子等將多個芳香族環連結而成。藉由本發明的化合物而可增加有機 EL 元件用材料等有機元件用材料的選擇項，另外，藉由將該化合物用作有機 EL 元件用材料而可提供例如發光效率或元件壽命優異的有機 EL 元件。

【指定代表圖】圖 1。

【代表圖之符號簡單說明】

100:有機電致發光元件（有機 EL 元件）

101:基板

102:陽極

103:電洞注入層

104:電洞傳輸層

105:發光層

106:電子傳輸層

107:電子注入層

108:陰極

【特徵化學式】

無

【發明說明書】

【中文發明名稱】多環芳香族化合物、反應性化合物、高分子化合物、懸掛型高分子化合物、有機元件用材料、油墨組成物、有機電致發光元件、顯示裝置及照明裝置

【英文發明名稱】POLYCYCLIC AROMATIC COMPOUNDS, REACTIVE COMPOUNDS, POLYMER COMPOUNDS, SUSPENSION-TYPE POLYMER COMPOUNDS, MATERIAL FOR ORGANIC ELEMENTS, INK COMPOSITIONS, ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE ELEMENTS, DISPLAY DEVICES AND LIGHTING DEVICES

【技術領域】

【0001】 本發明是有關於一種環烷烴縮合多環芳香族化合物及其多聚體（以下，亦匯總稱為「多環芳香族化合物」）、與使用其的有機電致發光元件、有機場效電晶體及有機薄膜太陽電池、以及顯示裝置及照明裝置。再者，本說明書中有時將「有機電致發光元件」表述為「有機 EL（electroluminescence）元件」或僅表述為「元件」。

【先前技術】

【0002】 先前，使用了進行電致發光的發光元件的顯示裝置因可實現省電力化或薄型化而得到各種研究，進而，包含有機材料的有機電致發光元件因容易輕量化或大型化而得到積極研究。尤

其，關於具有作為光的三原色之一的藍色等的發光特性的有機材料的開發，以及關於具備電洞、電子等的電荷傳輸能力（具有成為半導體或超導體的可能性）的有機材料的開發，迄今為止，不論高分子化合物、低分子化合物均得到積極研究。

【0003】 有機 EL 元件具有如下結構，所述結構包括：包含陽極及陰極的一對電極，以及配置於該一對電極間、且包含有機化合物的一層或多層。於包含有機化合物的層中，有發光層，或者傳輸或注入電洞、電子等電荷的電荷傳輸/注入層等，開發有對於該些層而言適當的各種有機材料。

【0004】 作為發光層用材料，例如開發有苯並芴系化合物等（國際公開第 2004/061047 號公報）。另外，作為電洞傳輸材料，例如開發有三苯基胺系化合物等（日本專利特開 2001-172232 號公報）。另外，作為電子傳輸材料，例如開發有蒽系化合物等（日本專利特開 2005-170911 號公報）。

【0005】 另外，近年來，作為用於有機 EL 元件或有機薄膜太陽電池的材料，亦報告有對三苯基胺衍生物進行改良而成的材料（國際公開第 2012/118164 號公報）。該材料為如下的材料，其特徵在於：參考已實用化的 N,N'-二苯基-N,N'-雙(3-甲基苯基)-1,1'-聯苯-4,4'-二胺（TPD），使構成三苯基胺的芳香環彼此連結，藉此提高其平面性。該文獻中，例如對 NO 連結系化合物（63 頁的化合物 1）的電荷傳輸特性進行了評價，但關於 NO 連結系化合物以外的材料的製造方法並未進行記載，另外，若連結的元素不同則化合

物整體的電子狀態不同，因此，自 NO 連結系化合物以外的材料所獲得的特性亦仍未知。此種化合物的例子於別處亦可看到（國際公開第 2011/107186 號公報）。例如，具有三重態激子的能量（T1）大的共軛結構的化合物可發出波長更短的磷光，因此作為藍色的發光層用材料有益。另外，作為夾持發光層的電子傳輸材料或電洞傳輸材料，亦需要具有 T1 大的新穎共軛結構的化合物。

【0006】 有機 EL 元件的主體（host）材料通常為利用單鍵或磷原子或矽原子將多個苯或咔唑等現有的芳香環連結而成的分子。其原因在於：藉由將多個共軛系比較小的芳香環加以連結，主體材料所需的大的最高佔據分子軌道（Highest Occupied Molecular Orbital，HOMO）-最低未佔分子軌道（Lowest Unoccupied Molecular Orbital，LUMO）間隙（薄膜的帶隙 Eg）得到擔保。進而，於使用磷光材料或熱活性型延遲螢光材料的有機 EL 元件的主體材料中，亦需要高的三重態激發能量（E_T），但藉由將施體性或受體性的芳香環或取代基連結於分子上，而使三重態激發狀態（T1）的單佔分子軌道（Singly Occupied Molecular Orbital，SOMO）1 及 SOMO2 局部存在化，並減小兩軌道間的交換相互作用，藉此能夠提昇三重態激發能量（E_T）。但是，共軛系小的芳香環的氧化還原穩定性並不充分，將連結有現有的芳香環的分子用作主體材料的元件的壽命並不充分。另一方面，具有擴張 π 共軛系的多環芳香族化合物通常氧化還原穩定性優異，但 HOMO-LUMO 間隙（薄膜的帶隙 Eg）或三重態激發能量（E_T）低，因此被認為不適合主體

材料。

[現有技術文獻]

[專利文獻]

【0007】 [專利文獻 1]國際公開第 2004/061047 號公報

[專利文獻 2]日本專利特開 2001-172232 號公報

[專利文獻 3]日本專利特開 2005-170911 號公報

[專利文獻 4]國際公開第 2012/118164 號公報

[專利文獻 5]國際公開第 2011/107186 號公報

[專利文獻 6]國際公開第 2015/102118 號公報

【發明內容】

[發明所欲解決之課題]

【0008】 如上所述，作為用於有機 EL 元件的材料，開發有各種材料，為了增加有機 EL 元件用材料的選擇項，期望開發包含與先前不同的化合物的材料。尤其，自專利文獻 1～專利文獻 4 中所報告的 NO 連結系化合物以外的材料所獲得的有機 EL 特性或其製造方法仍然未知。

【0009】 另外，專利文獻 6 中報告有一種含有硼的多環芳香族化合物與使用其的有機 EL 元件，但為了進一步提昇元件特性，謀求一種可提昇發光效率或元件壽命的發光層用材料、特別是摻雜劑（dopant）材料。

[解決課題之手段]

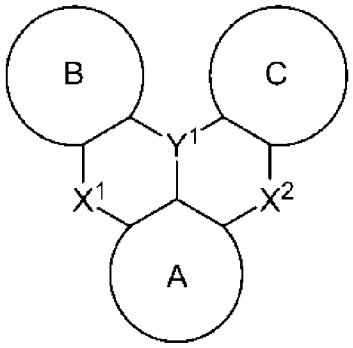
【0010】 本發明者等人為了解決所述課題而進行了努力研究，結

果發現藉由將含有縮合有環烷烴的多環芳香族化合物的層配置於一對電極間來構成例如有機 EL 元件，可獲得優異的有機 EL 元件，從而完成了本發明。即，本發明提供如下的環烷烴縮合多環芳香族化合物或其多聚體、以及包含如下的環烷烴縮合多環芳香族化合物或其多聚體的有機 EL 元件用材料等有機元件用材料。

【0011】 再者，本說明書中有時以碳數來表示化學結構或取代基，但於化學結構中取代有取代基時、或者於取代基上進而取代有取代基時等的碳數是指化學結構或取代基各自的碳數，並非指化學結構與取代基的合計碳數、或取代基與取代基的合計碳數。例如，所謂「由碳數 X 的取代基 A 取代的碳數 Y 的取代基 B」，是指「碳數 X 的取代基 A」於「碳數 Y 的取代基 B」上進行取代，碳數 Y 並非取代基 A 及取代基 B 的合計碳數。另外，例如所謂「由取代基 A 取代的碳數 Y 的取代基 B」，是指「（不限定碳數的）取代基 A」於「碳數 Y 的取代基 B」上進行取代，碳數 Y 並非取代基 A 及取代基 B 的合計碳數。

【0012】 項 1.

一種多環芳香族化合物或多環芳香族化合物的多聚體，其中，所述多環芳香族化合物由下述通式（1）表示，所述多環芳香族化合物的多聚體具有多個下述通式（1）所表示的結構。



(1)

（所述式（1）中，

A 環、B 環及 C 環分別獨立地為芳基環或雜芳基環，該些環中的至少一個氫可被取代，

Y^1 為 B、P、P=O、P=S、Al、Ga、As、Si-R 或 Ge-R，所述 Si-R 及 Ge-R 的 R 為芳基、烷基或環烷基，

X^1 及 X^2 分別獨立地為＞O、＞N-R、＞$C(-R)_2$、＞S 或＞Se，所述＞N-R 的 R 為可被取代的芳基、可被取代的雜芳基、可被取代的烷基或可被取代的環烷基，所述＞$C(-R)_2$ 的 R 為氫、可被取代的芳基、可被取代的烷基或可被取代的環烷基，另外，所述＞N-R 的 R 及所述＞$C(-R)_2$ 的 R 的至少一個可藉由連結基或單鍵而與所述 A 環、B 環及 C 環的至少一個鍵結，

式（1）所表示的化合物或結構中的至少一個氫可由氘、氰基或鹵素取代，而且，

式（1）所表示的化合物或結構中的 A 環、B 環、C 環、芳基及雜芳基的至少一個由至少一個環烷烴縮合，該環烷烴中的至少一個氫可被取代，該環烷烴中的至少一個-CH_2-可由-O-取代）

【0013】 項 2.

如項 1 所述的多環芳香族化合物或其多聚體，其中，

所述式（1）中，

A 環、B 環及 C 環分別獨立地為芳基環或雜芳基環，該些環中的至少一個氫可由經取代或未經取代的芳基、經取代或未經取代的雜芳基、經取代或未經取代的二芳基胺基、經取代或未經取代的二雜芳基胺基、經取代或未經取代的芳基雜芳基胺基、經取代或未經取代的二芳基硼基（兩個芳基可經由單鍵或連結基而鍵結）、經取代或未經取代的烷基、經取代或未經取代的環烷基、經取代或未經取代的烷氧基、經取代或未經取代的芳氧基、或者經取代的矽烷基取代，另外，該些環具有與包含 Y^1、X^1 及 X^2 的所述式中央的縮合二環結構共有鍵結的 5 員環或 6 員環，

Y^1 為 B、P、P=O、P=S、Al、Ga、As、Si-R 或 Ge-R，所述 Si-R 及 Ge-R 的 R 為芳基、烷基或環烷基，

X^1 及 X^2 分別獨立地為＞O、＞N-R、＞$C(-R)_2$、＞S 或＞Se，所述＞N-R 的 R 為可由烷基或環烷基取代的芳基、可由烷基或環烷基取代的雜芳基、烷基或環烷基，所述＞$C(-R)_2$ 的 R 為氫、可由烷基或環烷基取代的芳基、烷基或環烷基，另外，所述＞N-R 的 R 及所述＞$C(-R)_2$ 的 R 的至少一個可藉由-O-、-S-、-$C(-R)_2$-或單鍵而與所述 A 環、B 環及 C 環的至少一個鍵結，所述-$C(-R)_2$-的 R 為氫、烷基或環烷基，

式（1）所表示的化合物或結構中的至少一個氫可由氘、氰基

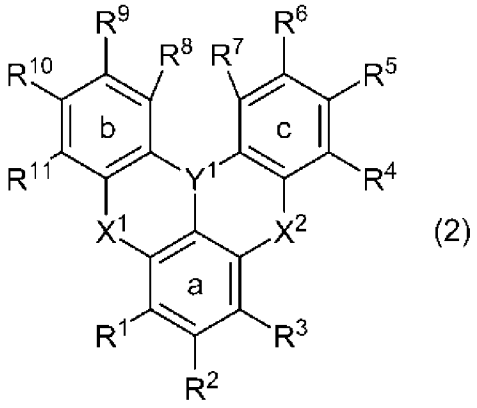
或鹵素取代，

於為多聚體的情況下，為具有 2 個或 3 個通式（1）所表示的結構的二聚體或三聚體，而且，

式（1）所表示的化合物或結構中的 A 環、B 環、C 環、芳基及雜芳基的至少一個由至少一個環烷烴縮合，該環烷烴中的至少一個氫可被取代，該環烷烴中的至少一個-CH_2-可由-O-取代。

【0014】 項 3.

如項 1 所述的多環芳香族化合物，其由下述通式（2）表示。



(2)

（所述式（2）中，

a 環、b 環及 c 環中的任意的「-C(-R)=」（此處，R 為式（2）中的 R^1～R^{11}）可被取代為「-N=」，任意的「-C(-R)=C(-R)-」（此處，R 為式（2）中的 R^1～R^{11}）可被取代為「-N(-R)-」、「-O-」或「-S-」，所述「-N(-R)-」的 R 為芳基、烷基或環烷基，

R^1～R^{11} 分別獨立地為氫、芳基、雜芳基、二芳基胺基、二雜

芳基胺基、芳基雜芳基胺基、二芳基硼基（兩個芳基可經由單鍵或連結基而鍵結）、烷基、環烷基、烷氧基、芳氧基、三芳基矽烷基、三烷基矽烷基、三環烷基矽烷基、二烷基環烷基矽烷基或烷基二環烷基矽烷基，該些中的至少一個氫可由芳基、雜芳基、烷基或環烷基取代，另外，R^1～R^{11}中的鄰接的基彼此可鍵結並與 a 環、b 環或 c 環一同形成芳基環或雜芳基環，所形成的環中的至少一個氫可由芳基、雜芳基、二芳基胺基、二雜芳基胺基、芳基雜芳基胺基、二芳基硼基（兩個芳基可經由單鍵或連結基而鍵結）、烷基、環烷基、烷氧基、芳氧基、三芳基矽烷基、三烷基矽烷基、三環烷基矽烷基、二烷基環烷基矽烷基或烷基二環烷基矽烷基取代，該些中的至少一個氫可由芳基、雜芳基、烷基或環烷基取代，

Y^1為 B、P、P=O、P=S、Al、Ga、As、Si-R 或 Ge-R，所述 Si-R 及 Ge-R 的 R 為碳數 6～12 的芳基、碳數 1～6 的烷基或碳數 3～14 的環烷基，

X^1及 X^2分別獨立地為＞O、＞N-R、＞$C(-R)_2$、＞S 或＞Se，所述＞N-R 的 R 為碳數 6～12 的芳基、碳數 2～15 的雜芳基、碳數 1～6 的烷基或碳數 3～14 的環烷基，所述＞$C(-R)_2$的 R 為氫、碳數 6～12 的芳基、碳數 1～6 的烷基或碳數 3～14 的環烷基，另外，所述＞N-R 的 R 及所述＞$C(-R)_2$的 R 的至少一個可藉由-O-、-S-、-$C(-R)_2$-或單鍵而與所述 a 環、b 環及 c 環的至少一個鍵結，所述-$C(-R)_2$-的 R 為碳數 1～6 的烷基或碳數 3～14 的環烷基，

式（2）所表示的化合物中的至少一個氫可由氘、氰基或鹵素

取代，而且，

式（2）所表示的化合物中的所述 a 環、所述 b 環、所述 c 環、所述所形成的環、所述芳基及所述雜芳基的至少一個由碳數 3～24 的至少一個環烷烴縮合，該環烷烴中的至少一個氫可由碳數 6～30 的芳基、碳數 2～30 的雜芳基、碳數 1～24 的烷基或碳數 3～24 的環烷基取代，該環烷烴中的至少一個-CH_2-可由-O-取代）

【0015】 項 4.

如項 3 所述的多環芳香族化合物，其中，

所述式（2）中，

a 環、b 環及 c 環中的任意的「-C(-R)=」（此處，R 為式（2）中的 R^1～R^{11}）可被取代為「-N=」，任意的「-C(-R)=C(-R)-」（此處，R 為式（2）中的 R^1～R^{11}）可被取代為「-N(-R)-」、「-O-」或「-S-」，所述「-N(-R)-」的 R 為碳數 6～12 的芳基、碳數 1～6 的烷基或碳數 3～14 的環烷基，

R^1～R^{11} 分別獨立地為氫、碳數 6～30 的芳基、碳數 2～30 的雜芳基、二芳基胺基（其中，芳基為碳數 6～12 的芳基）、二芳基硼基（其中，芳基為碳數 6～12 的芳基，且兩個芳基可經由單鍵或連結基而鍵結）、碳數 1～24 的烷基、碳數 3～24 的環烷基、三芳基矽烷基（其中，芳基為碳數 6～12 的芳基）或三烷基矽烷基（其中，烷基為碳數 1～6 的烷基），另外，R^1～R^{11} 中的鄰接的基彼此可鍵結並與 a 環、b 環或 c 環一同形成碳數 9～16 的芳基環或碳數 6～15 的雜芳基環，所形成的環中的至少一個氫可由碳數 6

～10 的芳基、碳數 1～12 的烷基、碳數 3～16 的環烷基、三芳基矽烷基（其中，芳基為碳數 6～12 的芳基）或三烷基矽烷基（其中，烷基為碳數 1～5 的烷基）取代，

Y^1 為 B、P、P=O、P=S 或 Si-R，所述 Si-R 的 R 為碳數 6～10 的芳基、碳數 1～5 的烷基或碳數 5～10 的環烷基，

X^1 及 X^2 分別獨立地為＞O、＞N-R、＞$C(-R)_2$ 或＞S，所述＞N-R 的 R 為碳數 6～10 的芳基、碳數 1～5 的烷基或碳數 5～10 的環烷基，所述＞$C(-R)_2$ 的 R 為氫、碳數 6～10 的芳基、碳數 1～5 的烷基或碳數 5～10 的環烷基，

式（2）所表示的化合物中的至少一個氫可由氘、氰基或鹵素取代，而且，

式（2）所表示的化合物中的所述 a 環、所述 b 環、所述 c 環、所述所形成的環、所述芳基及所述雜芳基的至少一個由碳數 3～20 的至少一個環烷烴縮合，該環烷烴中的至少一個氫可由碳數 6～16 的芳基、碳數 2～22 的雜芳基、碳數 1～12 的烷基或碳數 3～16 的環烷基取代。

【0016】 項 5.

如項 3 所述的多環芳香族化合物，其中，

所述式（2）中，

a 環、b 環及 c 環中的任意的「-C(-R)=」（此處，R 為式（2）中的 R^1～R^{11}）可被取代為「-N=」，任意的「-C(-R)=C(-R)-」（此處，R 為式（2）中的 R^1～R^{11}）可被取代為「-N(-R)-」、「-O-」或

「-S-」，所述「-N(-R)-」的 R 為碳數 6～10 的芳基、碳數 1～5 的烷基或碳數 5～10 的環烷基，

R^1～R^{11} 分別獨立地為氫、碳數 6～16 的芳基、碳數 2～20 的雜芳基、二芳基胺基（其中，芳基為碳數 6～10 的芳基）、碳數 1～12 的烷基或碳數 3～16 的環烷基，

Y^1 為 B、P、P=O 或 P=S，

X^1 及 X^2 分別獨立地為＞O、＞N-R 或＞$C(-R)_2$，所述＞N-R 的 R 為碳數 6～10 的芳基、碳數 1～5 的烷基或碳數 5～10 的環烷基，所述＞$C(-R)_2$ 的 R 為氫、碳數 6～10 的芳基、碳數 1～5 的烷基或碳數 5～10 的環烷基，

式（2）所表示的化合物中的至少一個氫可由氘、氰基或鹵素取代，而且，

式（2）所表示的化合物中的所述 a 環、所述 b 環、所述 c 環及作為所述＞N-R 的 R 的碳數 6～10 的芳基的至少一個由碳數 3～16 的至少一個環烷烴縮合，該環烷烴中的至少一個氫可由碳數 1～6 的烷基或碳數 3～14 的環烷基取代。

【0017】 項 6.

如項 3 所述的多環芳香族化合物，其中，

R^1～R^{11} 分別獨立地為氫、碳數 6～16 的芳基、二芳基胺基（其中，芳基為碳數 6～10 的芳基）、碳數 1～12 的烷基或碳數 3～16 的環烷基，

Y^1 為 B，

X^1 及 X^2 均為＞N-R，或者 X^1 為＞N-R 且 X^2 為＞O，所述＞N-R 的 R 為碳數 6～10 的芳基、碳數 1～5 的烷基或碳數 5～10 的環烷基，

式（2）所表示的化合物中的至少一個氫可由氘或鹵素取代，而且，

式（2）所表示的化合物中的所述 a 環、所述 b 環、所述 c 環及作為所述＞N-R 的 R 的碳數 6～10 的芳基的至少一個由碳數 3～14 的環烷烴縮合，該環烷烴中的至少一個氫可由碳數 1～5 的烷基取代。

【0018】 項 7.

如項 1 至項 6 中任一項所述的多環芳香族化合物或其多聚體，其被由環烷烴縮合的二芳基胺基、由環烷烴縮合的咔唑基或由環烷烴縮合的苯並咔唑基取代。

【0019】 項 8.

如項 3 至項 6 中任一項所述的多環芳香族化合物，其中，R^2 為由環烷烴縮合的二芳基胺基或由環烷烴縮合的咔唑基。

【0020】 項 9.

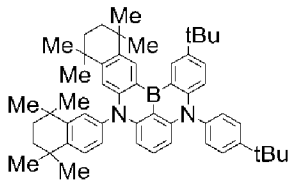
如項 7 或項 8 所述的多環芳香族化合物，其中，所述環烷烴為碳數 3～20 的環烷烴。

【0021】 項 10.

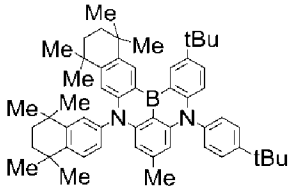
如項 1 至項 8 中任一項所述的多環芳香族化合物或其多聚體，其中，所述鹵素為氟。

【0022】 項 11.

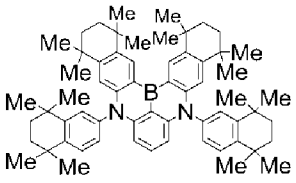
如項 1 所述的多環芳香族化合物，其由下述結構式的任一者表示。



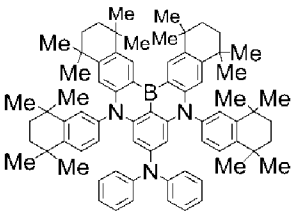
(1-411)



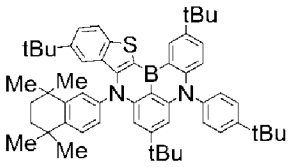
(1-590)



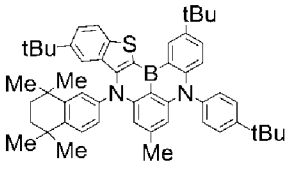
(1-1301)



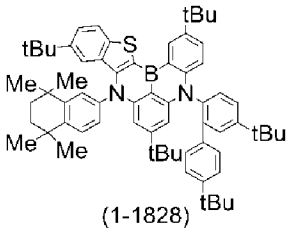
(1-1302)



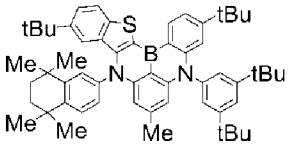
(1-1823)



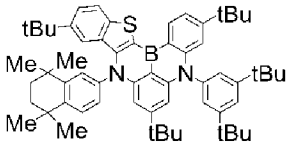
(1-1821)



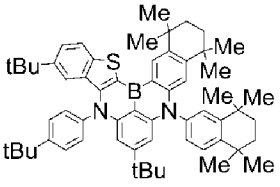
(1-1828)



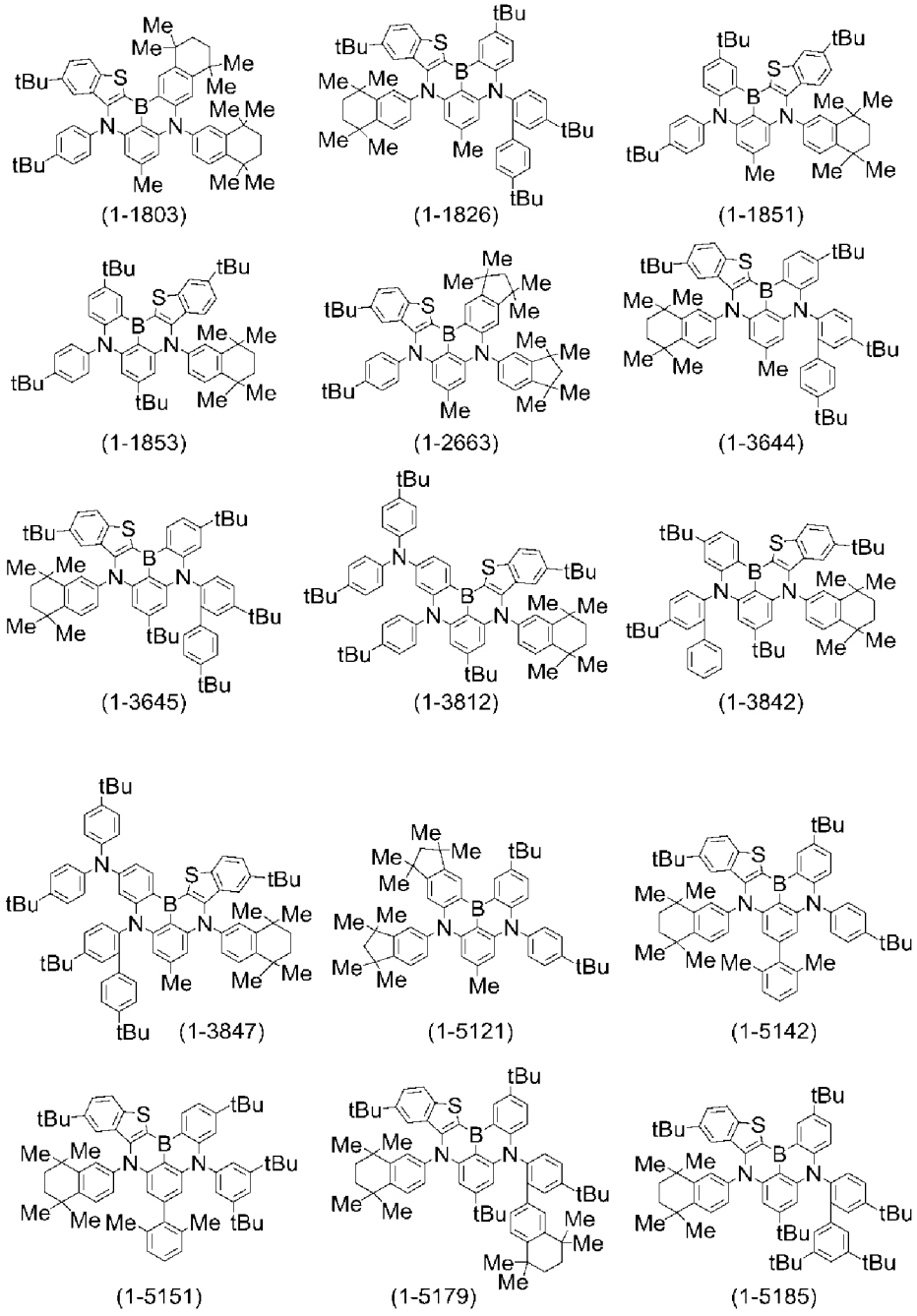
(1-3621)



(1-3623)



(1-3604)



（所述各結構式中的「Me」表示甲基，「tBu」表示第三丁基）

【0023】 項 12.

一種反應性化合物，其是於如項 1 至項 11 中任一項所述的多環芳香族化合物或其多聚體中取代有反應性取代基而成。

【0024】 項 13.

一種高分子化合物或高分子交聯體，其中，所述高分子化合物是使如項 12 所述的反應性化合物作為單體進行高分子化而成，所述高分子交聯體是使該高分子化合物進一步交聯而成。

【0025】 項 14.

一種懸掛型高分子化合物或懸掛型高分子交聯體，其中，所述懸掛型高分子化合物是於主鏈型高分子中使如項 12 所述的反應性化合物取代而成，所述懸掛型高分子交聯體是使該懸掛型高分子化合物進一步交聯而成。

【0026】 項 15.

一種有機元件用材料，含有如項 1 至項 11 中任一項所述的多環芳香族化合物或其多聚體。

【0027】 項 16.

一種有機元件用材料，含有如項 12 所述的反應性化合物。

【0028】 項 17.

一種有機元件用材料，含有如項 13 所述的高分子化合物或高分子交聯體。

【0029】 項 18.

一種有機元件用材料，含有如項 14 所述的懸掛型高分子化合物或懸掛型高分子交聯體。

【0030】 項 19.

如項 15 至項 18 中任一項所述的有機元件用材料，其中，所述有機元件用材料為有機電致發光元件用材料、有機場效電晶體

用材料或有機薄膜太陽電池用材料。

【0031】 項 20.

如項 19 所述的有機元件用材料，其中，所述有機電致發光元件用材料為發光層用材料。

【0032】 項 21.

一種油墨組成物，包含：如項 1 至項 11 中任一項所述的多環芳香族化合物或其多聚體；以及有機溶媒。

【0033】 項 22.

一種油墨組成物，包含：如項 12 所述的反應性化合物；以及有機溶媒。

【0034】 項 23.

一種油墨組成物，包含：主鏈型高分子；如項 12 所述的反應性化合物；以及有機溶媒。

【0035】 項 24.

一種油墨組成物，包含：如項 13 所述的高分子化合物或高分子交聯體；以及有機溶媒。

【0036】 項 25.

一種油墨組成物，包含：如項 14 所述的懸掛型高分子化合物或懸掛型高分子交聯體；以及有機溶媒。

【0037】 項 26.

一種有機電致發光元件，具有：一對電極，包含陽極及陰極；以及有機層，配置於該一對電極間，且含有如項 1 至項 11 中任一

項所述的多環芳香族化合物或其多聚體、如項 12 所述的反應性化合物、如項 13 所述的高分子化合物或高分子交聯體、或者如項 14 所述的懸掛型高分子化合物或懸掛型高分子交聯體。

【0038】 項 27.

如項 26 所述的有機電場發光元件，其中所述有機層為發光層。

【0039】 項 28.

如項 27 所述的有機電致發光元件，其中，所述發光層包括：主體；以及作為摻雜劑的所述多環芳香族化合物、其多聚體、反應性化合物、高分子化合物、高分子交聯體、懸掛型高分子化合物或懸掛型高分子交聯體。

【0040】 項 29.

如項 28 所述的有機電致發光元件，其中，所述主體為蒽系化合物、芴系化合物或二苯並蒀系化合物。

【0041】 項 30.

如項 26 至項 29 中任一項所述的有機電致發光元件，其具有配置於所述陰極與所述發光層之間的電子傳輸層及電子注入層的至少一個層，且該電子傳輸層及電子注入層的至少一者含有選自由硼烷衍生物、吡啶衍生物、螢蒽衍生物、BO 系衍生物、蒽衍生物、苯並芴衍生物、氧化膦衍生物、嘧啶衍生物、咔唑衍生物、三嗪衍生物、苯並咪唑衍生物、啡啉衍生物及羥基喹啉(quinolinol)系金屬錯合物所組成的群組中的至少一者。

【0042】 項 31.

如項 30 所述的有機電致發光元件，其中，所述電子傳輸層及電子注入層的至少一個層更含有選自由鹼金屬、鹼土金屬、稀土金屬、鹼金屬的氧化物、鹼金屬的鹵化物、鹼土金屬的氧化物、鹼土金屬的鹵化物、稀土金屬的氧化物、稀土金屬的鹵化物、鹼金屬的有機錯合物、鹼土金屬的有機錯合物及稀土金屬的有機錯合物所組成的群組中的至少一者。

【0043】 項 32.

如項 26 至項 31 中任一項所述的有機電致發光元件，其中，電洞注入層、電洞傳輸層、發光層、電子傳輸層及電子注入層中的至少一個層包含：高分子化合物或高分子交聯體、或者懸掛型高分子化合物或懸掛型高分子交聯體，所述高分子化合物是使可形成各層的低分子化合物作為單體進行高分子化而成，所述高分子交聯體是使該高分子化合物進一步交聯而成，所述懸掛型高分子化合物是使可形成各層的低分子化合物與主鏈型高分子反應而成，所述懸掛型高分子交聯體是使該懸掛型高分子化合物進一步交聯而成。

【0044】 項 33.

一種顯示裝置或照明裝置，包括如項 26 至項 32 中任一項所述的有機電致發光元件。

[發明的效果]

【0045】 根據本發明的較佳的形態，可提供一種可用作例如有機

EL元件用材料等有機元件用材料的新穎的環烷烴縮合多環芳香族化合物，藉由使用該環烷烴縮合多環芳香族化合物，可提供一種優異的有機 EL 元件等有機元件。

【0046】 具體而言，本發明者等人發現利用硼、磷、氧、氮、硫等異質元素將芳香環連結而成的多環芳香族化合物（基本骨架部分）具有大的 HOMO-LUMO 間隙（薄膜的帶隙 Eg）與高的三重態激發能量（E_T）。認為其原因在於：含有異質元素的 6 員環的芳香族性低，因此伴隨共軛系的擴張的 HOMO-LUMO 間隙的減少得到抑制，且因異質元素的電子擾動而使三重態激發狀態（T1）的 SOMO1 及 SOMO2 局部存在化。另外，本發明的含有異質元素的多環芳香族化合物（基本骨架部分）藉由三重態激發狀態（T1）下的 SOMO1 及 SOMO2 的局部存在化，而兩軌道間的交換相互作用變小，因此三重態激發狀態（T1）與單重態激發狀態（S1）的能量差小，顯示出熱活性型延遲螢光，因此作為有機 EL 元件（包含利用了熱活性型延遲螢光的元件）的螢光材料亦有用。另外，具有高的三重態激發能量（E_T）的材料作為磷光有機 EL 元件或利用了熱活性型延遲螢光的有機 EL 元件的電子傳輸層或電洞傳輸層亦有用。進而，該些多環芳香族化合物（基本骨架部分）藉由取代基的導入，而可任意地變動 HOMO 與 LUMO 的能量，因此可對應於周邊材料而使游離電位（ionization potential）或電子親和力最佳化。

【0047】 除此種基本骨架部分的特性以外，本發明的化合物藉由

縮合環烷烴，亦可抑制濃度淬滅，還可期待元件壽命或發光效率的改善。元件壽命或發光效率為有機元件的重要的特性值，藉由使用本申請案的化合物，可期待對於提高元件的特性的效果。另外，可期待熔點或昇華溫度的降低。該情況是指，於作為要求高純度的有機 EL 元件等有機元件用的材料的精製法而幾乎不可缺少的昇華精製中，可於比較低的溫度下進行精製，因此可避免材料的熱分解等。另外，該情況對於真空蒸鍍製程而言亦相同，可於比較低的溫度下實施製程，因此可避免材料的熱分解，結果可獲得高性能的有機元件，所述真空蒸鍍製程是對於製作有機 EL 元件等有機元件而言有力的手段。另外，關於多環芳香族化合物的多聚體，由於分子量或平面性之高等而昇華溫度高的化合物多，因此由縮合環烷烴引起的昇華溫度的降低變得更有效。另外，藉由環烷烴的縮合而於有機溶媒中的溶解性提高，因此亦能夠應用於利用了塗佈製程的元件製作。但是，本發明並不特別限定於該些原理。

【圖式簡單說明】

【0048】

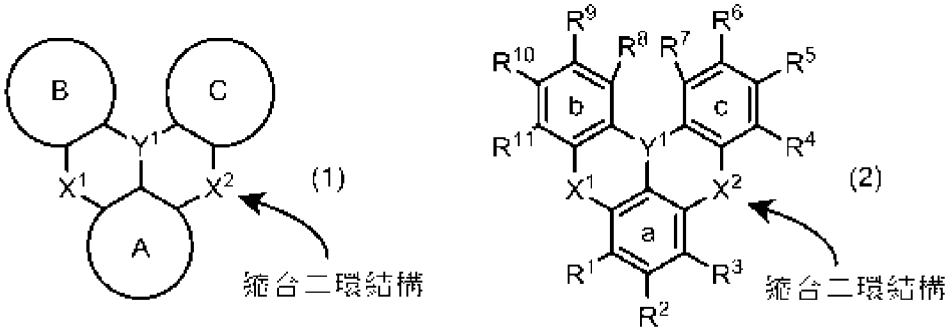
圖 1 是表示本實施形態的有機 EL 元件的概略剖面圖。

【實施方式】

【0049】 1.經環烷烴縮合的多環芳香族化合物及其多聚體

本申請案發明為下述通式（1）所表示的多環芳香族化合物、或具有多個下述通式（1）所表示的結構的多環芳香族化合物的多

聚體，較佳為下述通式（2）所表示的多環芳香族化合物、或具有多個下述通式（2）所表示的結構的多環芳香族化合物的多聚體，該些化合物或結構中的 A 環、B 環、C 環、芳基及雜芳基的至少一個由至少一個環烷烴縮合。



【0050】 通式（1）中的 A 環、B 環及 C 環分別獨立地為芳基環或雜芳基環，該些環中的至少一個氫可由取代基取代。該取代基較佳為經取代或未經取代的芳基、經取代或未經取代的雜芳基、經取代或未經取代的二芳基胺基、經取代或未經取代的二雜芳基胺基、經取代或未經取代的芳基雜芳基胺基（具有芳基與雜芳基的胺基）、經取代或未經取代的二芳基硼基（兩個芳基可經由單鍵或連結基而鍵結）、經取代或未經取代的烷基、經取代或未經取代的環烷基、經取代或未經取代的烷氧基、經取代或未經取代的芳氧基、或者經取代的矽烷基取代。作為該些基具有取代基時的取代基，可列舉：芳基、雜芳基、烷基或環烷基。另外，所述芳基環或雜芳基環較佳為具有與包含 Y^1、X^1 及 X^2 的通式（1）中央的

縮合二環結構共有鍵結的 5 員環或 6 員環。

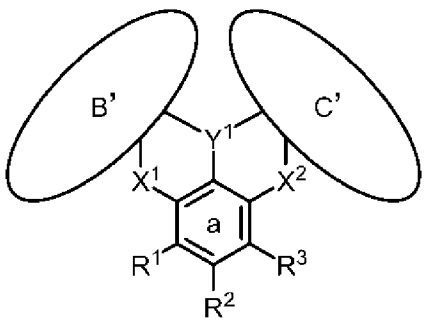
【0051】 此處，所謂「縮合二環結構」，是指通式（1）的中央所示的包含 Y^1、X^1 及 X^2 而構成的兩個飽和烴環縮合而成的結構。另外，所謂「與縮合二環結構共有鍵結的 6 員環」，例如如所述通式（2）中所示般，是指於所述縮合二環結構中縮合的 a 環（苯環（6 員環））。另外，所謂「（A 環）芳基環或雜芳基環具有該 6 員環」，是指僅由該 6 員環形成 A 環、或者以包含該 6 員環的方式於該 6 員環中進而縮合其他環等來形成 A 環。換言之，所謂此處所述的「具有 6 員環的（A 環）芳基環或雜芳基環」，是指構成 A 環的全部或一部分的 6 員環於所述縮合二環結構中縮合。關於「B 環（b 環）」、「C 環（c 環）」及「5 員環」，相同的說明亦適用。

【0052】 通式（1）中的 A 環（或 B 環、C 環）對應於通式（2）中的 a 環與其取代基 R^1～R^3（或 b 環與其取代基 R^8～R^{11}、c 環與其取代基 R^4～R^7）。即，通式（2）對應於選擇「具有 6 員環的 A 環～C 環」作為通式（1）的 A 環～C 環的結構。以該含義，由小寫字母的 a～c 表示通式（2）的各環。

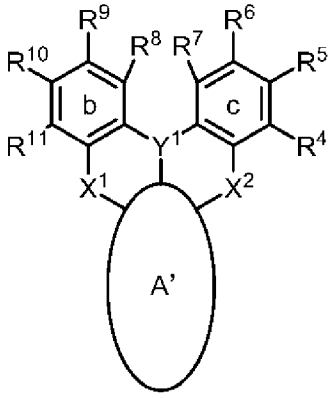
【0053】 通式（2）中，a 環、b 環及 c 環的取代基 R^1～R^{11} 中的鄰接的基彼此可鍵結並與 a 環、b 環或 c 環一同形成芳基環或雜芳基環，所形成的環中的至少一個氫可由芳基、雜芳基、二芳基胺基、二雜芳基胺基、芳基雜芳基胺基、二芳基硼基（兩個芳基可經由單鍵或連結基而鍵結）、烷基、環烷基、烷氧基、芳氧基、三芳基矽烷基、三烷基矽烷基、三環烷基矽烷基、二烷基環烷基矽

烷基或烷基二環烷基矽烷基取代，該些中的至少一個氫可由芳基、雜芳基、烷基或環烷基取代。因此，通式（2）所表示的多環芳香族化合物根據 a 環、b 環及 c 環中的取代基的相互的鍵結形態，如下述式（2-1）及式（2-2）所示，構成化合物的環結構發生變化。各式中的 A'環、B'環及 C'環分別對應於通式（1）中的 A 環、B 環及 C 環。

【0054】



(2-1)



(2-2)

【0055】 若以通式（2）進行說明，則所述式（2-1）及式（2-2）中的 A'環、B'環及 C'環表示取代基 R^1～R^{11} 中的鄰接的基彼此鍵結並分別與 a 環、b 環及 c 環一同形成的芳基環或雜芳基環（亦可稱為其他環結構於 a 環、b 環或 c 環中縮合而成的縮合環）。再者，雖然式中未表示，但亦存在 a 環、b 環及 c 環全部變化成 A'環、B'環及 C'環的化合物。另外，如根據所述式（2-1）及式（2-2）而可知般，例如 b 環的 R^8 與 c 環的 R^7、b 環的 R^{11} 與 a 環的 R^1、c 環的 R^4 與 a 環的 R^3 等並不符合「鄰接的基彼此」，該些不會進行

鍵結。即，所謂「鄰接的基」，是指於同一環上鄰接的基。

【0056】 所述式（2-1）或式（2-2）所表示的化合物例如為具有苯環、吲哚環、吡咯環、苯並呋喃環或苯並噻吩環對於作為 a 環（或 b 環或 c 環）的苯環進行縮合而形成的 A'環（或 B'環或 C'環）的化合物，所形成的縮合環 A'（或縮合環 B'或縮合環 C'）分別為萘環、咔唑環、吲哚環、二苯並呋喃環或二苯並噻吩環。

【0057】 通式（1）中的 Y^1 為 B、P、P=O、P=S、Al、Ga、As、Si-R 或 Ge-R，所述 Si-R 及 Ge-R 的 R 為芳基、烷基或環烷基。於為 P=O、P=S、Si-R 或 Ge-R 的情況下，與 A 環、B 環或 C 環進行鍵結的原子為 P、Si 或 Ge。Y^1 較佳為 B、P、P=O、P=S 或 Si-R，特佳為 B。該說明亦同樣適用於通式（2）中的 Y^1。

【0058】 通式（1）中的 X^1 及 X^2 分別獨立地為＞O、＞N-R、＞$C(-R)_2$、＞S 或＞Se，所述＞N-R 的 R 為可被取代的芳基、可被取代的雜芳基、可被取代的烷基或可被取代的環烷基，所述＞$C(-R)_2$ 的 R 為氫、可被取代的芳基、可被取代的烷基或可被取代的環烷基，所述＞N-R 的 R 及所述＞$C(-R)_2$ 的 R 的至少一個可藉由連結基或單鍵而與所述 A 環、B 環及 C 環的至少一個鍵結，作為連結基，較佳為-O-、-S-或-$C(-R)_2$-。再者，所述「-$C(-R)_2$-」的 R 為氫、烷基或環烷基。該說明亦同樣適用於通式（2）中的 X^1 及 X^2。

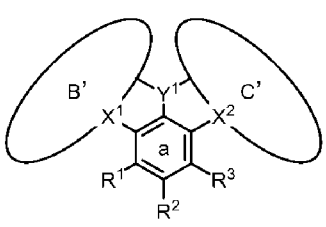
【0059】 此處，通式（1）中的「所述＞N-R 的 R 及所述＞$C(-R)_2$ 的 R 的至少一個藉由連結基或單鍵而與所述 A 環、B 環及 C 環的至少一個鍵結」的規定對應於通式（2）中「所述＞N-R 的 R 及所

述＞$C(-R)_2$的 R 的至少一個藉由-O-、-S-、$-C(-R)_2-$或單鍵而與所述 a 環、b 環及 c 環的至少一個鍵結」的規定。

【0060】 該規定可由如下的化合物來表現，該化合物由下述式（2-3-1）表示、且具有 X^1 或 X^2 被導入至縮合環 B'及縮合環 C'中的環結構。即，例如為具有其他環以導入 X^1（或 X^2）的方式對於作為通式（2）中的 b 環（或 c 環）的苯環進行縮合而形成的 B'環（或 C'環）的化合物。所形成的縮合環 B'（或縮合環 C'）例如為啡噁嗪環、啡噻嗪環或吖啶環。

【0061】 另外，所述規定亦可由如下的化合物來表現，該化合物由下述式（2-3-2）或式（2-3-3）表示、且具有 X^1 及 X^2 的至少一個被導入至縮合環 A'中的環結構。即，例如為具有其他環以導入 X^1（或 X^2 或者 X^1 及 X^2）的方式對於作為通式（2）中的 a 環的苯環進行縮合而形成的 A'環的化合物。所形成的縮合環 A'例如為啡噁嗪環、啡噻嗪環或吖啶環。

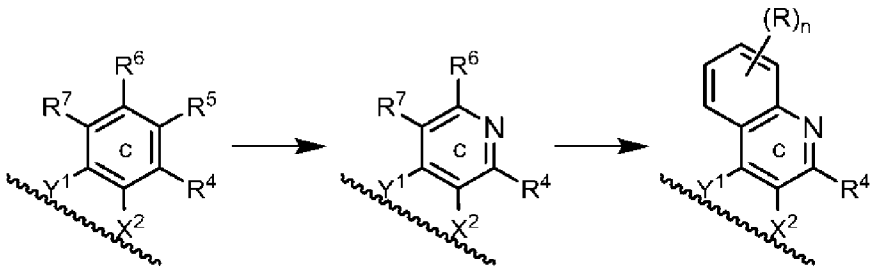
【0062】



(2-3-1) (2-3-2) (2-3-3)

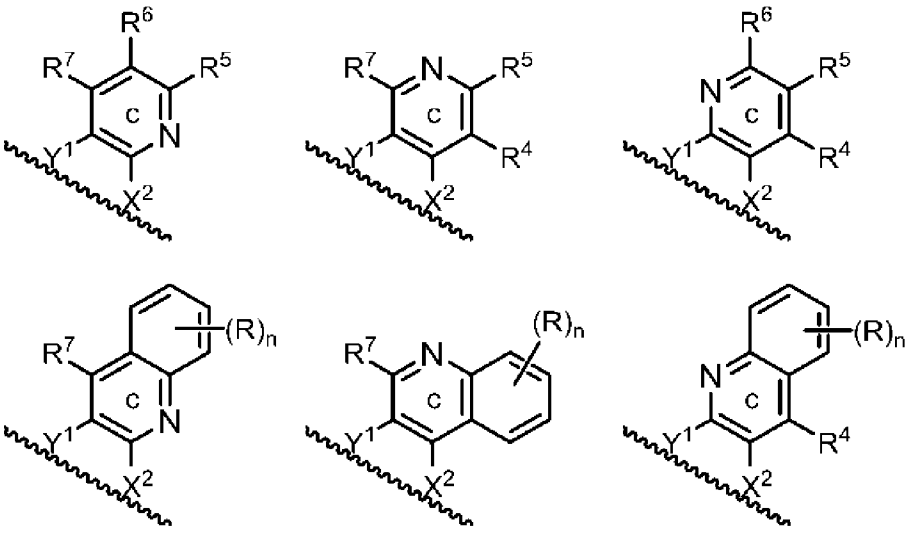
【0063】 式（2）中，a 環、b 環及 c 環中的任意的「-C(-R)=」（此

處，R 為式（2）中的 R^1～R^{11}）可被取代為「-N=」。



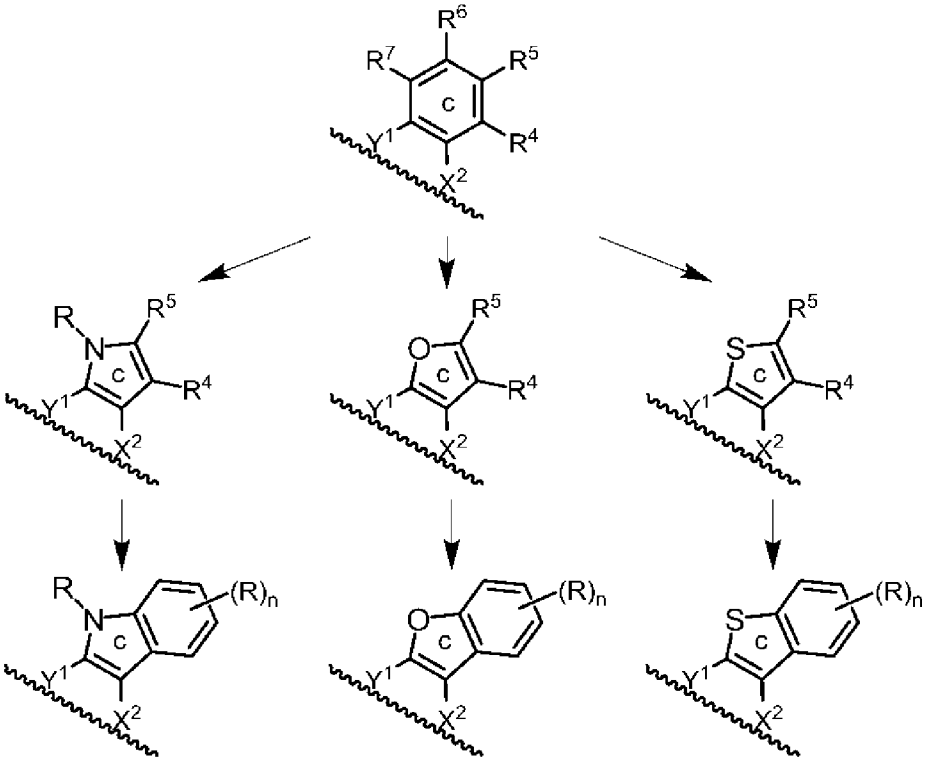
如上所示，例如 c 環中的「-C(-R^5)=」的部位可被取代為「-N=」，如此，於式（2）中表示為苯環的 c 環可變化為吡啶環、嘧啶環、噠嗪環、吡嗪環、其他含氮雜芳基環。另外，如上所述，於在 c 環上存在鄰接的基的情況下（所述式中為 R^6 及 R^7），該些鍵結並與 c 環一同形成雜芳基環（所述式中為喹啉環），所形成的環亦可進而被取代（由 n 個 R 表示）。

此外，亦存在以下的變形例。



對於其他部位被取代為「-N=」的情況或者 a 環或 b 環發生了變化的情況而言亦相同。

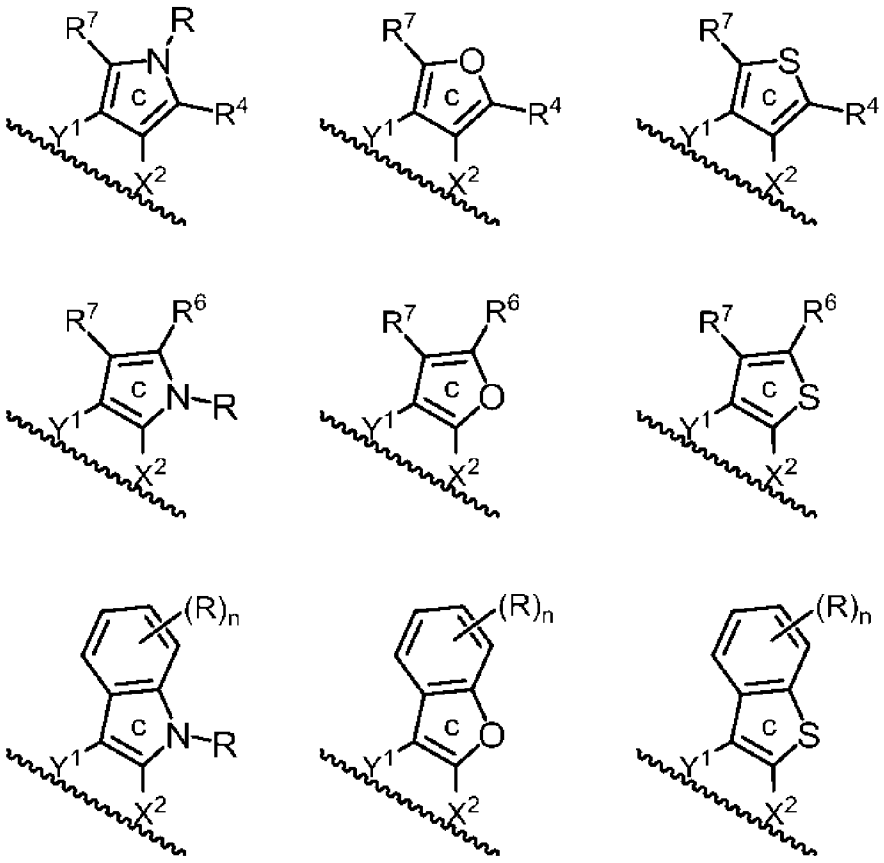
【0064】 式（2）中，a 環、b 環及 c 環中的任意的「-C(-R)=C(-R)-」（此處，R 為式（2）中的 R^1～R^{11}）可被取代為「-N(-R)-」、「-O-」或「-S-」，所述「-N(-R)-」的 R 為芳基、烷基或環烷基。再者，關於此處所列舉的取代基的詳細內容，將於後匯總敘述。



如上所示，例如 c 環中的「-C(-R^7)=C(-R^6)-」的部位可被取代為「-N(-R)-」、「-O-」或「-S-」，如此，於式（2）中表示為苯環的 c 環可變化為 R 取代的吡咯環、呋喃環、噻吩環、其他含氮/氧/硫雜芳基環。另外，如上所述，於在 c 環上存在鄰接的基的情況下（所述式中為 R^4 及 R^5），該些鍵結並與 c 環一同形成雜芳基環

（所述式中為 R 取代的吲哚環、苯並呋喃環或苯並噻吩環），所形成的環亦可進而被取代（由 n 個 R 表示）。

此外，亦存在以下的變形例。



對於其他部位被取代為「-N(-R)-」、「-O-」或「-S-」或者 a 環或 b 環發生了變化的情況而言亦相同。

【0065】 再者，所述式（2-1）、式（2-2）、式（2-3-1）、式（2-3-2）及式（2-3-3）的說明中，將 a 環、b 環及 c 環作為苯環來進行說明，對於 a 環～c 環變化為含氮雜芳基環（6 員環或 5 員環）或含氧/硫雜芳基環（5 員環）的情況而言亦相同。

【0066】 作為通式（1）的 A 環、B 環及 C 環的「芳基環」例如可列舉碳數 6～30 的芳基環，較佳為碳數 6～16 的芳基環，更佳為碳數 6～12 的芳基環，特佳為碳數 6～10 的芳基環。再者，該「芳基環」對應於通式（2）中所規定的「R^1～R^{11} 中的鄰接的基彼此鍵結並與 a 環、b 環或 c 環一同形成的芳基環」，另外，a 環（或 b 環、c 環）已包含碳數 6 的苯環，因此，5 員環於其中進行縮合而成的縮合環的合計碳數 9 成為下限碳數。

【0067】 作為具體的「芳基環」，可列舉：作為單環系的苯環，作為二環系的聯苯環，作為縮合二環系的萘環，作為三環系的聯三苯環（間聯三苯基、鄰聯三苯基、對聯三苯基），作為縮合三環系的苊環、芴環、菲環、蒽環，作為縮合四環系的三伸苯環、苉環、稠四苯（naphthacene）環，作為縮合五環系的苝環、稠五苯（pentacene）環等。

【0068】 作為通式（1）的 A 環、B 環及 C 環的「雜芳基環」例如可列舉碳數 2～30 的雜芳基環，較佳為碳數 2～25 的雜芳基環，更佳為碳數 2～20 的雜芳基環，進而佳為碳數 2～15 的雜芳基環，特佳為碳數 2～10 的雜芳基環。另外，作為「雜芳基環」，例如可列舉除碳以外含有 1 個～5 個選自氧、硫及氮中的雜原子作為環構成原子的雜環等。再者，該「雜芳基環」對應於通式（2）中所規定的「R^1～R^{11} 中的鄰接的基彼此鍵結並與 a 環、b 環或 c 環一同形成的雜芳基環」，另外，a 環（或 b 環、c 環）已包含碳數 6 的苯環，因此，5 員環於其中進行縮合而成的縮合環的合計碳數 6

成為下限碳數。

【0069】 作為具體的「雜芳基環」，例如可列舉：吡咯環、噁唑環、異噁唑環、噻唑環、異噻唑環、咪唑環、噁二唑環、噻二唑環、三唑環、四唑環、吡唑環、吡啶環、嘧啶環、噠嗪環、吡嗪環、三嗪環、吲哚環、異吲哚環、1H-吲唑環、苯並咪唑環、苯並噁唑環、苯並噻唑環、1H-苯並三唑環、喹啉環、異喹啉環、噌啉（cinnoline）環、喹唑啉環、喹噁啉環、啡啉環、酞嗪環、萘啶環、嘌呤環、喋啶環、吖唑環、吖啶環、啡噁噻環、啡噁嗪環、啡噻嗪環、啡嗪環、環戊基硼酸（phenazasiline）環、吲嗪環、呋喃環、苯並呋喃環、異苯並呋喃環、二苯並呋喃環、萘並苯並呋喃環、噻吩環、苯並噻吩環、異苯並噻吩環、二苯並噻吩環、萘並苯並噻吩環、苯並磷雜環戊二烯（benzophosphole）環、二苯並磷雜環戊二烯環、苯並磷雜環戊二烯氧化物環、二苯並磷雜環戊二烯氧化物環、呋呫（furazan）環、噻蒽環、吲哚並咔唑環、苯並吲唑並咔唑環、苯並苯並吲哚並咔唑環、咪唑啉環、噁唑啉環等。

【0070】 所述「芳基環」或「雜芳基環」中的至少一個氫可由作為第一取代基的經取代或未經取代的「芳基」、經取代或未經取代的「雜芳基」、經取代或未經取代的「二芳基胺基」、經取代或未經取代的「二雜芳基胺基」、經取代或未經取代的「芳基雜芳基胺基」、經取代或未經取代的「二芳基硼基（兩個芳基可經由單鍵或連結基而鍵結）」、經取代或未經取代的「烷基」、經取代或未經取代的「環烷基」、經取代或未經取代的「烷氧基」、經取代或未經

取代的「芳氧基」或者經取代的「矽烷基」取代，作為該第一取代基的「芳基」或「雜芳基」、「二芳基胺基」的芳基、「二雜芳基胺基」的雜芳基、「芳基雜芳基胺基」的芳基與雜芳基、「二芳基硼基」的芳基、及「芳氧基」的芳基可列舉所述「芳基環」或「雜芳基環」的一價基。

【0071】 另外，作為第一取代基的「烷基」可為直鏈及分支鏈的任一種，例如可列舉碳數 1～24 的直鏈烷基或碳數 3～24 的分支鏈烷基。較佳為碳數 1～18 的烷基（碳數 3～18 的分支鏈烷基），更佳為碳數 1～12 的烷基（碳數 3～12 的分支鏈烷基），進而佳為碳數 1～6 的烷基（碳數 3～6 的分支鏈烷基），特佳為碳數 1～5 的烷基（碳數 3～5 的分支鏈烷基）、碳數 1～4 的烷基（碳數 3～4 的分支鏈烷基）。

【0072】 作為具體的烷基，可列舉：甲基、乙基、正丙基、異丙基、正丁基、異丁基、第二丁基、第三丁基、正戊基、異戊基、新戊基、第三戊基（t-amyl）、正己基、1-甲基戊基、3,3-二甲基丁基、2-乙基丁基、正庚基、1-甲基己基、正辛基、第三辛基（1,1,3,3-四甲基丁基）、1-甲基庚基、2-乙基己基、2-丙基戊基、正壬基、2,2-二甲基庚基、2,6-二甲基-4-庚基、3,5,5-三甲基己基、正癸基、正十一基、1-甲基癸基、正十二基、正十三基、1-己基庚基、正十四基、正十五基、正十六基、正十七基、正十八基、正二十基等。

另外，例如亦可列舉：1-乙基-1-甲基丙基、1,1-二乙基丙基、1,1-二甲基丁基、1-乙基-1-甲基丁基、1,1,4-三甲基戊基、1,1,2-

三甲基丙基、1,1-二甲基辛基、1,1-二甲基戊基、1,1-二甲基庚基、1,1,5-三甲基己基、1-乙基-1-甲基己基、1-乙基-1,3-二甲基丁基、1,1,2,2-四甲基丙基、1-丁基-1-甲基戊基、1,1-二乙基丁基、1-乙基-1-甲基戊基、1,1,3-三甲基丁基、1-丙基-1-甲基戊基、1,1,2-三甲基丙基、1-乙基-1,2,2-三甲基丙基、1-丙基-1-甲基丁基、1,1-二甲基己基等。

【0073】 另外，作為第一取代基的「環烷基」可列舉：碳數 3～24 的環烷基、碳數 3～20 的環烷基、碳數 3～16 的環烷基、碳數 3～14 的環烷基、碳數 3～12 的環烷基、碳數 5～10 的環烷基、碳數 5～8 的環烷基、碳數 5～6 的環烷基、碳數 5 的環烷基等。

【0074】 作為具體的環烷基，可列舉：環丙基、環丁基、環戊基、環己基、環庚基、環辛基、環壬基、環癸基、以及該些的碳數 1～4 或碳數 1～5 的烷基（尤其是甲基）取代物、或降冰片烯基、雙環[1.0.1]丁基、雙環[1.1.1]戊基、雙環[2.0.1]戊基、雙環[1.2.1]己基、雙環[3.0.1]己基、雙環[2.1.2]庚基、雙環[2.2.2]辛基、金剛烷基、雙金剛烷基、十氫萘基（decahydronaphthalenyl）、十氫薁基（decahydroazulenyl）等。

【0075】 另外，作為第一取代基的「烷氧基」例如可列舉：碳數 1～24 的直鏈的烷氧基或碳數 3～24 的分支鏈的烷氧基。較佳為碳數 1～18 的烷氧基（碳數 3～18 的分支鏈的烷氧基），更佳為碳數 1～12 的烷氧基（碳數 3～12 的分支鏈的烷氧基），進而佳為碳數 1～6 的烷氧基（碳數 3～6 的分支鏈的烷氧基），特佳為碳數 1～5

的烷氧基(碳數 3～5 的分支鏈的烷氧基)、碳數 1～4 的烷氧基(碳數 3～4 的分支鏈的烷氧基)。

【0076】 作為具體的烷氧基，可列舉：甲氧基、乙氧基、丙氧基、異丙氧基、正丁氧基、異丁氧基、第二丁氧基、第三丁氧基、第三戊氧基（t-amyloxy）、正戊氧基、異戊氧基、新戊氧基、第三戊氧基(t-pentyloxy)、正己氧基、1-甲基戊氧基、3,3-二甲基丁氧基、2-乙基丁氧基、正庚氧基、1-甲基己氧基、正辛氧基、第三辛氧基、1-甲基庚氧基、2-乙基己氧基、2-丙基戊氧基、正壬氧基、2,2-二甲基庚氧基、2,6-二甲基-4-庚氧基、3,5,5-三甲基己氧基、正癸氧基、正十一烷氧基、1-甲基癸氧基、正十二烷氧基、正十三烷氧基、1-己基庚氧基、正十四烷氧基、正十五烷氧基、正十六烷氧基、正十七烷氧基、正十八烷氧基、正二十烷氧基等。

【0077】 另外，作為第一取代基的「經取代的矽烷基」例如可列舉：作為由芳基、烷基及環烷基的至少一個取代的矽烷基的、三芳基矽烷基、三烷基矽烷基、三環烷基矽烷基、二烷基環烷基矽烷基或烷基二環烷基矽烷基。

【0078】 作為「三芳基矽烷基」，可列舉矽烷基中的三個氫分別獨立地由芳基取代的基，該芳基可引用作為所述第一取代基中的「芳基」而說明的基。

具體的「三芳基矽烷基」例如為三苯基矽烷基、二苯基單萘基矽烷基、單苯基二萘基矽烷基或三萘基矽烷基等。

【0079】 作為「三烷基矽烷基」，可列舉矽烷基中的三個氫分別

獨立地由烷基取代的基，該烷基可引用作為所述第一取代基中的「烷基」而說明的基。對於進行取代而言較佳的烷基為碳數 1～5 或碳數 1～4 的烷基，具體而言，可列舉：甲基、乙基、丙基、異丙基、丁基、第二丁基、第三丁基、環丁基等。

【0080】 作為具體的三烷基矽烷基，可列舉：三甲基矽烷基、三乙基矽烷基、三丙基矽烷基、三異丙基矽烷基、三丁基矽烷基、三-第二丁基矽烷基、三-第三丁基矽烷基、乙基二甲基矽烷基、丙基二甲基矽烷基、異丙基二甲基矽烷基、丁基二甲基矽烷基、第二丁基二甲基矽烷基、第三丁基二甲基矽烷基、甲基二乙基矽烷基、丙基二乙基矽烷基、異丙基二乙基矽烷基、丁基二乙基矽烷基、第二丁基二乙基矽烷基、第三丁基二乙基矽烷基、甲基二丙基矽烷基、乙基二丙基矽烷基、丁基二丙基矽烷基、第二丁基二丙基矽烷基、第三丁基二丙基矽烷基、甲基二異丙基矽烷基、乙基二異丙基矽烷基、丁基二異丙基矽烷基、第二丁基二異丙基矽烷基、第三丁基二異丙基矽烷基等。

【0081】 作為「三環烷基矽烷基」，可列舉矽烷基中的三個氫分別獨立地由環烷基取代的基，該環烷基可引用作為所述第一取代基中的「環烷基」而說明的基。對於進行取代而言較佳的環烷基為碳數 5～10 的環烷基，具體而言，可列舉：環戊基、環己基、環庚基、環辛基、環壬基、環癸基、雙環[1.1.1]戊基、雙環[2.0.1]戊基、雙環[1.2.1]己基、雙環[3.0.1]己基、雙環[2.1.2]庚基、雙環[2.2.2]辛基、金剛烷基、十氫萘基、十氫薁基等。

【0082】 作為具體的三環烷基矽烷基，可列舉三環戊基矽烷基、三環己基矽烷基等。

【0083】 作為兩個烷基與一個環烷基取代而成的二烷基環烷基矽烷基、及一個烷基與兩個環烷基取代而成的烷基二環烷基矽烷基的具體例，可列舉：選自所述具體的烷基及環烷基中的基取代而成的矽烷基。

【0084】 另外，作為第一取代基的「二芳基硼基」中的「芳基」，可引用所述芳基的說明。另外，該兩個芳基可經由單鍵或連結基（例如＞$C(-R)_2$、＞O、＞S 或＞N-R）而鍵結。此處，＞$C(-R)_2$及＞N-R 的 R 為氫（僅於為＞$C(-R)_2$時）、芳基、雜芳基、二芳基胺基、烷基、環烷基、烷氧基或芳氧基（以上為第一取代基），於該第一取代基上亦可進而取代有芳基、雜芳基、烷基或環烷基（以上為第二取代基），作為該些基的具體例，可引用作為所述第一取代基的芳基、雜芳基、二芳基胺基、烷基、環烷基、烷氧基或芳氧基的說明。

【0085】 作為第一取代基的經取代或未經取代的「芳基」、經取代或未經取代的「雜芳基」、經取代或未經取代的「二芳基胺基」、經取代或未經取代的「二雜芳基胺基」、經取代或未經取代的「芳基雜芳基胺基」、經取代或未經取代的「二芳基硼基（兩個芳基可經由單鍵或連結基而鍵結）」、經取代或未經取代的「烷基」、經取代或未經取代的「環烷基」、經取代或未經取代的「烷氧基」、經取代或未經取代的「芳氧基」、或者經取代的「矽烷基」如說明為

經取代或未經取代般，該些中的至少一個氫可由第二取代基取代。作為該第二取代基，例如可列舉芳基、雜芳基、烷基或環烷基，該些的具體例可參照所述「芳基環」或「雜芳基環」的一價基及作為第一取代基的「烷基」或「環烷基」的說明。另外，於作為第二取代基的芳基或雜芳基中，該些中的至少一個氫由苯基等芳基（具體例為以上所述的基）、甲基等烷基（具體例為以上所述的基）或環己基等環烷基（具體例為以上所述的基）取代的結構亦包含於作為第二取代基的芳基或雜芳基中。作為其一例，於第二取代基為咔唑基的情況下，9 位上的至少一個氫由苯基等芳基、甲基等烷基或環己基等環烷基取代的咔唑基亦包含於作為第二取代基的雜芳基中。

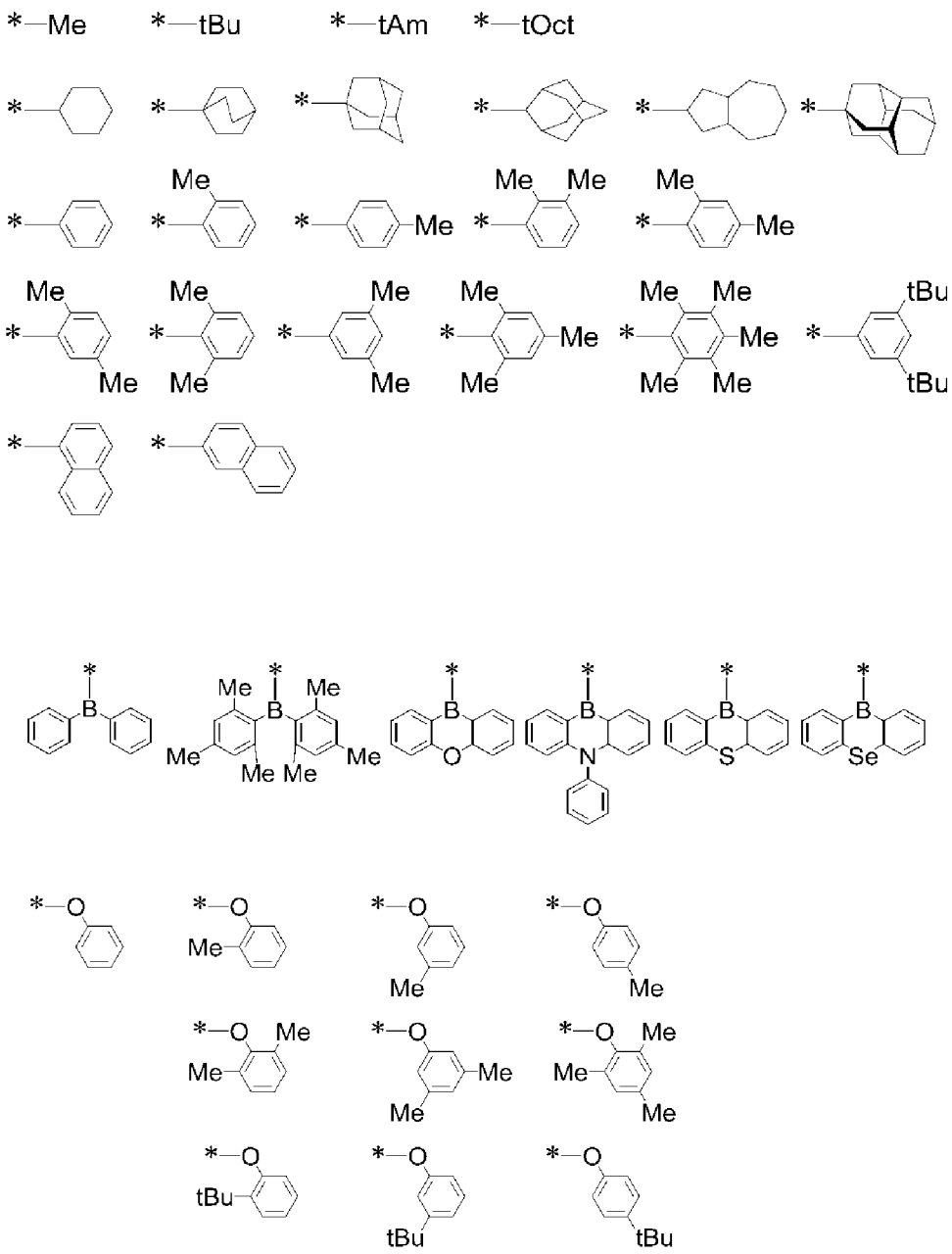
【0086】 作為通式（2）的 R^1～R^{11} 中的芳基、雜芳基、二芳基胺基的芳基、二雜芳基胺基的雜芳基、芳基雜芳基胺基的芳基與雜芳基、二芳基硼基的芳基、或芳氧基的芳基，可列舉通式（1）中所說明的「芳基環」或「雜芳基環」的一價基。另外，作為 R^1～R^{11} 中的烷基、環烷基或烷氧基，可參照所述通式（1）的說明中的作為第一取代基的「烷基」、「環烷基」或「烷氧基」的說明。另外，作為 R^1～R^{11} 中的三芳基矽烷基、三烷基矽烷基、三環烷基矽烷基、二烷基環烷基矽烷基或烷基二環烷基矽烷基，可參照所述通式（1）的說明中的作為第一取代基的「經取代的矽烷基」的說明。進而，作為針對該些基的取代基的芳基、雜芳基、烷基或環烷基亦相同。另外，對於作為 R^1～R^{11} 中的鄰接的基彼此鍵結並

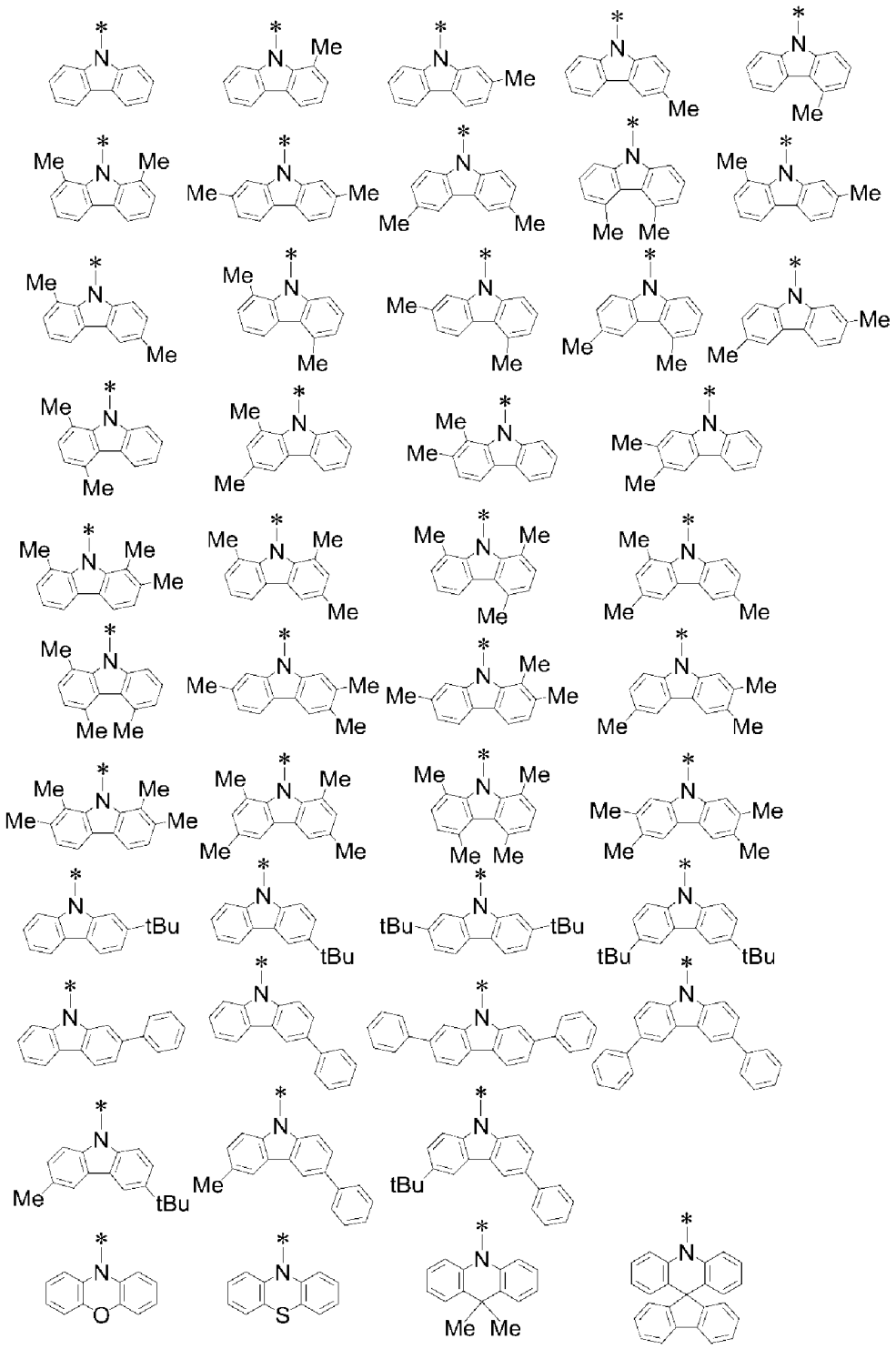
與a環、b環或c環一同形成芳基環或雜芳基環時的針對該些環的取代基的雜芳基、二芳基胺基、二雜芳基胺基、芳基雜芳基胺基、二芳基硼基（兩個芳基可經由單鍵或連結基而鍵結）、烷基、環烷基、烷氧基、芳氧基、三芳基矽烷基、三烷基矽烷基、三環烷基矽烷基、二烷基環烷基矽烷基或烷基二環烷基矽烷基、以及作為進一步的取代基的芳基、雜芳基、烷基或環烷基而言亦相同。

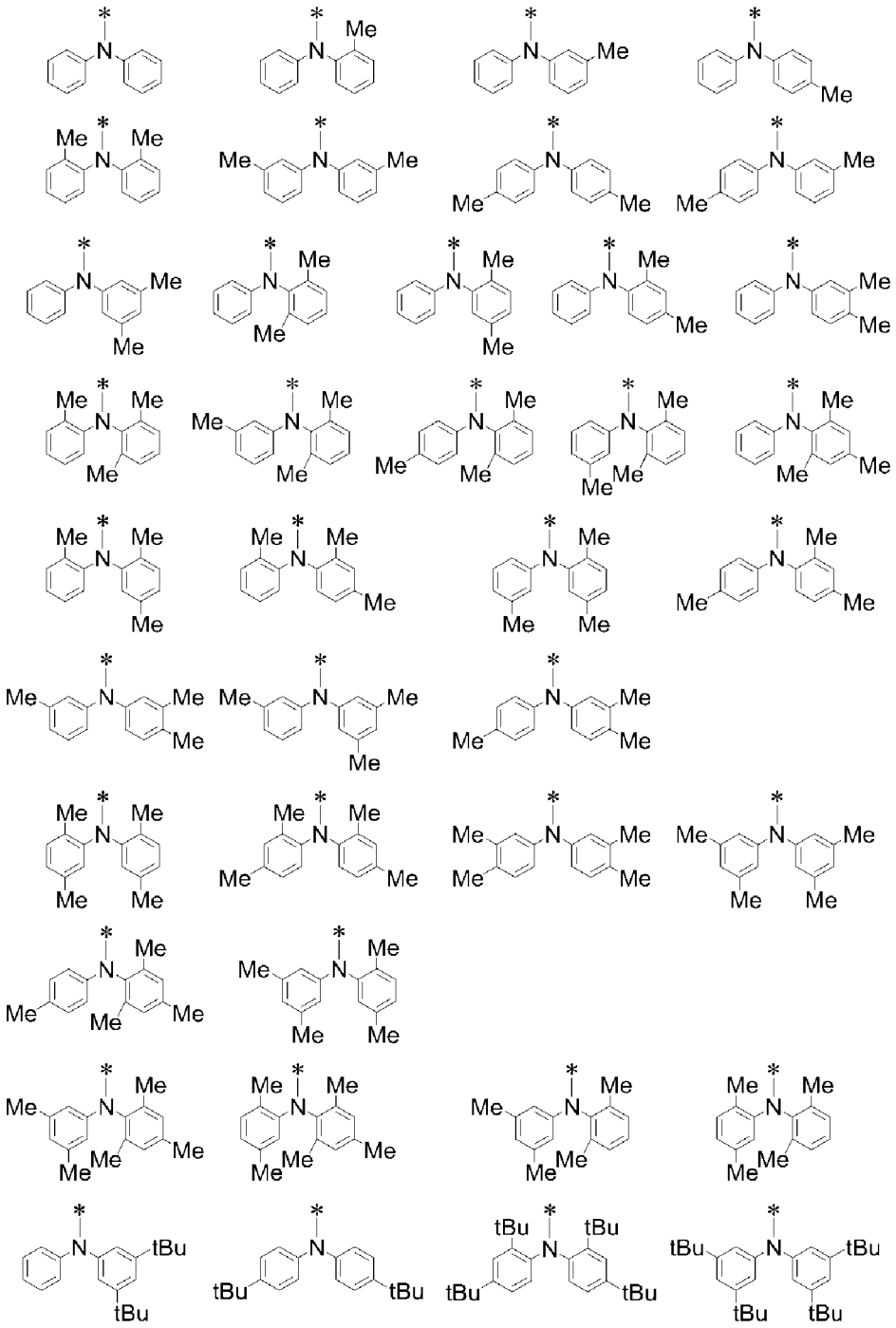
【0087】 具體而言，可藉由第一取代基的結構的立體阻礙性、供電子性及拉電子性來調整發光波長，較佳為以下結構式所表示的基，更佳為甲基、第三丁基、第三戊基、第三辛基、苯基、鄰甲苯基、對甲苯基、2,4-二甲苯基、2,5-二甲苯基、2,6-二甲苯基、2,4,6-均三甲苯基、二苯基胺基、二-對甲苯基胺基、雙(對(第三丁基)苯基)胺基、咔唑基、3,6-二甲基咔唑基、3,6-二-第三丁基咔唑基及苯氧基，進而佳為甲基、第三丁基、第三戊基、第三辛基、苯基、鄰甲苯基、2,6-二甲苯基、2,4,6-均三甲苯基、二苯基胺基、二-對甲苯基胺基、雙(對(第三丁基)苯基)胺基、咔唑基、3,6-二甲基咔唑基及 3,6-二-第三丁基咔唑基。就合成容易性的觀點而言，立體阻礙大者對於選擇性合成而言較佳，具體而言，較佳為第三丁基、第三戊基、第三辛基、鄰甲苯基、對甲苯基、2,4-二甲苯基、2,5-二甲苯基、2,6-二甲苯基、2,4,6-均三甲苯基、二-對甲苯基胺基、雙(對(第三丁基)苯基)胺基、3,6-二甲基咔唑基及 3,6-二-第三丁基咔唑基。

【0088】 下述結構式中，「Me」表示甲基，「tBu」表示第三丁基，

「tAm」表示第三戊基，「tOct」表示第三辛基，*表示鍵結位置。







【0089】 通式（2）中，可對任意的「-C(-R)=C(-R)-」（此處，R為式（2）中的 R^1～R^{11}）進行取代的「-N(-R)-」的 R 為芳基、烷基或環烷基，作為該芳基、烷基或環烷基，可列舉以上所述的基。特佳為碳數 6～10 的芳基（例如苯基、萘基等）、碳數 1～5 或碳

數 1～4 的烷基（例如甲基、乙基等）或者碳數 5～10 的環烷基（較佳為環己基或金剛烷基）。

【0090】 通式（1）的 Y^1 中的 Si-R 及 Ge-R 的 R 為芳基、烷基或環烷基，作為該芳基、烷基或環烷基，可列舉以上所述的基。特佳為碳數 6～10 的芳基（例如苯基、萘基等）、碳數 1～5 或碳數 1～4 的烷基（例如甲基、乙基等）或者碳數 5～10 的環烷基（較佳為環己基或金剛烷基）。該說明亦同樣適用於通式（2）中的 Y^1。

【0091】 通式（1）的 X^1 及 X^2 中的＞N-R 的 R 為可由所述第二取代基取代的芳基、雜芳基、烷基或環烷基，該芳基、雜芳基、烷基或環烷基中的至少一個氫例如可由烷基或環烷基取代。作為該芳基、雜芳基、烷基或環烷基，可列舉以上所述的基。特佳為碳數 6～10 的芳基（例如苯基、萘基等）、碳數 2～15 的雜芳基（例如咔唑基、二苯並呋喃基、二苯並噻吩基等）、碳數 1～5 或碳數 1～4 的烷基（例如甲基、乙基等）或者碳數 5～10 的環烷基（較佳為環己基或金剛烷基），更佳為苯基、萘基、咔唑基、二苯並呋喃基或二苯並噻吩基，進而佳為二苯並呋喃基或二苯並噻吩基。另外，二苯並呋喃基或二苯並噻吩基特佳為由第二取代基取代，具體而言，作為第二取代基，可列舉第三丁基、苯基或 d5-苯基等，該些取代基較佳為於氧原子或硫原子的對位進行取代。該說明亦同樣適用於通式（2）中的 X^1 及 X^2。

【0092】 通式（1）的 X^1 及 X^2 中的＞$C(-R)_2$ 的 R 為氫、可由所述第二取代基取代的芳基、烷基或環烷基，芳基中的至少一個氫

例如可由烷基取代。作為該芳基、烷基或環烷基，可列舉以上所述的基。特佳為碳數 6～10 的芳基（例如苯基、萘基等）、碳數 1～5 或碳數 1～4 的烷基（例如甲基、乙基等）或者碳數 5～10 的環烷基(較佳為環己基或金剛烷基)。該說明亦同樣適用於通式(2)中的 X^1 及 X^2。

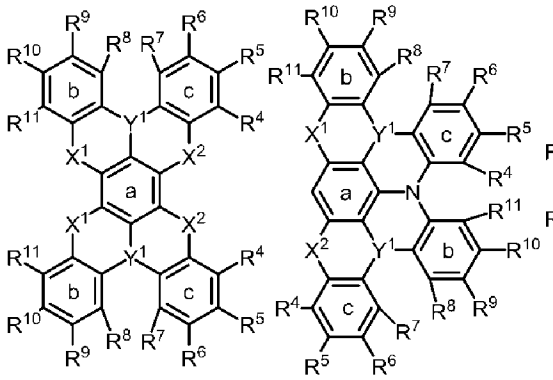
【0093】 作為通式（1）中的連結基的「$-C(-R)_2-$」的 R 為氫、烷基或環烷基，作為該烷基或環烷基，可列舉以上所述的基。特佳為碳數 1～5 或碳數 1～4 的烷基（例如甲基、乙基等）或者碳數 5～10 的環烷基(較佳為環己基或金剛烷基)。該說明亦同樣適用於作為通式（2）中的連結基的「$-C(-R)_2-$」。

【0094】 另外，本申請案發明為具有多個通式（1）所表示的單元結構的多環芳香族化合物的多聚體，較佳為具有多個通式（2）所表示的單元結構的多環芳香族化合物的多聚體。多聚體較佳為二聚體～六聚體，更佳為二聚體～三聚體，特佳為二聚體。多聚體只要是於一個化合物中具有多個所述單元結構的形態即可，例如除利用單鍵、碳數 1～3 的伸烷基、伸苯基、伸萘基等連結基使多個所述單元結構鍵結而成的形態（連結型多聚體）以外，亦可為以由多個單元結構共有所述單元結構中所含的任意的環(A 環、B 環或 C 環，a 環、b 環或 c 環）的方式進行鍵結的形態（環共有型多聚體)，另外，亦可為以所述單元結構中所含的任意的環（A 環、B 環或 C 環，a 環、b 環或 c 環）彼此進行縮合的方式進行鍵結的形態（環縮合型多聚體)，較佳為環共有型多聚體及環縮合型

多聚體，更佳為環共有型多聚體。

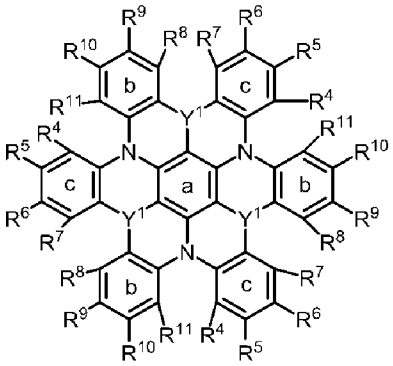
【0095】 作為此種多聚體，例如可列舉下述式(2-4)、式(2-4-1)、式（2-4-2）、式（2-5-1）～式（2-5-4）或式（2-6）所表示的多聚體化合物。若以通式（2）進行說明，則下述式（2-4）所表示的多聚體化合物為以共有作為 a 環的苯環的方式，於一個化合物中具有多個通式（2）所表示的單元結構的多聚體化合物（環共有型多聚體）。另外，若以通式（2）進行說明，則下述式（2-4-1）所表示的多聚體化合物為以共有作為 a 環的苯環的方式，於一個化合物中具有兩個通式（2）所表示的單元結構的多聚體化合物（環共有型多聚體）。另外，若以通式(2)進行說明，則下述式(2-4-2)所表示的多聚體化合物為以共有作為 a 環的苯環的方式，於一個化合物中具有三個通式(2)所表示的單元結構的多聚體化合物(環共有型多聚體)。另外，若以通式(2)進行說明，則下述式(2-5-1)～式（2-5-4）的任一者所表示的多聚體化合物為以共有作為 b 環（或 c 環）的苯環的方式，於一個化合物中具有多個通式（2）所表示的單元結構的多聚體化合物（環共有型多聚體）。另外，若以通式（2）進行說明，則下述式（2-6）所表示的多聚體化合物為以例如作為某一單元結構的 b 環（或 a 環、c 環）的苯環與作為某一單元結構的 b 環（或 a 環、c 環）的苯環進行縮合的方式，於一個化合物中具有多個通式（2）所表示的單元結構的多聚體化合物（環縮合型多聚體）。

【0096】

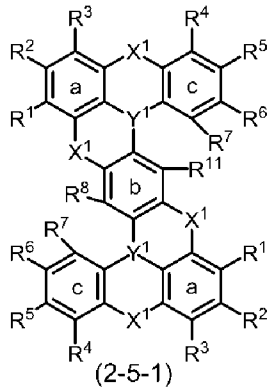


(2-4)

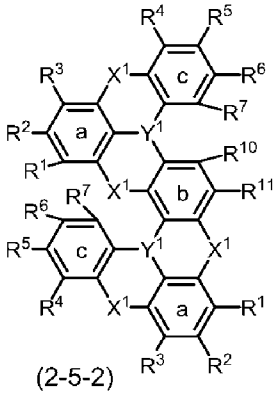
(2-4-1)



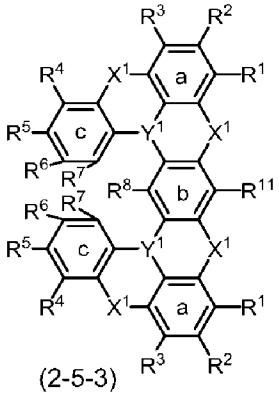
(2-4-2)



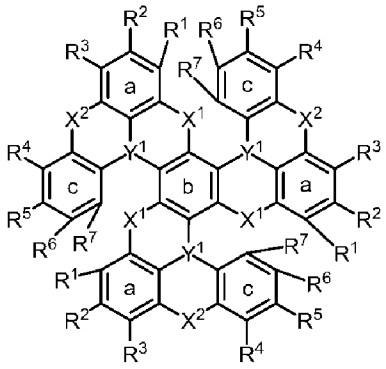
(2-5-1)



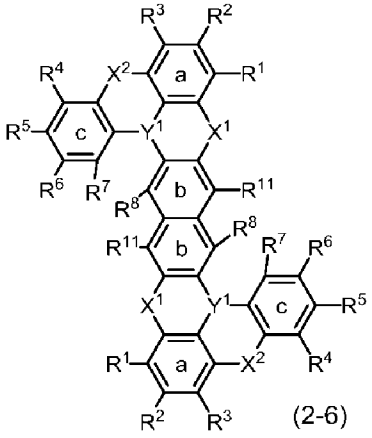
(2-5-2)



(2-5-3)



(2-5-4)



(2-6)

【0097】 多聚體化合物可為將式（2-4）、式（2-4-1）或式（2-4-2）所表現的多聚化形態與式(2-5-1)～式(2-5-4)的任一者或式(2-6)所表現的多聚化形態組合而成的多聚體，亦可為將式（2-5-1）～式（2-5-4）的任一者所表現的多聚化形態與式（2-6）所表現的多聚化形態組合而成的多聚體，亦可為將式（2-4）、式（2-4-1）或

式（2-4-2）所表現的多聚化形態與式（2-5-1）～式（2-5-4）的任一者所表現的多聚化形態，及式（2-6）所表現的多聚化形態組合而成的多聚體。

【0098】 另外，通式（1）或通式（2）所表示的多環芳香族化合物及其多聚體的化學結構中的氫的全部或一部分亦可為氘、氰基或鹵素。例如，式（1）中，A 環、B 環、C 環（A 環～C 環為芳基環或雜芳基環）、針對 A 環～C 環的取代基、Y^1 為 Si-R 或 Ge-R 時的 R（=烷基、環烷基、芳基）、以及 X^1 及 X^2 為＞N-R 或＞$C(-R)_2$ 時的 R（=烷基、環烷基、芳基）中的氫可由氘、氰基或鹵素取代，該些中，可列舉芳基或雜芳基中的全部或一部分的氫由氘、氰基或鹵素取代的形態。鹵素為氟、氯、溴或碘，較佳為氟、氯或溴，更佳為氟或氯。

【0099】 另外，本發明的多環芳香族化合物及其多聚體可用作有機元件用材料。作為有機元件，例如可列舉：有機電致發光元件、有機場效電晶體或有機薄膜太陽電池等。尤其，於有機電致發光元件中，作為發光層的摻雜劑材料，較佳為 Y^1 為 B、X^1 及 X^2 為＞N-R 的化合物，Y^1 為 B、X^1 為＞O、X^2 為＞N-R 的化合物，Y^1 為 B、X^1 及 X^2 為＞O 的化合物，作為發光層的主體材料，較佳為 Y^1 為 B、X^1 為＞O、X^2 為＞N-R 的化合物，Y^1 為 B、X^1 及 X^2 為＞O 的化合物，作為電子傳輸材料，可較佳地使用 Y^1 為 B、X^1 及 X^2 為＞O 的化合物，Y^1 為 P=O、X^1 及 X^2 為＞O 的化合物。

【0100】 另外，通式（1）或通式（2）所表示的多環芳香族化合

物及其多聚體的化學結構中的芳香族環及雜芳香族環的至少一個由至少一個環烷烴縮合。

【0101】 例如，作為 A 環、B 環、C 環、a 環、b 環及 c 環的芳基環及雜芳基環、作為針對 A 環～C 環的第一取代基及第二取代基的芳基（芳基、二芳基胺基、芳基雜芳基胺基、二芳基硼基或芳氧基中的芳基部分）及雜芳基（雜芳基、二雜芳基胺基或芳基雜芳基胺基中的雜芳基部分）、作為針對 a 環～c 環的第一取代基及第二取代基的芳基（與所述相同）及雜芳基（與所述相同）、作為 Y^1 即 Si-R 及 Ge-R 的 R 的芳基（與所述相同）、以及作為 X^1 及 X^2 即＞N-R 及＞$C(-R)_2$ 的 R 的芳基（與所述相同）及雜芳基（與所述相同）中的至少一個由至少一個環烷烴縮合。

【0102】 較佳為作為 A 環、B 環、C 環、a 環、b 環及 c 環的芳基環及雜芳基環、作為針對 A 環～C 環的第一取代基的芳基（芳基、二芳基胺基、二芳基硼基或芳氧基中的芳基部分）及雜芳基（雜芳基或二雜芳基胺基中的雜芳基部分）、作為針對 a 環～c 環的第一取代基的芳基（與所述相同）及雜芳基（與所述相同）、以及作為 X^1 及 X^2 即＞N-R 及＞$C(-R)_2$ 的 R 的芳基（與所述相同）及雜芳基（與所述相同）中的至少一個由至少一個環烷烴縮合。

【0103】 更佳為作為 A 環、B 環、C 環、a 環、b 環及 c 環的芳基環、作為針對 A 環～C 環的第一取代基的芳基（芳基或二芳基胺基中的芳基部分）及雜芳基（雜芳基中的雜芳基部分）、作為針對 a 環～c 環的第一取代基的芳基（與所述相同）及雜芳基（與所

述相同）、以及作為 X^1 及 X^2 即＞N-R 及＞$C(-R)_2$ 的 R 的芳基（與所述相同）中的至少一個由至少一個環烷烴縮合。

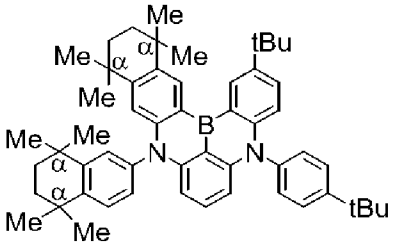
【0104】 進而佳為作為 A 環、B 環、C 環、a 環、b 環及 c 環的芳基環、作為針對 A 環～C 環的第一取代基的芳基（芳基或二芳基胺基中的芳基部分）、作為針對 a 環～c 環的第一取代基的芳基（與所述相同）、以及作為 X^1 及 X^2 即＞N-R 及＞$C(-R)_2$ 的 R 的芳基（與所述相同）中的至少一個由至少一個環烷烴縮合。

【0105】 作為「環烷烴」，可列舉：碳數 3～24 的環烷烴、碳數 3～20 的環烷烴、碳數 3～16 的環烷烴、碳數 3～14 的環烷烴、碳數 5～10 的環烷烴、碳數 5～8 的環烷烴、碳數 5～6 的環烷烴、碳數 5 的環烷烴等。

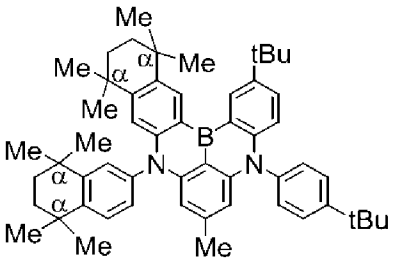
【0106】 作為具體的環烷烴，可列舉：環丙烷、環丁烷、環戊烷、環己烷、環庚烷、環辛烷、環壬烷、環癸烷、降冰片烯、雙環[1.0.1]丁烷、雙環[1.1.1]戊烷、雙環[2.0.1]戊烷、雙環[1.2.1]己烷、雙環[3.0.1]己烷、雙環[2.1.2]庚烷、雙環[2.2.2]辛烷、金剛烷、雙金剛烷、十氫萘、十氫蒽、以及該些的碳數 1～5 或碳數 1～4 的烷基（尤其是甲基）取代物、鹵素（尤其是氟）取代物及氘取代物等。

【0107】 該些中，例如較佳為下述結構式所示的、環烷烴的 α 位的碳（於在芳香族環或雜芳香族環中進行縮合的環烷烴中，與縮合部位的碳鄰接的位置的碳）中的至少一個氫被取代的結構，更佳為 α 位的碳中的兩個氫被取代的結構，進而佳為兩個 α 位的碳中的合計四個氫被取代的結構。作為該取代基，可列舉碳數 1～5

或碳數 1～4 的烷基（尤其是甲基）取代物、鹵素（尤其是氟）取代物及氘取代物等。

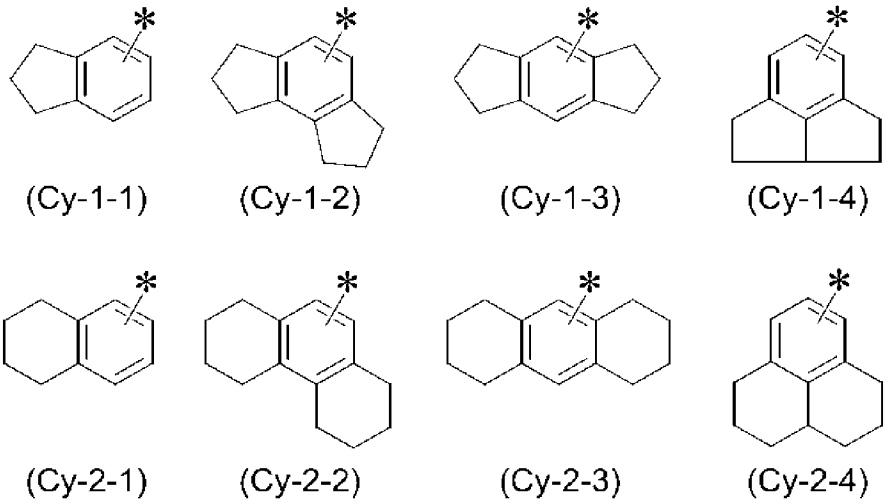


(1-411)

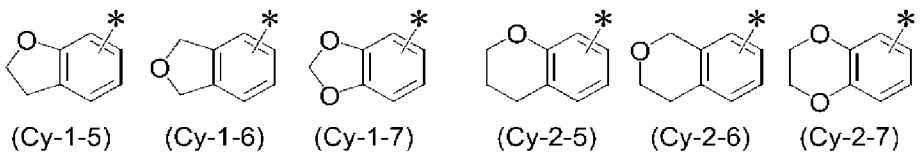


(1-590)

【0108】 於一個芳香族環或雜芳香族環中進行縮合的環烷烴的數量較佳為 1 個～3 個，更佳為 1 個或 2 個，進而佳為 1 個。例如，以下示出於一個苯環（苯基）中縮合有一個或多個環烷烴的例子。關於各結構式中的*，於為苯環的情況下是指化合物的骨架結構中所含的苯環，於為苯基的情況下是指於化合物的骨架結構中進行取代的鍵結鍵。如式（Cy-1-4）及式（Cy-2-4）般縮合的環烷烴彼此亦可縮合。不論是所縮合的環（基）為苯環（苯基）以外的其他芳香族環或雜芳香族環的情況，還是進行縮合的環烷烴為環戊烷或環己烷以外的其他環烷烴的情況，均相同。

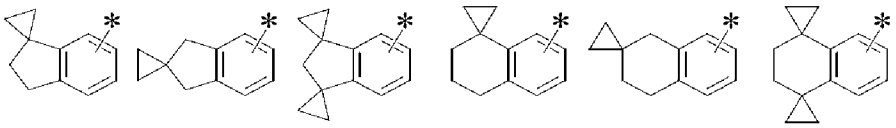


【0109】 環烷烴中的至少一個-CH_2-可由-O-取代。其中，於多個-CH_2-由-O-取代的情況下，鄰接的-CH_2-不會由-O-取代。例如，以下示出縮合於一個苯環（苯基）的環烷烴中的一個或多個-CH_2-由-O-取代的例子。關於各結構式中的*，於為苯環的情況下是指化合物的骨架結構中所含的苯環，於為苯基的情況下是指於化合物的骨架結構中進行取代的鍵結鍵。不論是所縮合的環（基）為苯環（苯基）以外的其他芳香族環或雜芳香族環的情況，還是進行縮合的環烷烴為環戊烷或環己烷以外的其他環烷烴的情況，均相同。



【0110】 環烷烴中的至少一個氫可被取代，作為該取代基，例如

可列舉芳基、雜芳基、二芳基胺基、二雜芳基胺基、芳基雜芳基胺基、二芳基硼基（兩個芳基可經由單鍵或連結基而鍵結）、烷基、環烷基、烷氧基、芳氧基、經取代的矽烷基、氘、氰基或鹵素，該些詳細情況可引用所述第一取代基的說明。該些取代基中，較佳為烷基（例如碳數 1～6 的烷基）、環烷基（例如碳數 3～14 的環烷基）、鹵素（例如氟）及氘等。另外，環烷基進行取代時，可為形成螺環結構的取代形態，例如，以下示出於縮合於一個苯環（苯基）中的環烷烴中形成螺環結構的例子。關於各結構式中的*，於為苯環的情況下是指化合物的骨架結構中所含的苯環，於為苯基的情況下是指於化合物的骨架結構中進行取代的鍵結鍵。



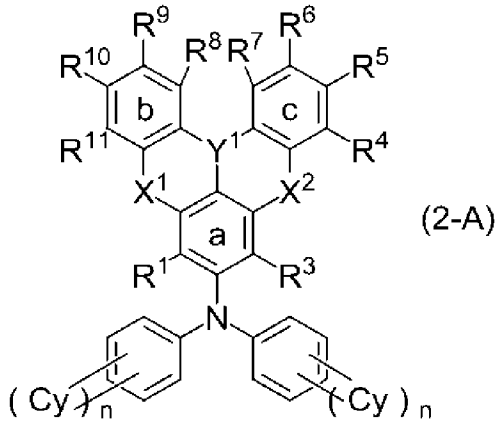
(Cy-1-8) (Cy-1-9) (Cy-1-10) (Cy-2-8) (Cy-2-9) (Cy-2-10)

【0111】 作為環烷烴縮合的其他形態，可列舉：通式（1）或通式（2）所表示的多環芳香族化合物及其多聚體例如被由環烷烴縮合的二芳胺基（縮合至其芳基部分）、由環烷烴縮合的咔唑基（縮合至其苯環部分）或由環烷烴縮合的苯並咔唑基（縮合至其苯環部分）取代的例子。關於「二芳基胺基」，可列舉作為所述「第一取代基」而說明的基。

【0112】 另外，作為更具體的例子，可列舉通式（2）所表示的

多環芳香族化合物及其多聚體中的 R^2 為由環烷烴縮合的二芳胺基（縮合至其芳基部分）或由環烷烴縮合的咔唑基（縮合至其苯環部分）的例子。

【0113】 作為其一例，可列舉下述通式（2-A）所表示的多環芳香族化合物、或具有多個下述通式（2-A）所表示的結構的多環芳香族化合物的多聚體。下述結構式中的 Cy 為環烷烴，n 分別獨立地為 1～3（較佳為 1）的整數，「=(Cy)n」是指 n 個環烷烴於作為縮合對象的結構的任意位置進行縮合（下述結構式中為 n 個環烷烴於苯環（苯基）中進行縮合），結構式中的各符號的定義與通式（2）中的各符號的定義相同。

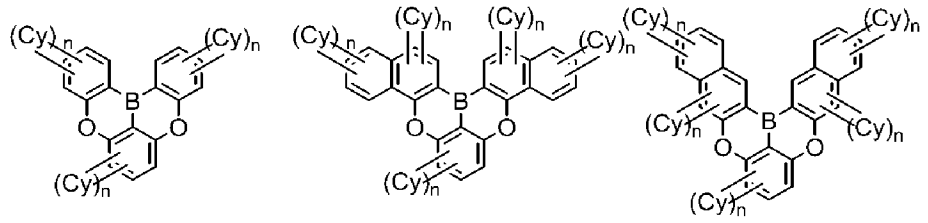


(2-A)

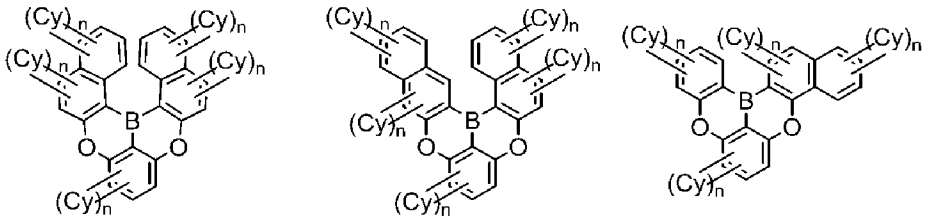
【0114】 具體而言，可列舉以下的式「1-Cy-（1）」～式「1-Cy-（4401）」所表示的化合物。下述式中的「Cy」表示環烷烴，n 分別獨立地 0～最大可縮合的數（其中，不會全部的 n 成為 0），較佳為 0～2（其中，不會全部的 n 成為 0），更佳為 1，「=(Cy)n」是

指 n 個環烷烴於作為縮合對象的結構的任意位置進行縮合（例如下述式「1-Cy-（1）」中為 n 個環烷烴於各苯環的任意位置進行縮合）。再者，下述結構式中的「OPh」表示苯氧基，「Me」表示甲基，各化合物可由所述第一取代基及第二取代基取代。

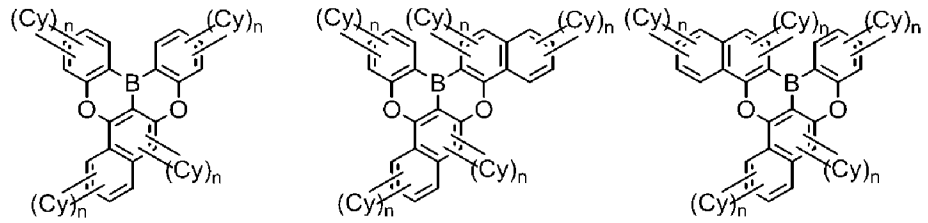
【0115】



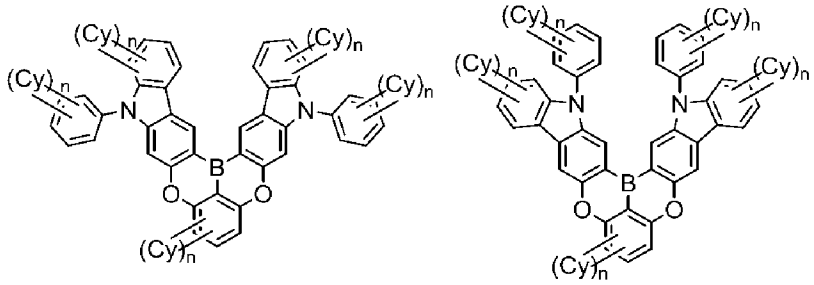
1-Cy-(1)　1-Cy-(2)　1-Cy-(3)



1-Cy-(4)　1-Cy-(5)　1-Cy-(6)

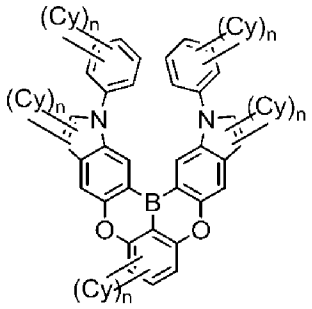


1-Cy-(7)　1-Cy-(8)　1-Cy-(9)

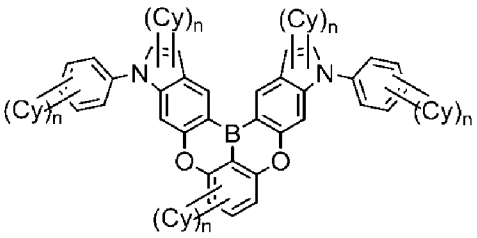


1-Cy-(10)　1-Cy-(11)

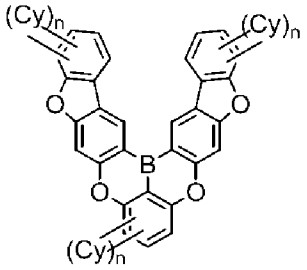
【0116】



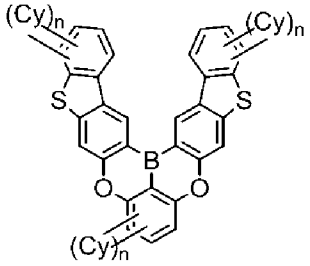
1-Cy-(12)



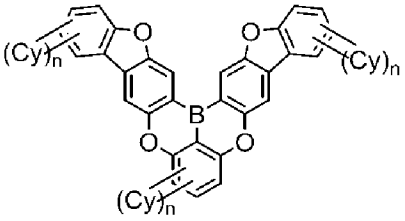
1-Cy-(13)



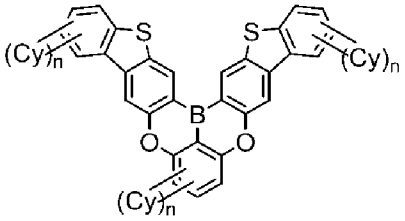
1-Cy-(14)



1-Cy-(15)

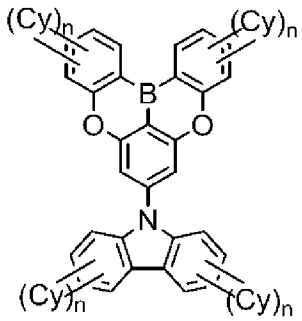


1-Cy-(16)

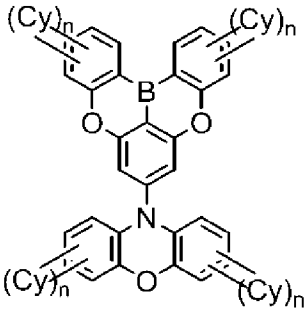


1-Cy-(17)

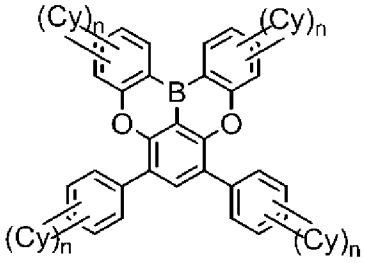
【0117】



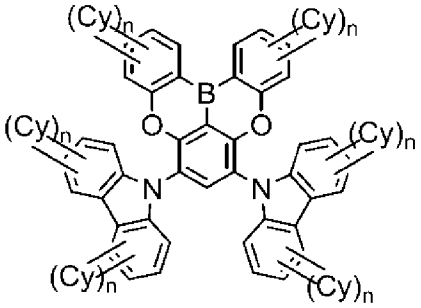
1-Cy-(49)



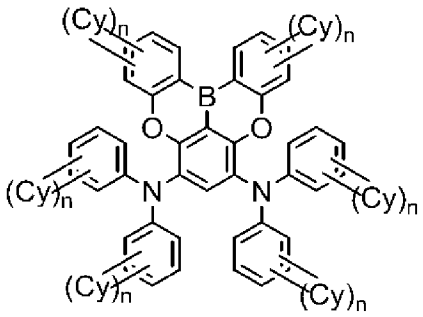
1-Cy-(81)



1-Cy-(91)

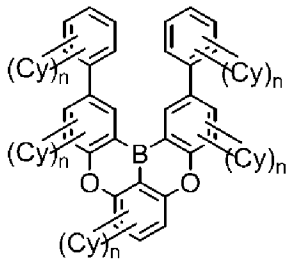


1-Cy-(100)

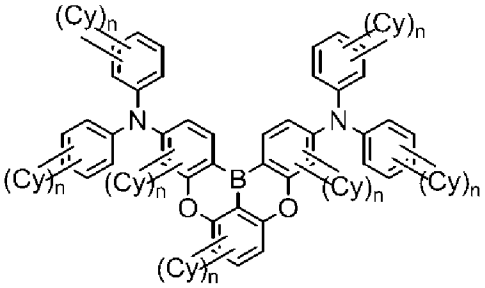


1-Cy-(141)

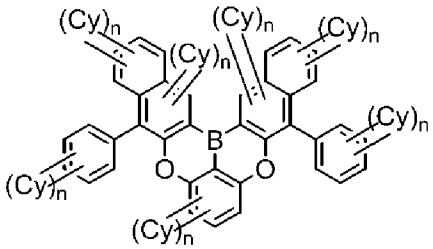
【0118】



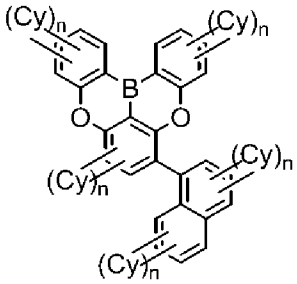
1-Cy-(151)



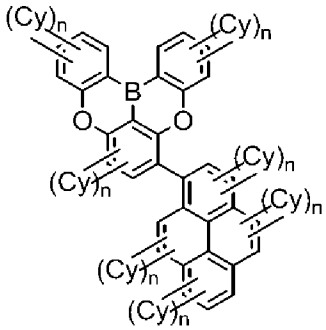
1-Cy-(176)



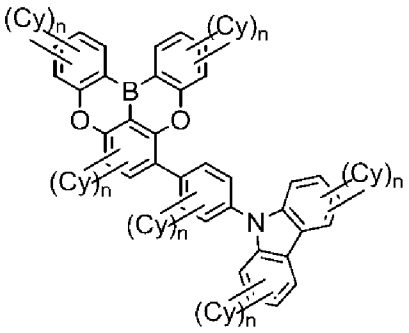
1-Cy-(1271)



1-Cy-(1084)

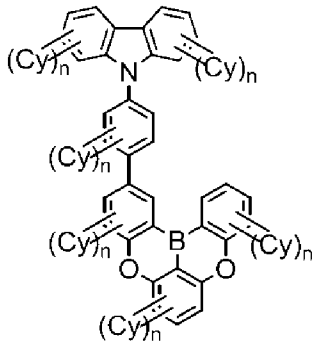


1-Cy-(1090)

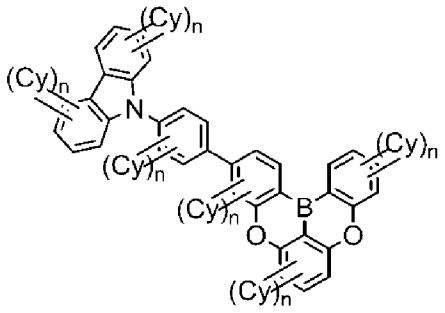


1-Cy-(1092)

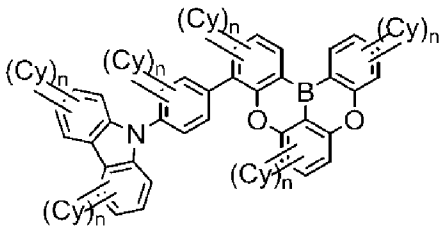
【0119】



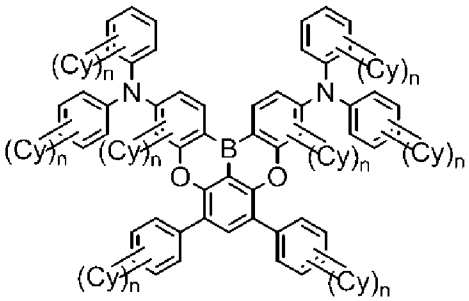
1-Cy-(1101)



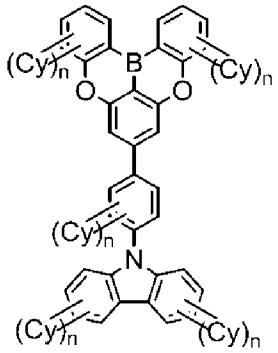
1-Cy-(1102)



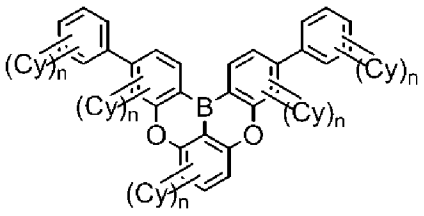
1-Cy-(1103)



1-Cy-(178)

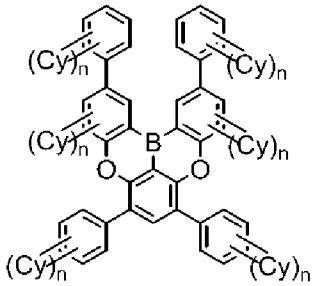


1-Cy-(50)

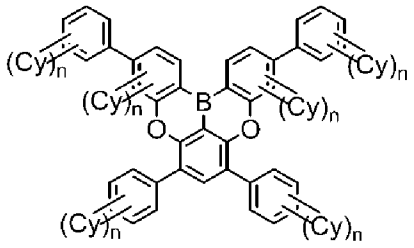


1-Cy-(152)

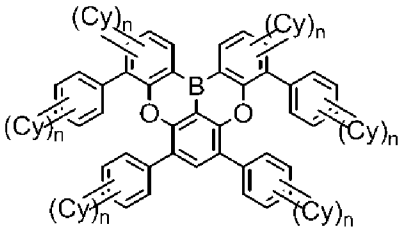
【0120】



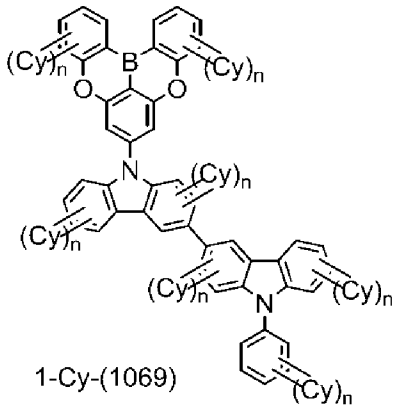
1-Cy-(1048)



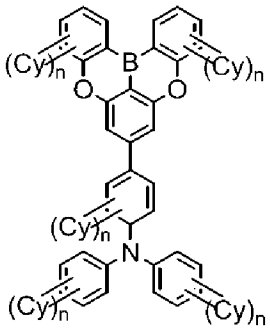
1-Cy-(1049)



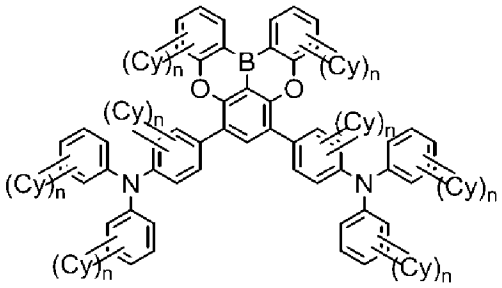
1-Cy-(1050)



1-Cy-(1069)

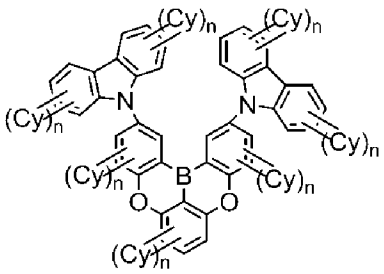


1-Cy-(79)

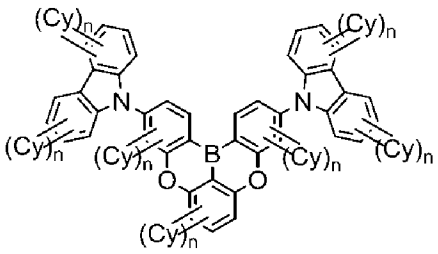


1-Cy-(142)

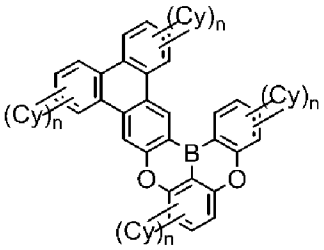
【0121】



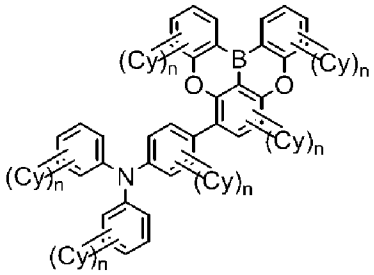
1-Cy-(158)



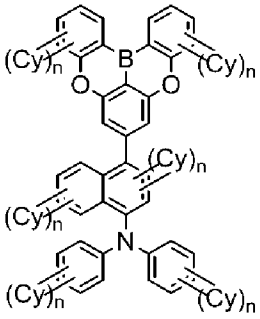
1-Cy-(159)



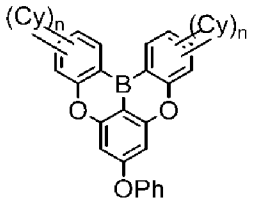
1-Cy-(1006)



1-Cy-(1104)

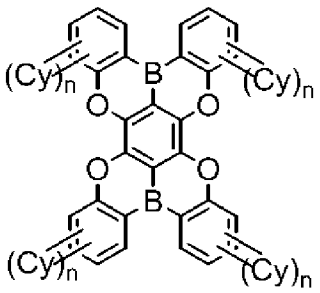


1-Cy-(2305)

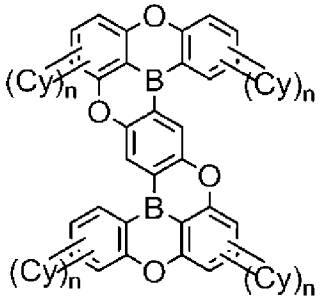


1-Cy-(4401)

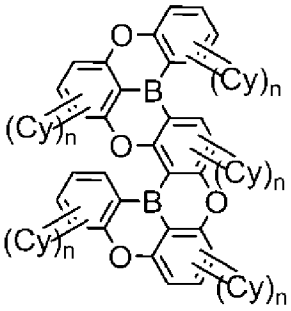
【0122】



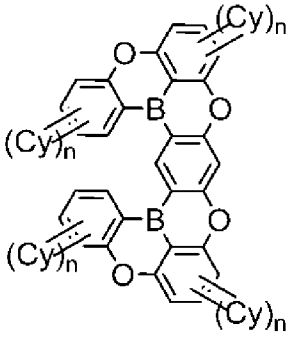
1-Cy-(21)



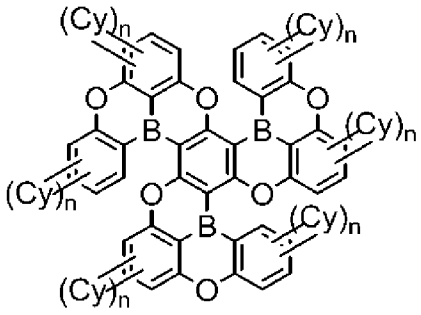
1-Cy-(22)



1-Cy-(23)

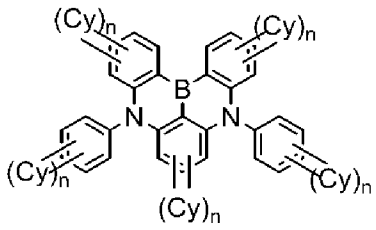


1-Cy-(24)

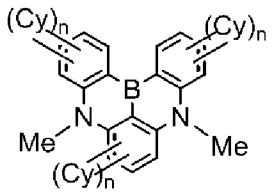


1-Cy-(25)

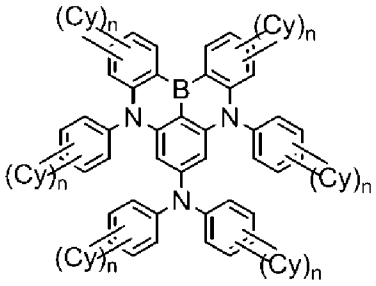
【0123】



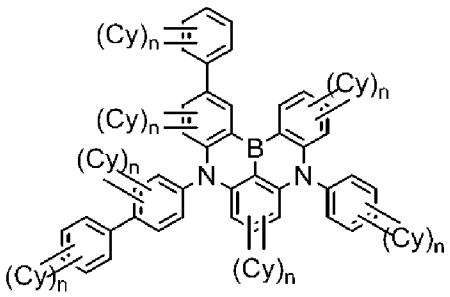
1-Cy-(401)



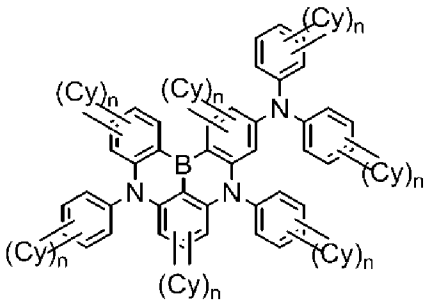
1-Cy-(411)



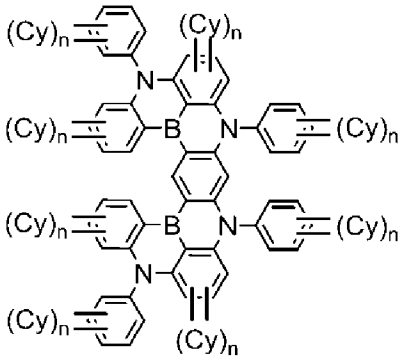
1-Cy-(447)



1-Cy-(1152)

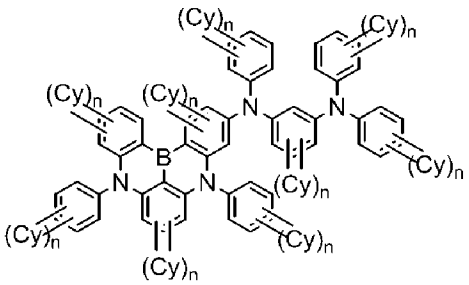


1-Cy-(2623)

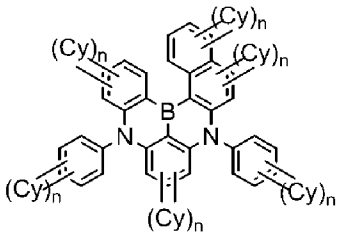


1-Cy-(422)

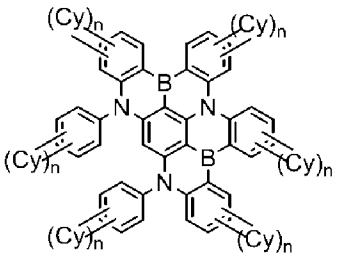
【0124】



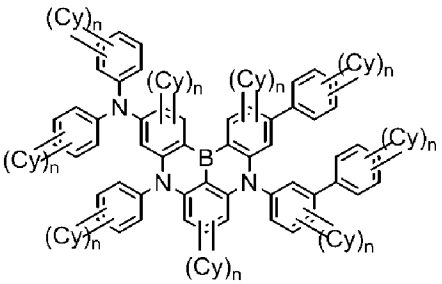
1-Cy-(1159)



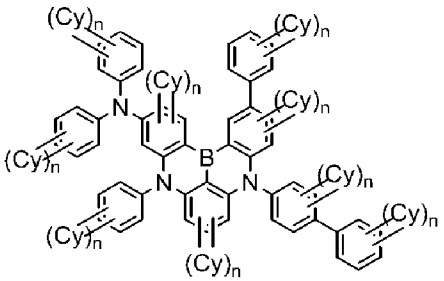
1-Cy-(2657)



1-Cy-(2665)

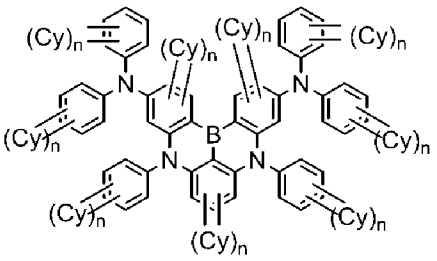


1-Cy-(2676)

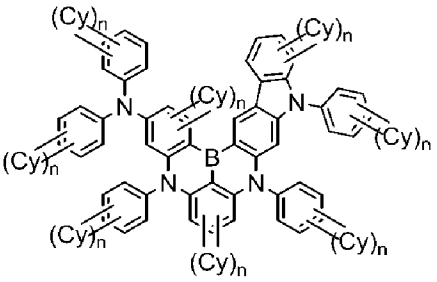


1-Cy-(2679)

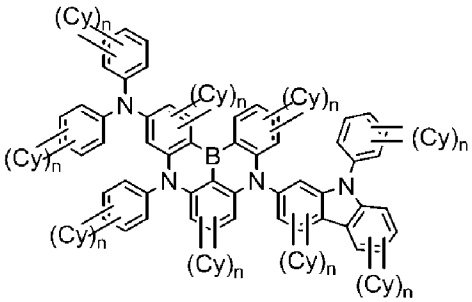
【0125】



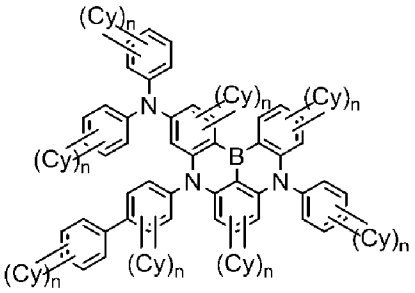
1-Cy-(2680)



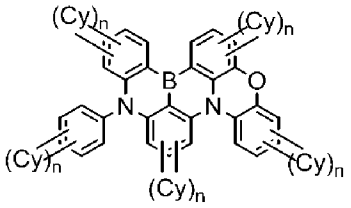
1-Cy-(2681)



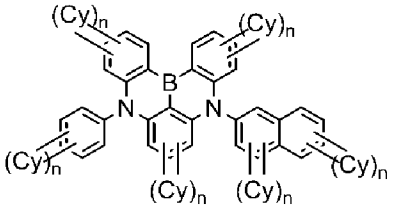
1-Cy-(2682)



1-Cy-(2683)

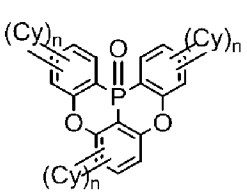


1-Cy-(2691)

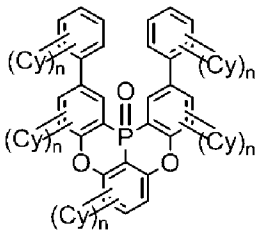


1-Cy-(2699)

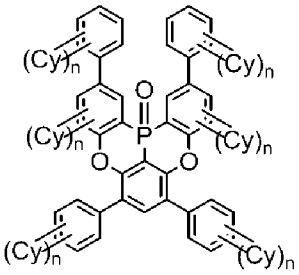
【0126】



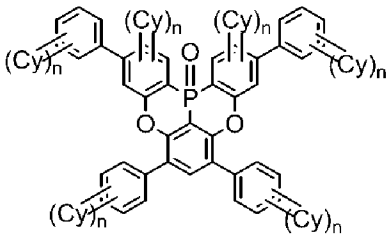
1-Cy-(601)



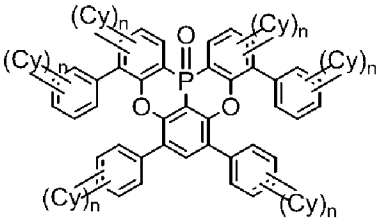
1-Cy-(1187)



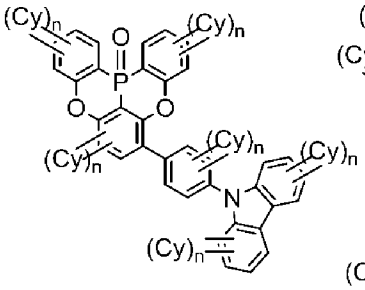
1-Cy-(1190)



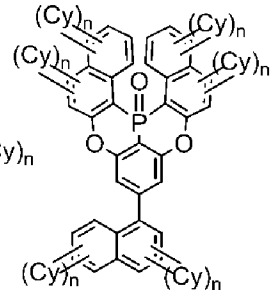
1-Cy-(1191)



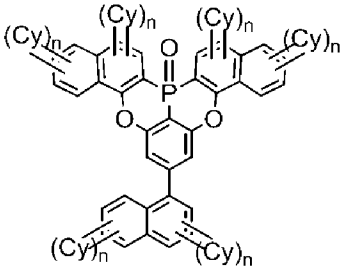
1-Cy-(1192)



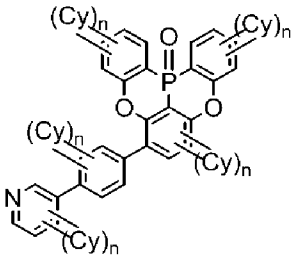
1-Cy-(3588)



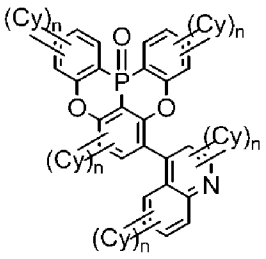
1-Cy-(3654)



1-Cy-(3690)

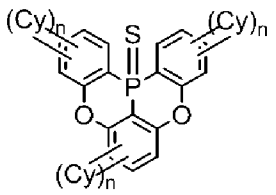


1-Cy-(3806)

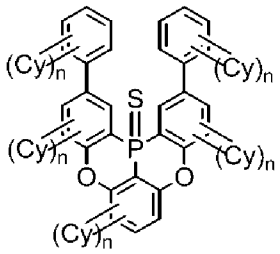


1-Cy-(3824)

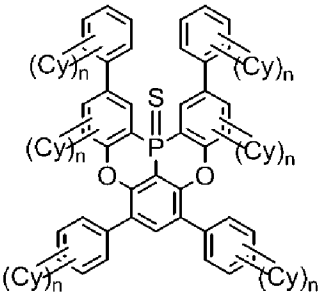
【0127】



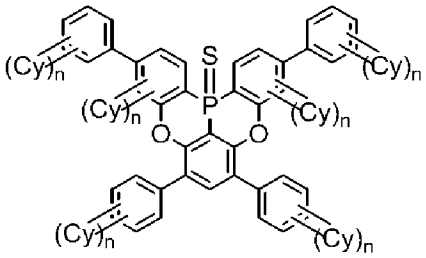
1-Cy-(701)



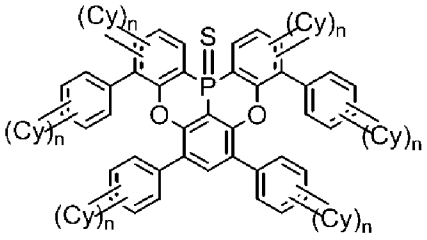
1-Cy-(1247)



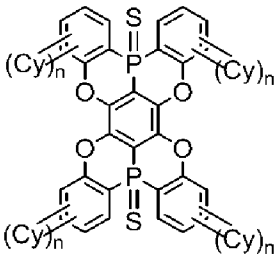
1-Cy-(1250)



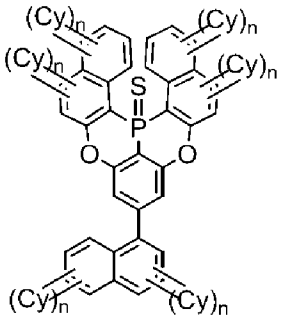
1-Cy-(1251)



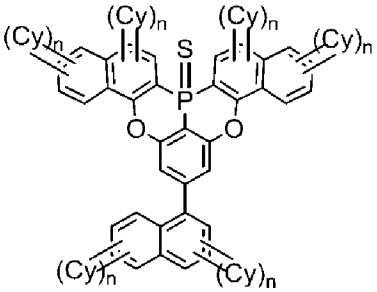
1-Cy-(1252)



1-Cy-(721)

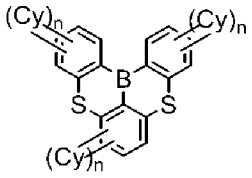


1-Cy-(4114)

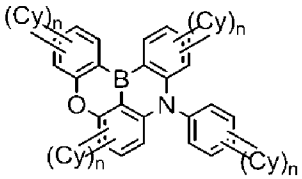


1-Cy-(4150)

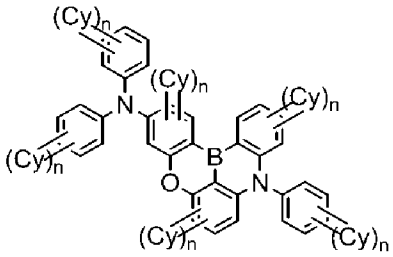
【0128】



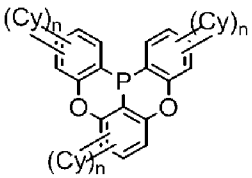
1-Cy-(201)



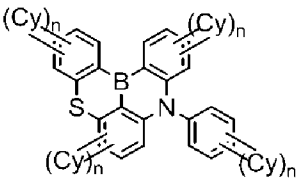
1-Cy-(1201)



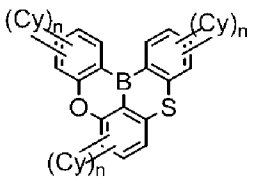
1-Cy-(1210)



1-Cy-(501)



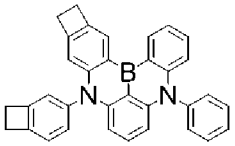
1-Cy-(1301)



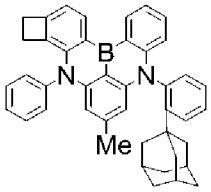
1-Cy-(1351)

【0129】 作為本發明的經環烷烴縮合的多環芳香族化合物的更具體的例子，可列舉以下結構式所表示的化合物。再者，下述結構式中的「D」表示氘，「Me」表示甲基，「Et」表示乙基，「iPr」表示異丙基，「tBu」表示第三丁基，「tAm」表示第三戊基，「Ph」表示苯基，「F」表示氟，「CN」表示氰基，「TMS」表示三甲基矽烷基，「TPhS」表示三苯基矽烷基。再者，式(1-1001)～式(1-1265)中，省略結構式中的甲基（Me）的表述。

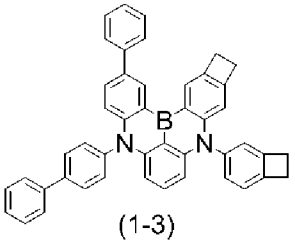
【0130】



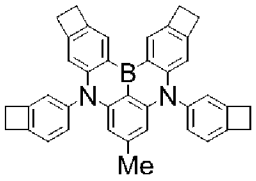
(1-1)



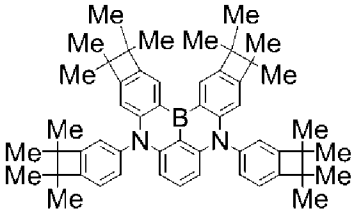
(1-2)



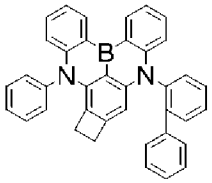
(1-3)



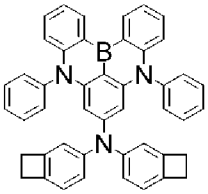
(1-4)



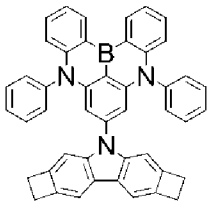
(1-5)



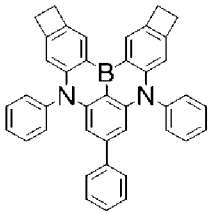
(1-6)



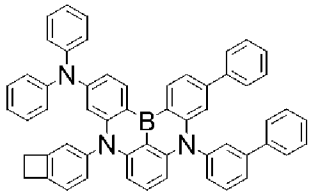
(1-7)



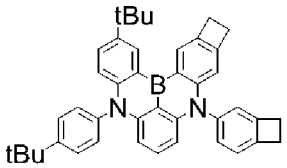
(1-8)



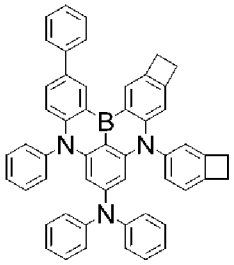
(1-9)



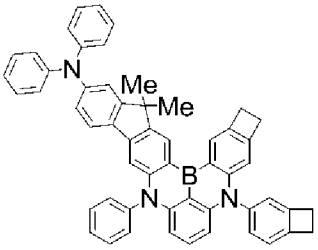
(1-10)



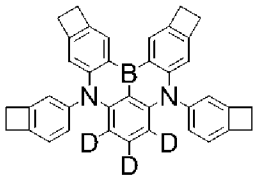
(1-11)



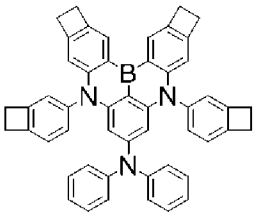
(1-12)



(1-13)

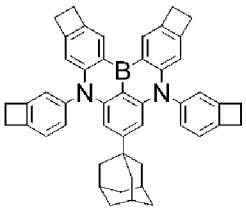


(1-14)

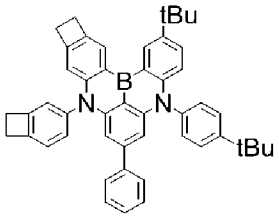


(1-15)

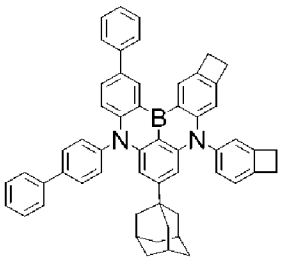
【0131】



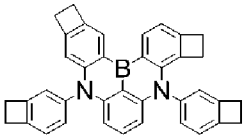
(1-21)



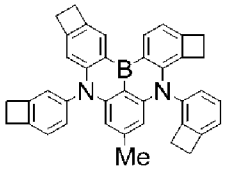
(1-22)



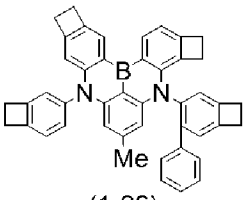
(1-23)



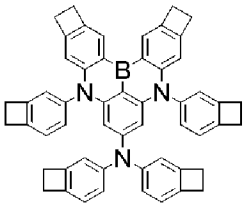
(1-24)



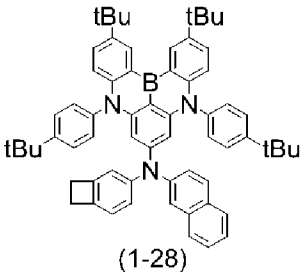
(1-25)



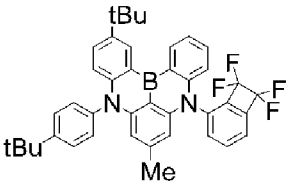
(1-26)



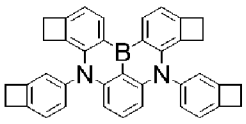
(1-27)



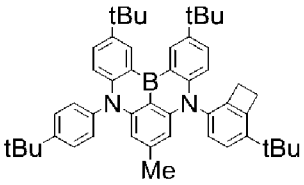
(1-28)



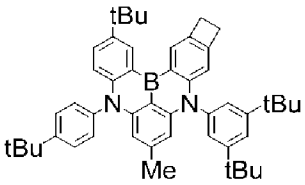
(1-29)



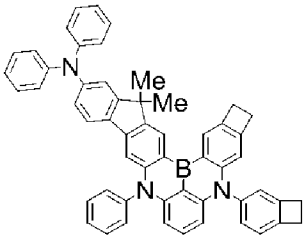
(1-30)



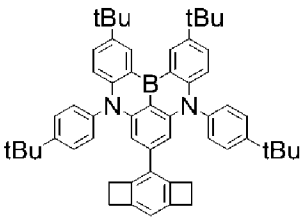
(1-31)



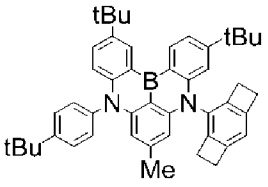
(1-32)



(1-33)

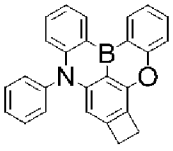


(1-34)

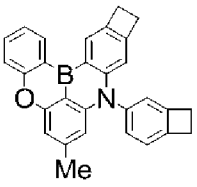


(1-35)

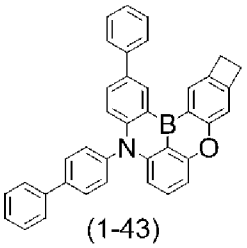
【0132】



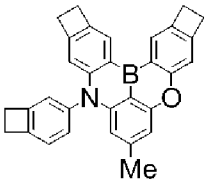
(1-41)



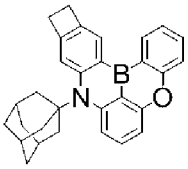
(1-42)



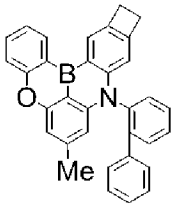
(1-43)



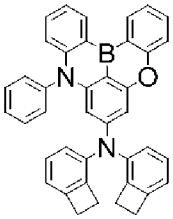
(1-44)



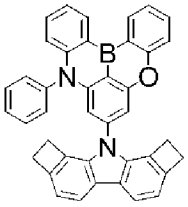
(1-45)



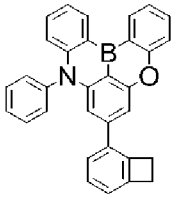
(1-46)



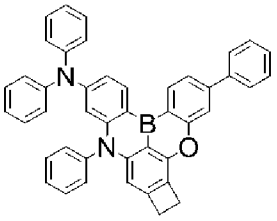
(1-47)



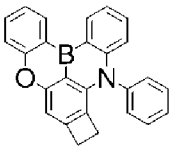
(1-48)



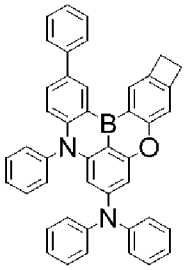
(1-49)



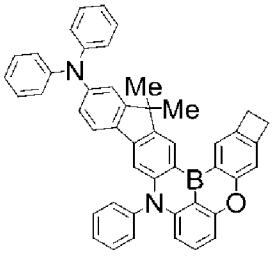
(1-50)



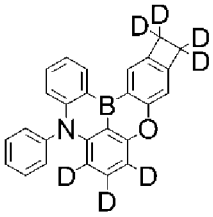
(1-51)



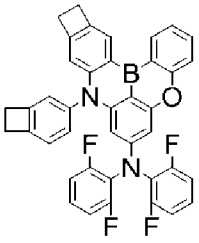
(1-52)



(1-53)

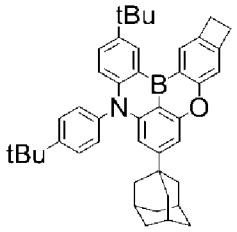


(1-54)

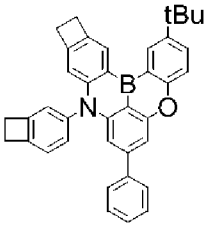


(1-55)

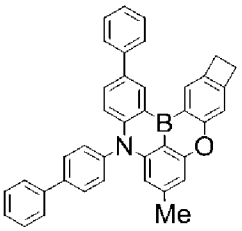
【0133】



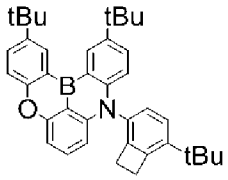
(1-61)



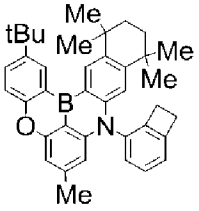
(1-62)



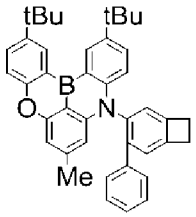
(1-63)



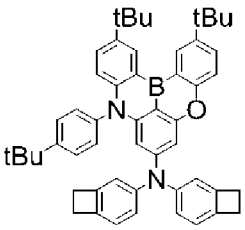
(1-64)



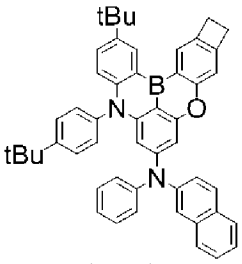
(1-65)



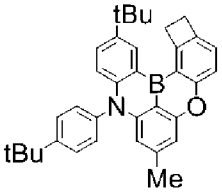
(1-66)



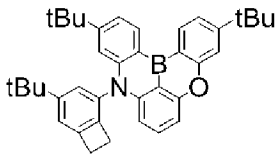
(1-67)



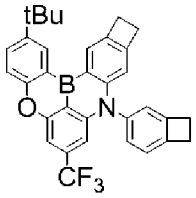
(1-68)



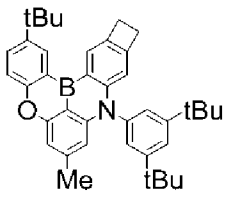
(1-69)



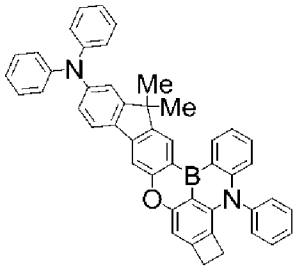
(1-70)



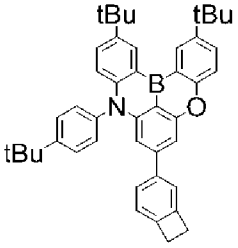
(1-71)



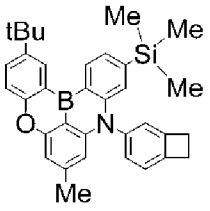
(1-72)



(1-73)

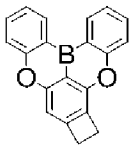


(1-74)

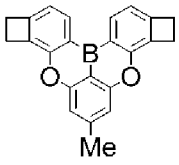


(1-75)

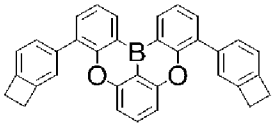
【0134】



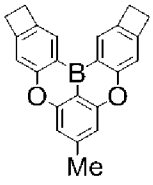
(1-81)



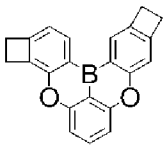
(1-82)



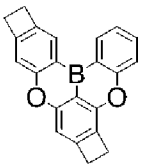
(1-83)



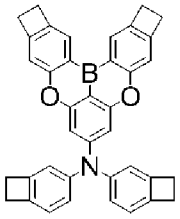
(1-84)



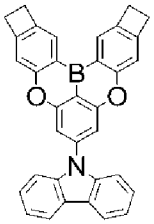
(1-85)



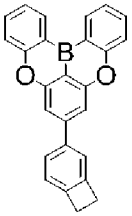
(1-86)



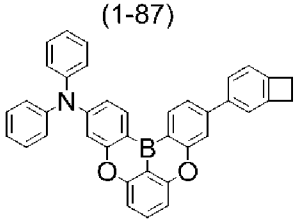
(1-87)



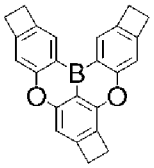
(1-88)



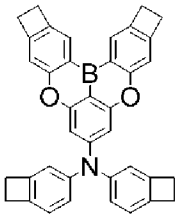
(1-89)



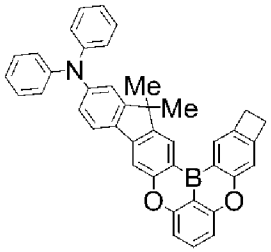
(1-90)



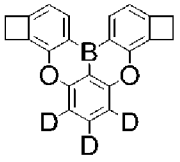
(1-91)



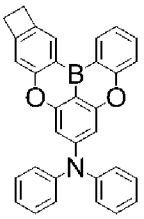
(1-92)



(1-93)

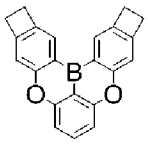


(1-94)

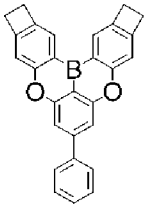


(1-95)

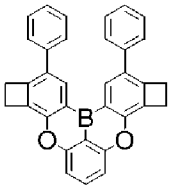
【0135】



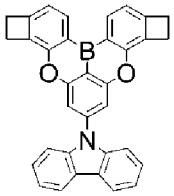
(1-101)



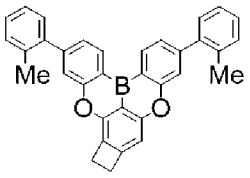
(1-102)



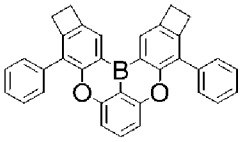
(1-103)



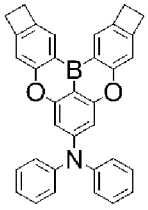
(1-104)



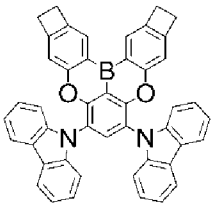
(1-105)



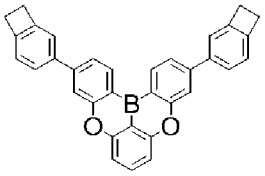
(1-106)



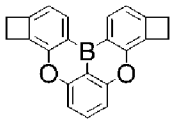
(1-107)



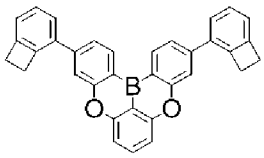
(1-108)



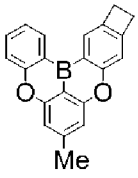
(1-109)



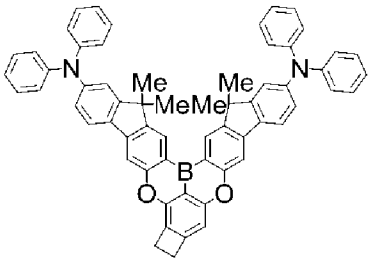
(1-110)



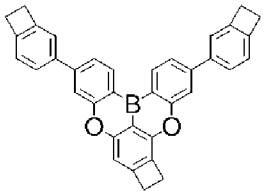
(1-111)



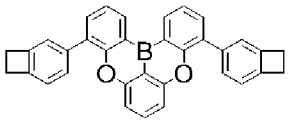
(1-112)



(1-113)

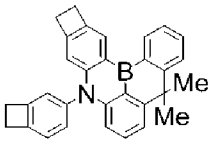


(1-114)

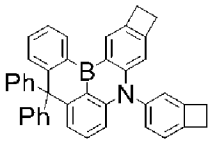


(1-115)

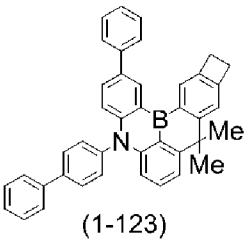
【0136】



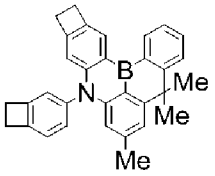
(1-121)



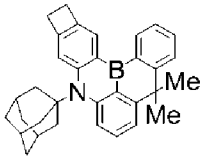
(1-122)



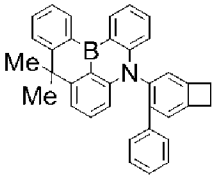
(1-123)



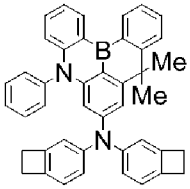
(1-124)



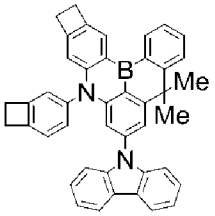
(1-125)



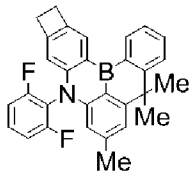
(1-126)



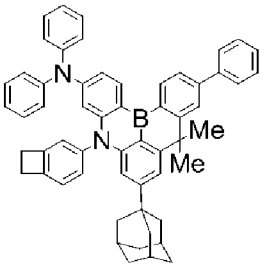
(1-127)



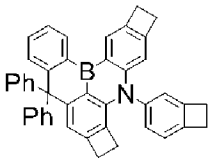
(1-128)



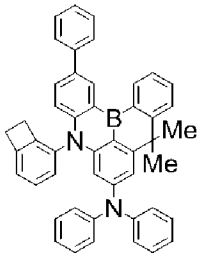
(1-129)



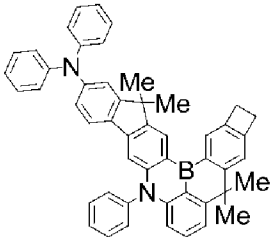
(1-130)



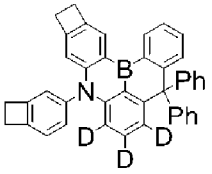
(1-131)



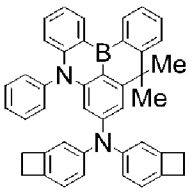
(1-132)



(1-133)

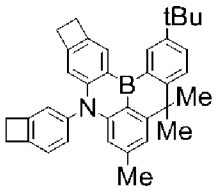


(1-134)

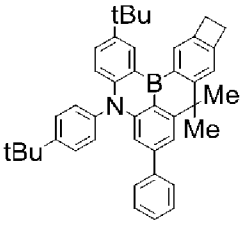


(1-135)

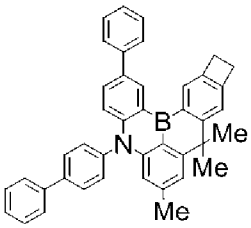
【0137】



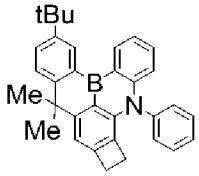
(1-141)



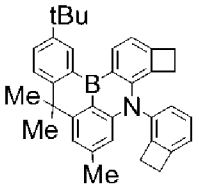
(1-142)



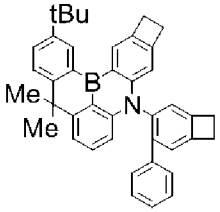
(1-143)



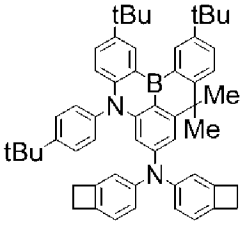
(1-144)



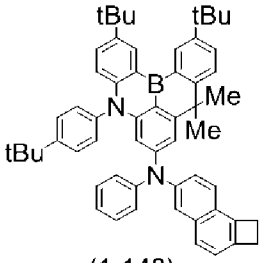
(1-145)



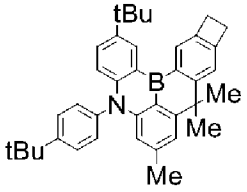
(1-146)



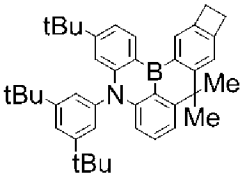
(1-147)



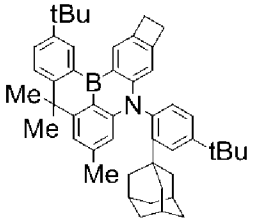
(1-148)



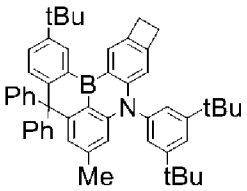
(1-149)



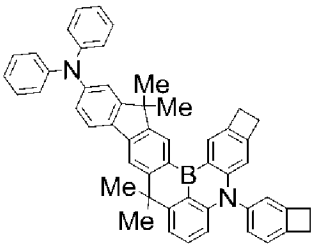
(1-150)



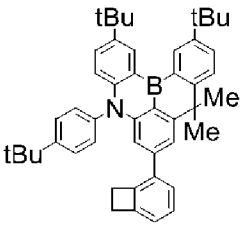
(1-151)



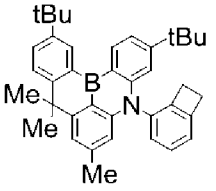
(1-152)



(1-153)

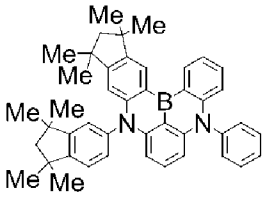


(1-154)

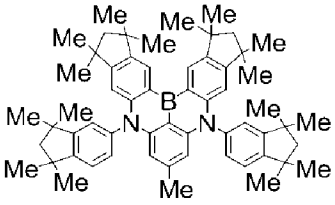


(1-155)

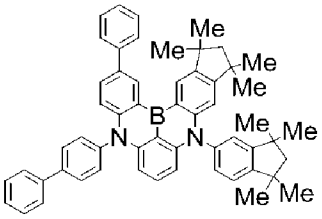
【0138】



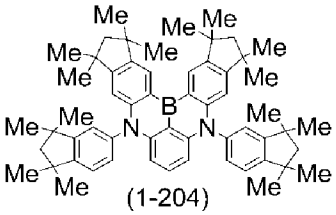
(1-201)



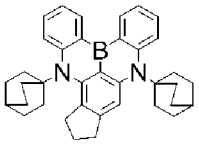
(1-202)



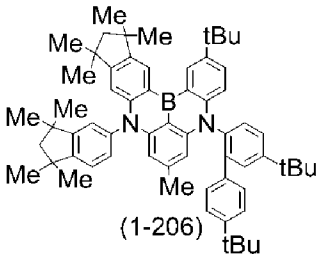
(1-203)



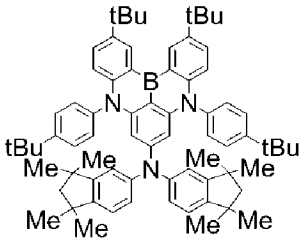
(1-204)



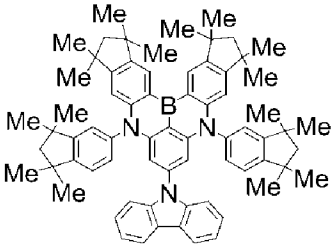
(1-205)



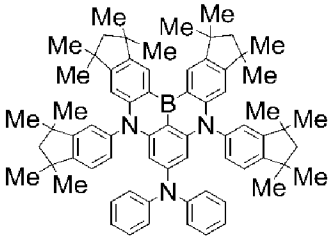
(1-206)



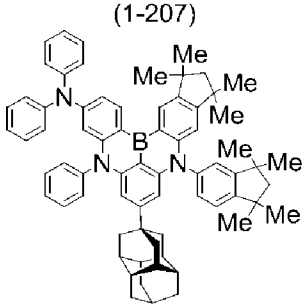
(1-207)



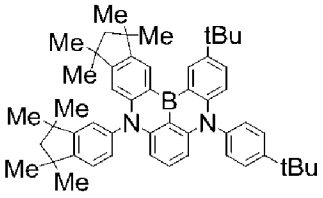
(1-208)



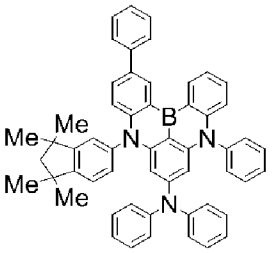
(1-209)



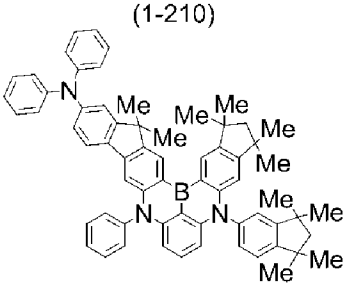
(1-210)



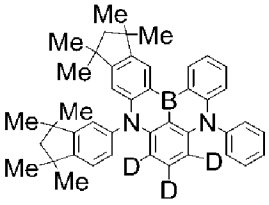
(1-211)



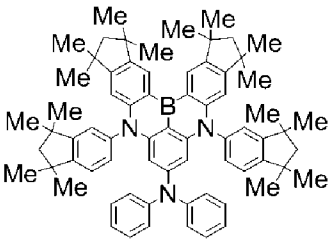
(1-212)



(1-213)

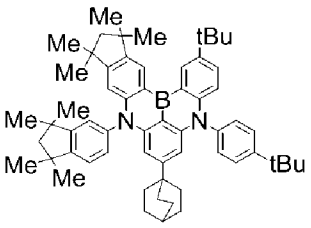


(1-214)

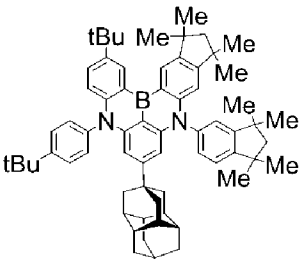


(1-215)

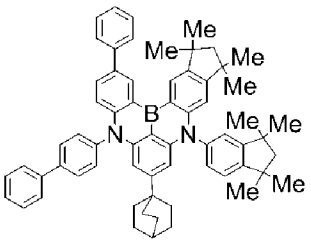
【0139】



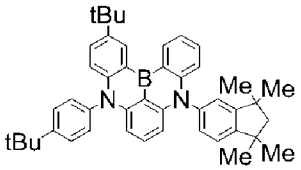
(1-221)



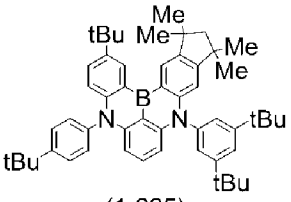
(1-222)



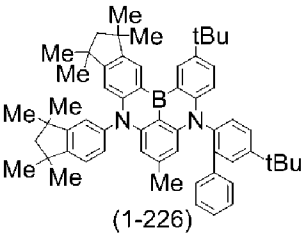
(1-223)



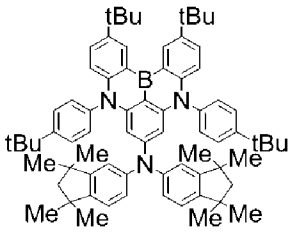
(1-224)



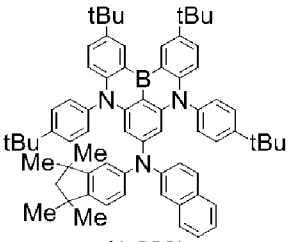
(1-225)



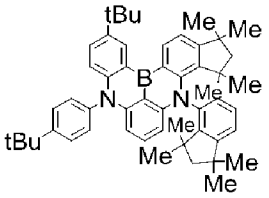
(1-226)



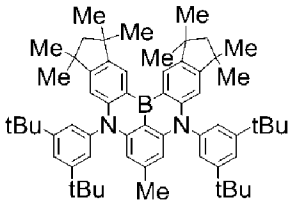
(1-227)



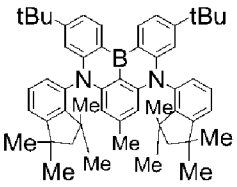
(1-228)



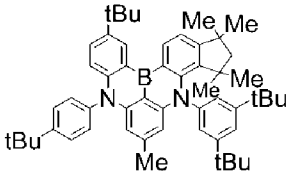
(1-229)



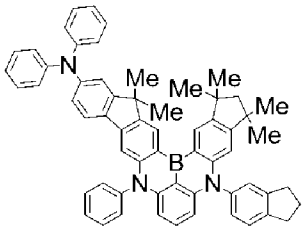
(1-230)



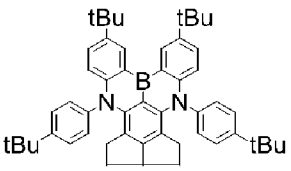
(1-231)



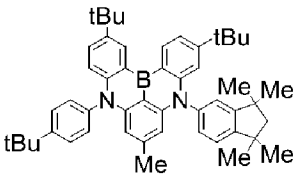
(1-232)



(1-233)

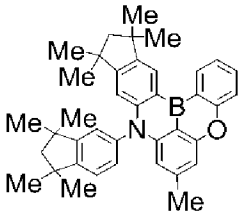


(1-234)

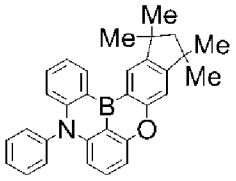


(1-235)

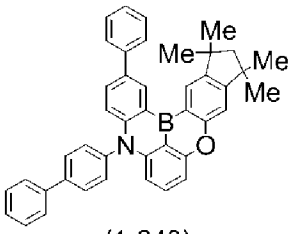
【0140】



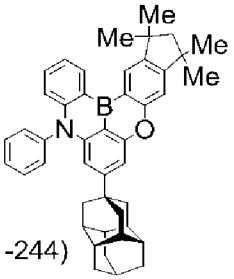
(1-241)



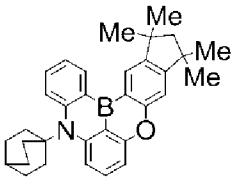
(1-242)



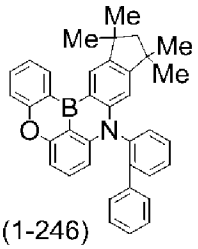
(1-243)



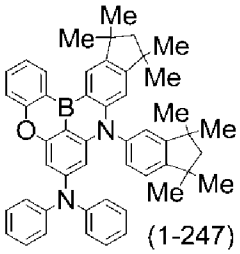
(1-244)



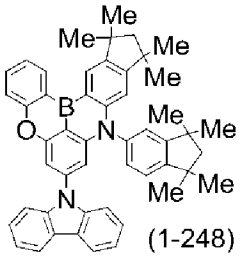
(1-245)



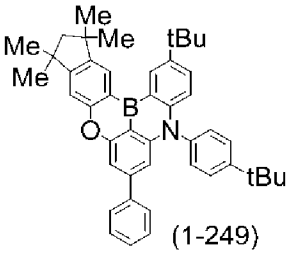
(1-246)



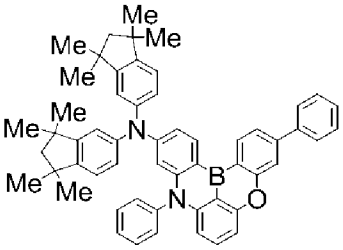
(1-247)



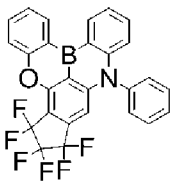
(1-248)



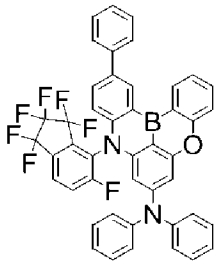
(1-249)



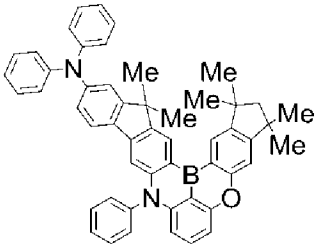
(1-250)



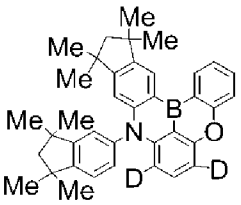
(1-251)



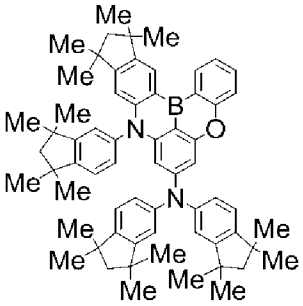
(1-252)



(1-253)

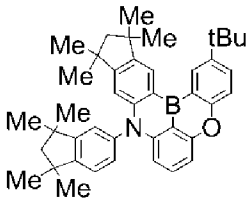


(1-254)

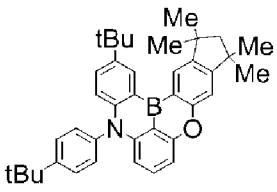


(1-255)

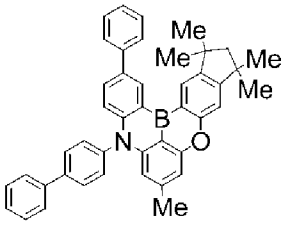
【0141】



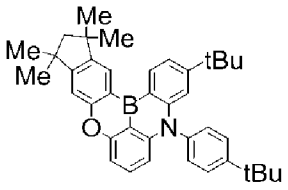
(1-261)



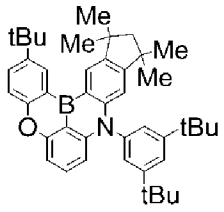
(1-262)



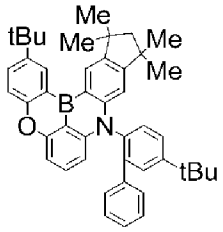
(1-263)



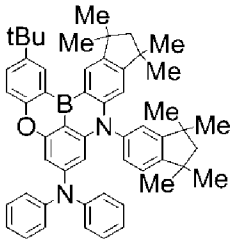
(1-264)



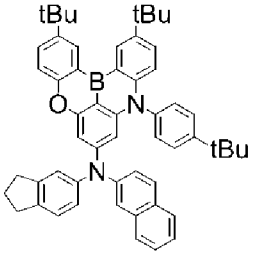
(1-265)



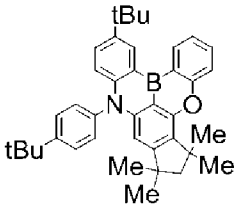
(1-266)



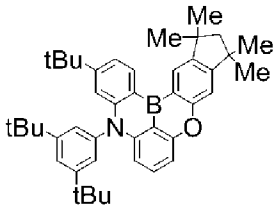
(1-267)



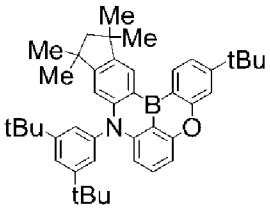
(1-268)



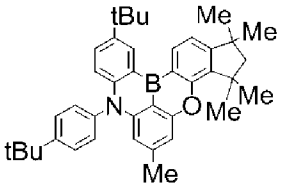
(1-269)



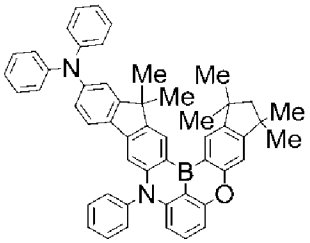
(1-270)



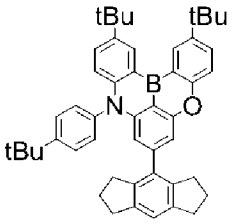
(1-271)



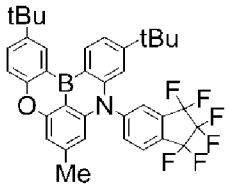
(1-272)



(1-273)

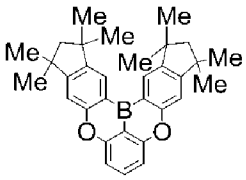


(1-274)

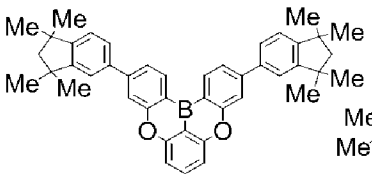


(1-275)

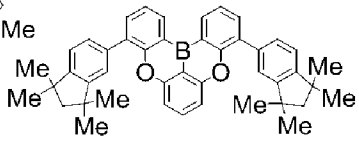
【0142】



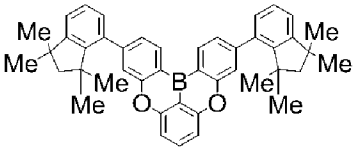
(1-281)



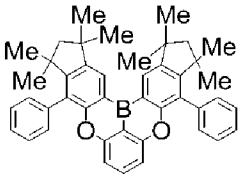
(1-282)



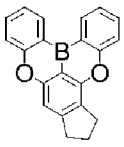
(1-283)



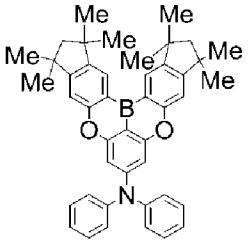
(1-284)



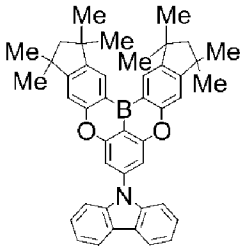
(1-285)



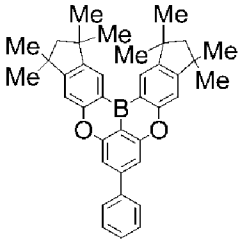
(1-286)



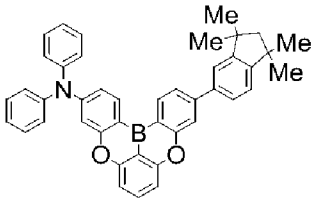
(1-287)



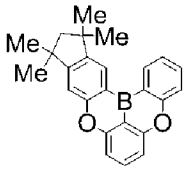
(1-288)



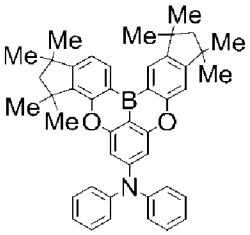
(1-289)



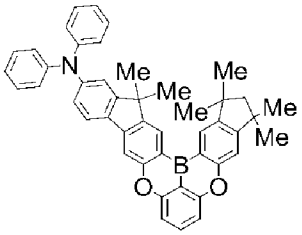
(1-290)



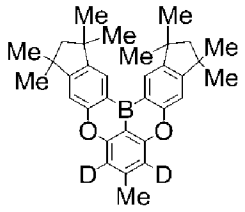
(1-291)



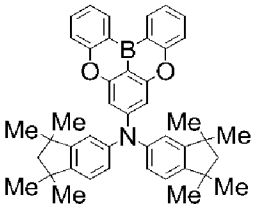
(1-292)



(1-293)

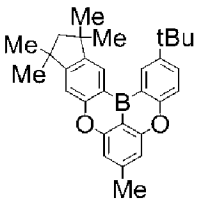


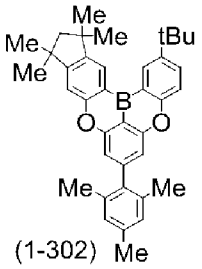
(1-294)

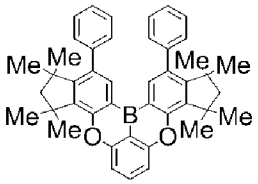


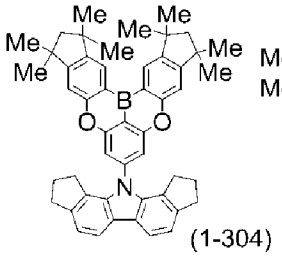
(1-295)

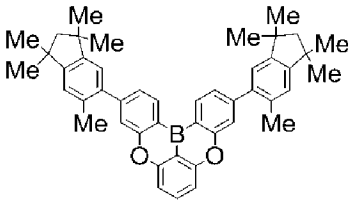
【0143】

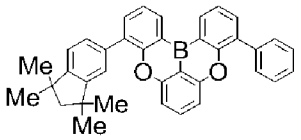

(1-301)

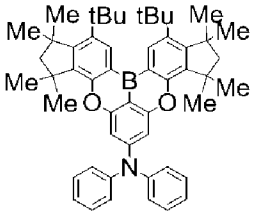

(1-302)

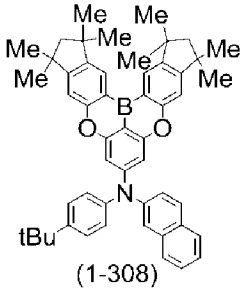

(1-303)

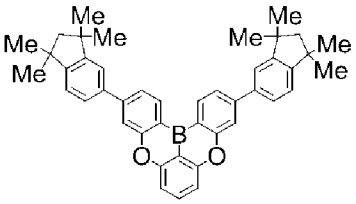

(1-304)

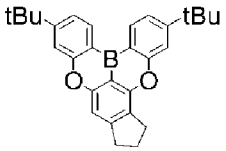

(1-305)

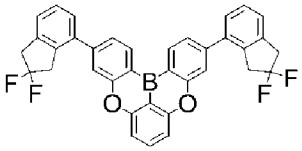

(1-306)

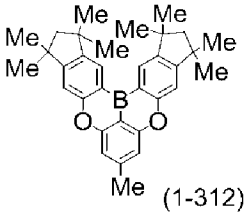

(1-307)

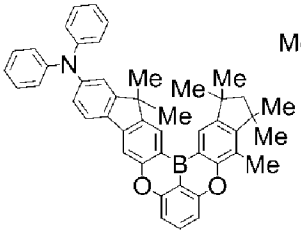

(1-308)

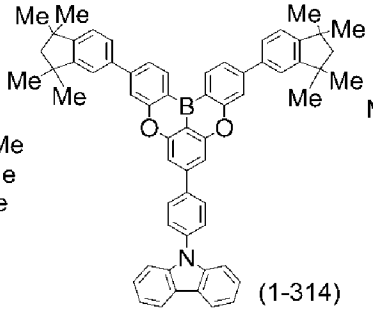

(1-309)

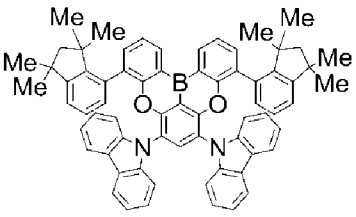

(1-310)


(1-311)

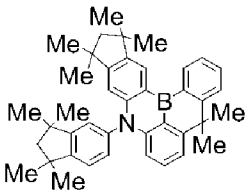

(1-312)


(1-313)

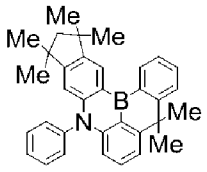

(1-314)


(1-315)

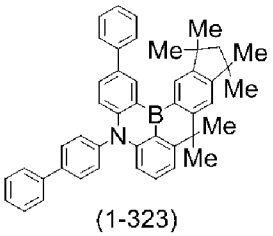
【0144】



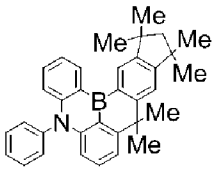
(1-321)



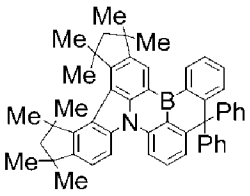
(1-322)



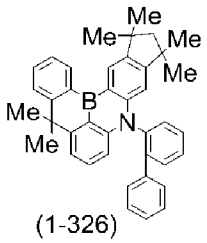
(1-323)



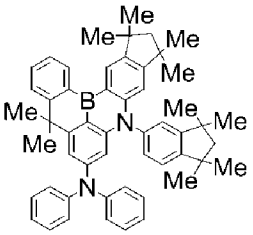
(1-324)



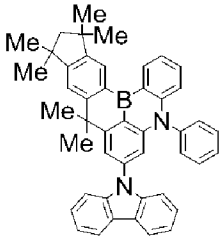
(1-325)



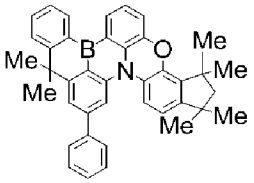
(1-326)



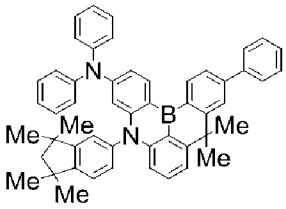
(1-327)



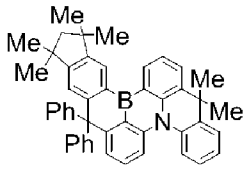
(1-328)



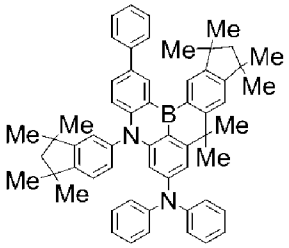
(1-329)



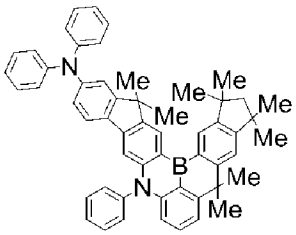
(1-330)



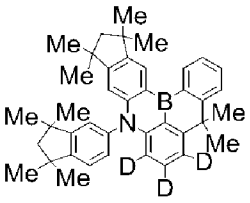
(1-331)



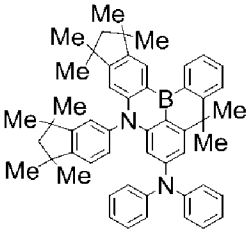
(1-332)



(1-333)

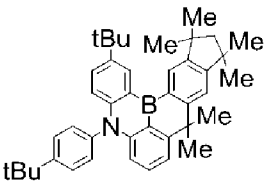


(1-334)

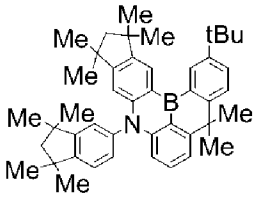


(1-335)

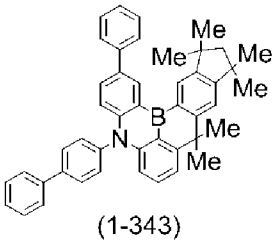
【0145】



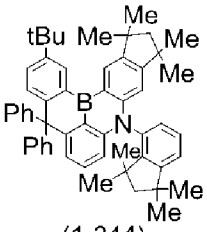
(1-341)



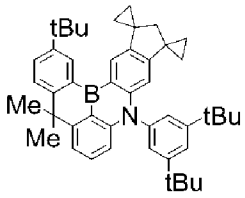
(1-342)



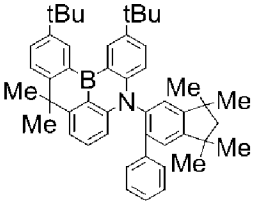
(1-343)



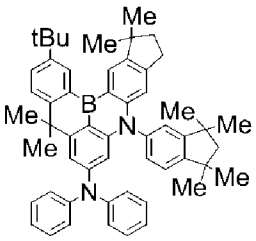
(1-344)



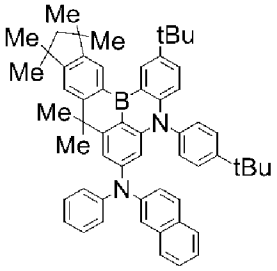
(1-345)



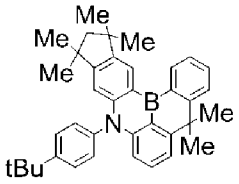
(1-346)



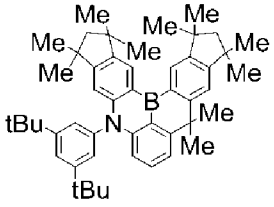
(1-347)



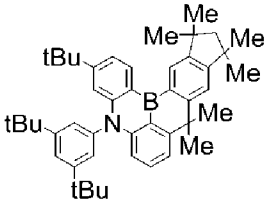
(1-348)



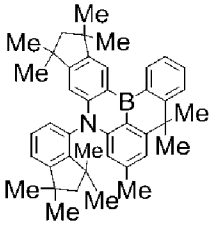
(1-349)



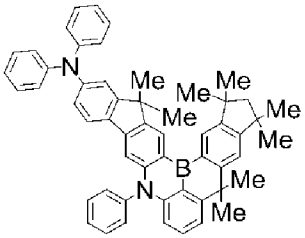
(1-350)



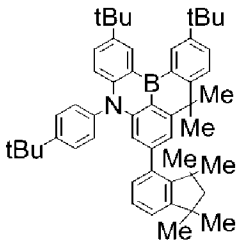
(1-351)



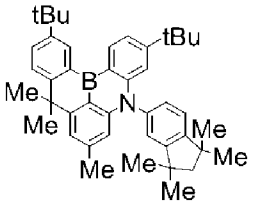
(1-352)



(1-353)

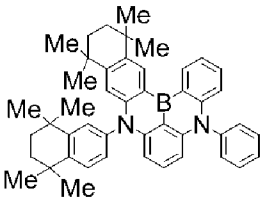


(1-354)

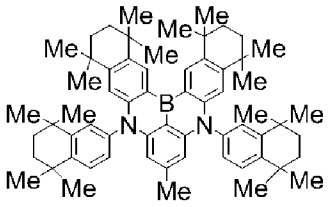


(1-355)

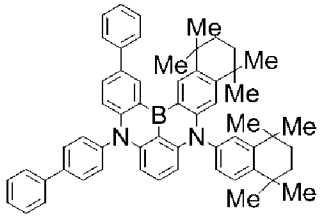
【0146】



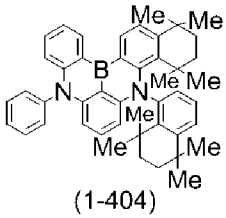
(1-401)



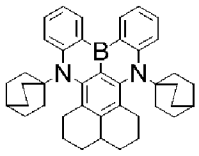
(1-402)



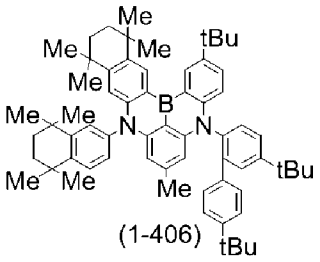
(1-403)



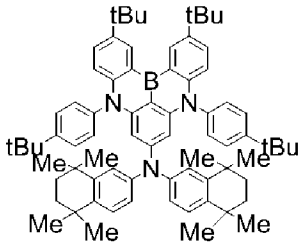
(1-404)



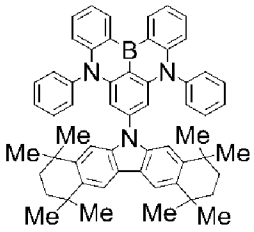
(1-405)



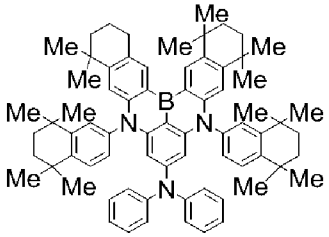
(1-406)



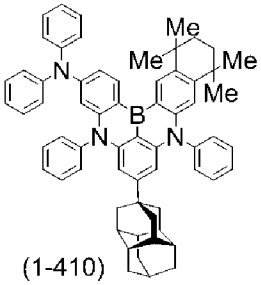
(1-407)



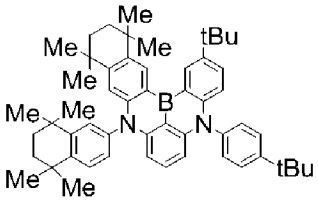
(1-408)



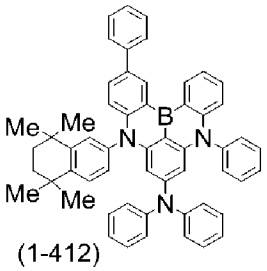
(1-409)



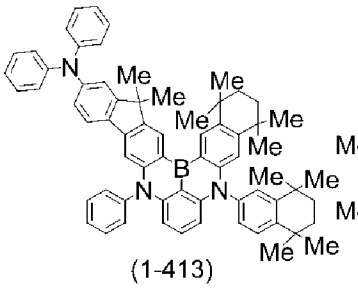
(1-410)



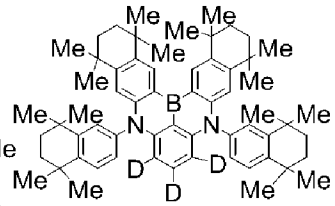
(1-411)



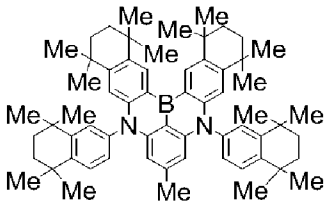
(1-412)



(1-413)

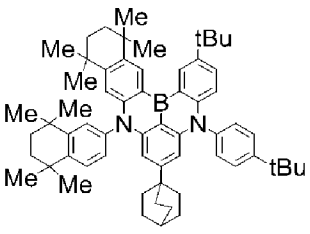


(1-414)

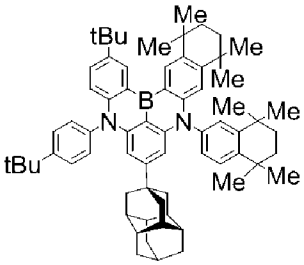


(1-415)

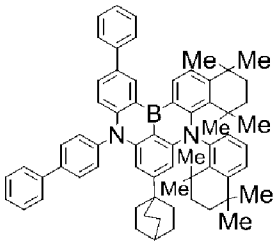
【0147】



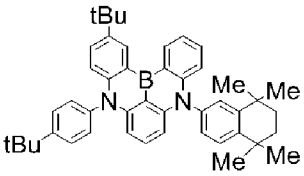
(1-421)



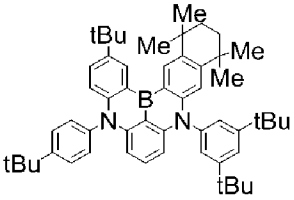
(1-422)



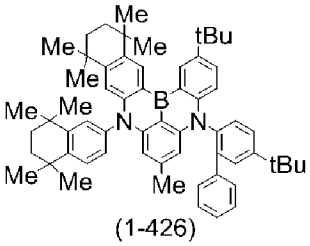
(1-423)



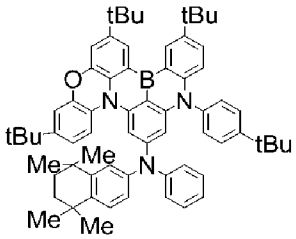
(1-424)



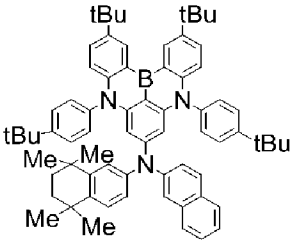
(1-425)



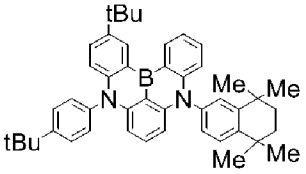
(1-426)



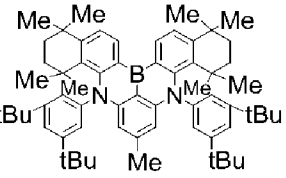
(1-427)



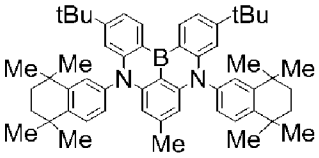
(1-428)



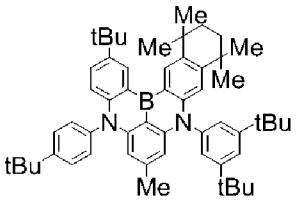
(1-429)



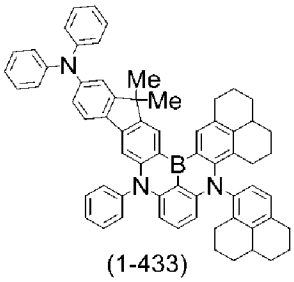
(1-430)



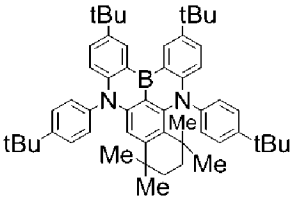
(1-431)



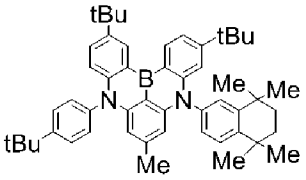
(1-432)



(1-433)

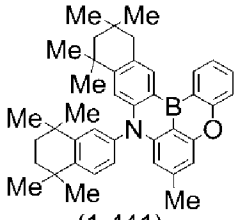


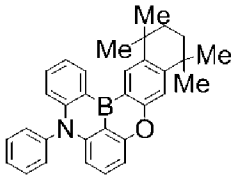
(1-434)

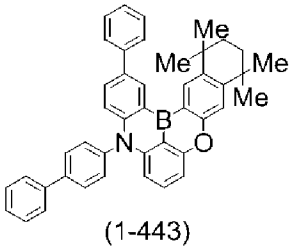


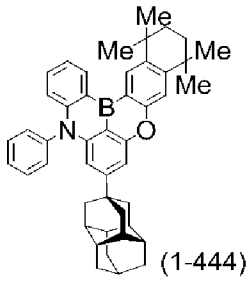
(1-435)

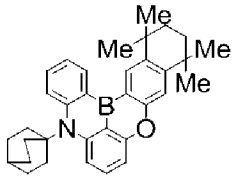
【0148】

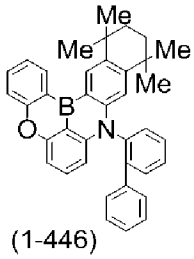

(1-441)

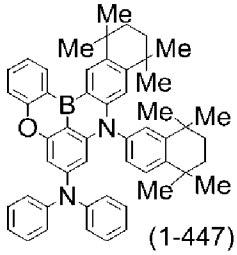

(1-442)

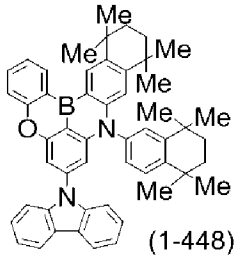

(1-443)

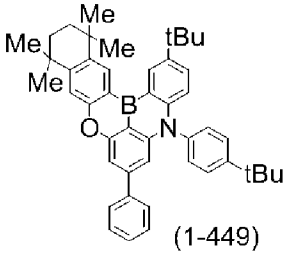

(1-444)

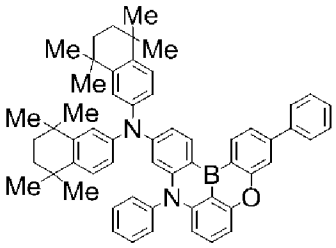

(1-445)

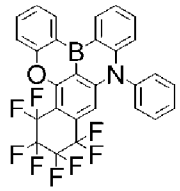

(1-446)

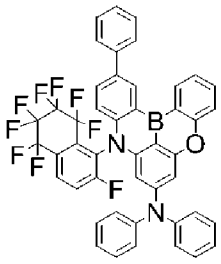

(1-447)

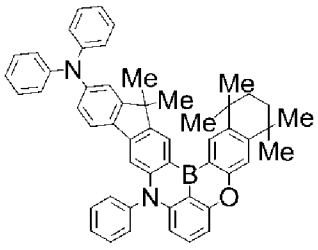

(1-448)

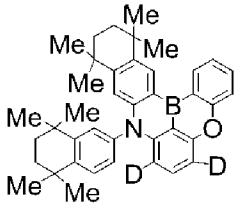

(1-449)

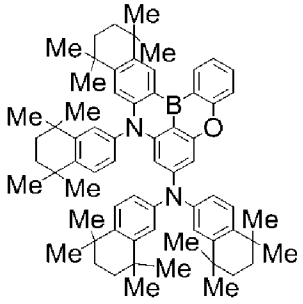

(1-450)


(1-451)

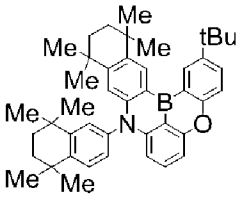

(1-452)


(1-453)

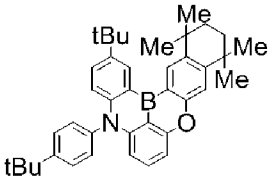

(1-454)


(1-455)

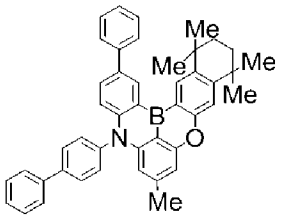
【0149】



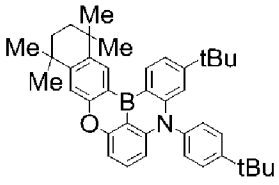
(1-461)



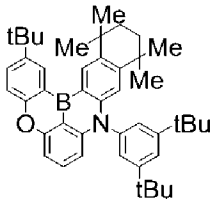
(1-462)



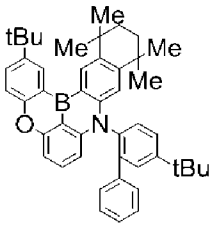
(1-463)



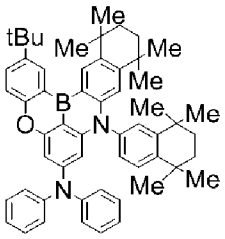
(1-464)



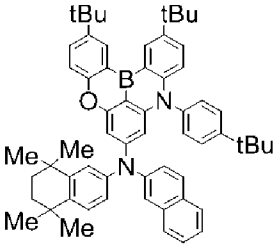
(1-465)



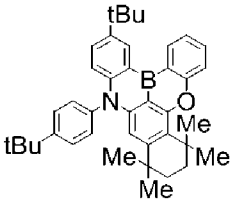
(1-466)



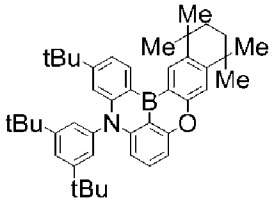
(1-467)



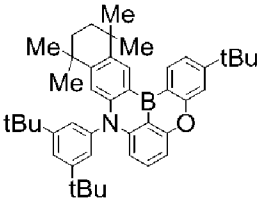
(1-468)



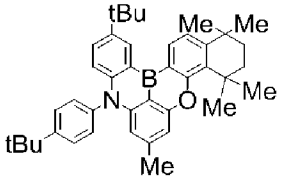
(1-469)



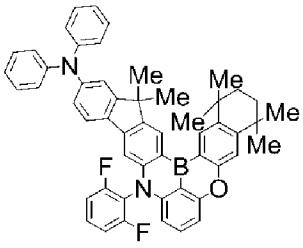
(1-470)



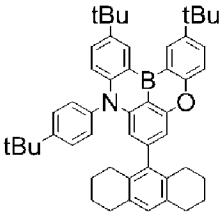
(1-471)



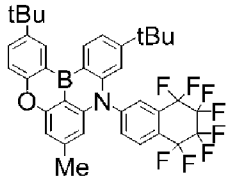
(1-472)



(1-473)

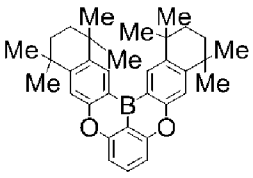


(1-474)

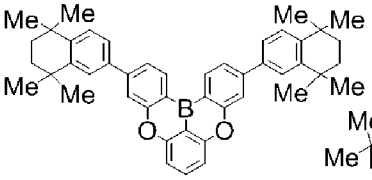


(1-475)

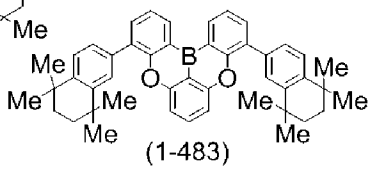
【0150】



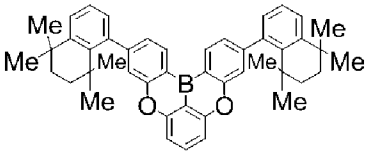
(1-481)



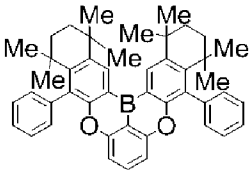
(1-482)



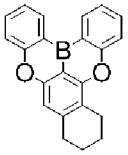
(1-483)



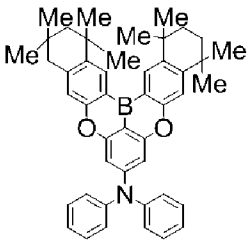
(1-484)



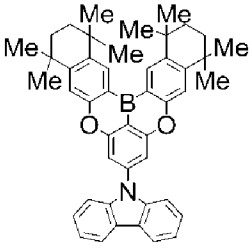
(1-485)



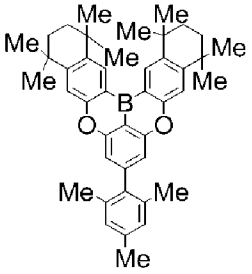
(1-486)



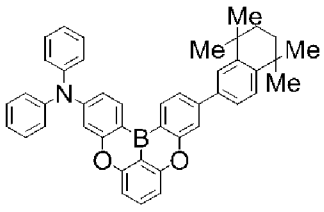
(1-487)



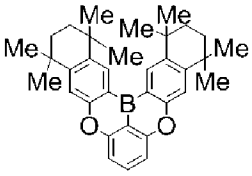
(1-488)



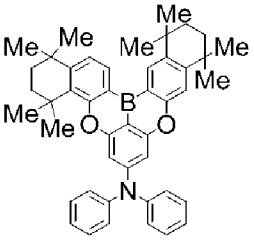
(1-489)



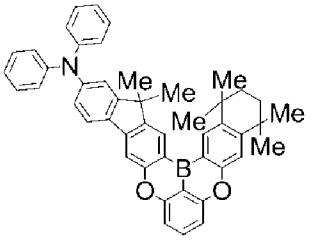
(1-490)



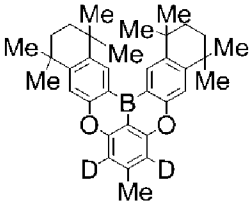
(1-491)



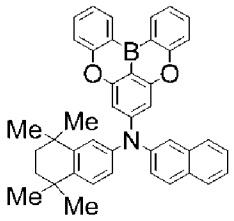
(1-492)



(1-493)

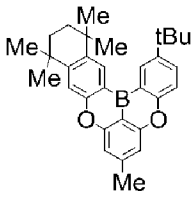


(1-494)

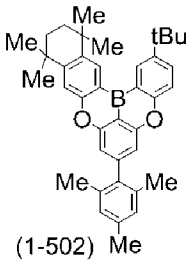


(1-495)

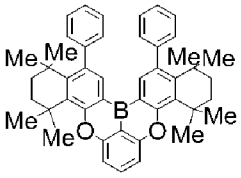
【0151】



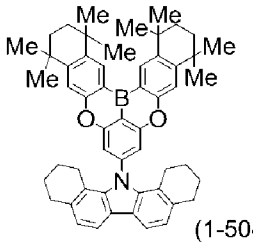
(1-501)



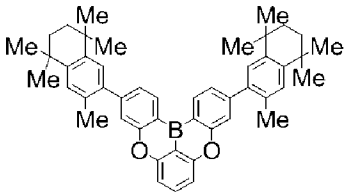
(1-502)



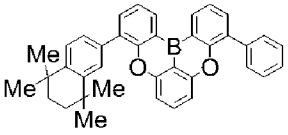
(1-503)



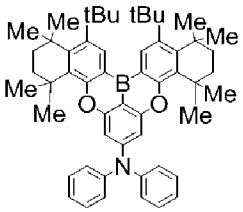
(1-504)



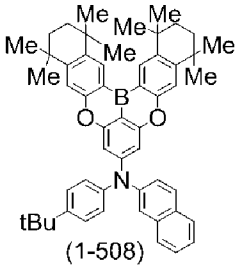
(1-505)



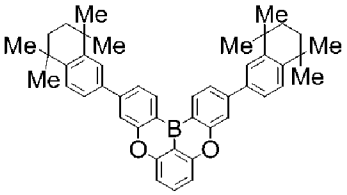
(1-506)



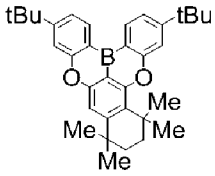
(1-507)



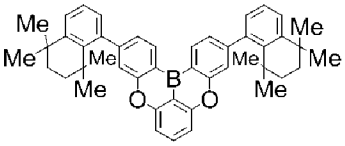
(1-508)



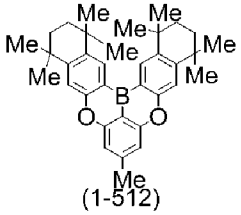
(1-509)



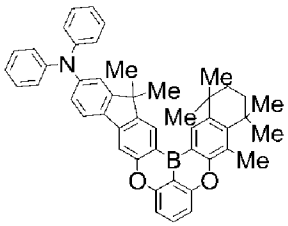
(1-510)



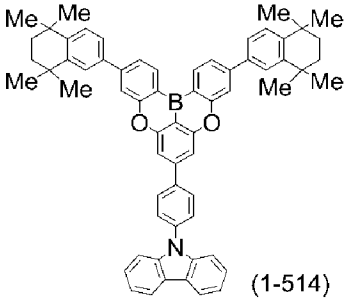
(1-511)



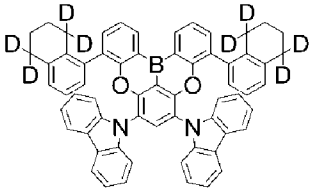
(1-512)



(1-513)

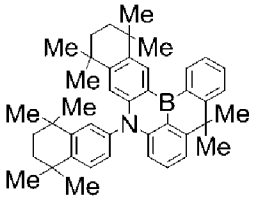


(1-514)

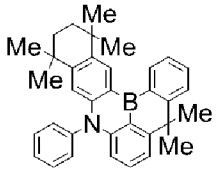


(1-515)

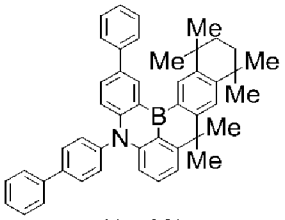
【0152】



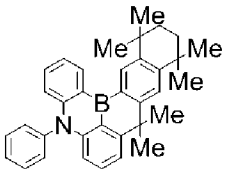
(1-521)



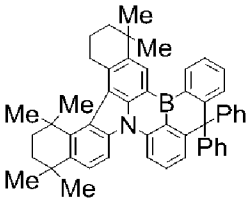
(1-522)



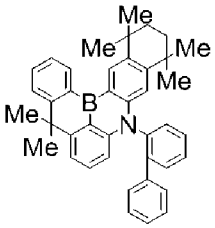
(1-523)



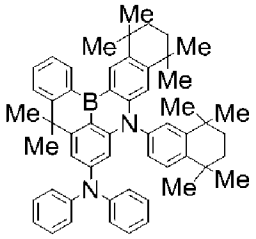
(1-524)



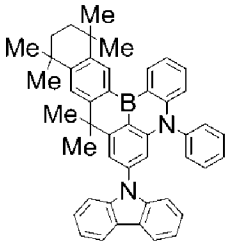
(1-525)



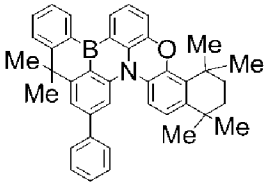
(1-526)



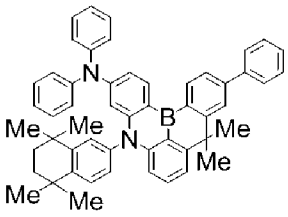
(1-527)



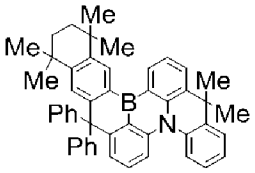
(1-528)



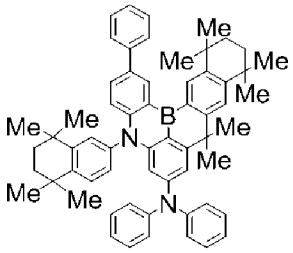
(1-529)



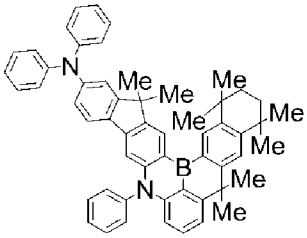
(1-530)



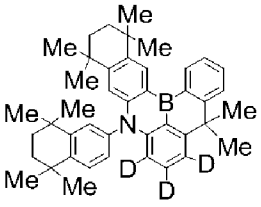
(1-531)



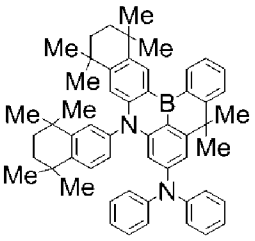
(1-532)



(1-533)

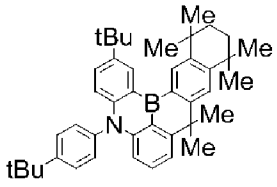


(1-534)

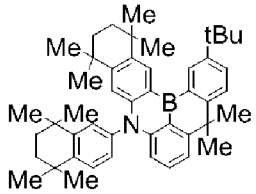


(1-535)

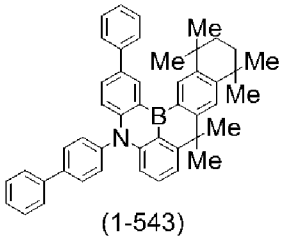
【0153】



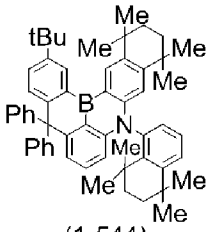
(1-541)



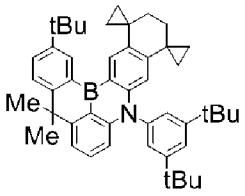
(1-542)



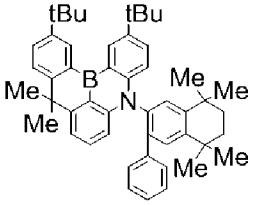
(1-543)



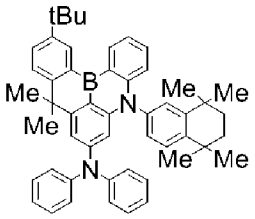
(1-544)



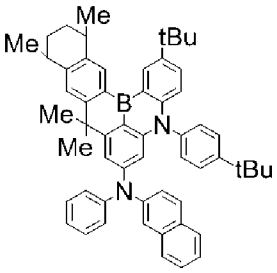
(1-545)



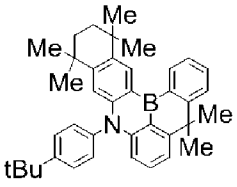
(1-546)



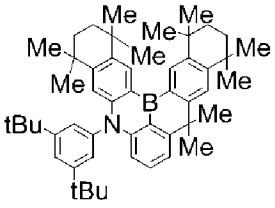
(1-547)



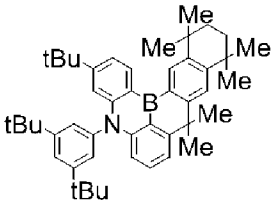
(1-548)



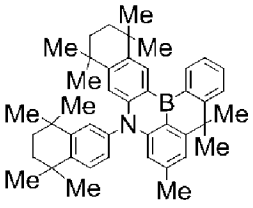
(1-549)



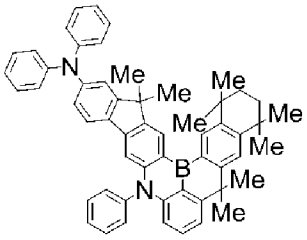
(1-550)



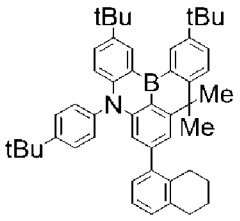
(1-551)



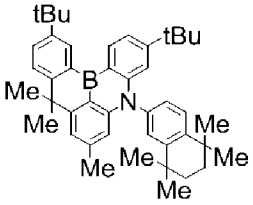
(1-552)



(1-553)

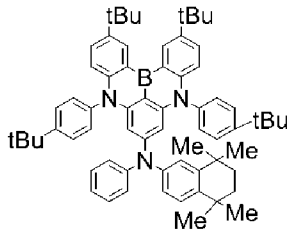


(1-554)

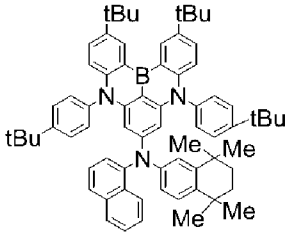


(1-555)

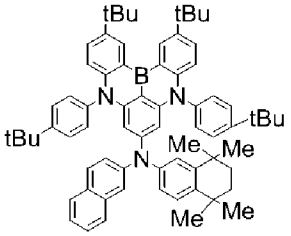
【0154】



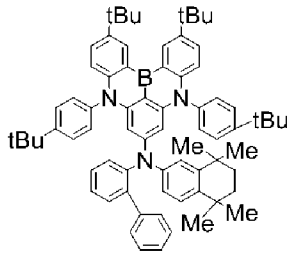
(1-561)



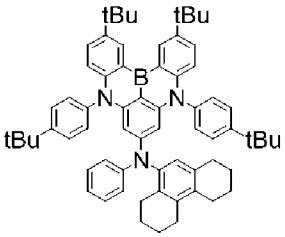
(1-562)



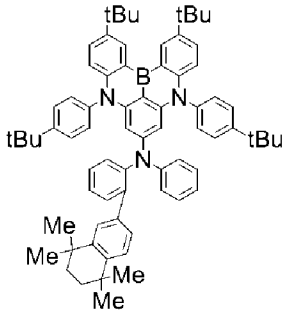
(1-563)



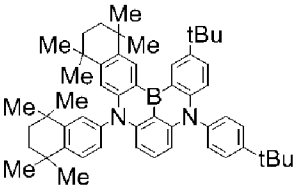
(1-564)



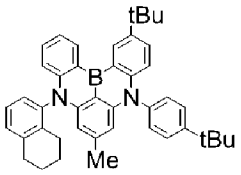
(1-565)



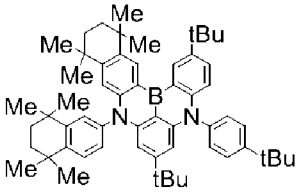
(1-566)



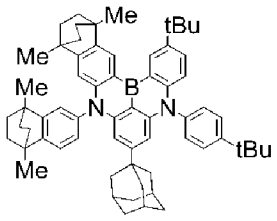
(1-567)



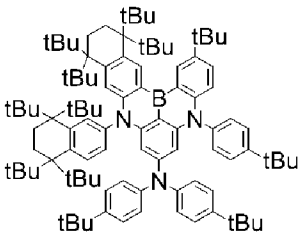
(1-568)



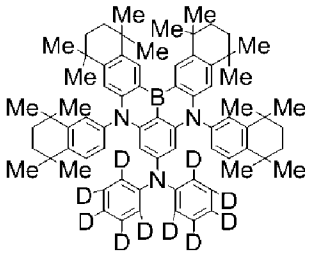
(1-569)



(1-570)

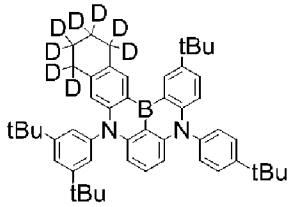


(1-571)

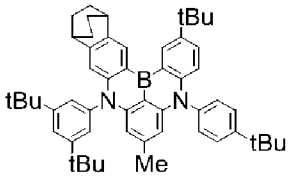


(1-572)

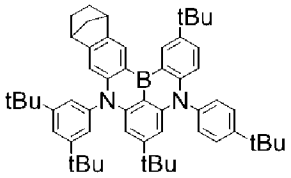
【0155】



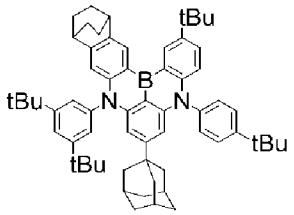
(1-581)



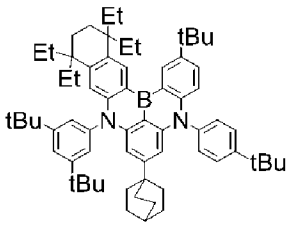
(1-582)



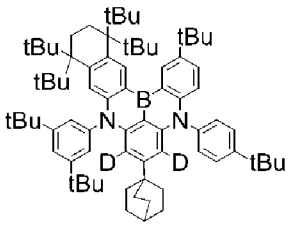
(1-583)



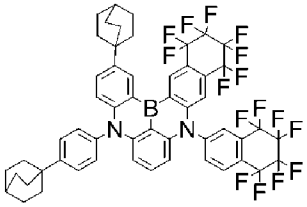
(1-584)



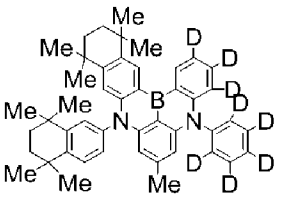
(1-585)



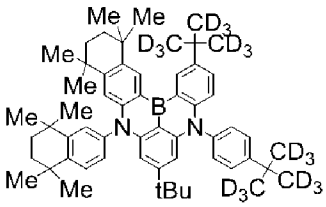
(1-586)



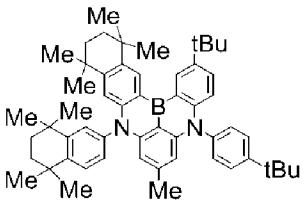
(1-587)



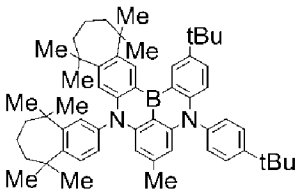
(1-588)



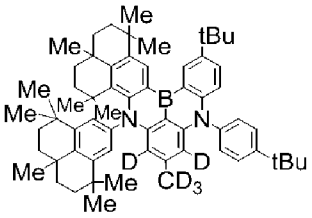
(1-589)



(1-590)

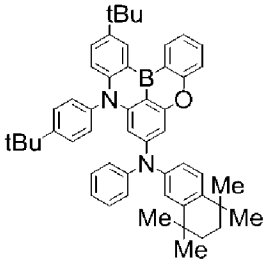


(1-591)

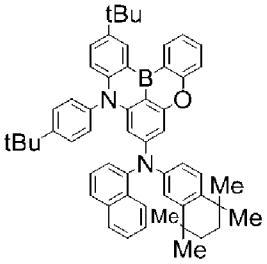


(1-592)

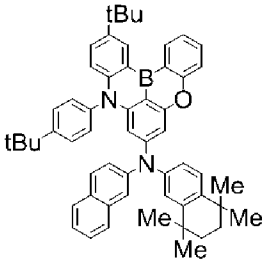
【0156】



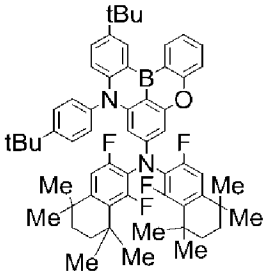
(1-601)



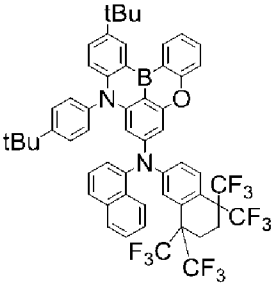
(1-602)



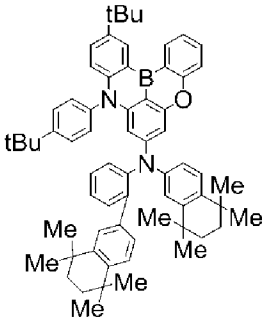
(1-603)



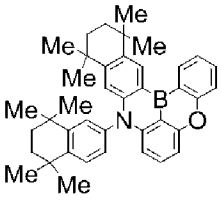
(1-604)



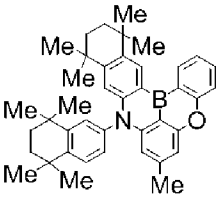
(1-605)



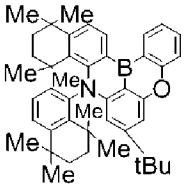
(1-606)



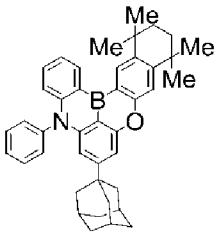
(1-607)



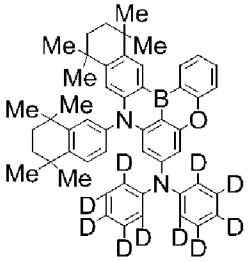
(1-608)



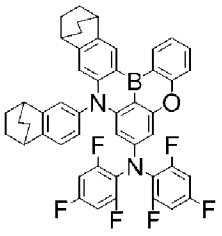
(1-609)



(1-611)

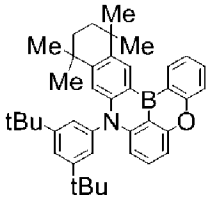


(1-612)

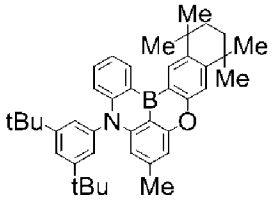


(1-613)

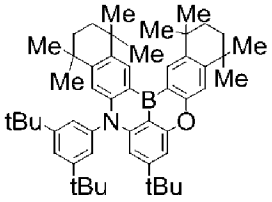
【0157】



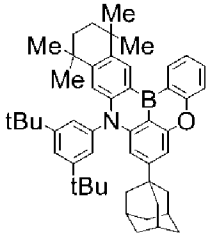
(1-621)



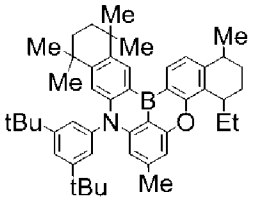
(1-622)



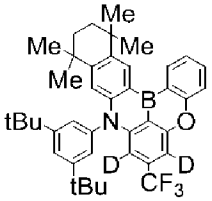
(1-623)



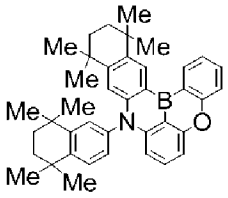
(1-624)



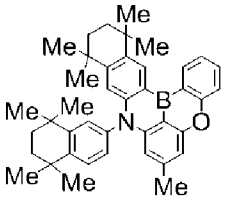
(1-625)



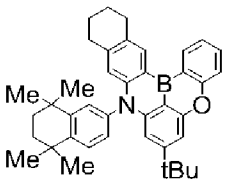
(1-626)



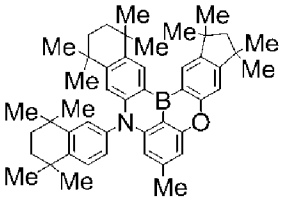
(1-627)



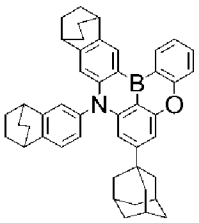
(1-628)



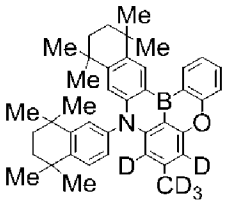
(1-629)



(1-630)

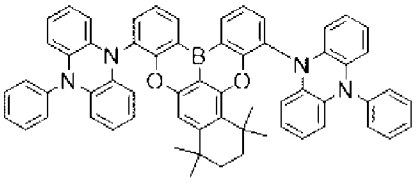


(1-631)

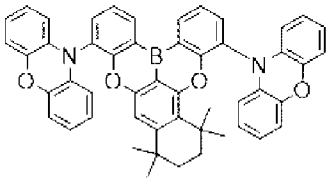


(1-632)

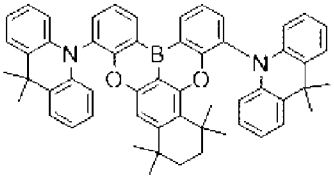
【0158】



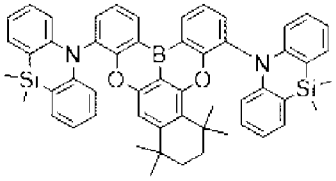
(1-1001)



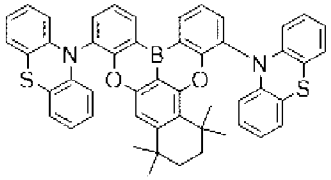
(1-1002)



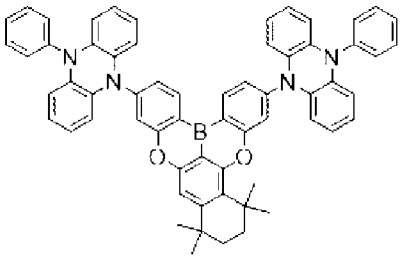
(1-1003)



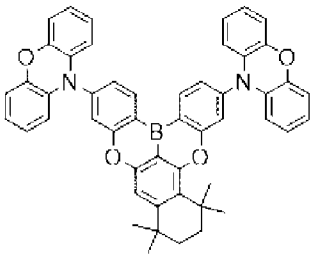
(1-1004)



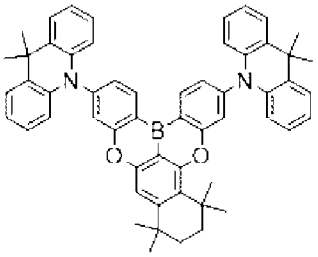
(1-1005)



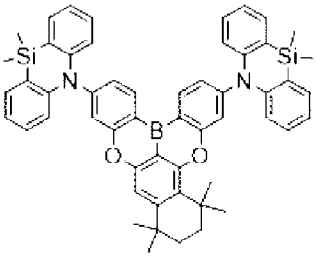
(1-1011)



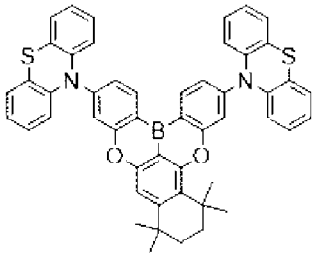
(1-1012)



(1-1013)

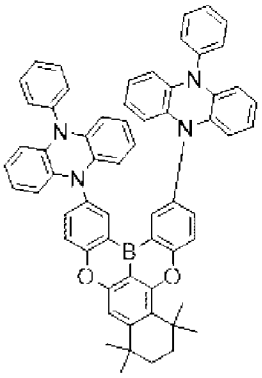


(1-1014)

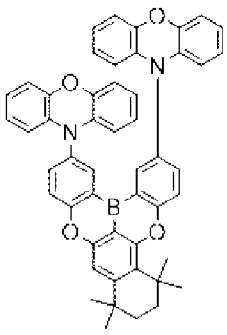


(1-1015)

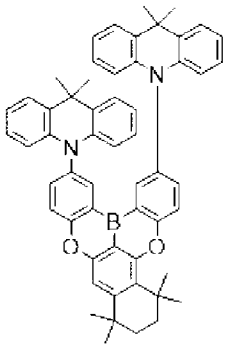
【0159】



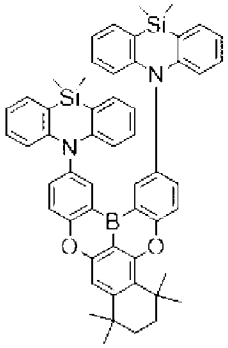
(1-1021)



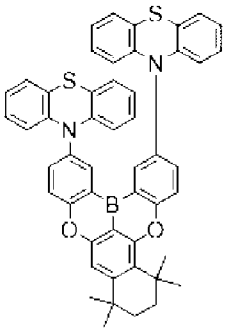
(1-1022)



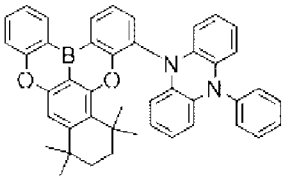
(1-1023)



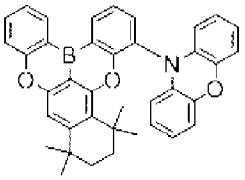
(1-1024)



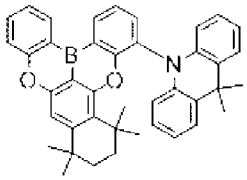
(1-1025)



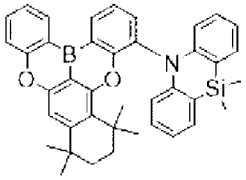
(1-1031)



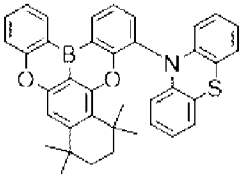
(1-1032)



(1-1033)

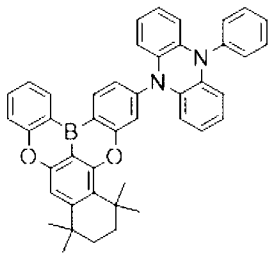


(1-1034)

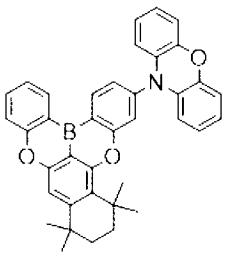


(1-1035)

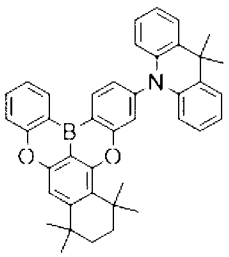
【0160】



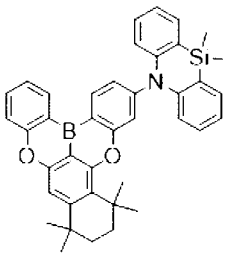
(1-1041)



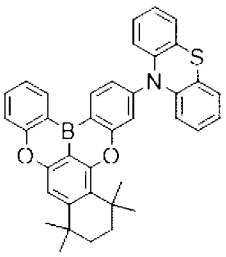
(1-1042)



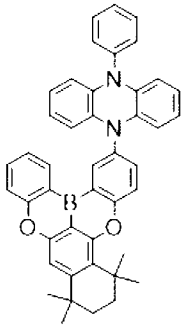
(1-1043)



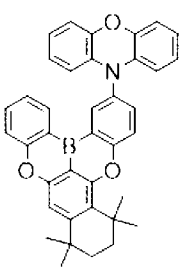
(1-1044)



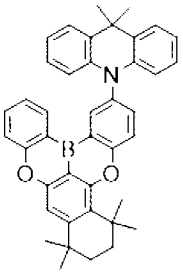
(1-1045)



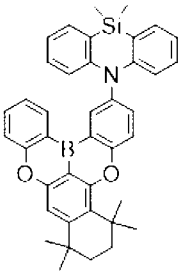
(1-1051)



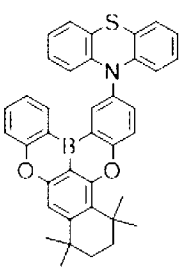
(1-1052)



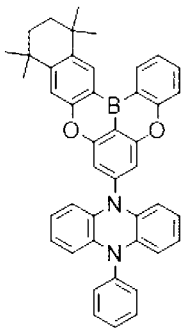
(1-1053)



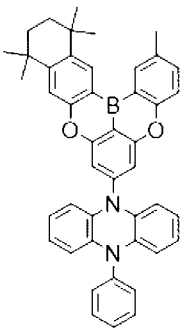
(1-1054)



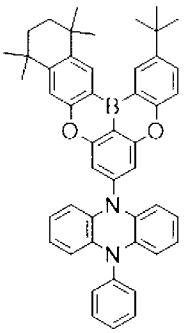
(1-1055)



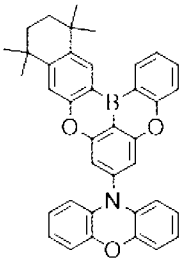
(1-1061)



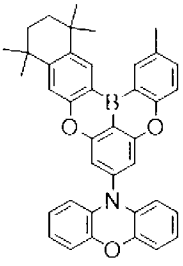
(1-1062)



(1-1063)

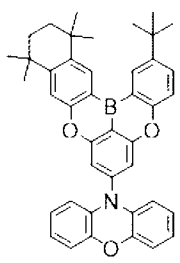


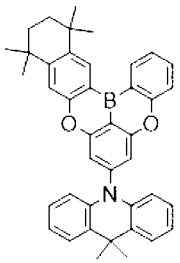
(1-1064)

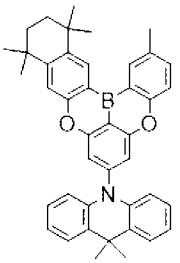


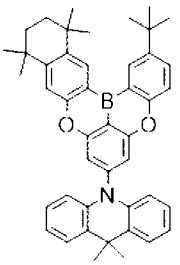
(1-1065)

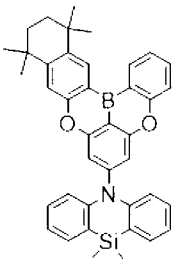
【0161】

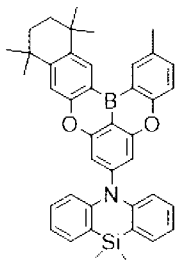

(1-1066)

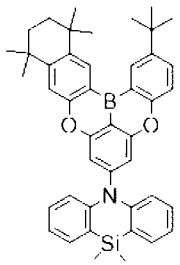

(1-1067)

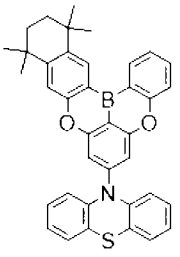

(1-1068)

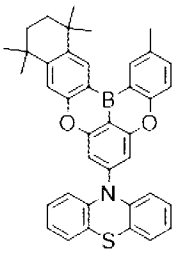

(1-1069)

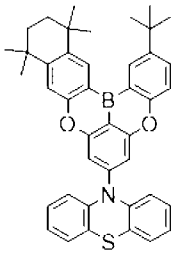

(1-1070)

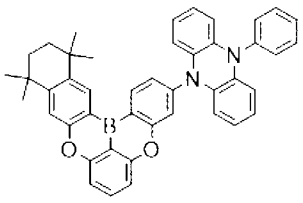

(1-1071)

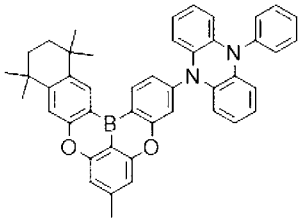

(1-1072)

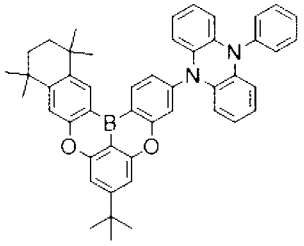

(1-1073)

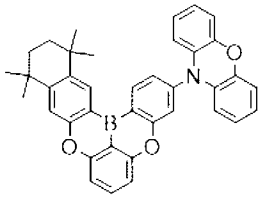

(1-1074)

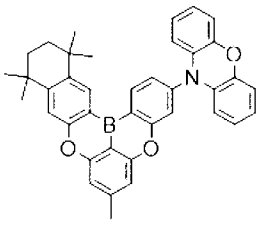

(1-1075)

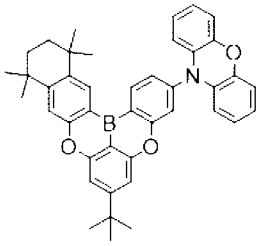

(1-1081)


(1-1082)

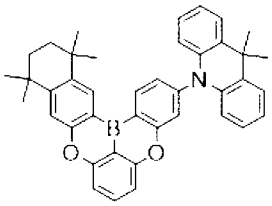

(1-1083)


(1-1084)

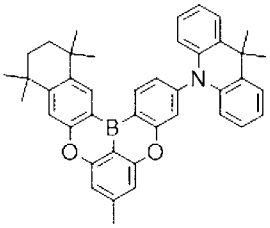

(1-1085)


(1-1086)

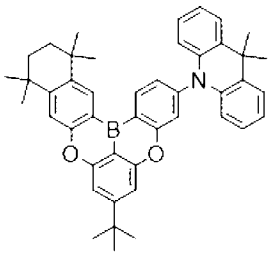
【0162】



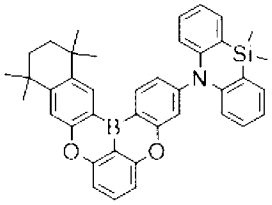
(1-1087)



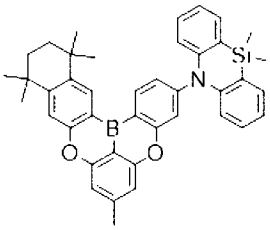
(1-1088)



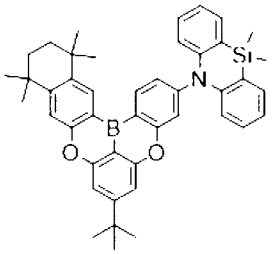
(1-1089)



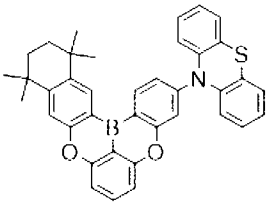
(1-1090)



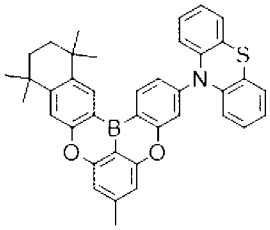
(1-1091)



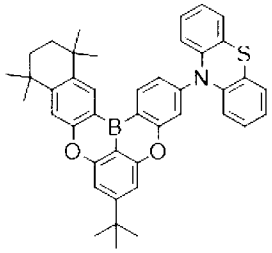
(1-1092)



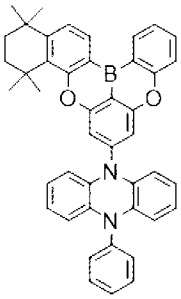
(1-1093)



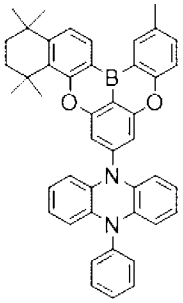
(1-1094)



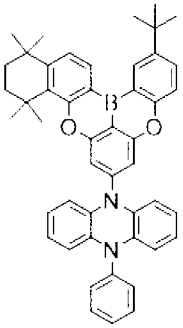
(1-1095)



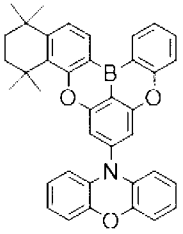
(1-1101)



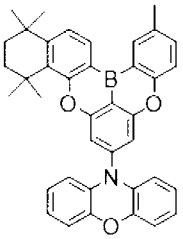
(1-1102)



(1-1103)

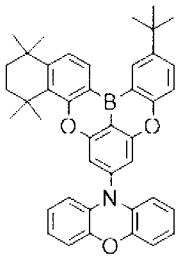


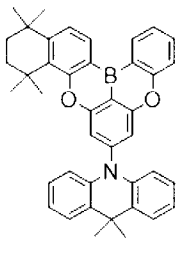
(1-1104)

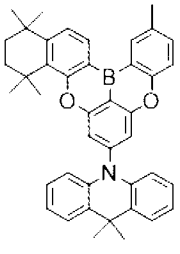


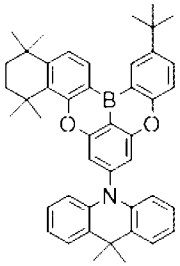
(1-1105)

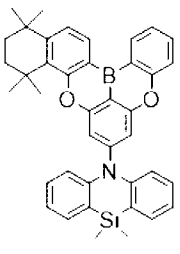
【0163】

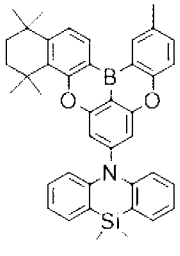

(1-1106)

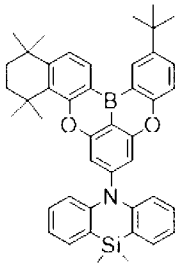

(1-1107)

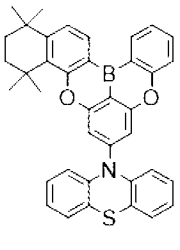

(1-1108)

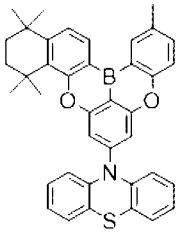

(1-1109)

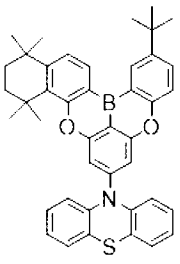

(1-1110)

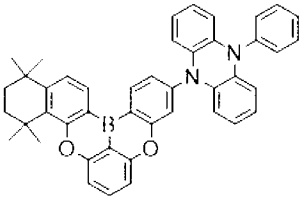

(1-1111)

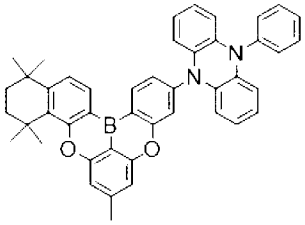

(1-1112)

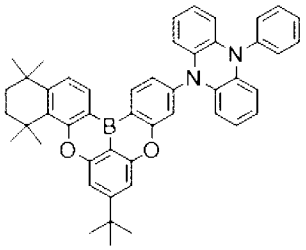

(1-1113)

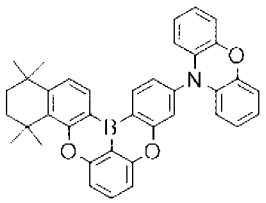

(1-1114)

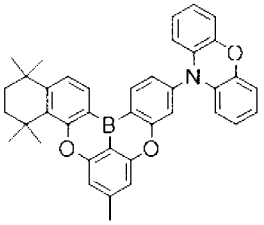

(1-1115)

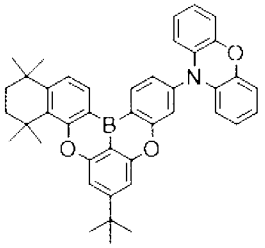

(1-1121)


(1-1122)

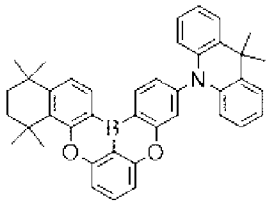

(1-1123)


(1-1124)

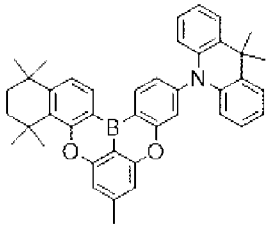

(1-1125)


(1-1126)

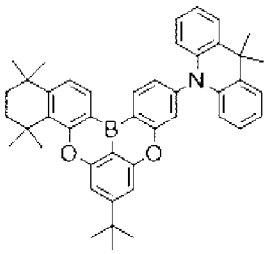
【0164】



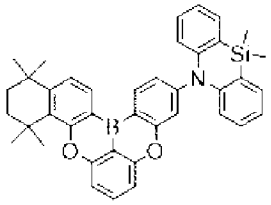
(1-1127)



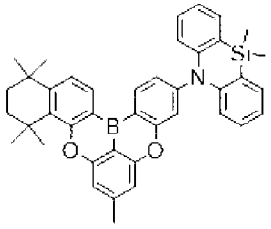
(1-1128)



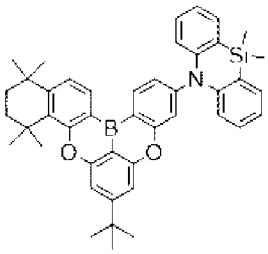
(1-1129)



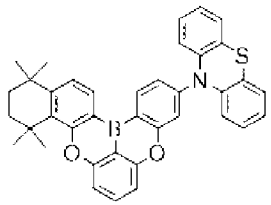
(1-1130)



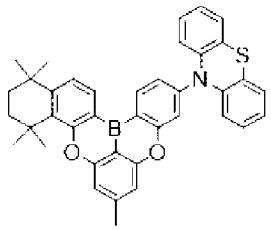
(1-1131)



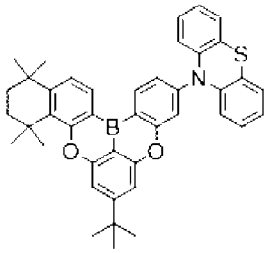
(1-1132)



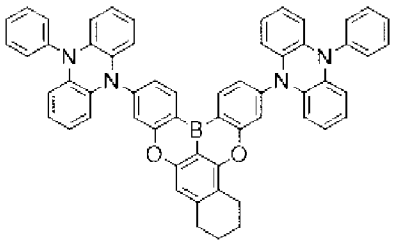
(1-1133)



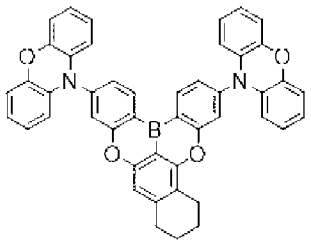
(1-1134)



(1-1135)

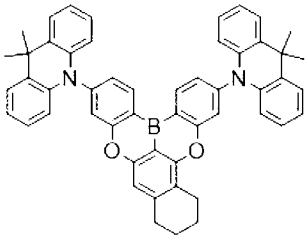


(1-1141)

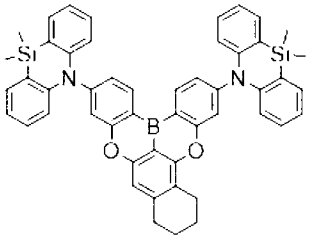


(1-1142)

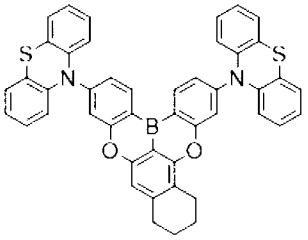
【0165】



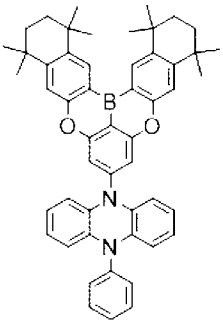
(1-1143)



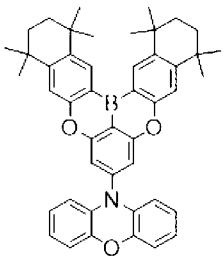
(1-1144)



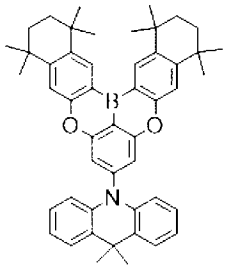
(1-1145)



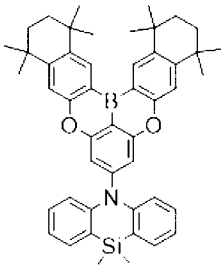
(1-1151)



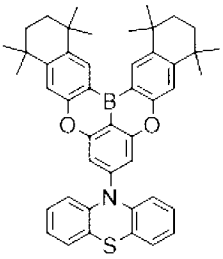
(1-1152)



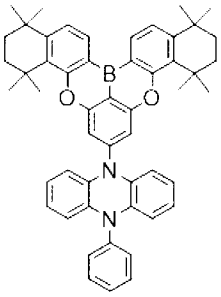
(1-1153)



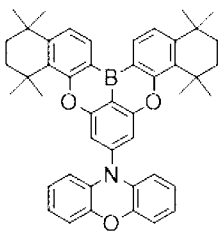
(1-1154)



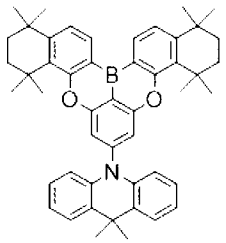
(1-1155)



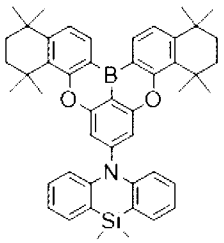
(1-1161)



(1-1162)

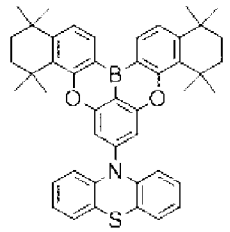


(1-1163)

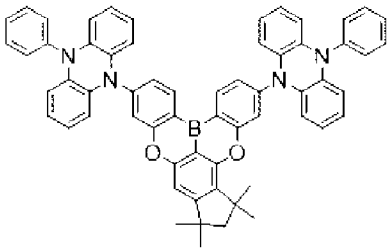


(1-1164)

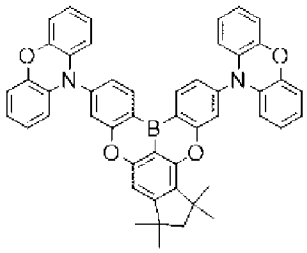
【0166】



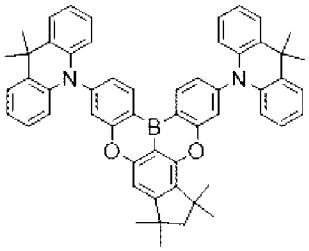
(1-1165)



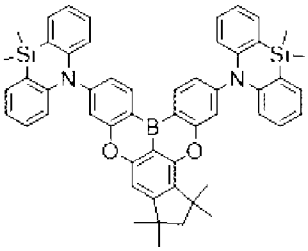
(1-1171)



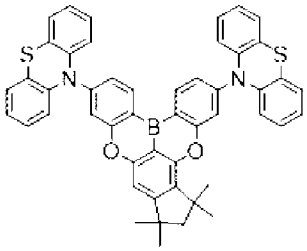
(1-1172)



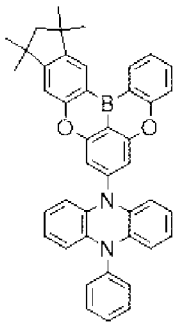
(1-1173)



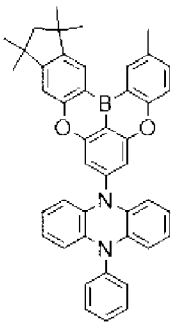
(1-1174)



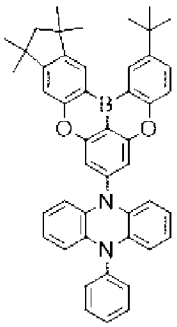
(1-1175)



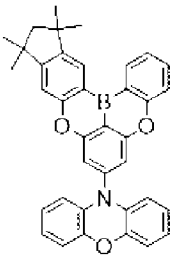
(1-1181)



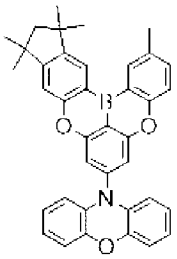
(1-1182)



(1-1183)

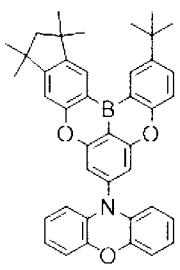


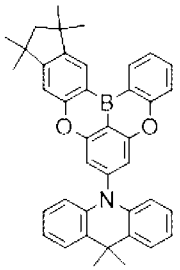
(1-1184)

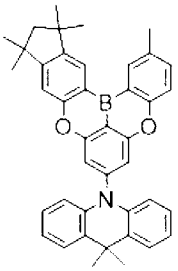


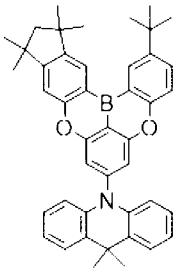
(1-1185)

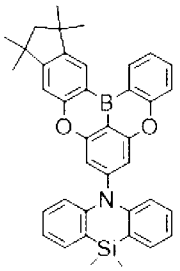
【0167】

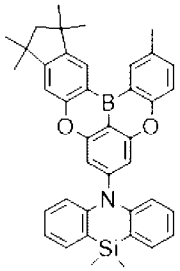

(1-1186)

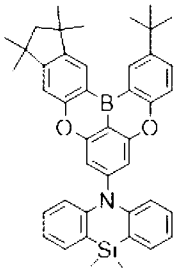

(1-1187)

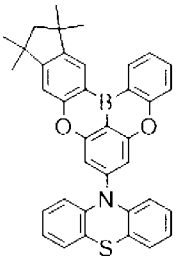

(1-1188)

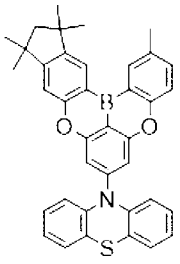

(1-1189)

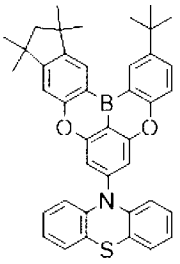

(1-1190)

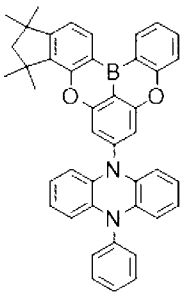

(1-1191)

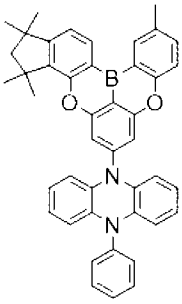

(1-1192)

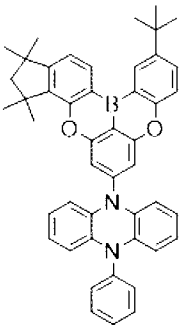

(1-1193)

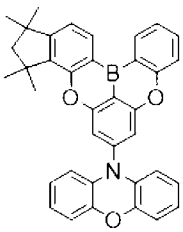

(1-1194)

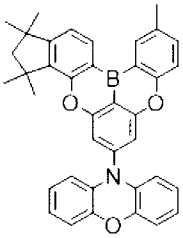

(1-1195)

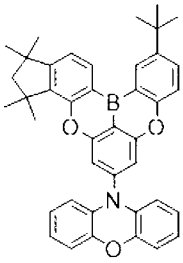

(1-1201)

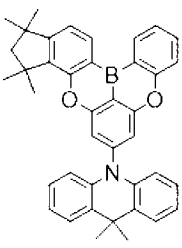

(1-1202)

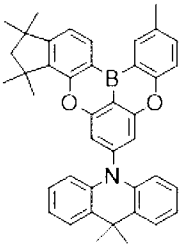

(1-1203)

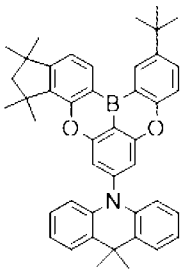

(1-1204)

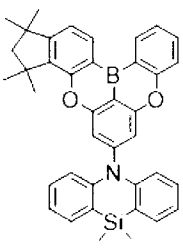

(1-1205)


(1-1206)

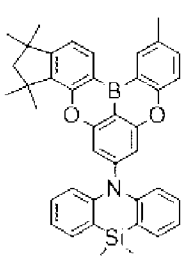

(1-1207)

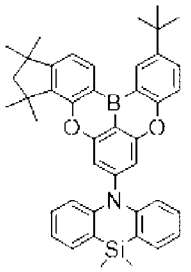

(1-1208)

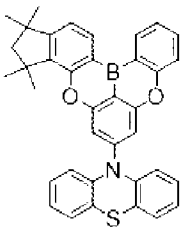

(1-1209)

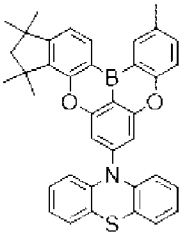

(1-1210)

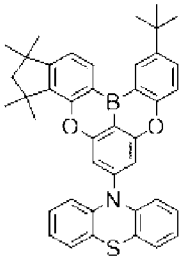
【0168】

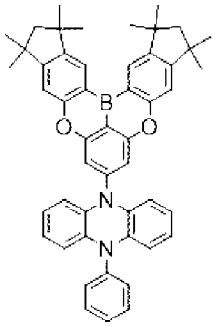

(1-1211)

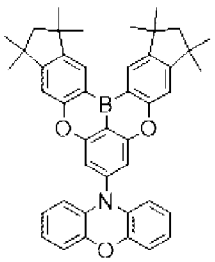

(1-1212)

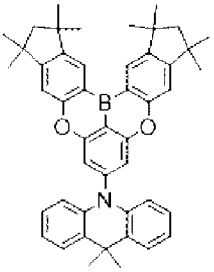

(1-1213)

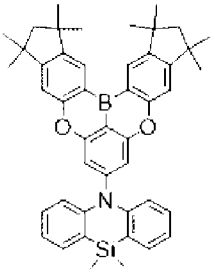

(1-1214)

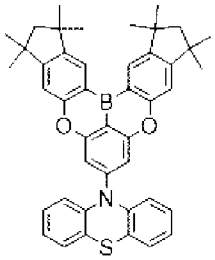

(1-1215)

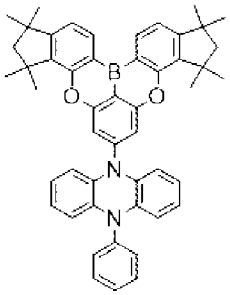

(1-1221)

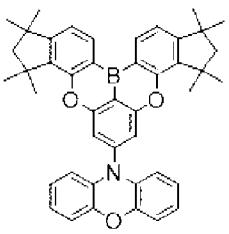

(1-1222)

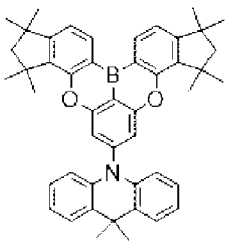

(1-1223)

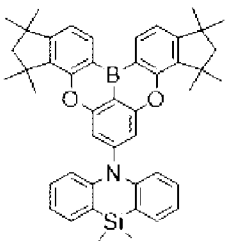

(1-1224)


(1-1225)

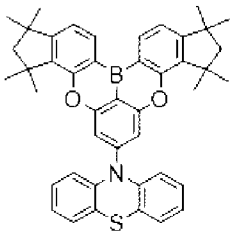

(1-1231)


(1-1232)

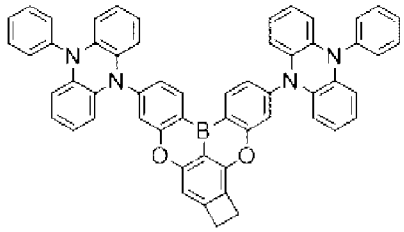

(1-1233)


(1-1234)

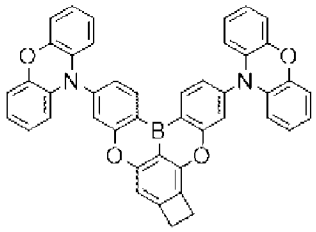
【0169】



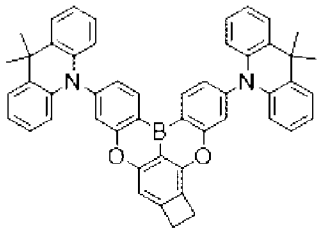
(1-1235)



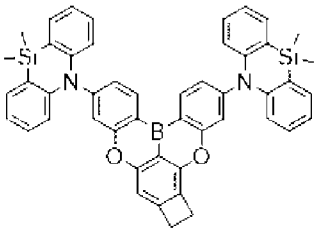
(1-1241)



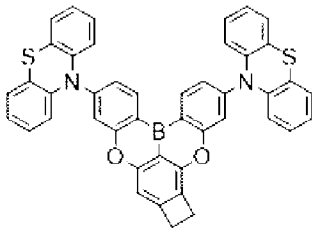
(1-1242)



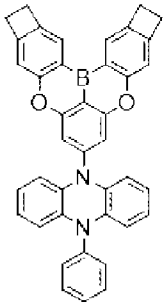
(1-1243)



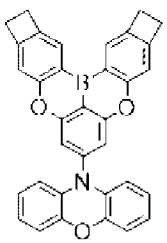
(1-1244)



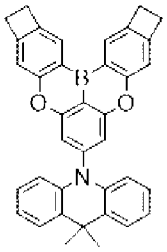
(1-1245)



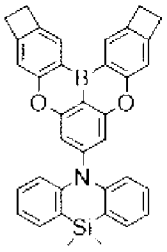
(1-1251)



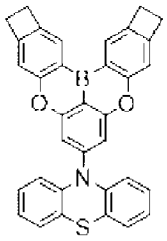
(1-1252)



(1-1253)

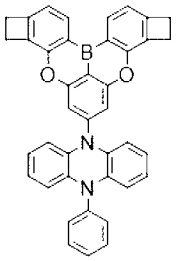


(1-1254)

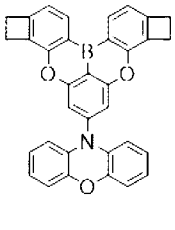


(1-1255)

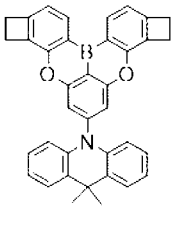
【0170】



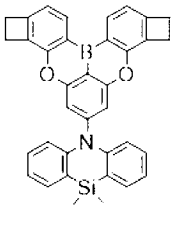
(1-1261)



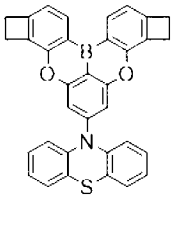
(1-1262)



(1-1263)

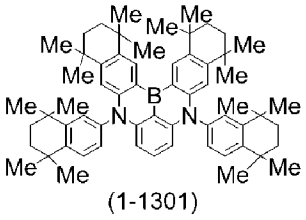


(1-1264)

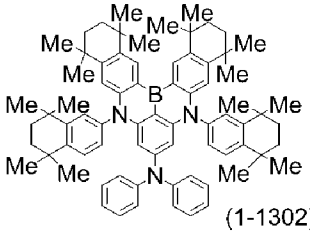


(1-1265)

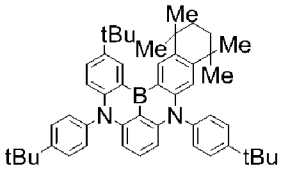
【0171】



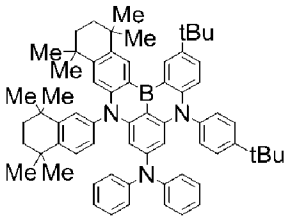
(1-1301)



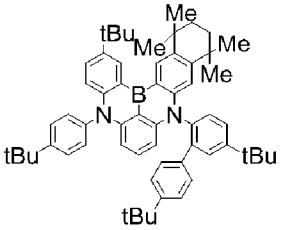
(1-1302)



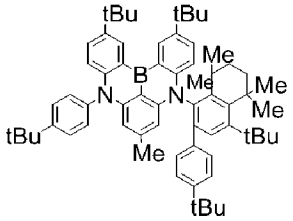
(1-1303)



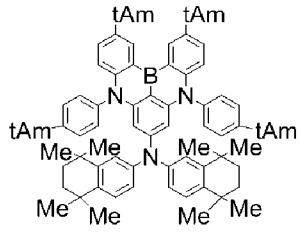
(1-1304)



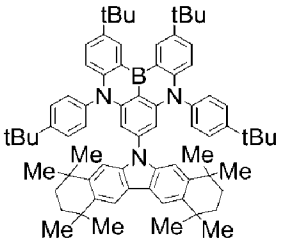
(1-1305)



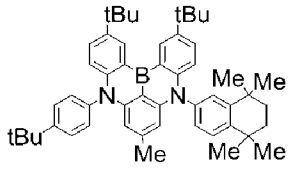
(1-1306)



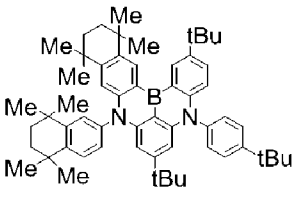
(1-1307)



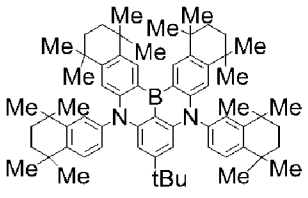
(1-1308)



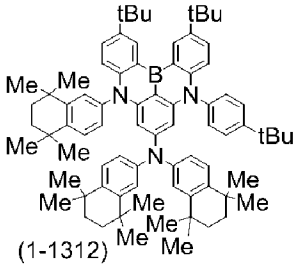
(1-1309)



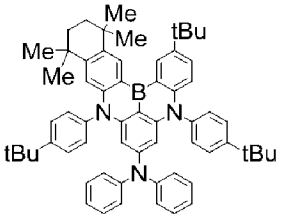
(1-1310)



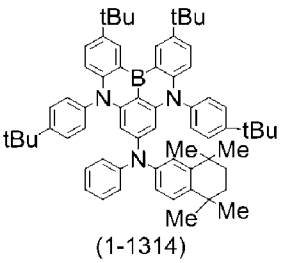
(1-1311)



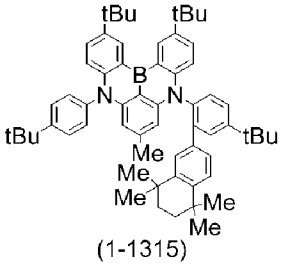
(1-1312)



(1-1313)

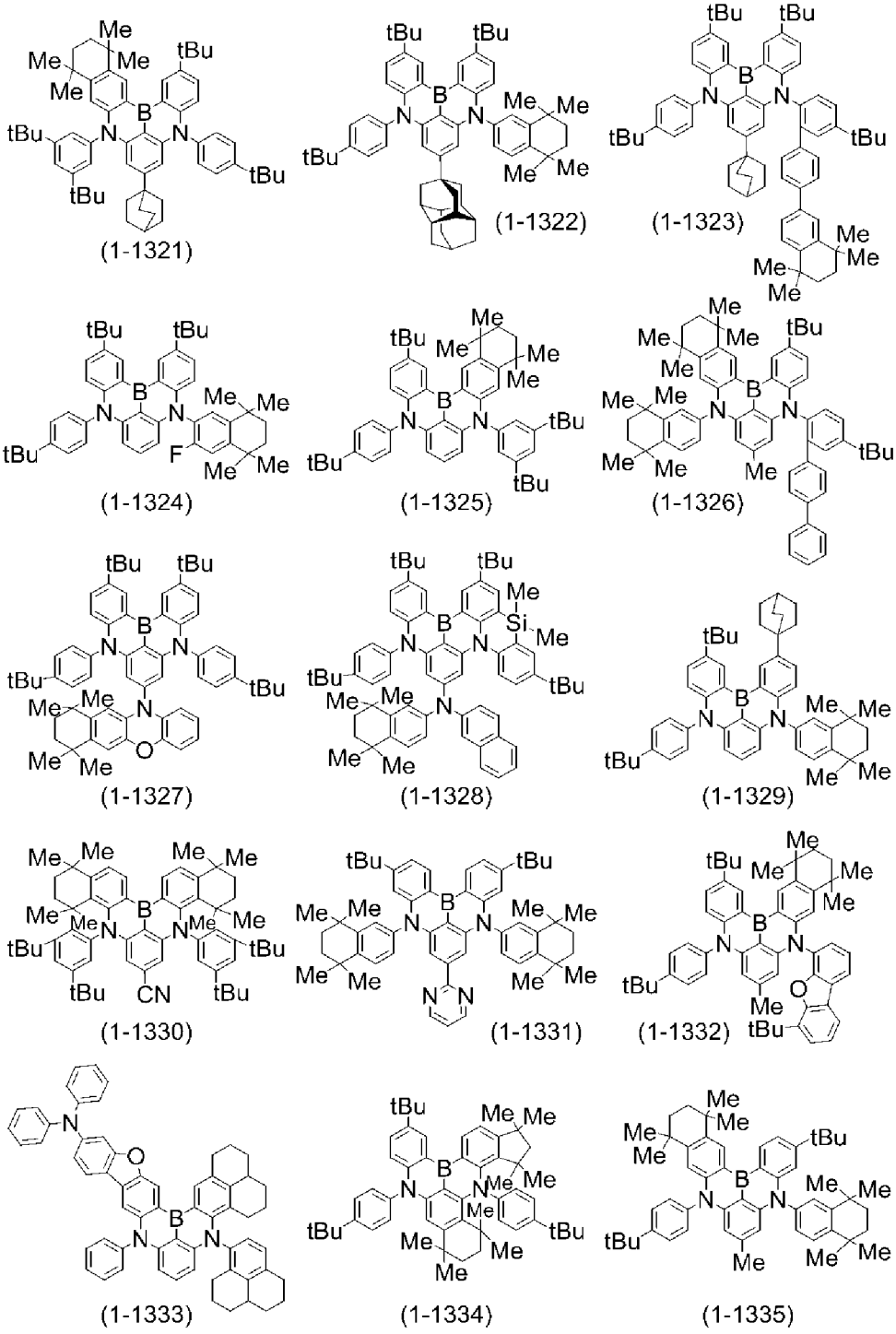


(1-1314)

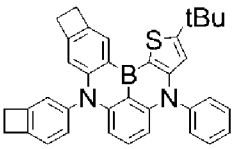


(1-1315)

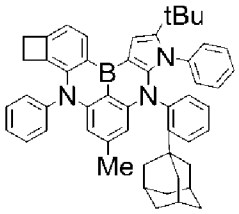
【0172】


(1-1321)
(1-1322)
(1-1323)
(1-1324)
(1-1325)
(1-1326)
(1-1327)
(1-1328)
(1-1329)
(1-1330)
(1-1331)
(1-1332)
(1-1333)
(1-1334)
(1-1335)

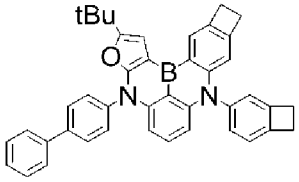
【0173】



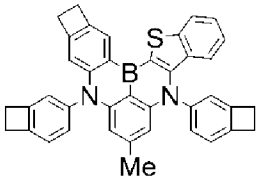
(1-1401)



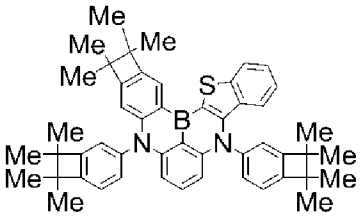
(1-1402)



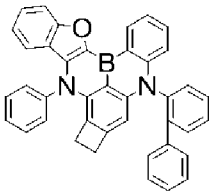
(1-1403)



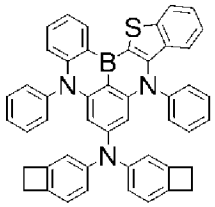
(1-1404)



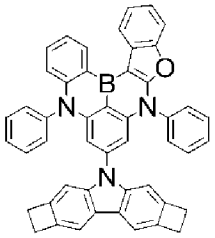
(1-1405)



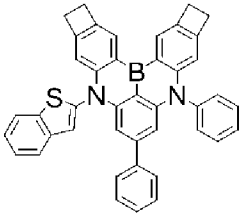
(1-1406)



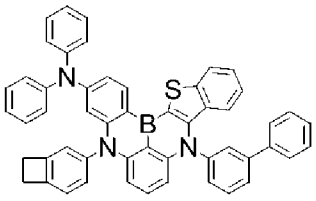
(1-1407)



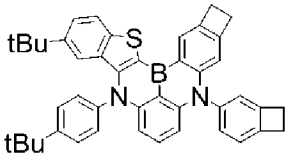
(1-1408)



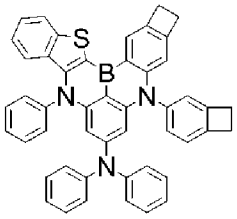
(1-1409)



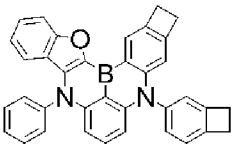
(1-1410)



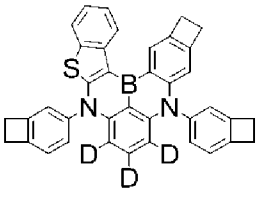
(1-1411)



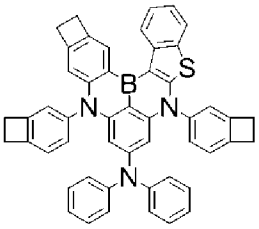
(1-1412)



(1-1413)

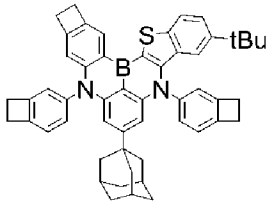


(1-1414)

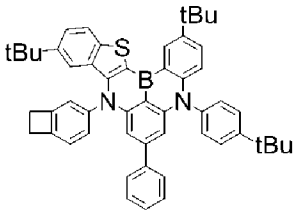


(1-1415)

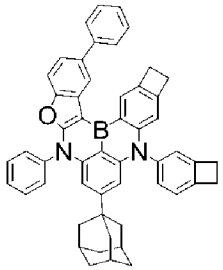
【0174】



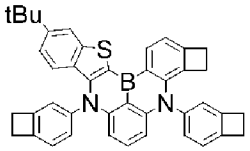
(1-1421)



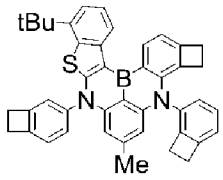
(1-1422)



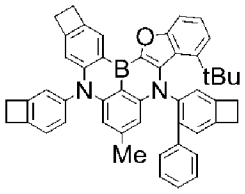
(1-1423)



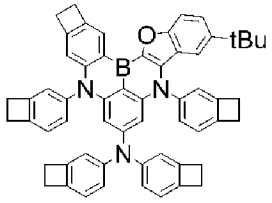
(1-1424)



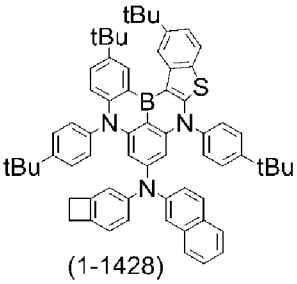
(1-1425)



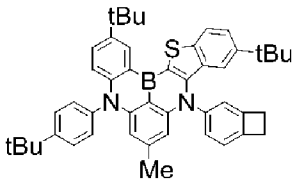
(1-1426)



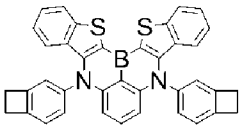
(1-1427)



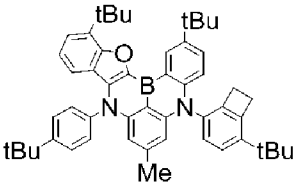
(1-1428)



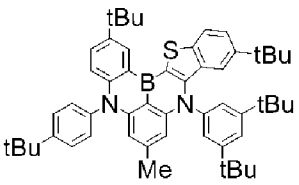
(1-1429)



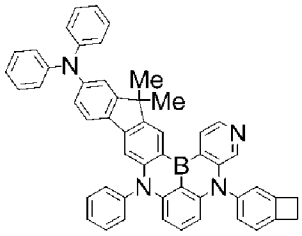
(1-1430)



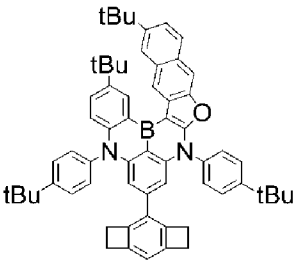
(1-1431)



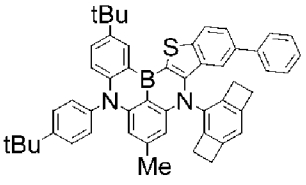
(1-1432)



(1-1433)

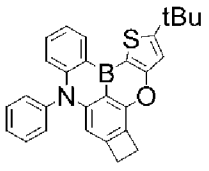


(1-1434)

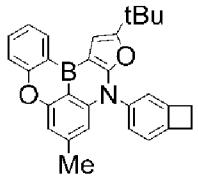


(1-1435)

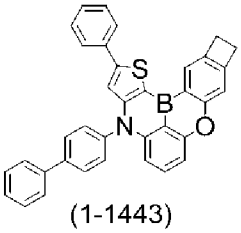
【0175】



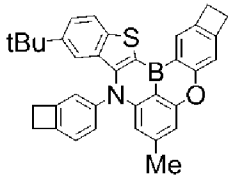
(1-1441)



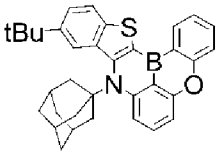
(1-1442)



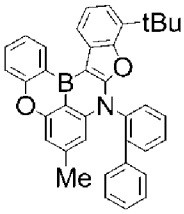
(1-1443)



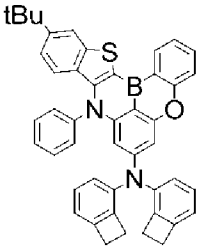
(1-1444)



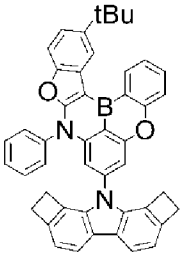
(1-1445)



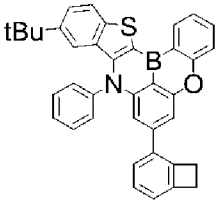
(1-1446)



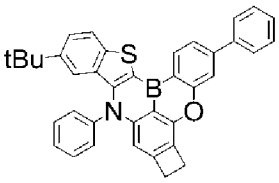
(1-1447)



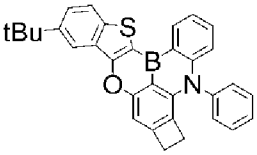
(1-1448)



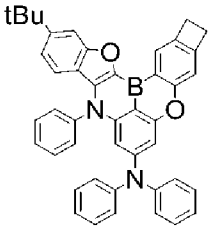
(1-1449)



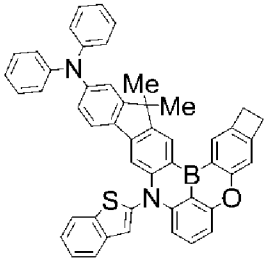
(1-1450)



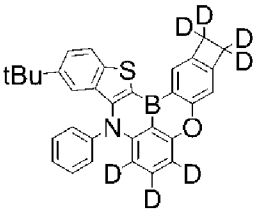
(1-1451)



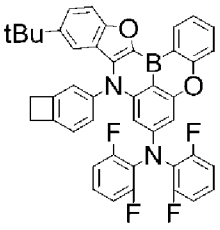
(1-1452)



(1-1453)

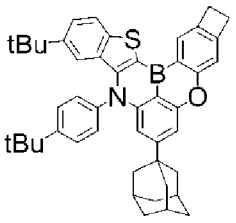


(1-1454)

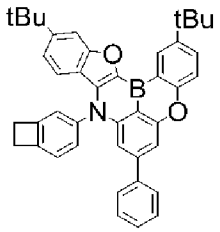


(1-1455)

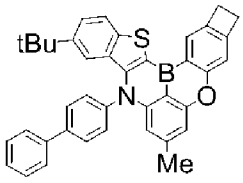
【0176】



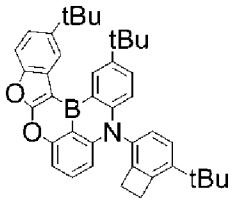
(1-1461)



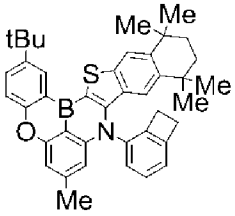
(1-1462)



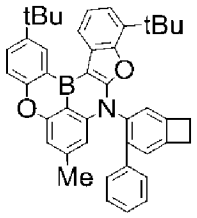
(1-1463)



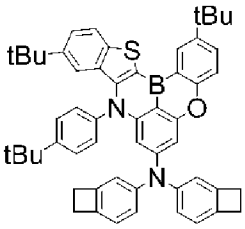
(1-1464)



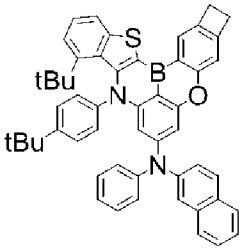
(1-1465)



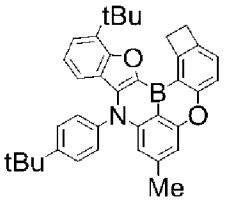
(1-1466)



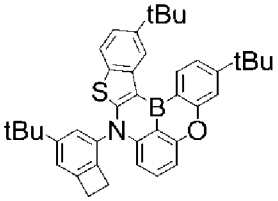
(1-1467)



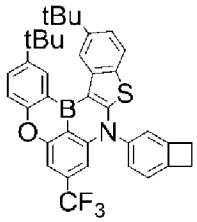
(1-1468)



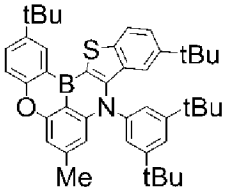
(1-1469)



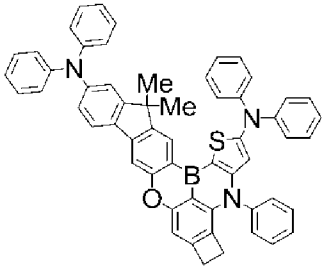
(1-1470)



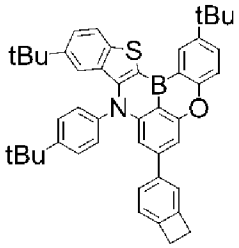
(1-1471)



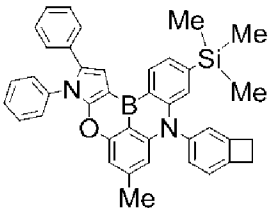
(1-1472)



(1-1473)

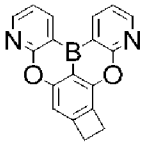


(1-1474)

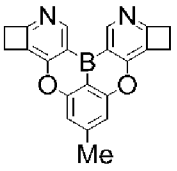


(1-1475)

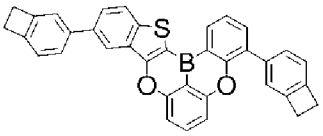
【0177】



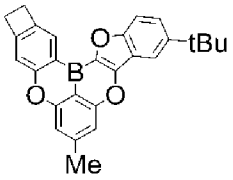
(1-1481)



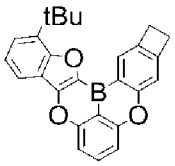
(1-1482)



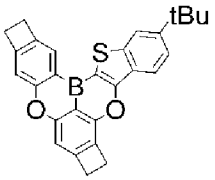
(1-1483)



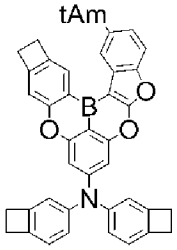
(1-1484)



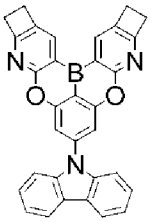
(1-1485)



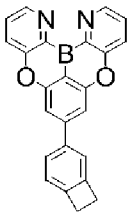
(1-1486)



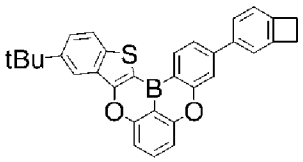
(1-1487)



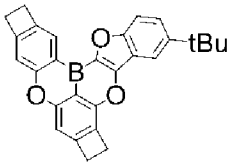
(1-1488)



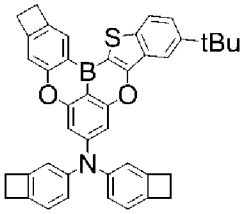
(1-1489)



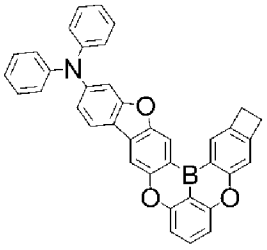
(1-1490)



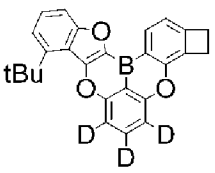
(1-1491)



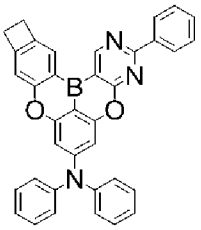
(1-1492)



(1-1493)

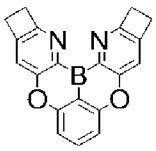


(1-1494)

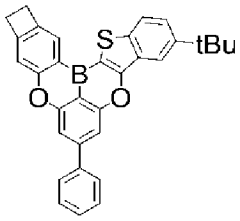


(1-1495)

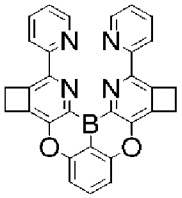
【0178】



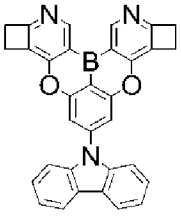
(1-1501)



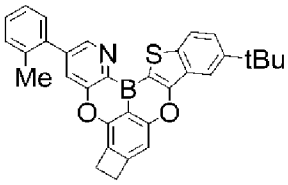
(1-1502)



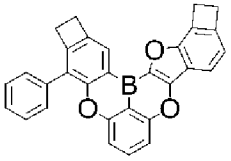
(1-1503)



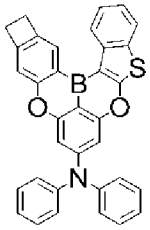
(1-1504)



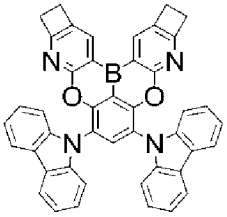
(1-1505)



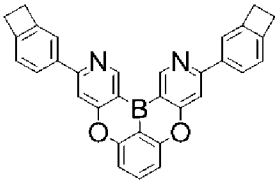
(1-1506)



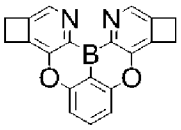
(1-1507)



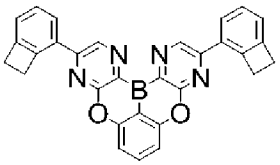
(1-1508)



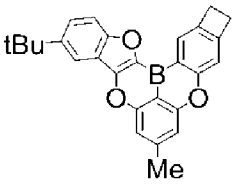
(1-1509)



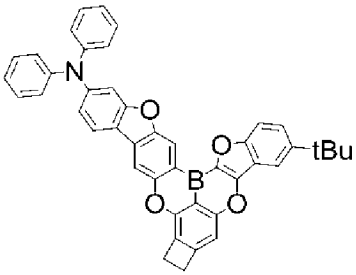
(1-1510)



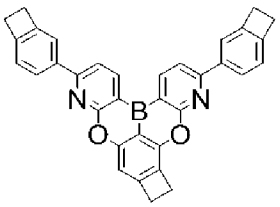
(1-1511)



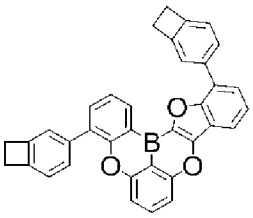
(1-1512)



(1-1513)

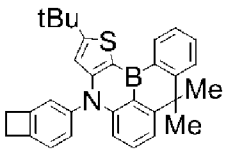


(1-1514)

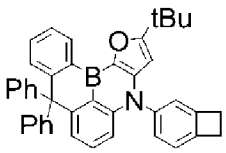


(1-1515)

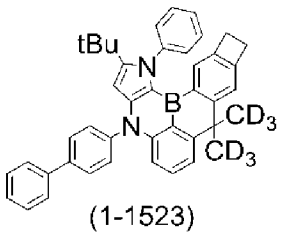
【0179】



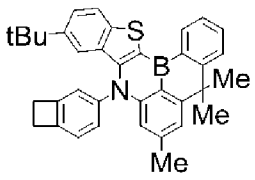
(1-1521)



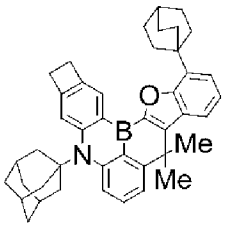
(1-1522)



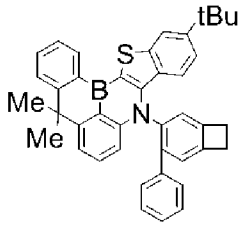
(1-1523)



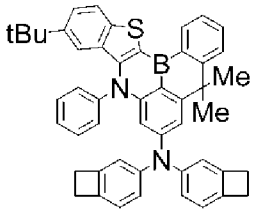
(1-1524)



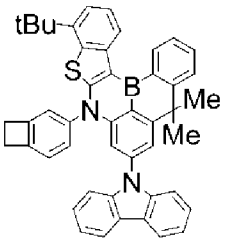
(1-1525)



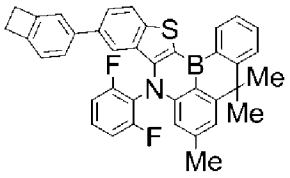
(1-1526)



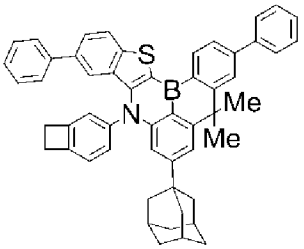
(1-1527)



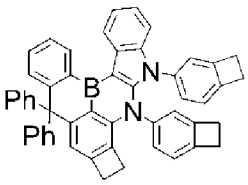
(1-1528)



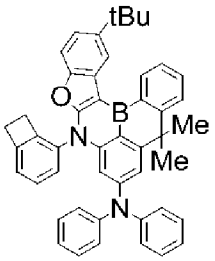
(1-1529)



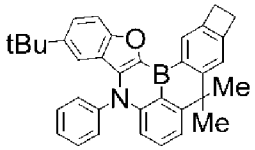
(1-1530)



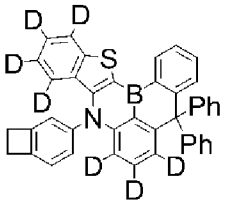
(1-1531)



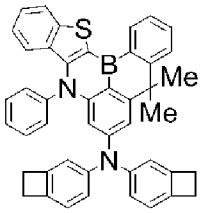
(1-1532)



(1-1533)

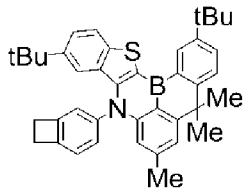


(1-1534)

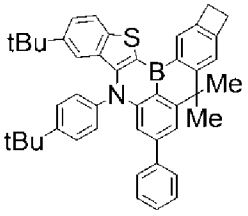


(1-1535)

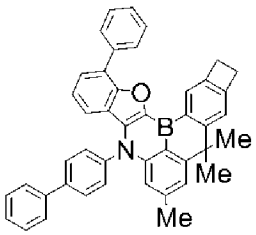
【0180】



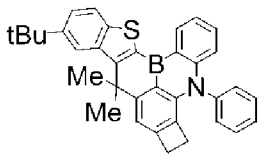
(1-1541)



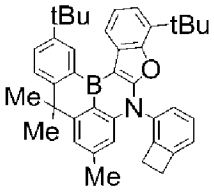
(1-1542)



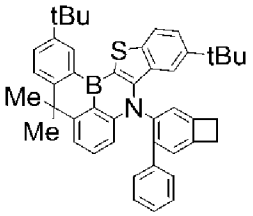
(1-1543)



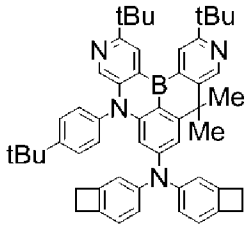
(1-1544)



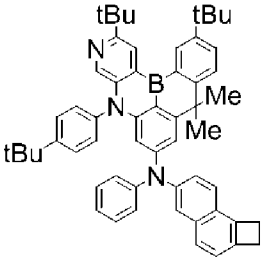
(1-1545)



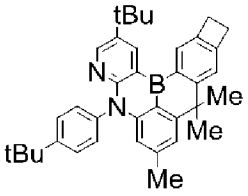
(1-1546)



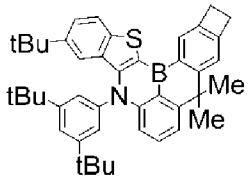
(1-1547)



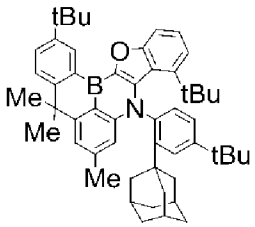
(1-1548)



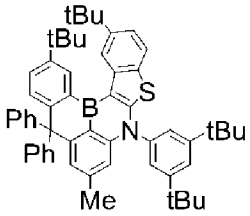
(1-1549)



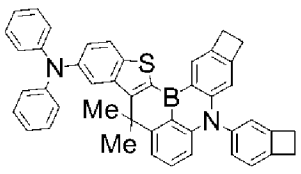
(1-1550)



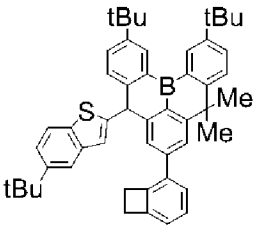
(1-1551)



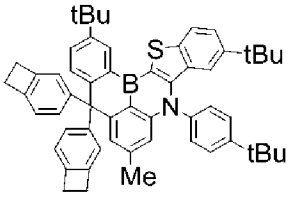
(1-1552)



(1-1553)

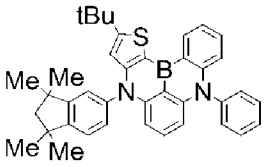


(1-1554)

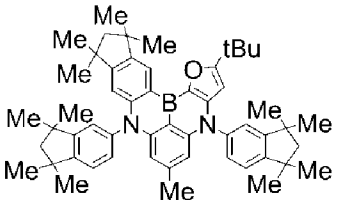


(1-1555)

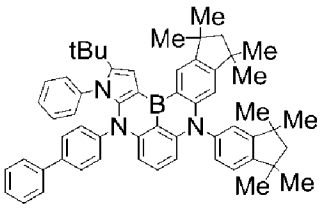
【0181】



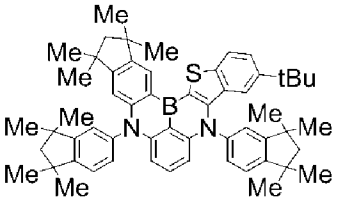
(1-1601)



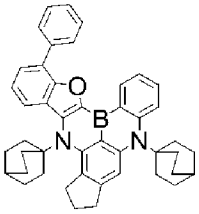
(1-1602)



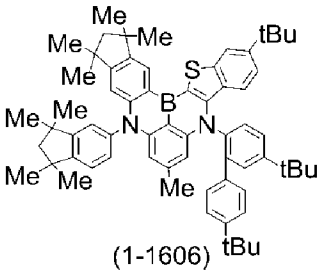
(1-1603)



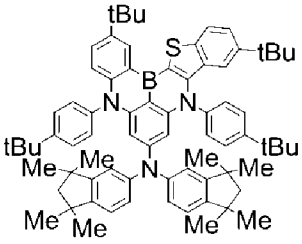
(1-1604)



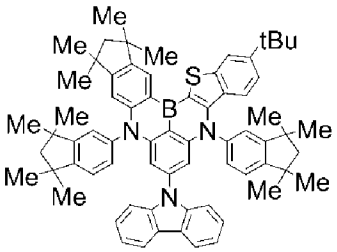
(1-1605)



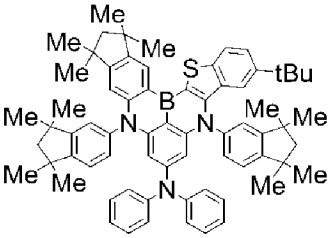
(1-1606)



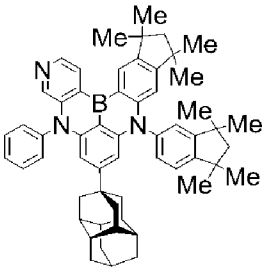
(1-1607)



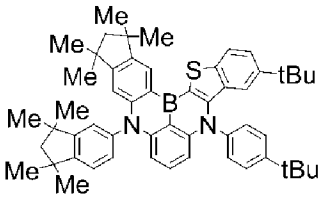
(1-1608)



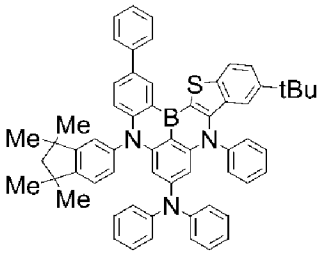
(1-1609)



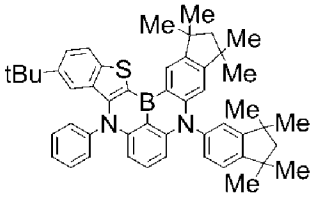
(1-1610)



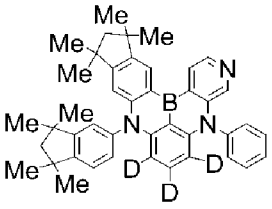
(1-1611)



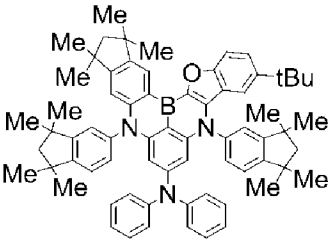
(1-1612)



(1-1613)

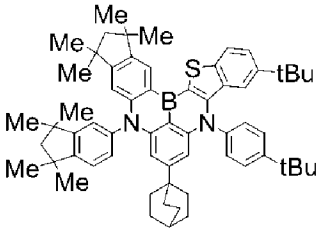


(1-1614)

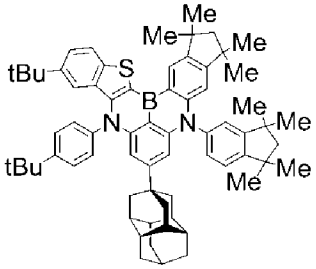


(1-1615)

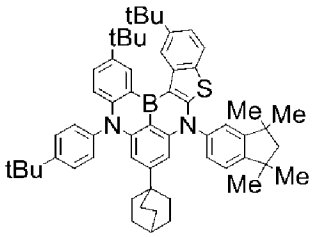
【0182】



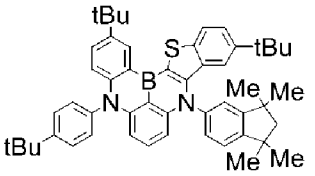
(1-1621)



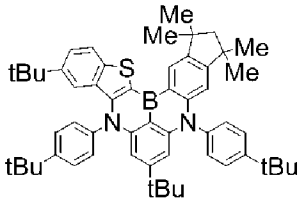
(1-1622)



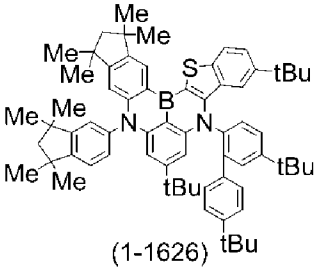
(1-1623)



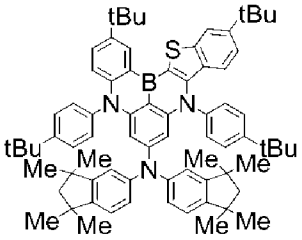
(1-1624)



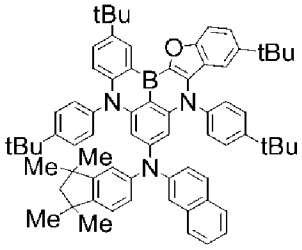
(1-1625)



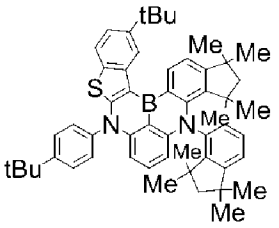
(1-1626)



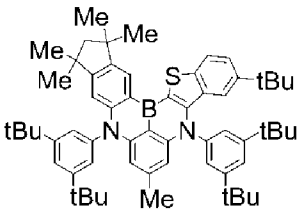
(1-1627)



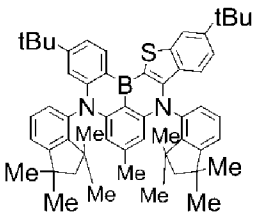
(1-1628)



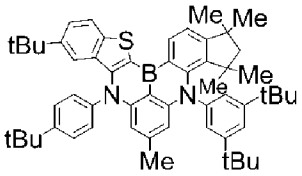
(1-1629)



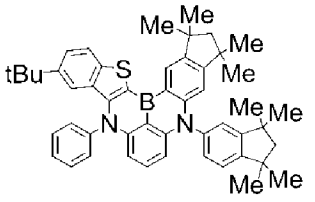
(1-1630)



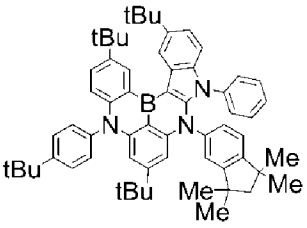
(1-1631)



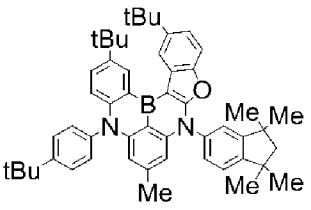
(1-1632)



(1-1633)

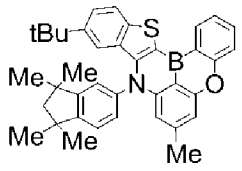


(1-1634)

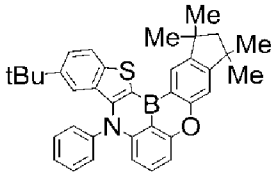


(1-1635)

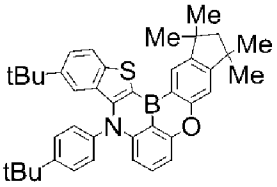
【0183】



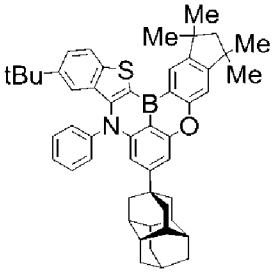
(1-1641)



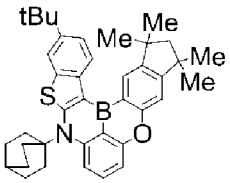
(1-1642)



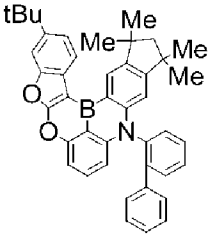
(1-1643)



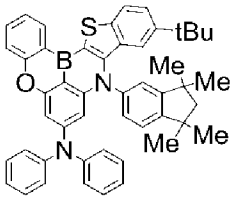
(1-1644)



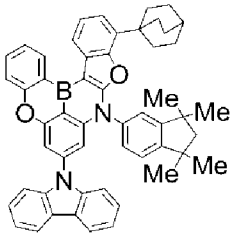
(1-1645)



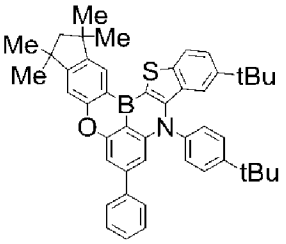
(1-1646)



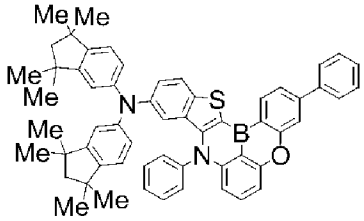
(1-1647)



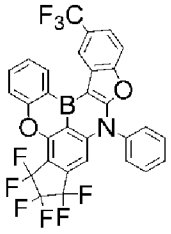
(1-1648)



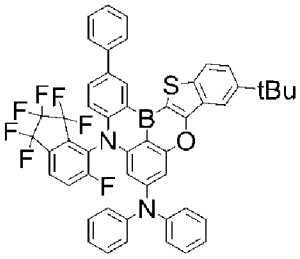
(1-1649)



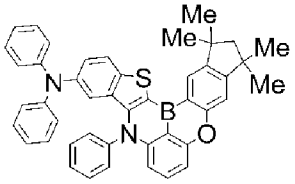
(1-1650)



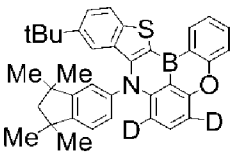
(1-1651)



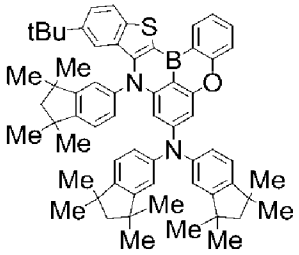
(1-1652)



(1-1653)

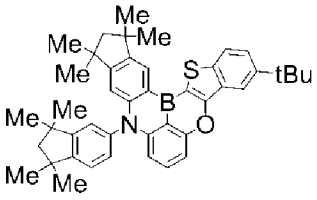


(1-1654)

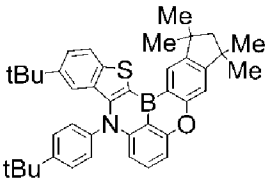


(1-1655)

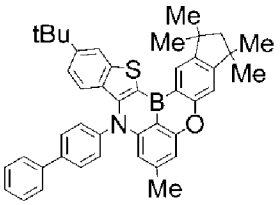
【0184】



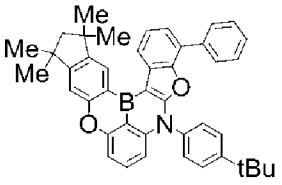
(1-1661)



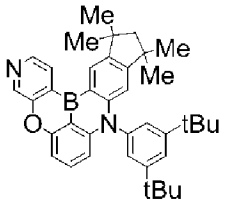
(1-1662)



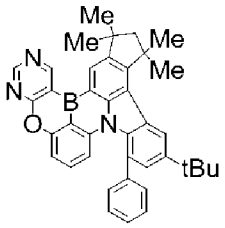
(1-1663)



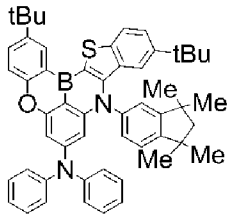
(1-1664)



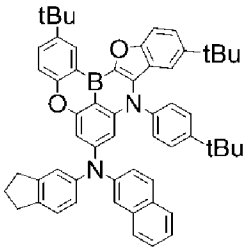
(1-1665)



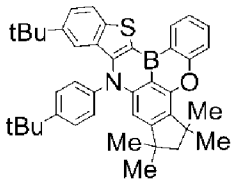
(1-1666)



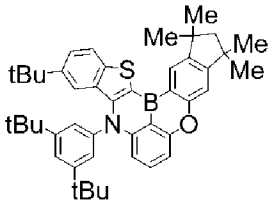
(1-1667)



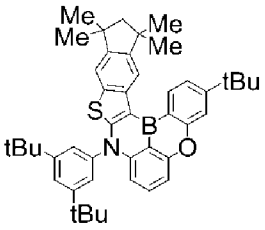
(1-1668)



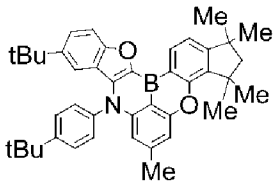
(1-1669)



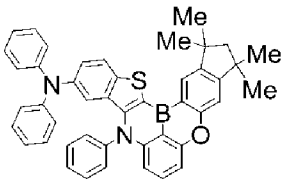
(1-1670)



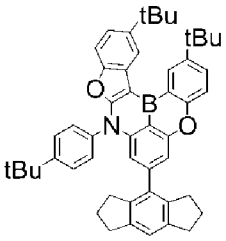
(1-1671)



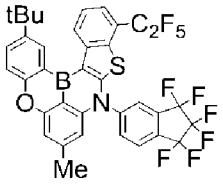
(1-1672)



(1-1673)

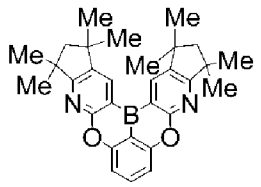


(1-1674)

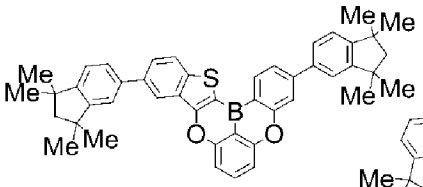


(1-1675)

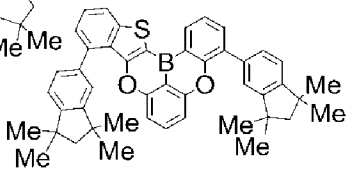
【0185】



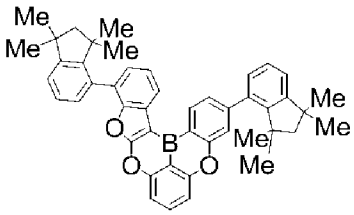
(1-1681)



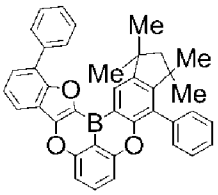
(1-1682)



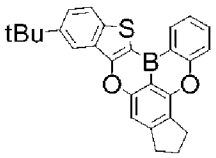
(1-1683)



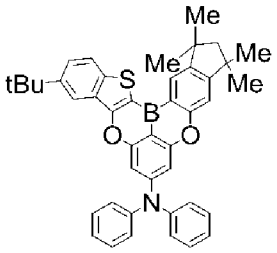
(1-1684)



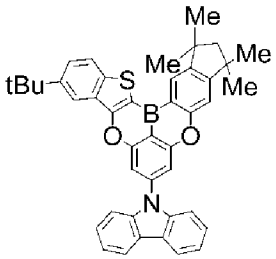
(1-1685)



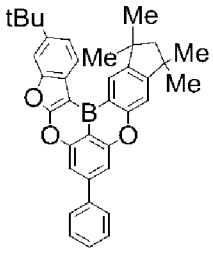
(1-1686)



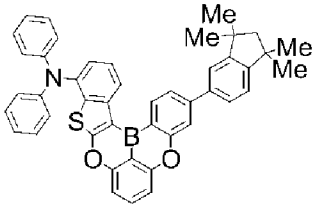
(1-1687)



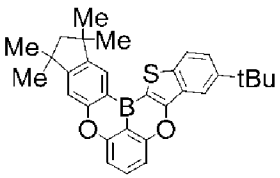
(1-1688)



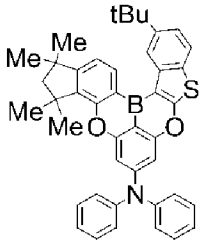
(1-1689)



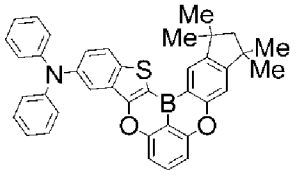
(1-1690)



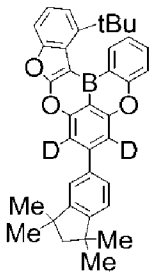
(1-1691)



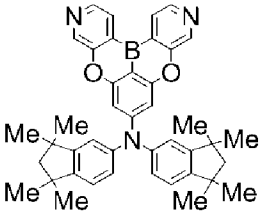
(1-1692)



(1-1693)

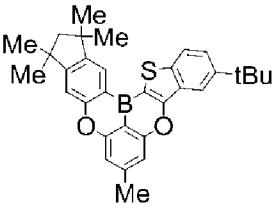


(1-1694)

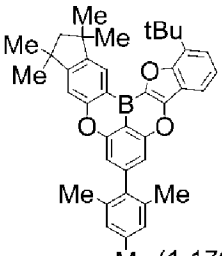


(1-1695)

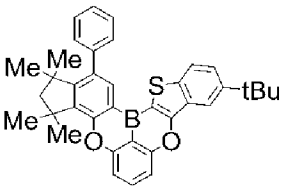
【0186】



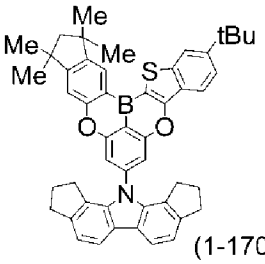
(1-1701)



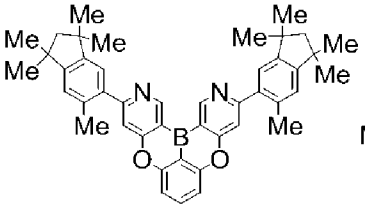
(1-1702)



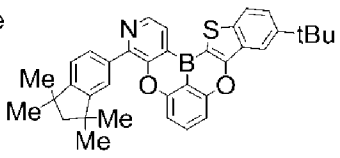
(1-1703)



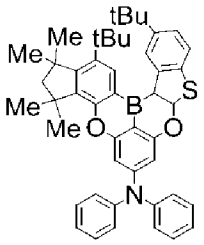
(1-1704)



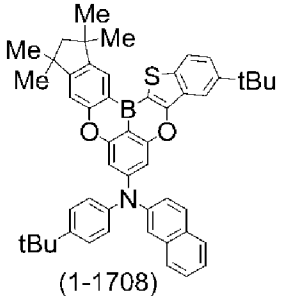
(1-1705)



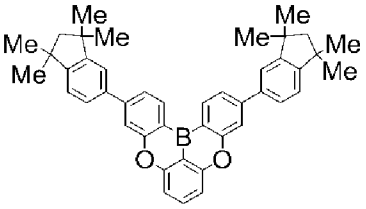
(1-1706)



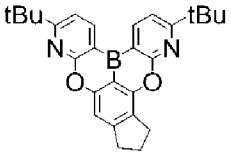
(1-1707)



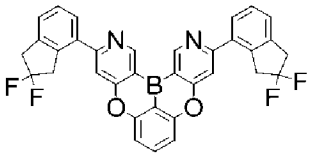
(1-1708)



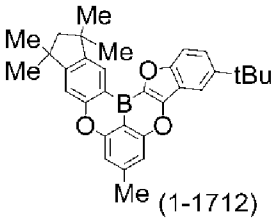
(1-1709)



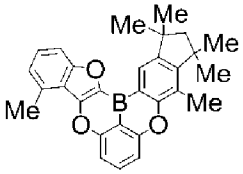
(1-1710)



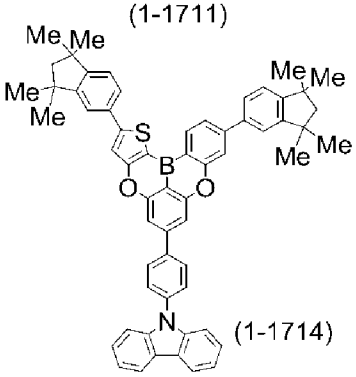
(1-1711)



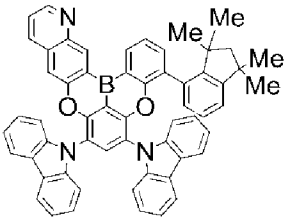
(1-1712)



(1-1713)

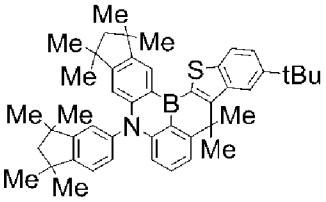


(1-1714)

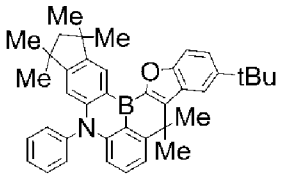


(1-1715)

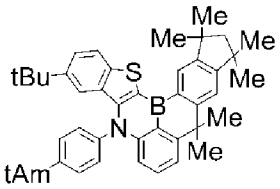
【0187】



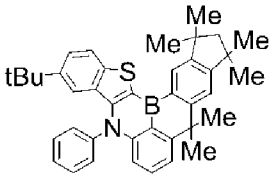
(1-1721)



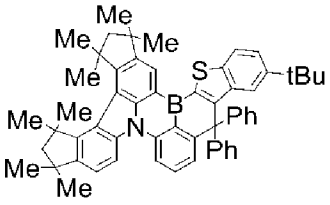
(1-1722)



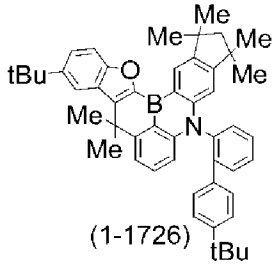
(1-1723)



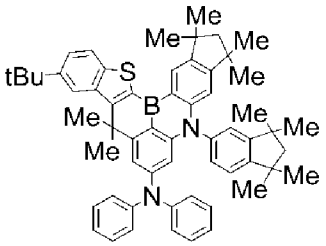
(1-1724)



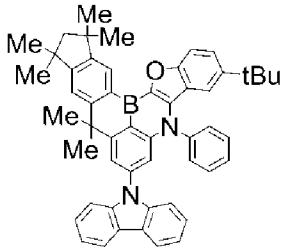
(1-1725)



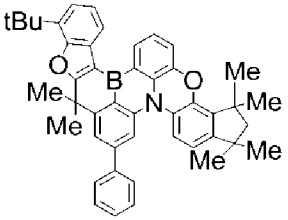
(1-1726)



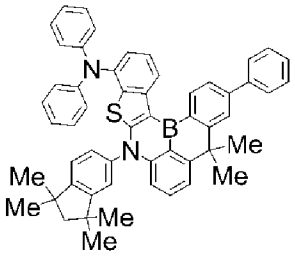
(1-1727)



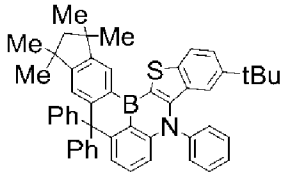
(1-1728)



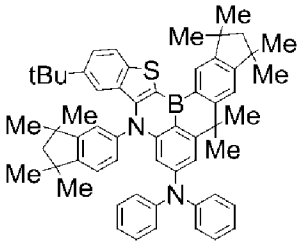
(1-1729)



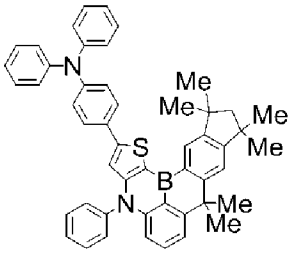
(1-1730)



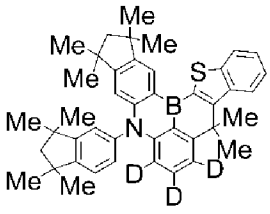
(1-1731)



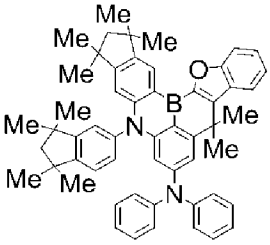
(1-1732)



(1-1733)

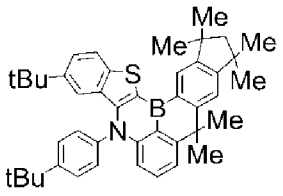


(1-1734)

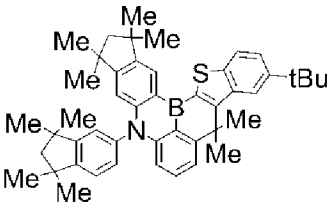


(1-1735)

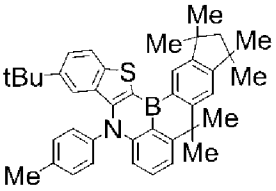
【0188】



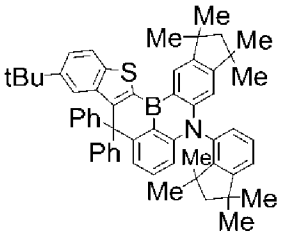
(1-1741)



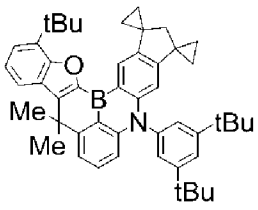
(1-1742)



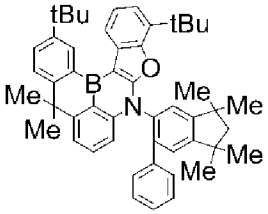
(1-1743)



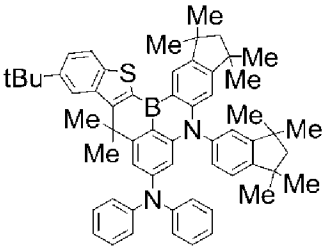
(1-1744)



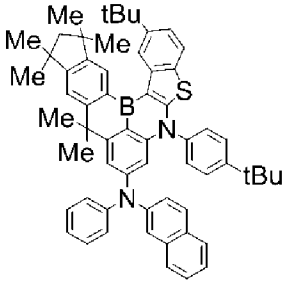
(1-1745)



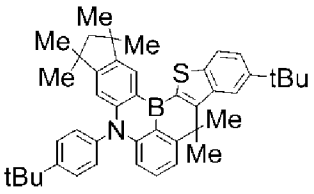
(1-1746)



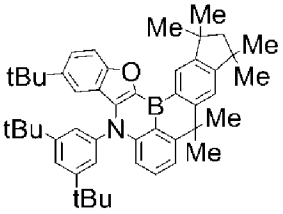
(1-1747)



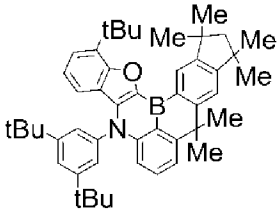
(1-1748)



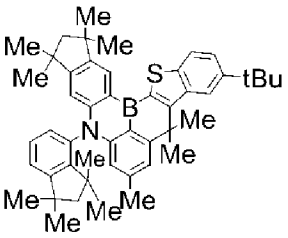
(1-1749)



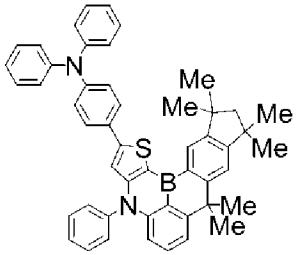
(1-1750)



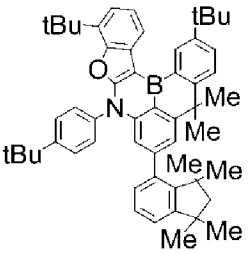
(1-1751)



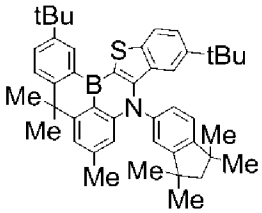
(1-1752)



(1-1753)

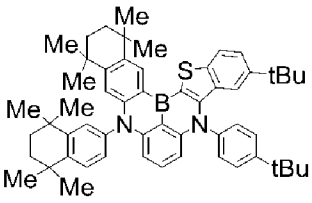


(1-1754)

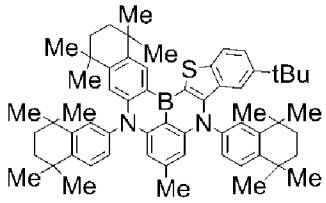


(1-1755)

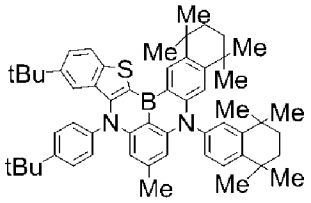
【0189】



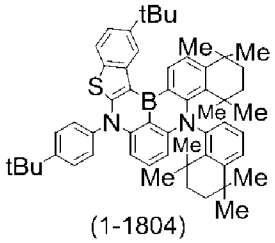
(1-1801)



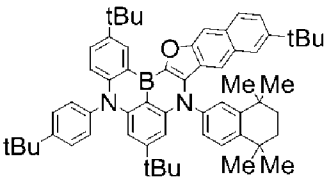
(1-1802)



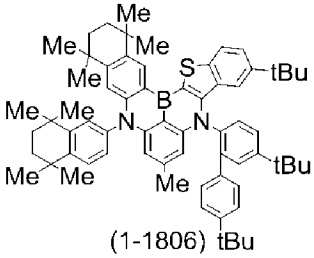
(1-1803)



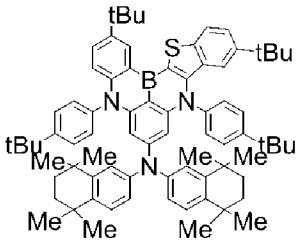
(1-1804)



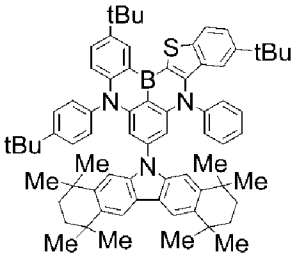
(1-1805)



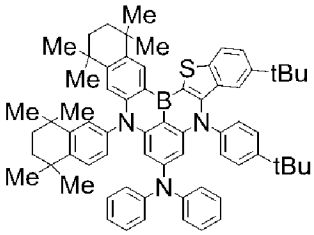
(1-1806)



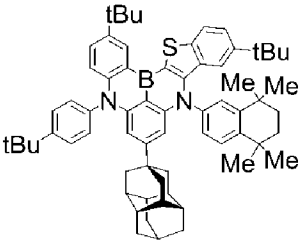
(1-1807)



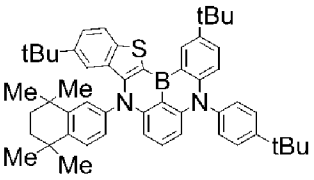
(1-1808)



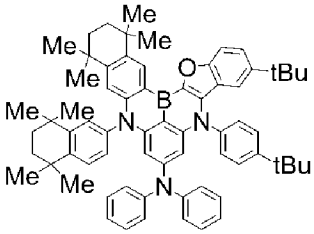
(1-1809)



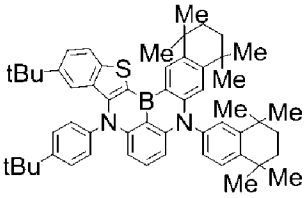
(1-1810)



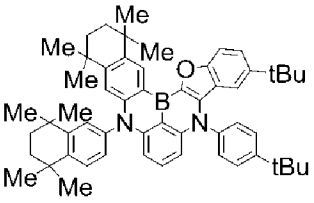
(1-1811)



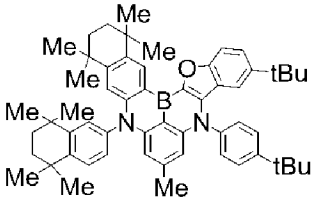
(1-1812)



(1-1813)

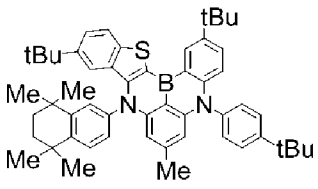


(1-1814)

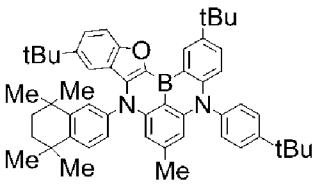


(1-1815)

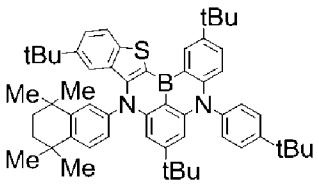
【0190】



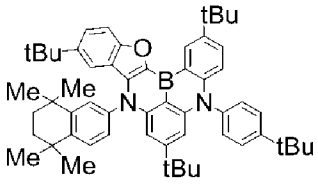
(1-1821)



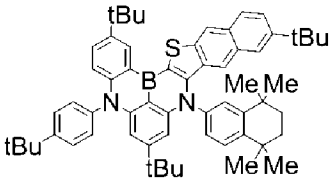
(1-1822)



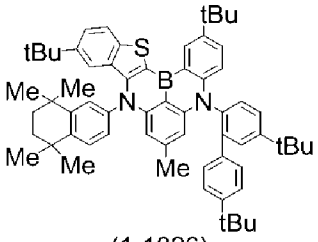
(1-1823)



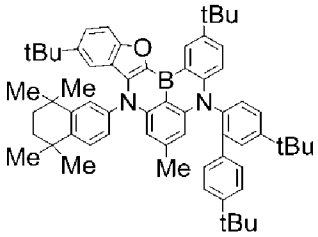
(1-1824)



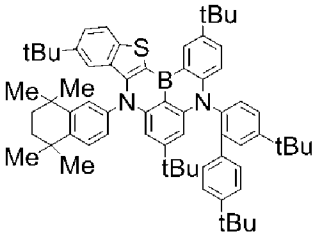
(1-1825)



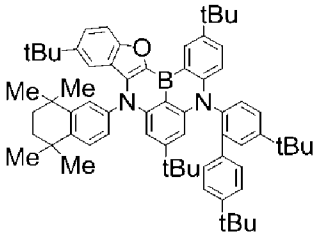
(1-1826)



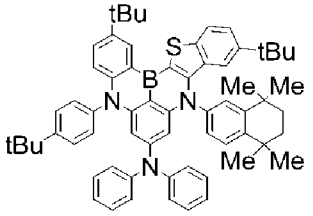
(1-1827)



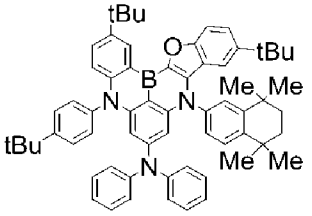
(1-1828)



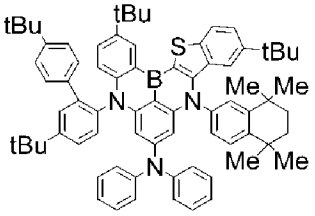
(1-1829)



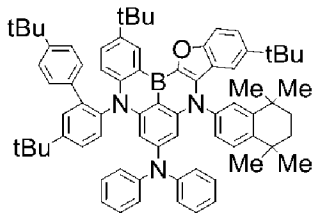
(1-1830)



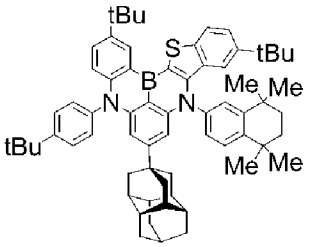
(1-1831)



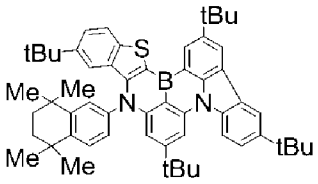
(1-1832)



(1-1833)

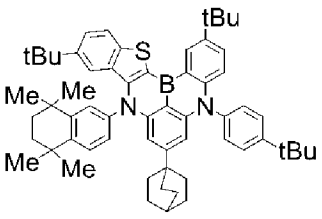


(1-1834)

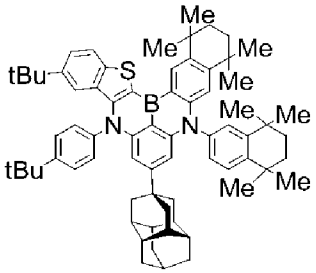


(1-1835)

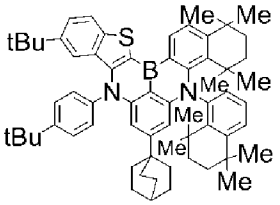
【0191】



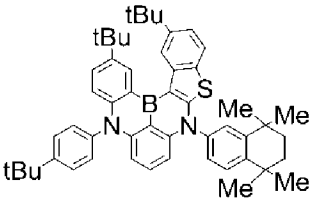
(1-1841)



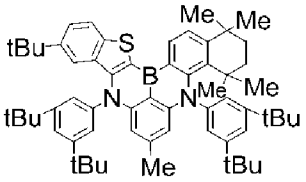
(1-1842)



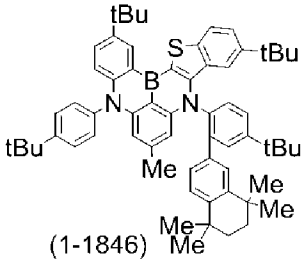
(1-1843)



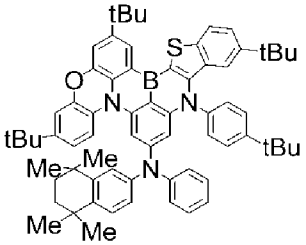
(1-1844)



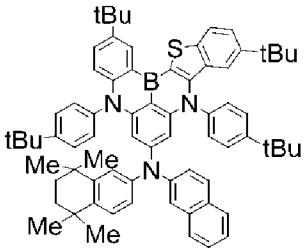
(1-1845)



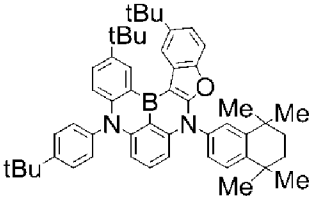
(1-1846)



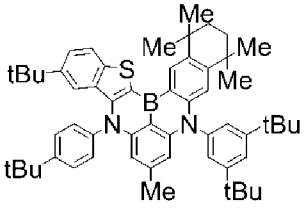
(1-1847)



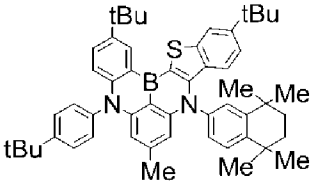
(1-1848)



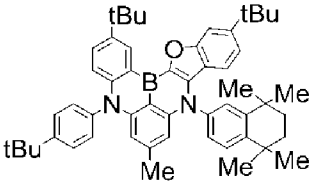
(1-1849)



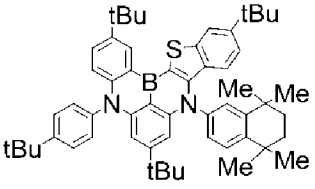
(1-1850)



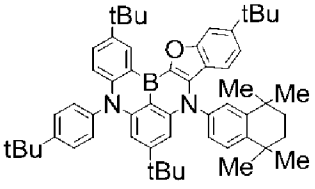
(1-1851)



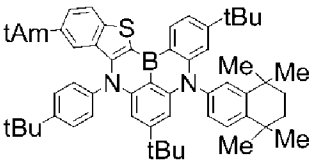
(1-1852)



(1-1853)

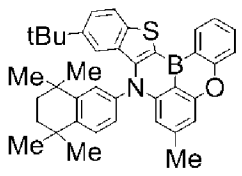


(1-1854)

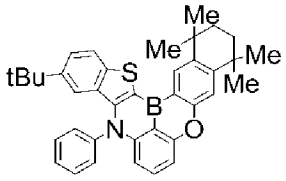


(1-1855)

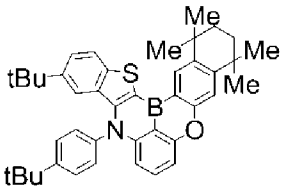
【0192】



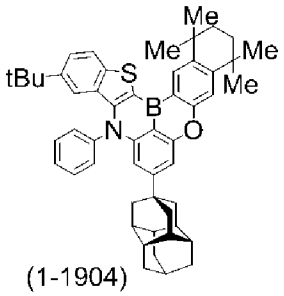
(1-1901)



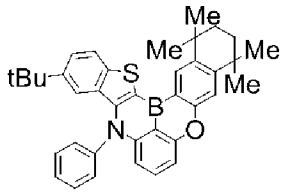
(1-1902)



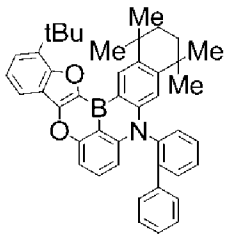
(1-1903)



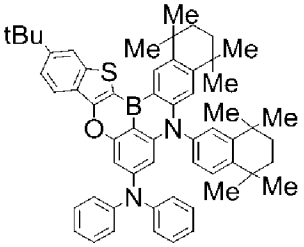
(1-1904)



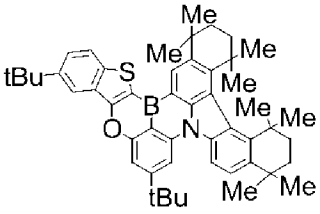
(1-1905)



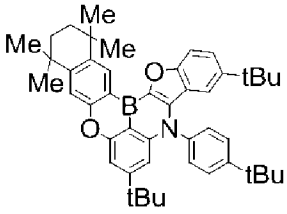
(1-1906)



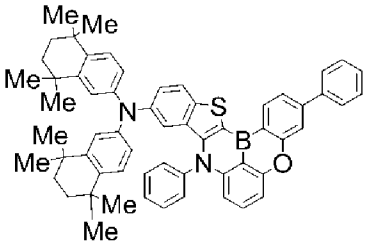
(1-1907)



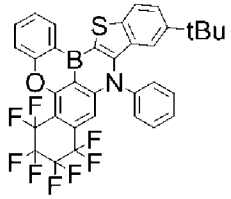
(1-1908)



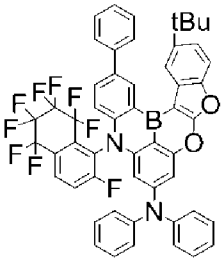
(1-1909)



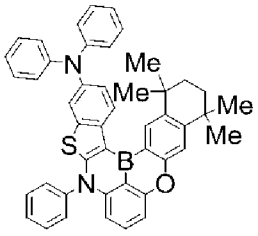
(1-1910)



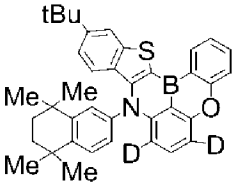
(1-1911)



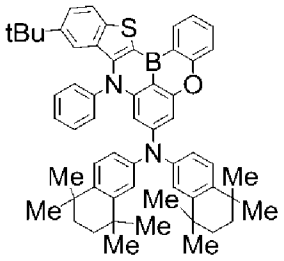
(1-1912)



(1-1913)

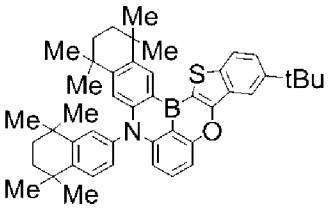


(1-1914)

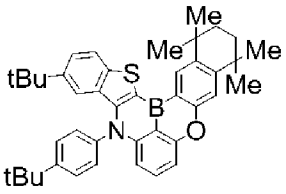


(1-1915)

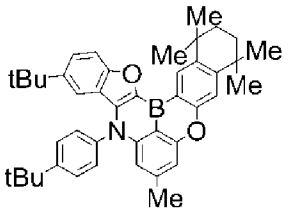
【0193】



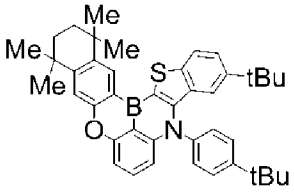
(1-1921)



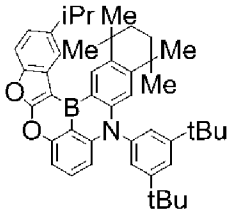
(1-1922)



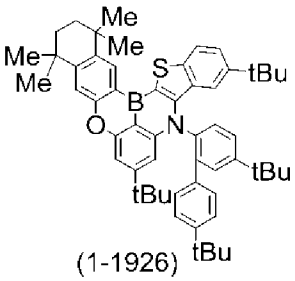
(1-1933)



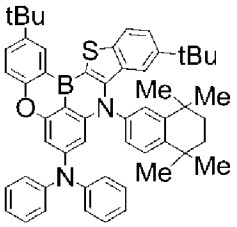
(1-1924)



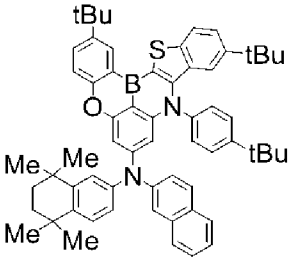
(1-1925)



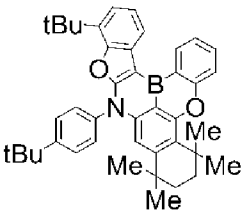
(1-1926)



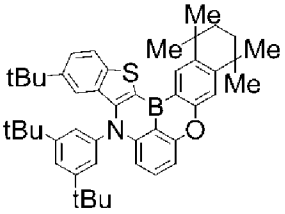
(1-1927)



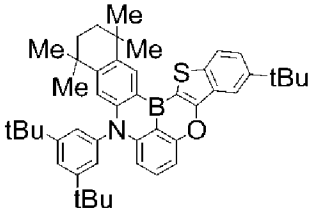
(1-1928)



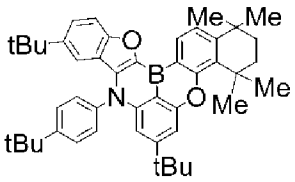
(1-1929)



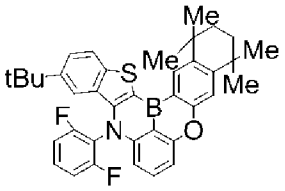
(1-1930)



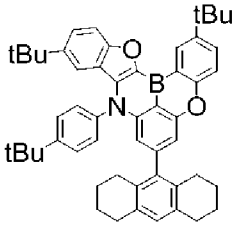
(1-1931)



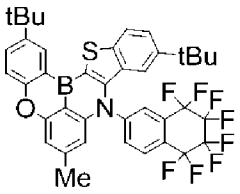
(1-1932)



(1-1933)

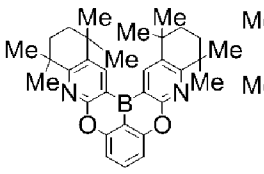


(1-1934)

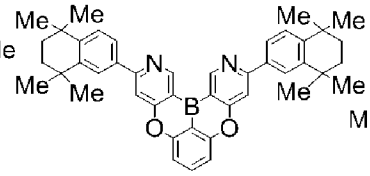


(1-1935)

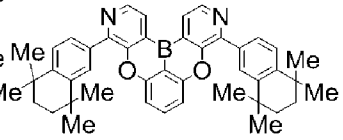
【0194】



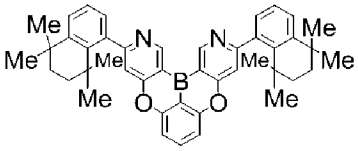
(1-1941)



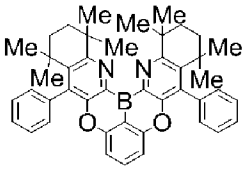
(1-1942)



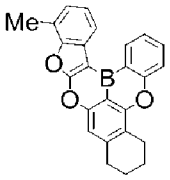
(1-1943)



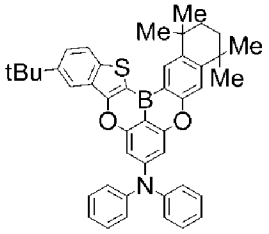
(1-1944)



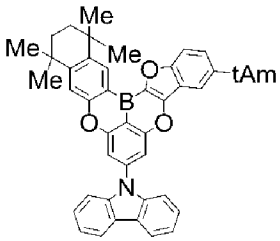
(1-1945)



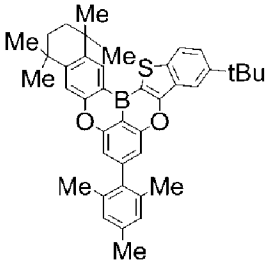
(1-1946)



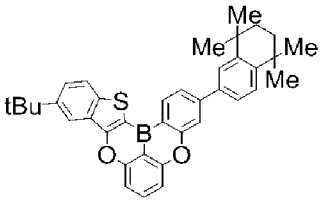
(1-1947)



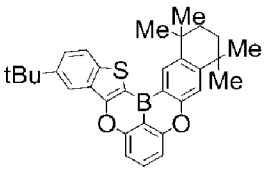
(1-1948)



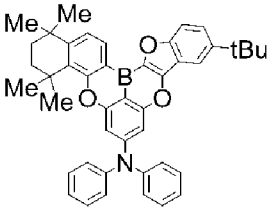
(1-1949)



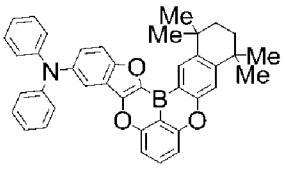
(1-1950)



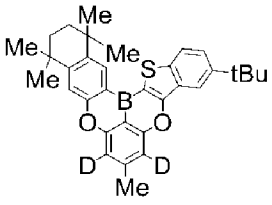
(1-1951)



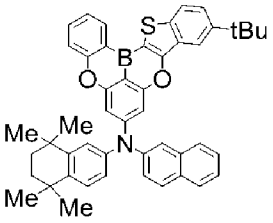
(1-1952)



(1-1953)

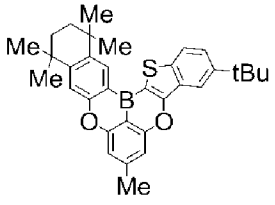


(1-1954)

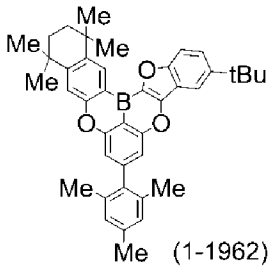


(1-1955)

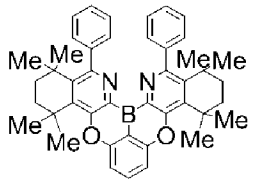
【0195】



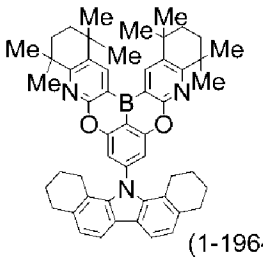
(1-1961)



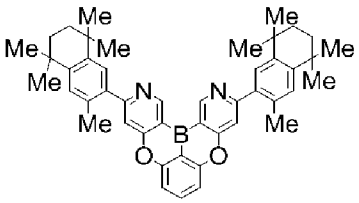
(1-1962)



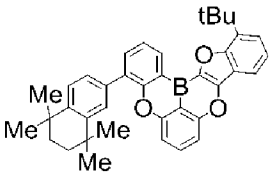
(1-1963)



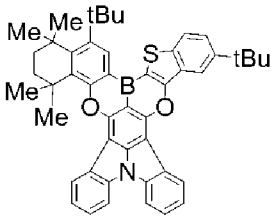
(1-1964)



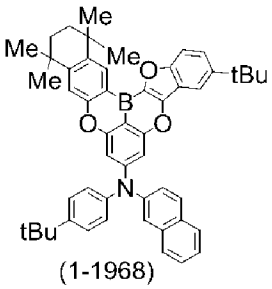
(1-1965)



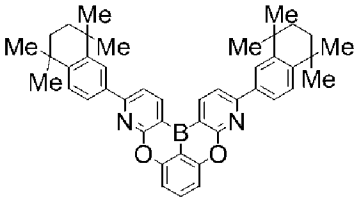
(1-1966)



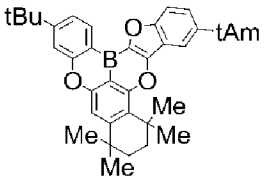
(1-1967)



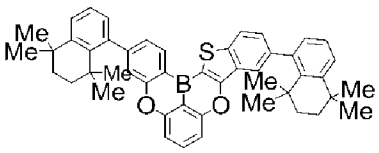
(1-1968)



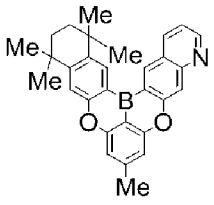
(1-1969)



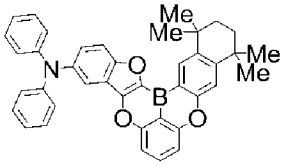
(1-1970)



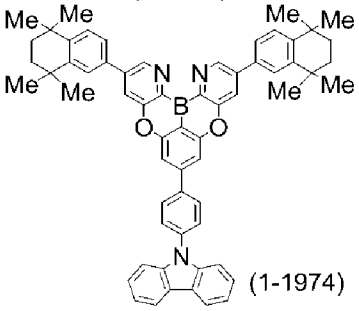
(1-1971)



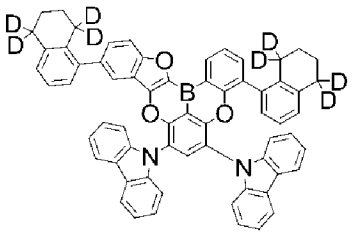
(1-1972)



(1-1973)

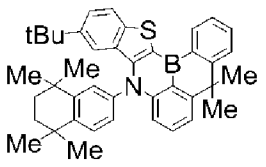


(1-1974)

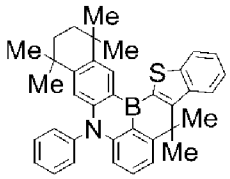


(1-1975)

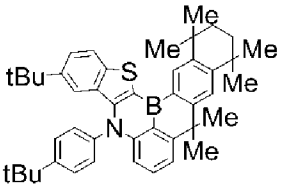
【0196】



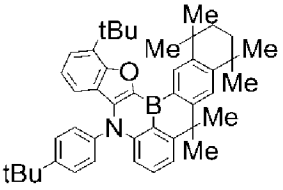
(1-2001)



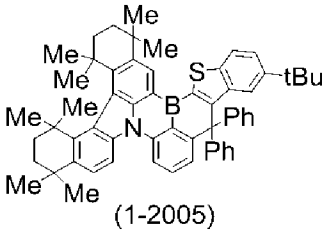
(1-2002)



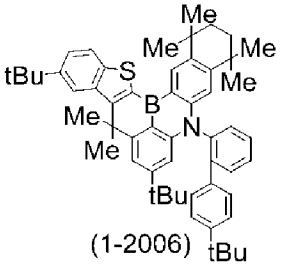
(1-2003)



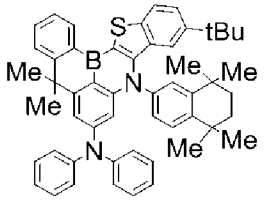
(1-2004)



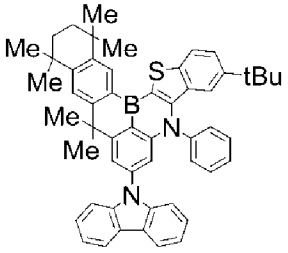
(1-2005)



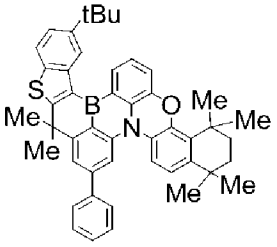
(1-2006)



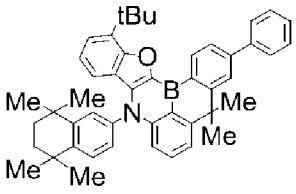
(1-2007)



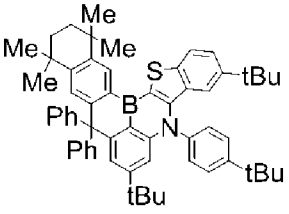
(1-2008)



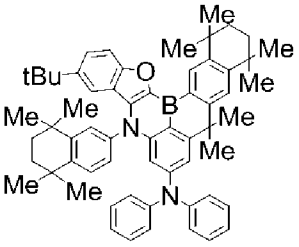
(1-2009)



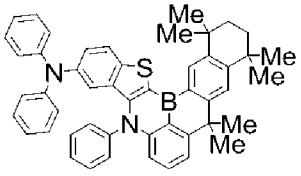
(1-2010)



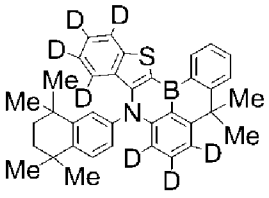
(1-2011)



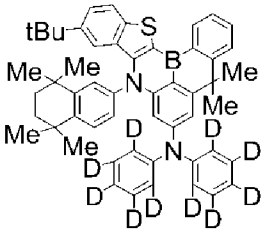
(1-2012)



(1-2013)

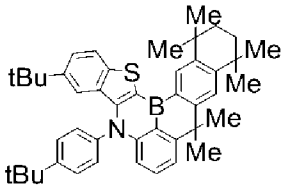


(1-2014)

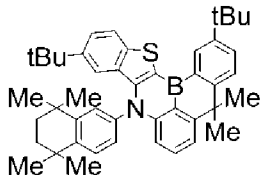


(1-2015)

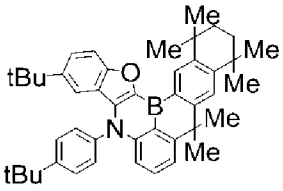
【0197】



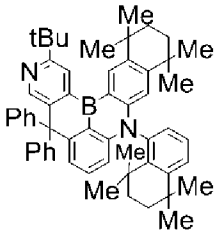
(1-2031)



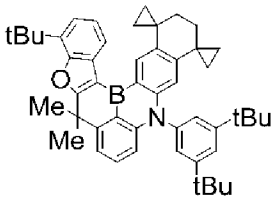
(1-2032)



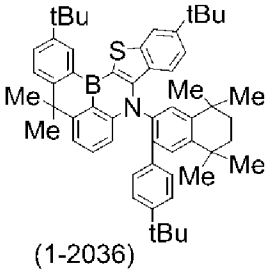
(1-2033)



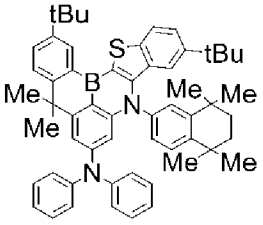
(1-2034)



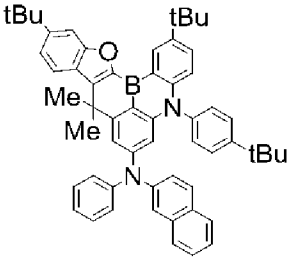
(1-2035)



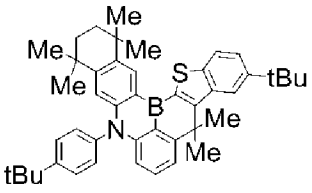
(1-2036)



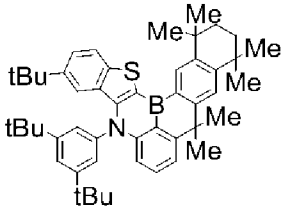
(1-2037)



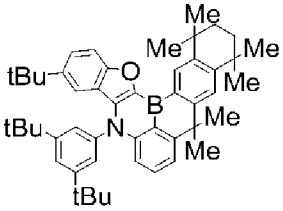
(1-2038)



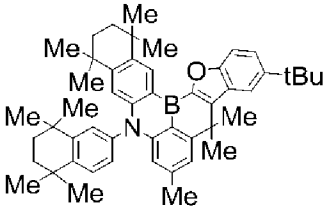
(1-2039)



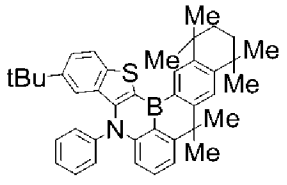
(1-2040)



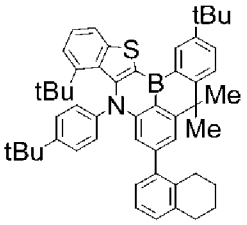
(1-2041)



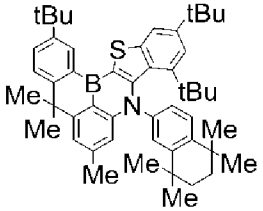
(1-2042)



(1-2043)

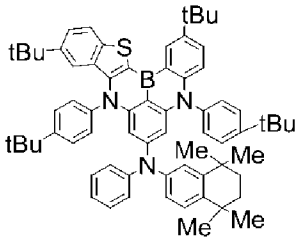


(1-2044)

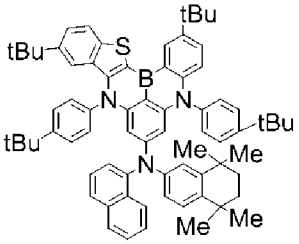


(1-2045)

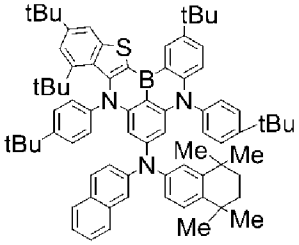
【0198】



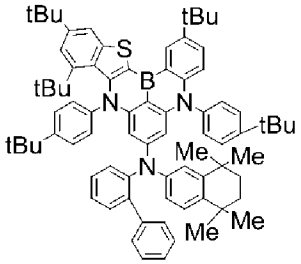
(1-2101)



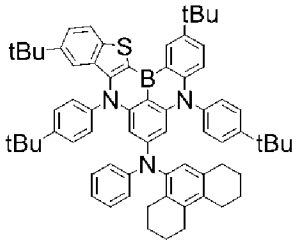
(1-2102)



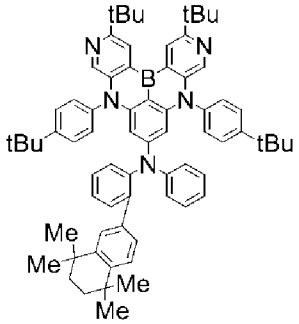
(1-2103)



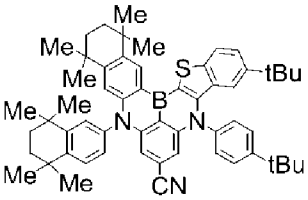
(1-2104)



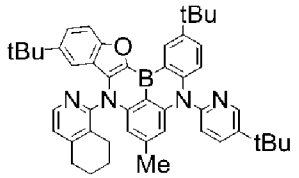
(1-2105)



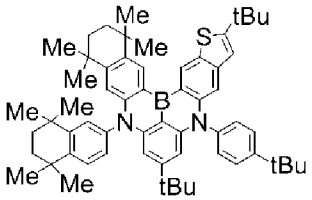
(1-2106)



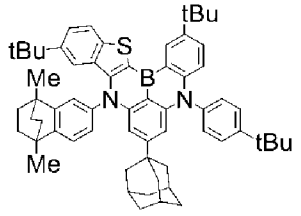
(1-2107)



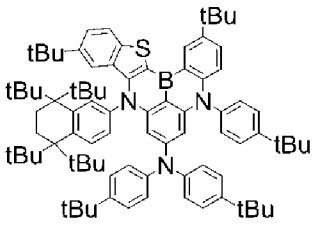
(1-2108)



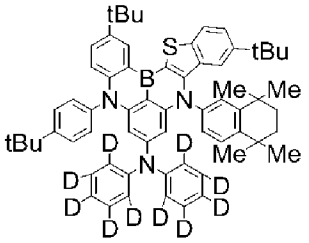
(1-2109)



(1-2110)

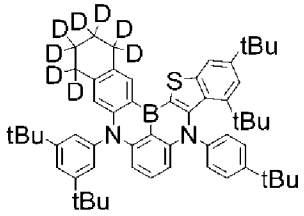


(1-2111)

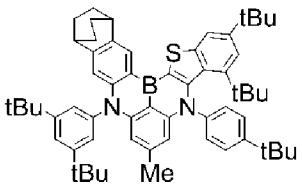


(1-2112)

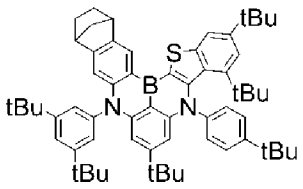
【0199】



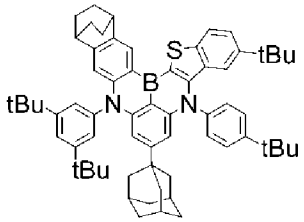
(1-2151)



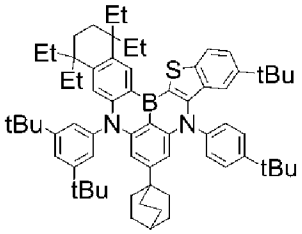
(1-2152)



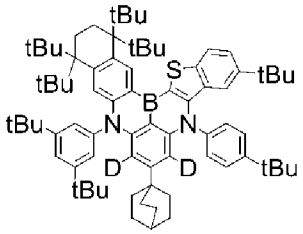
(1-2153)



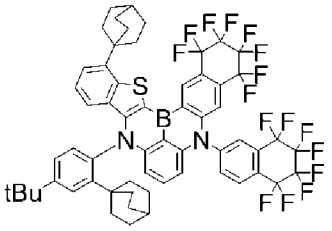
(1-2154)



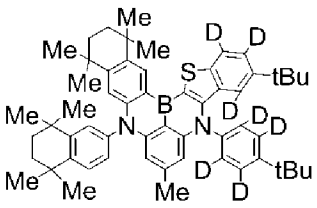
(1-2155)



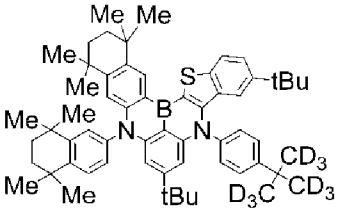
(1-2156)



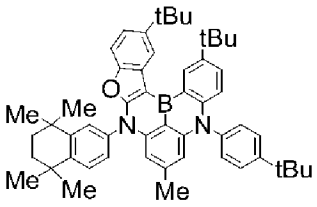
(1-2157)



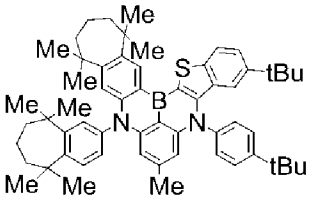
(1-2158)



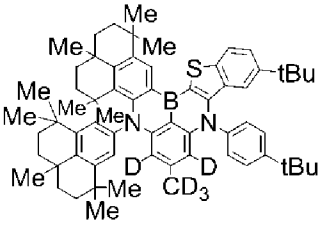
(1-2159)



(1-2160)

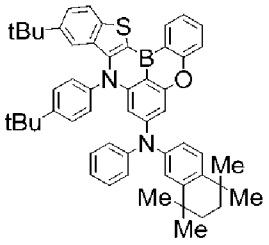


(1-2161)

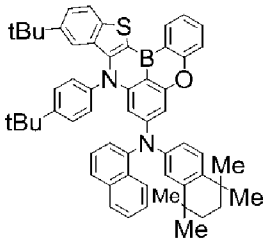


(1-2162)

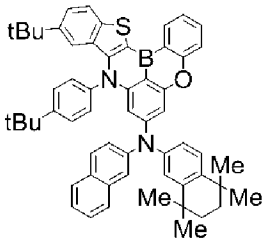
【0200】



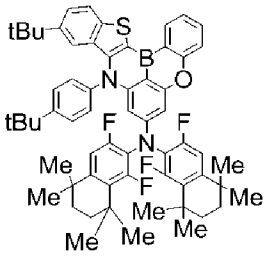
(1-2201)



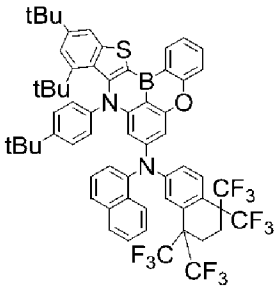
(1-2202)



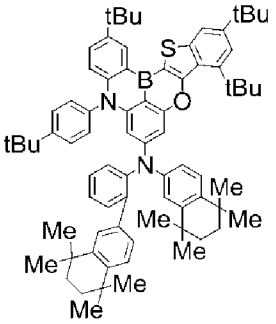
(1-2203)



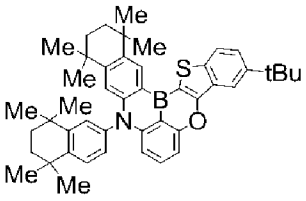
(1-2204)



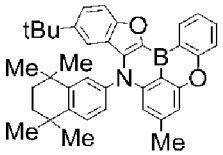
(1-2205)



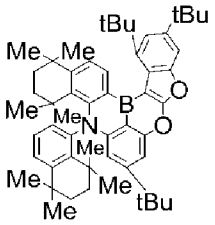
(1-2206)



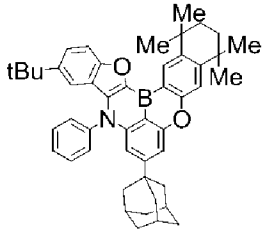
(1-2207)



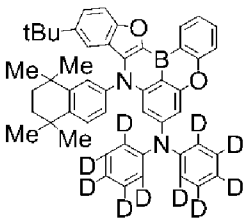
(1-2208)



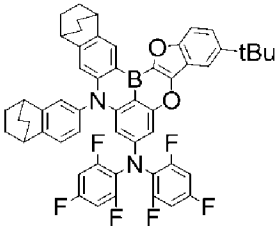
(1-2209)



(1-2210)

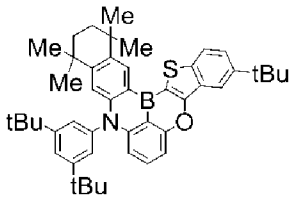


(1-2211)

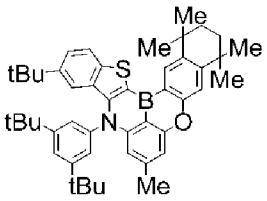


(1-2212)

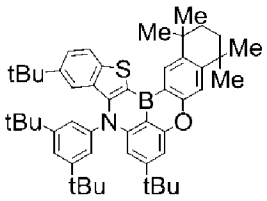
【0201】



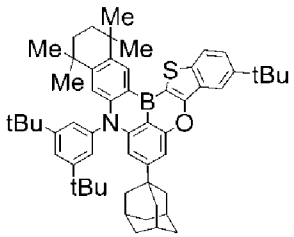
(1-2231)



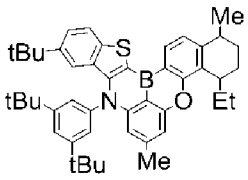
(1-2232)



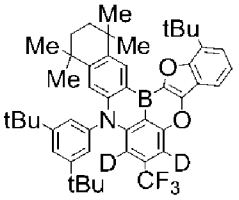
(1-2233)



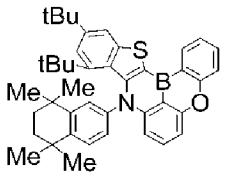
(1-2234)



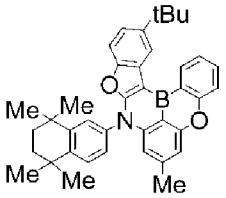
(1-2235)



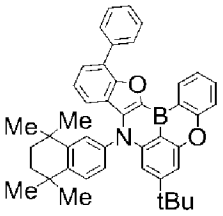
(1-2236)



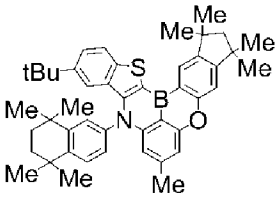
(1-2237)



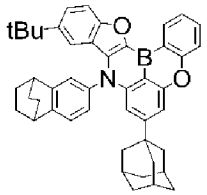
(1-2238)



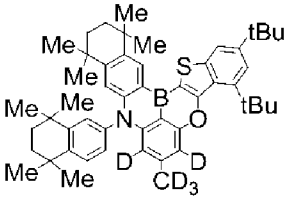
(1-2239)



(1-2240)

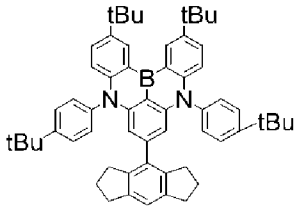


(1-2241)

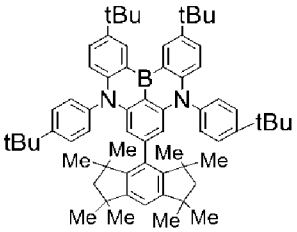


(1-2242)

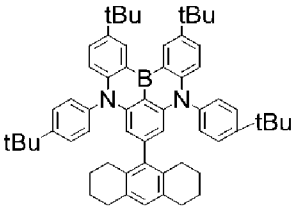
【0202】



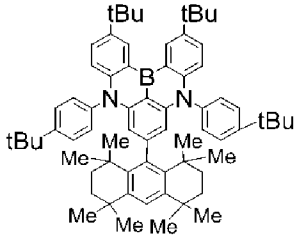
(1-2301)



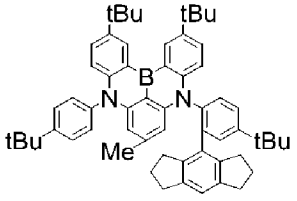
(1-2302)



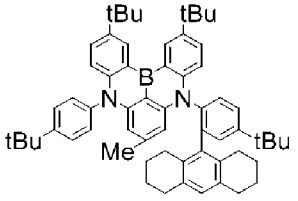
(1-2303)



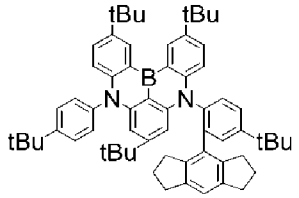
(1-2304)



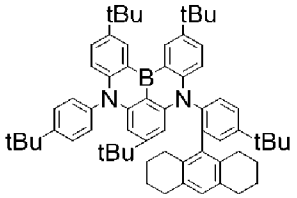
(1-2305)



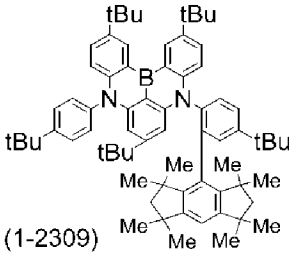
(1-2306)



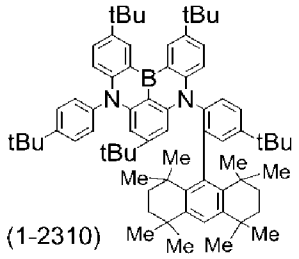
(1-2307)



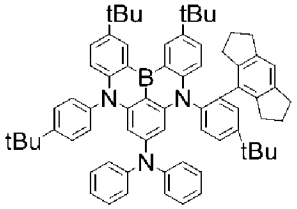
(1-2308)



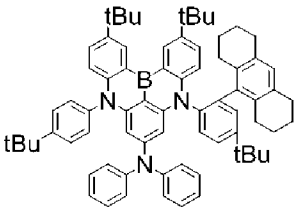
(1-2309)



(1-2310)

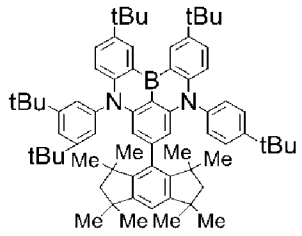


(1-2311)

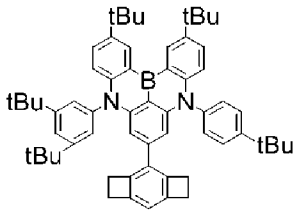


(1-2312)

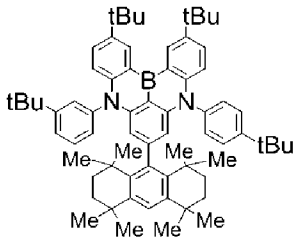
【0203】



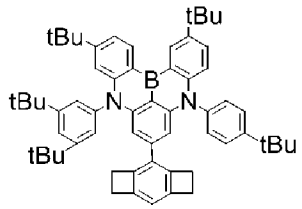
(1-2321)



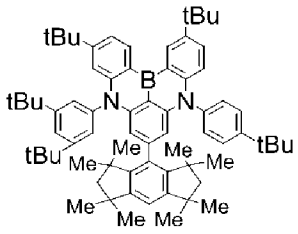
(1-2322)



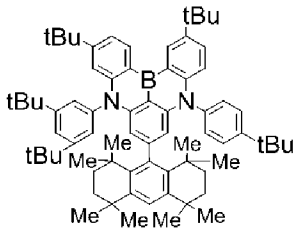
(1-2323)



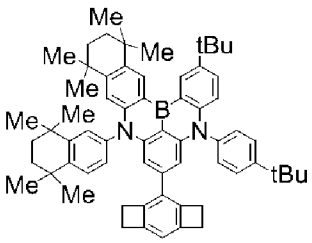
(1-2324)



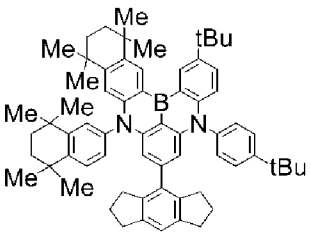
(1-2325)



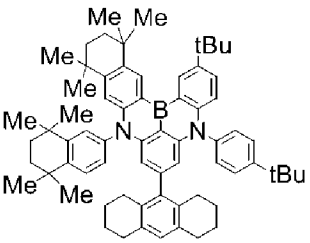
(1-2326)



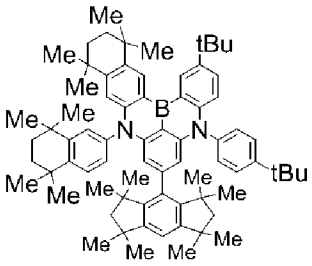
(1-2327)



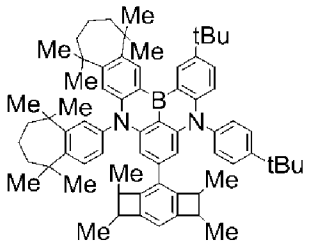
(1-2328)



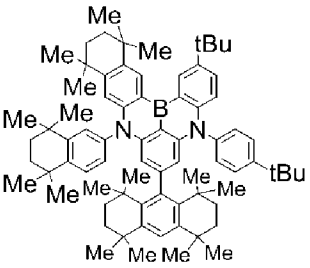
(1-2329)



(1-2330)

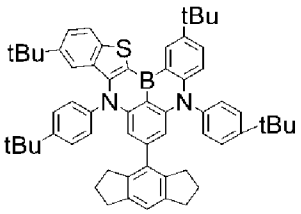


(1-2331)

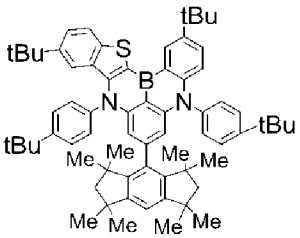


(1-2332)

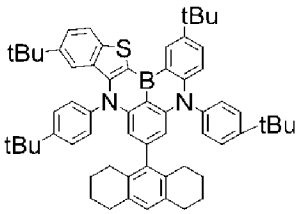
【0204】



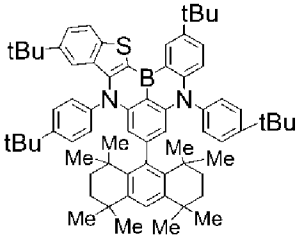
(1-2401)



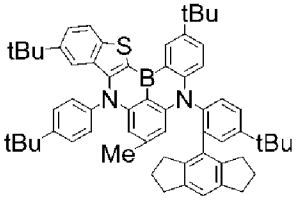
(1-2402)



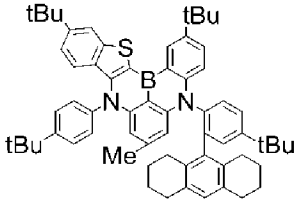
(1-2403)



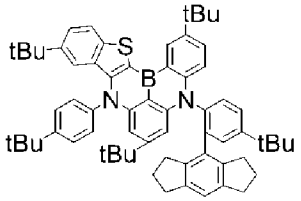
(1-2404)



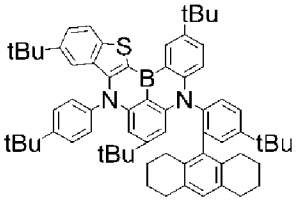
(1-2405)



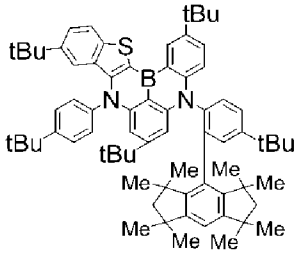
(1-2406)



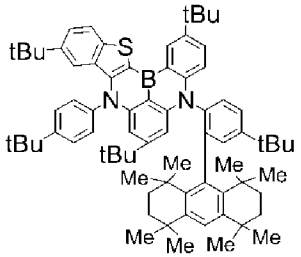
(1-2407)



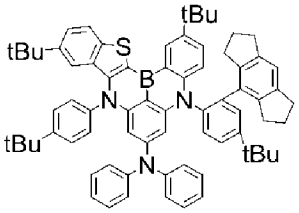
(1-2408)



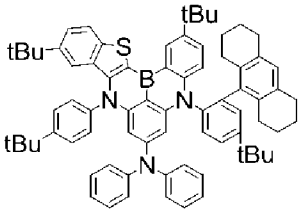
(1-2409)



(1-2410)

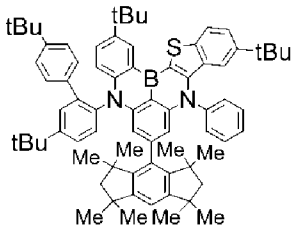


(1-2411)

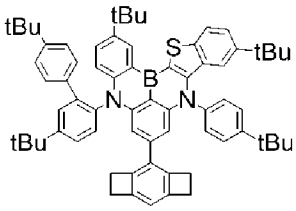


(1-2412)

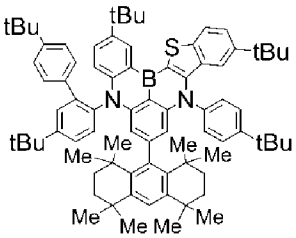
【0205】



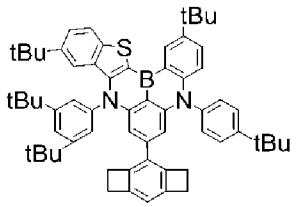
(1-2421)



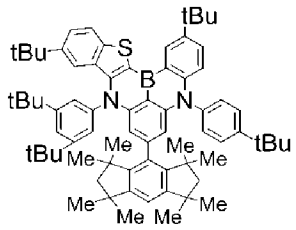
(1-2422)



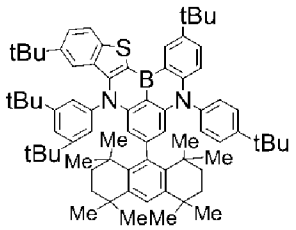
(1-2423)



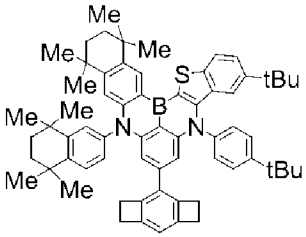
(1-2424)



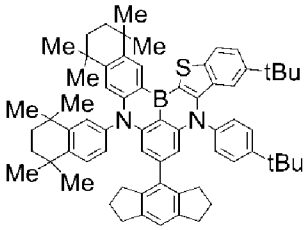
(1-2425)



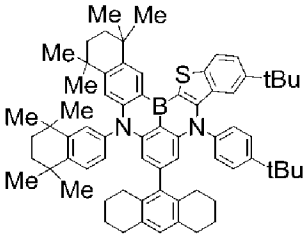
(1-2426)



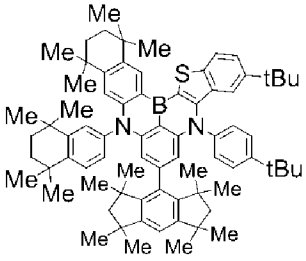
(1-2427)



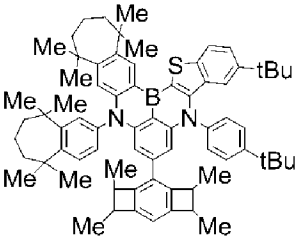
(1-2428)



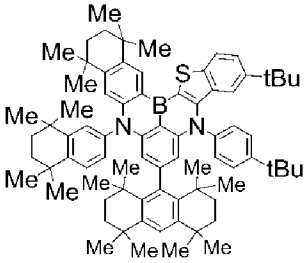
(1-2429)



(1-2430)

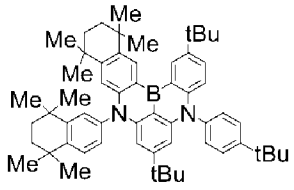


(1-2431)

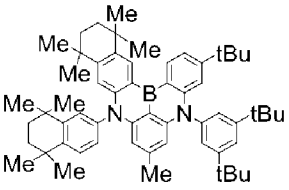


(1-2432)

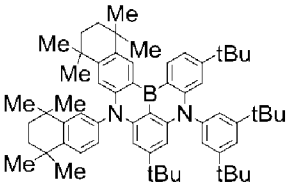
【0206】



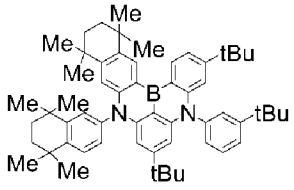
(1-2501)



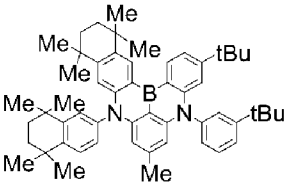
(1-2502)



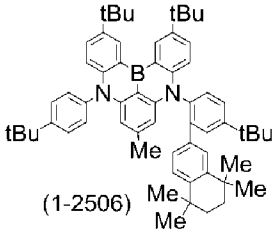
(1-2503)



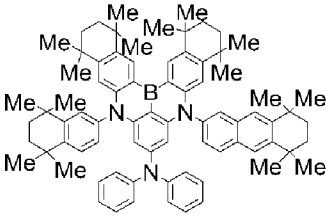
(1-2504)



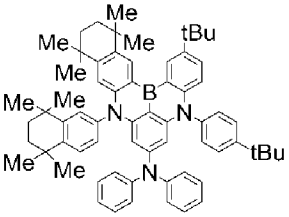
(1-2505)



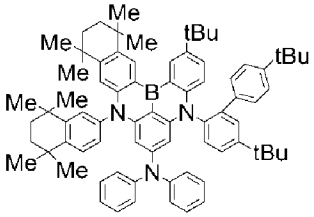
(1-2506)



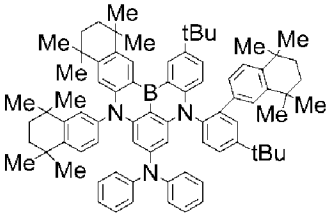
(1-2507)



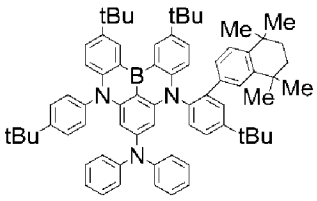
(1-2508)



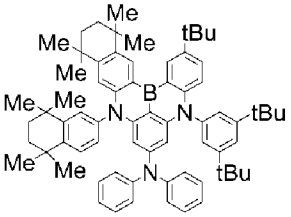
(1-2509)



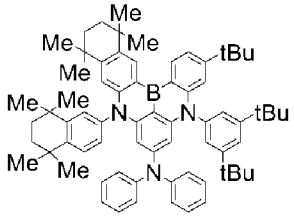
(1-2510)



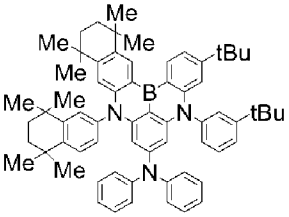
(1-2511)



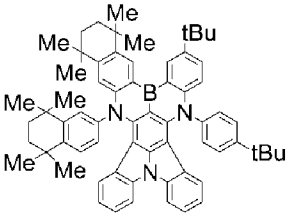
(1-2512)



(1-2513)

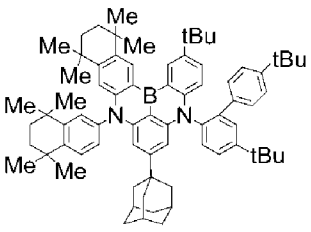


(1-2514)

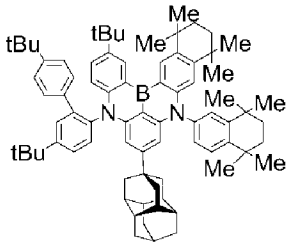


(1-2515)

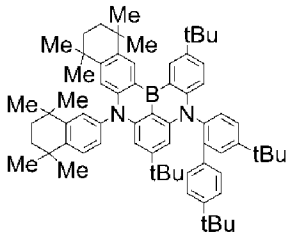
【0207】



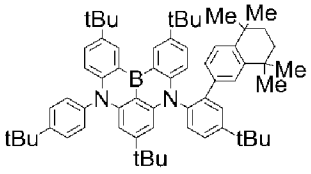
(1-2521)



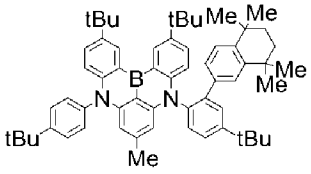
(1-2522)



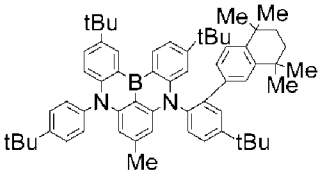
(1-2523)



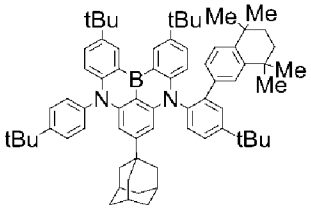
(1-2524)



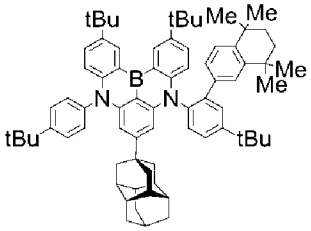
(1-2525)



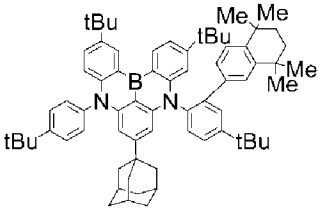
(1-2526)



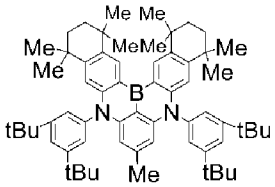
(1-2527)



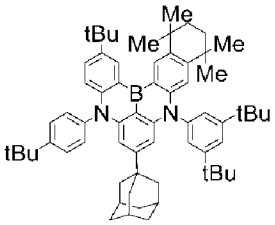
(1-2528)



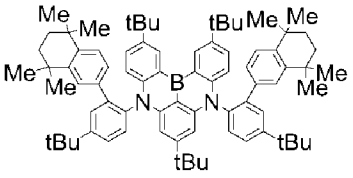
(1-2529)



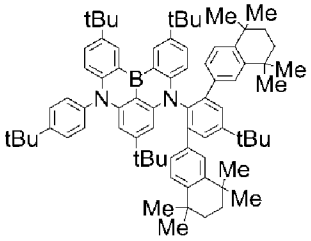
(1-2530)



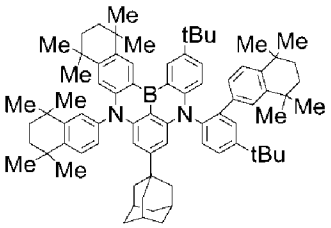
(1-2531)



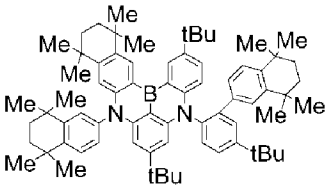
(1-2532)



(1-2533)

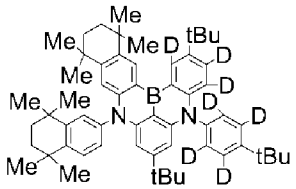


(1-2534)

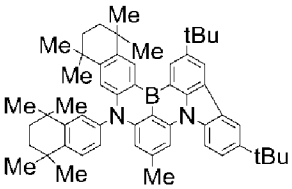


(1-2535)

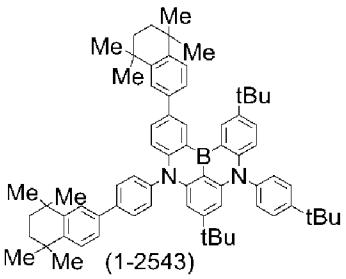
【0208】



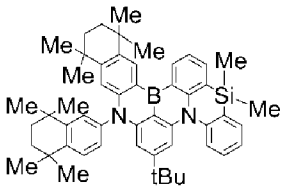
(1-2541)



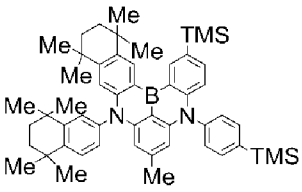
(1-2542)



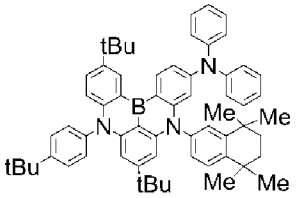
(1-2543)



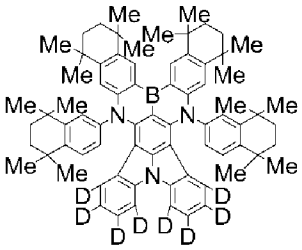
(1-2544)



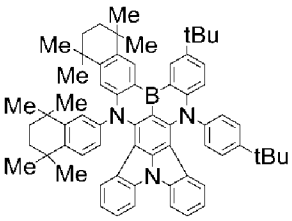
(1-2545)



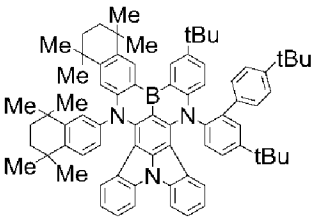
(1-2546)



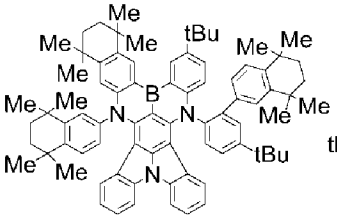
(1-2547)



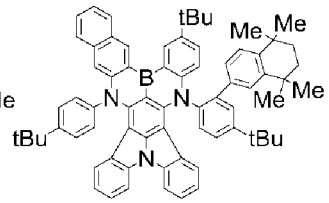
(1-2548)



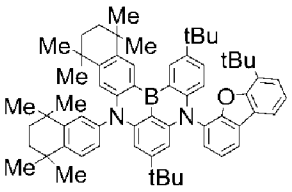
(1-2549)



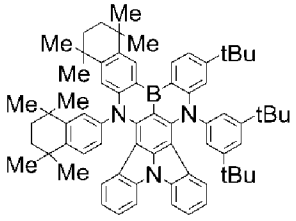
(1-2550)



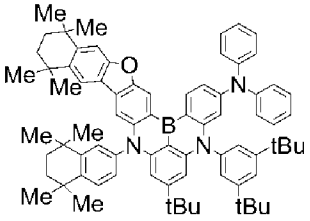
(1-2551)



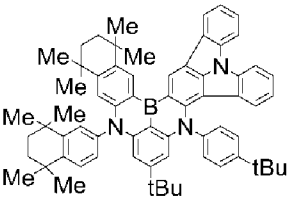
(1-2552)



(1-2553)

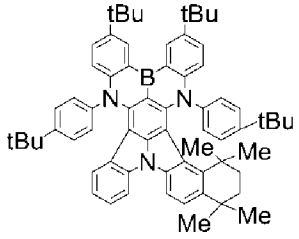


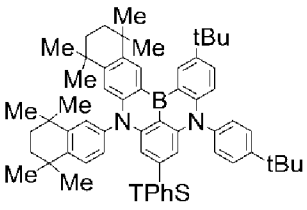
(1-2554)

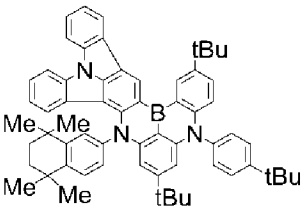


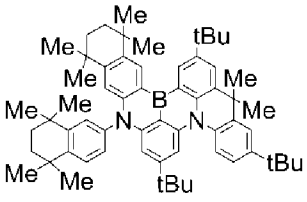
(1-2555)

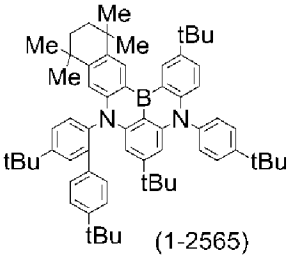
【0209】

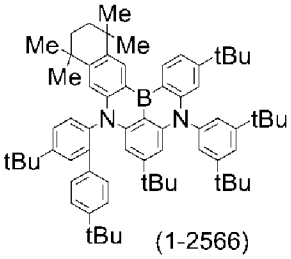

(1-2561)

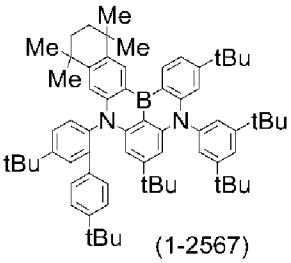

(1-2562)

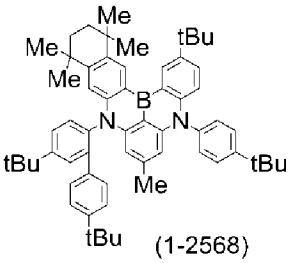

(1-2563)

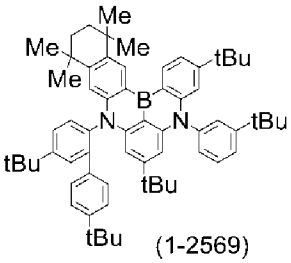

(1-2564)

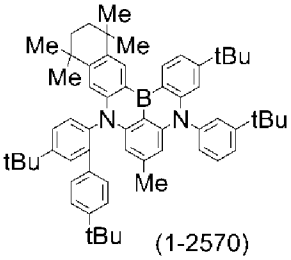

(1-2565)

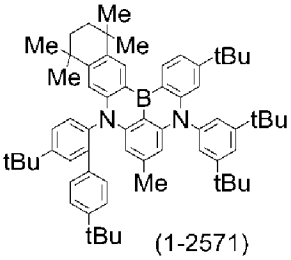

(1-2566)

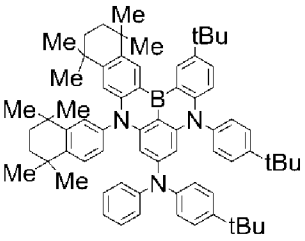

(1-2567)

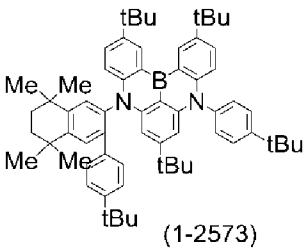

(1-2568)

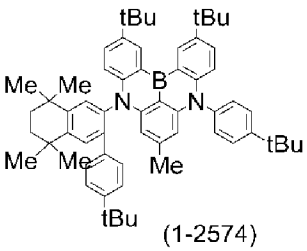

(1-2569)

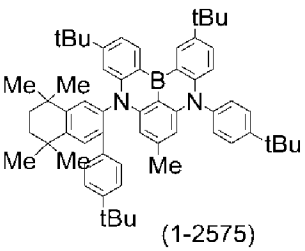

(1-2570)


(1-2571)

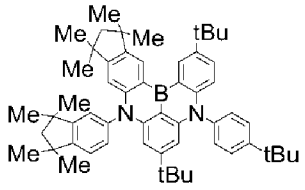

(1-2572)


(1-2573)

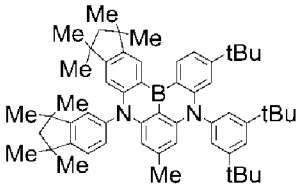

(1-2574)


(1-2575)

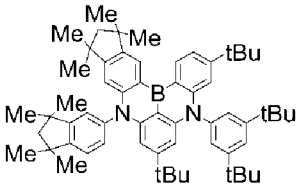
【0210】



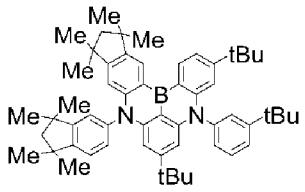
(1-2581)



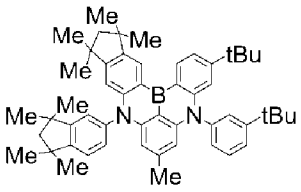
(1-2582)



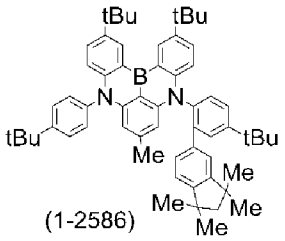
(1-2583)



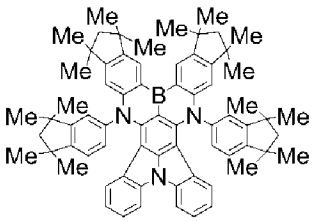
(1-2584)



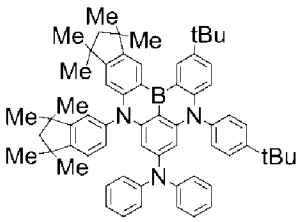
(1-2585)



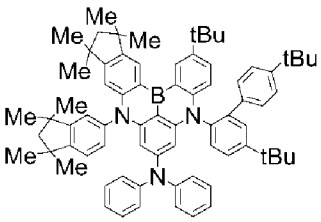
(1-2586)



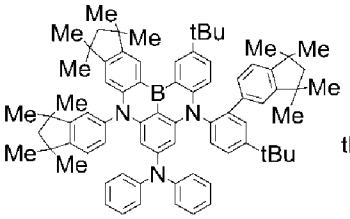
(1-2587)



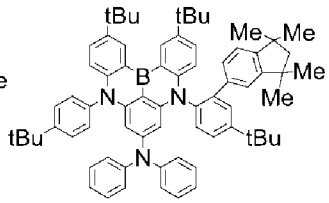
(1-2588)



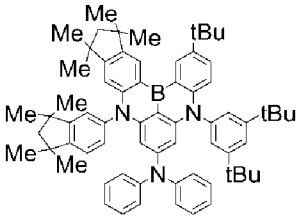
(1-2589)



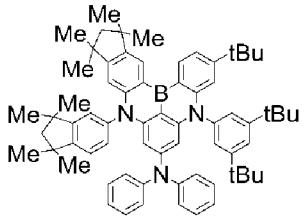
(1-2590)



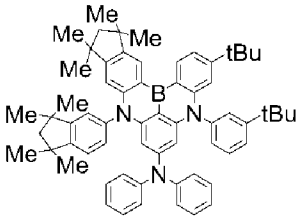
(1-2591)



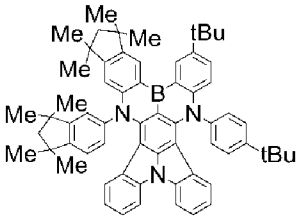
(1-2592)



(1-2593)

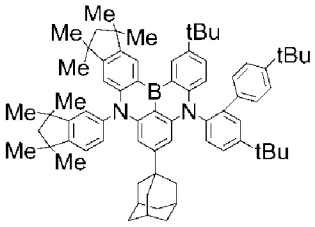


(1-2594)

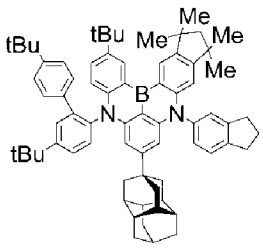


(1-2595)

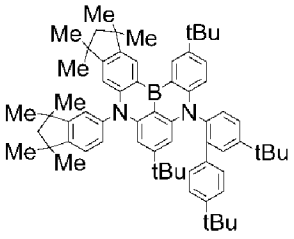
【0211】



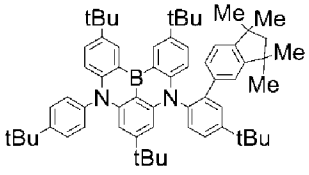
(1-2601)



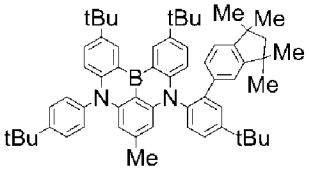
(1-2602)



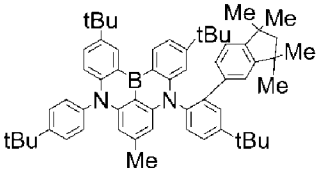
(1-2603)



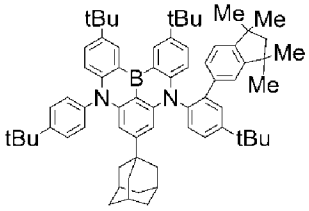
(1-2604)



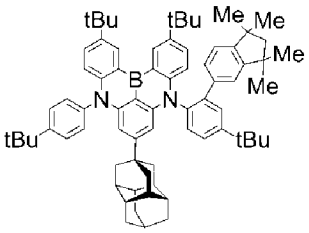
(1-2605)



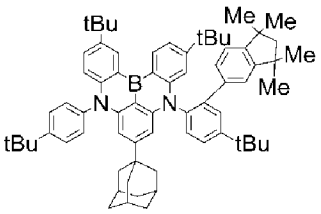
(1-2606)



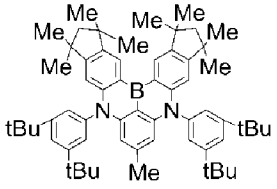
(1-2607)



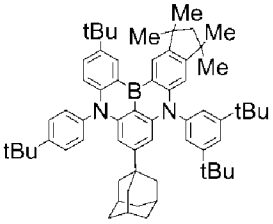
(1-2608)



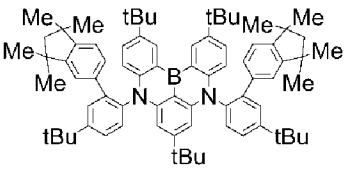
(1-2609)



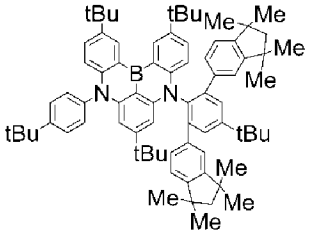
(1-2610)



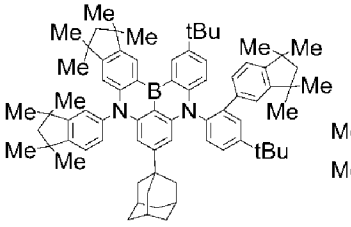
(1-2611)



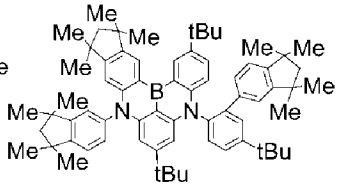
(1-2612)



(1-2613)

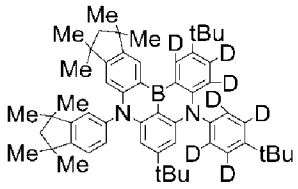


(1-2614)

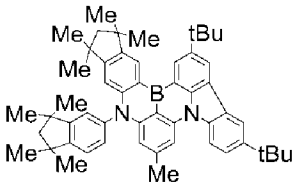


(1-2615)

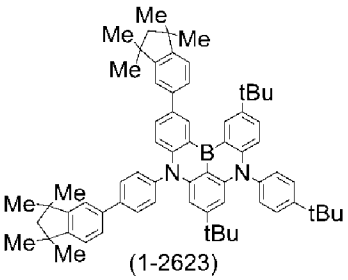
【0212】



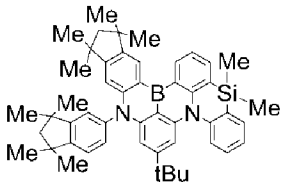
(1-2621)



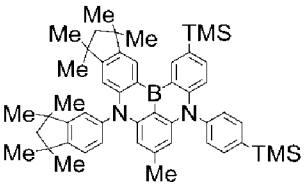
(1-2622)



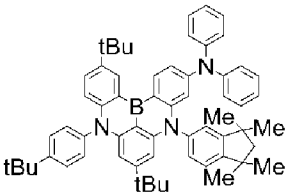
(1-2623)



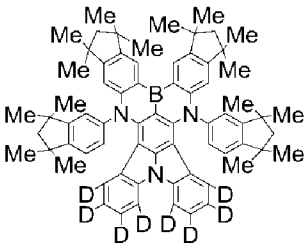
(1-2624)



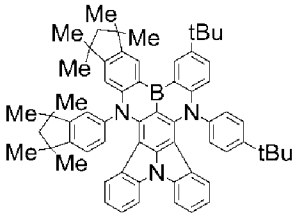
(1-2625)



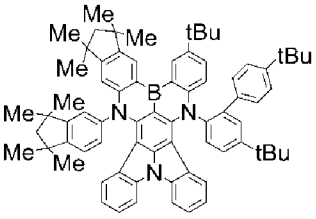
(1-2626)



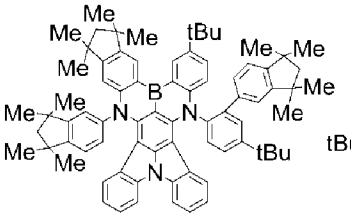
(1-2627)



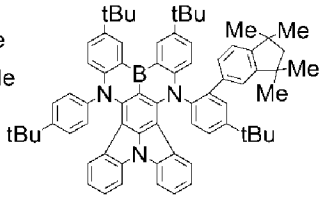
(1-2628)



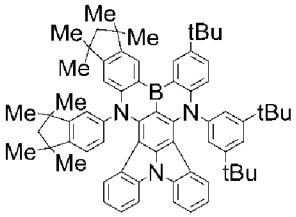
(1-2629)



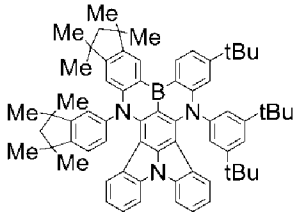
(1-2630)



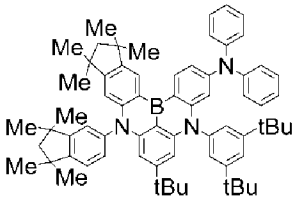
(1-2631)



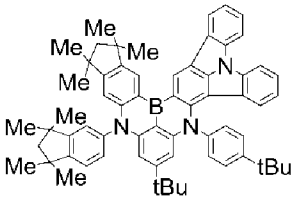
(1-2632)



(1-2633)

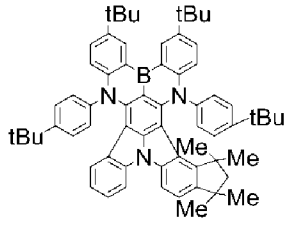


(1-2634)

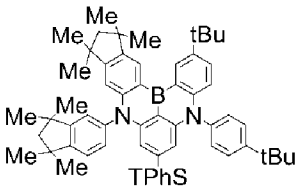


(1-2635)

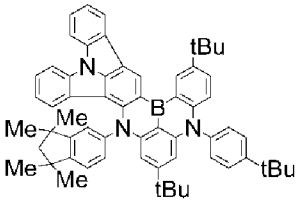
【0213】



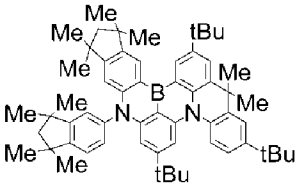
(1-2641)



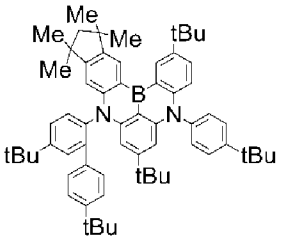
(1-2642)



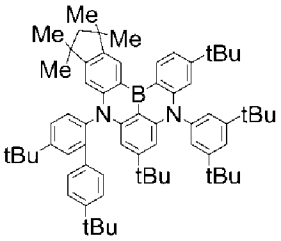
(1-2643)



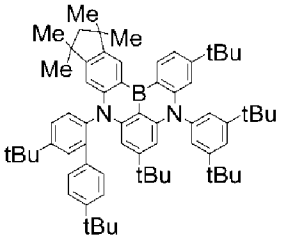
(1-2644)



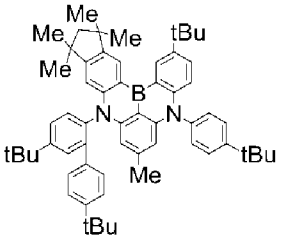
(1-2645)



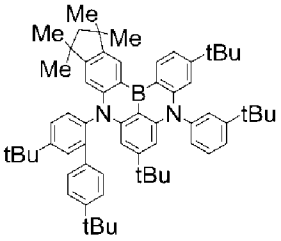
(1-2646)



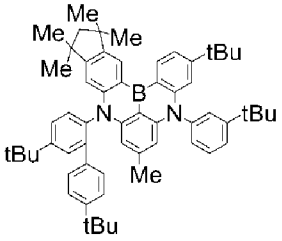
(1-2647)



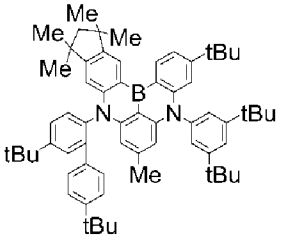
(1-2648)



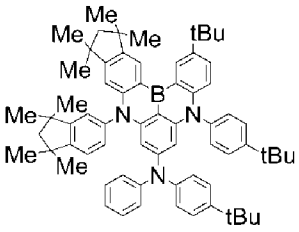
(1-2649)



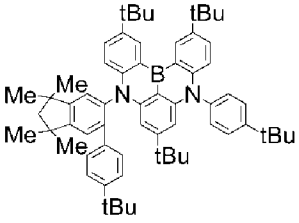
(1-2650)



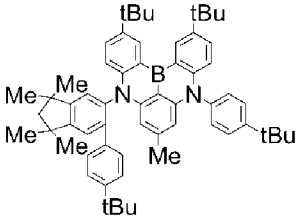
(1-2651)



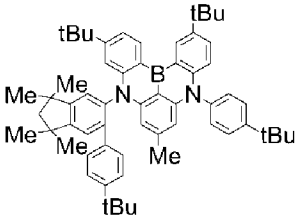
(1-2652)



(1-2653)

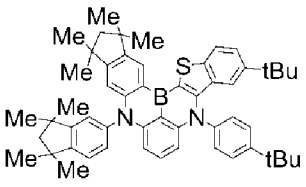


(1-2654)

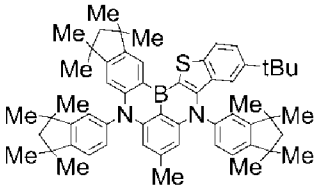


(1-2655)

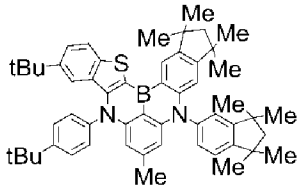
【0214】



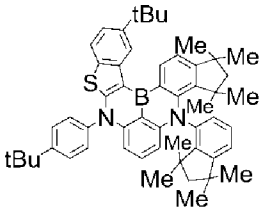
(1-2661)



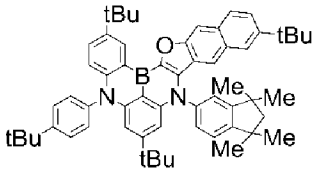
(1-2662)



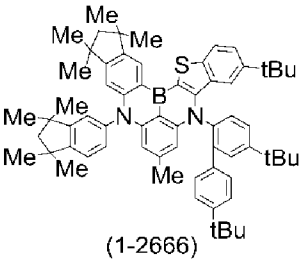
(1-2663)



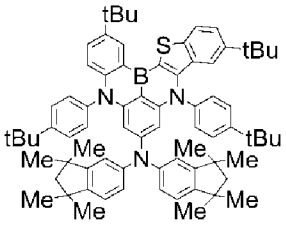
(1-2664)



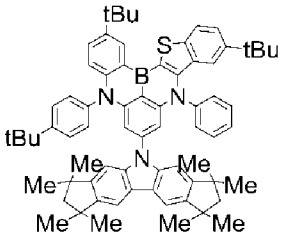
(1-2665)



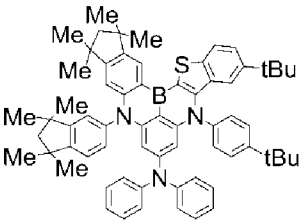
(1-2666)



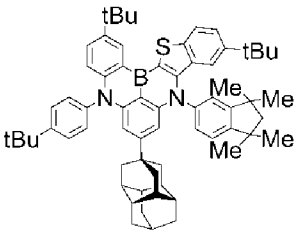
(1-2667)



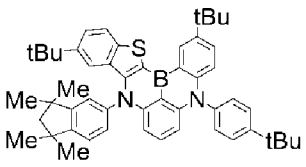
(1-2668)



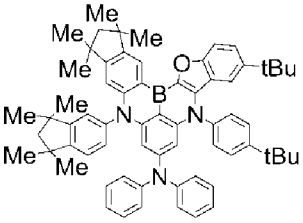
(1-2669)



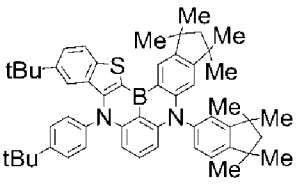
(1-2670)



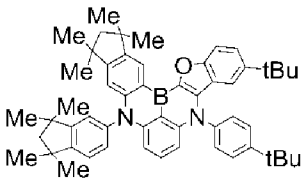
(1-2671)



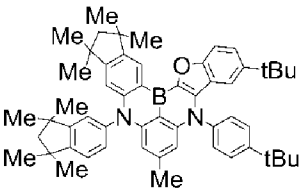
(1-2672)



(1-2673)

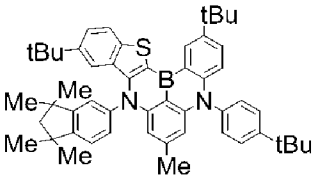


(1-2674)

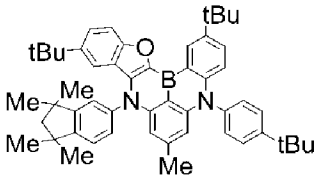


(1-2675)

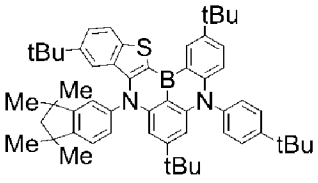
【0215】



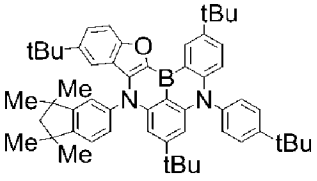
(1-2681)



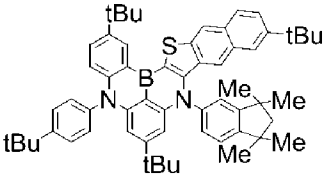
(1-2682)



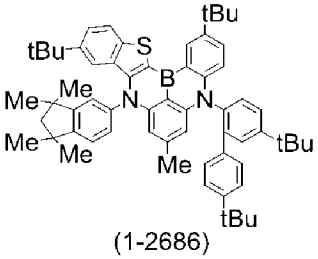
(1-2683)



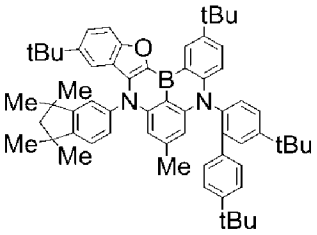
(1-2684)



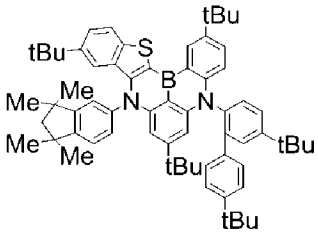
(1-2685)



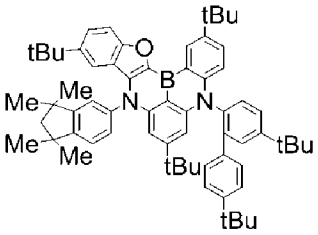
(1-2686)



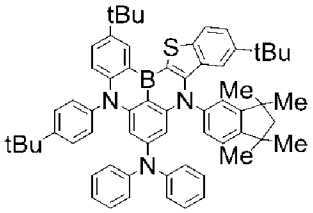
(1-2687)



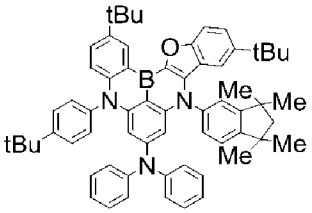
(1-2688)



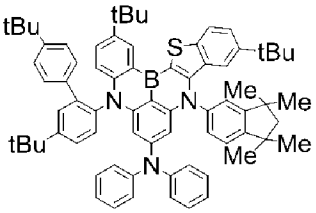
(1-2689)



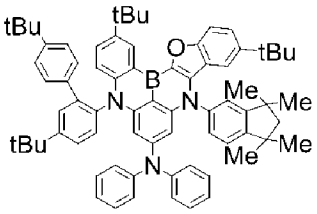
(1-2690)



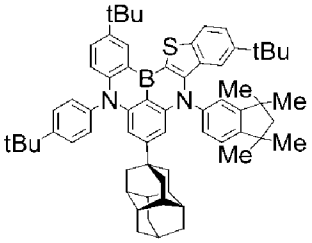
(1-2691)



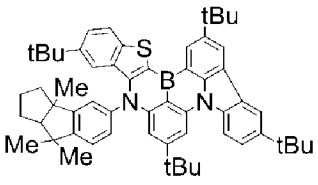
(1-2692)



(1-2693)

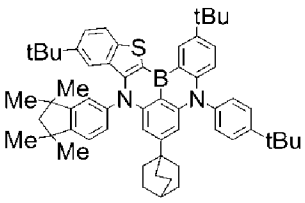


(1-2694)

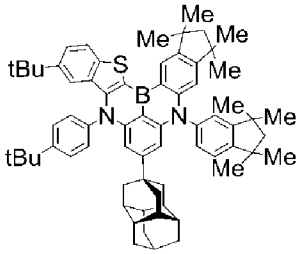


(1-2695)

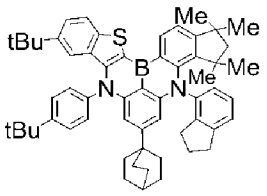
【0216】



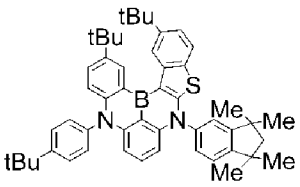
(1-2701)



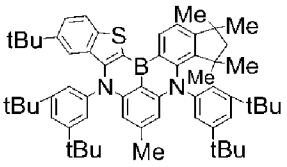
(1-2702)



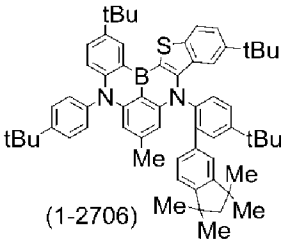
(1-2703)



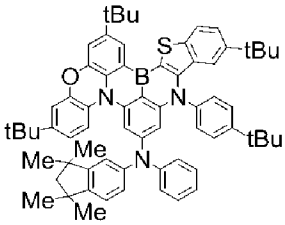
(1-2704)



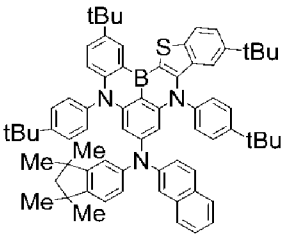
(1-2705)



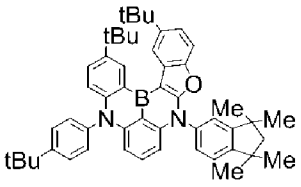
(1-2706)



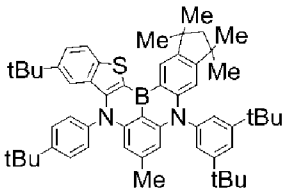
(1-2707)



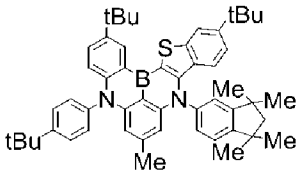
(1-2708)



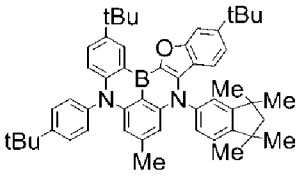
(1-2709)



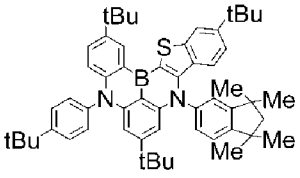
(1-2710)



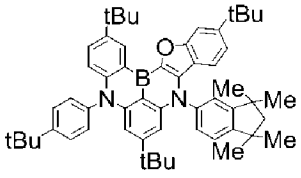
(1-2711)



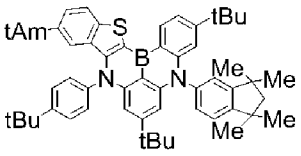
(1-2712)



(1-2713)

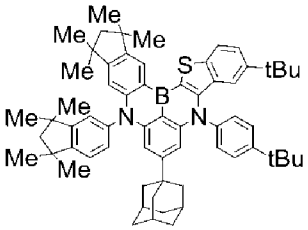


(1-2714)

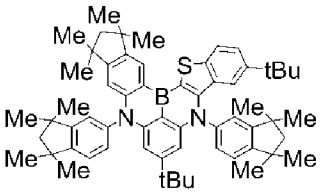


(1-2715)

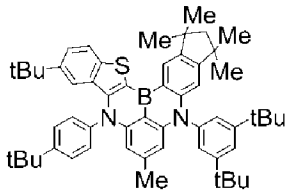
【0217】



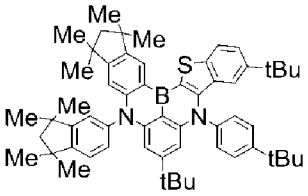
(1-2721)



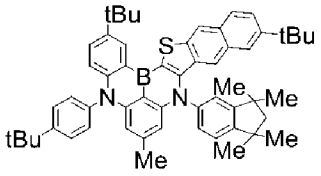
(1-2722)



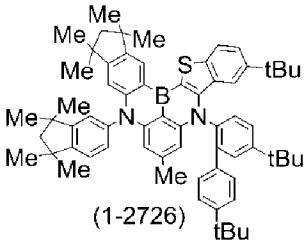
(1-2723)



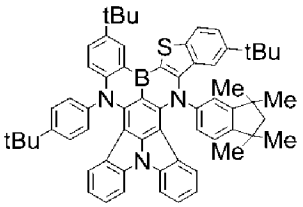
(1-2724)



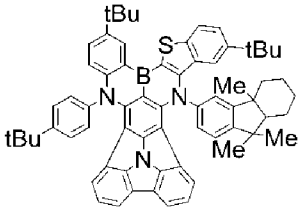
(1-2725)



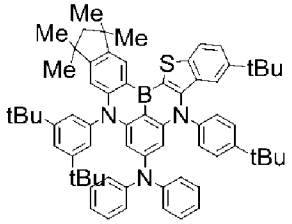
(1-2726)



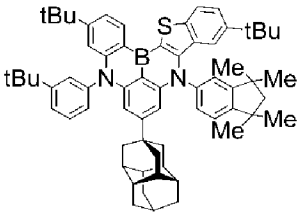
(1-2727)



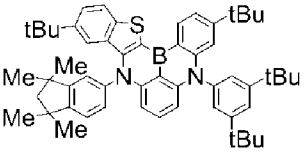
(1-2728)



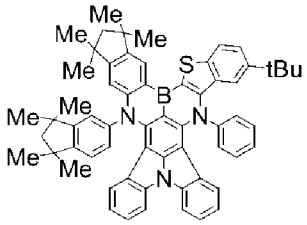
(1-2729)



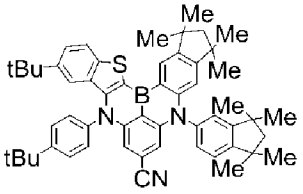
(1-2730)



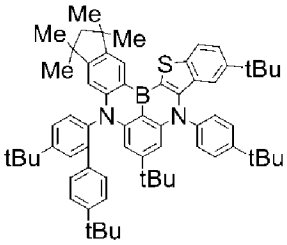
(1-2731)



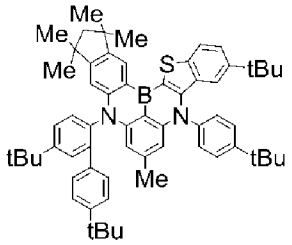
(1-2732)



(1-2733)

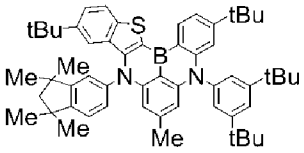


(1-2734)

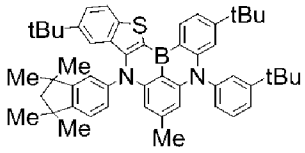


(1-2735)

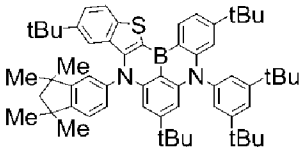
【0218】



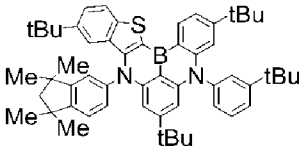
(1-2741)



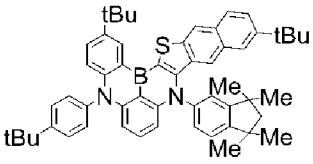
(1-2742)



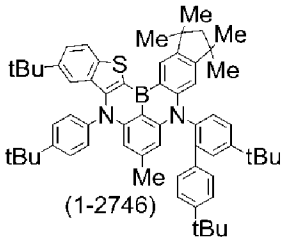
(1-2743)



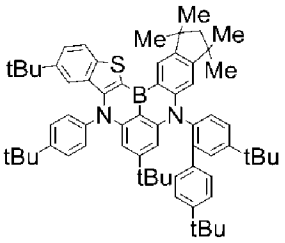
(1-2744)



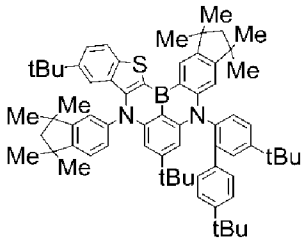
(1-2745)



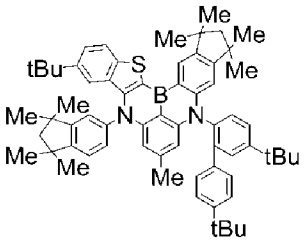
(1-2746)



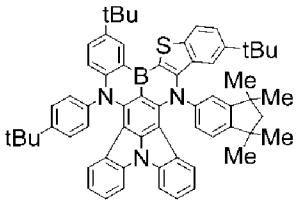
(1-2747)



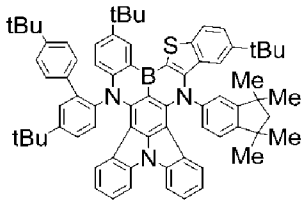
(1-2748)



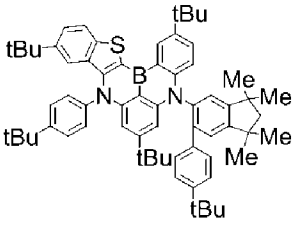
(1-2749)



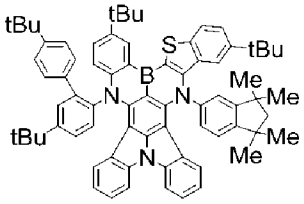
(1-2750)



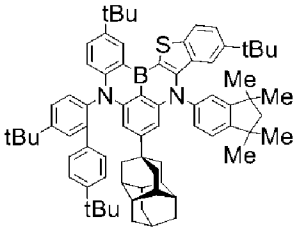
(1-2751)



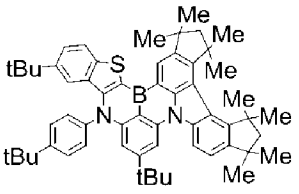
(1-2752)



(1-2753)

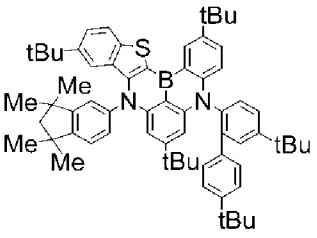


(1-2754)

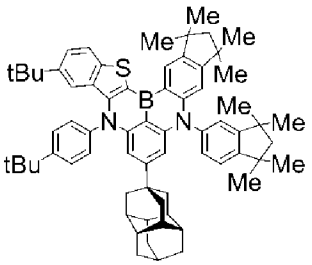


(1-2755)

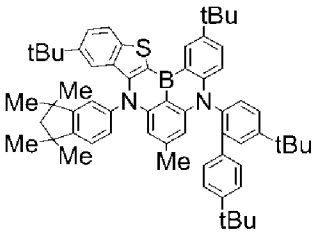
【0219】



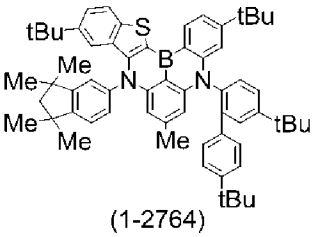
(1-2761)



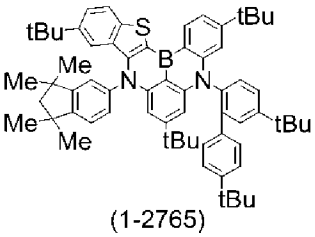
(1-2762)



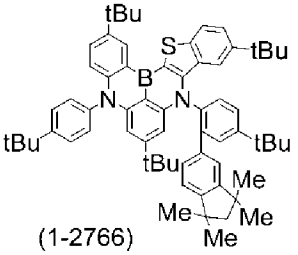
(1-2763)



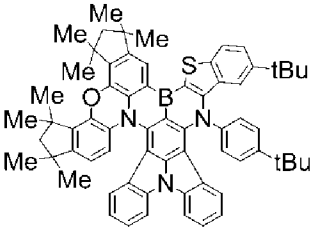
(1-2764)



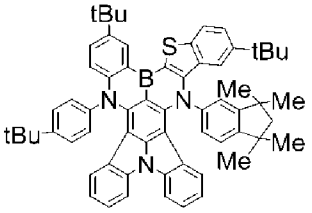
(1-2765)



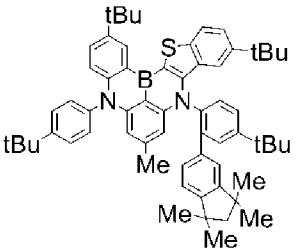
(1-2766)



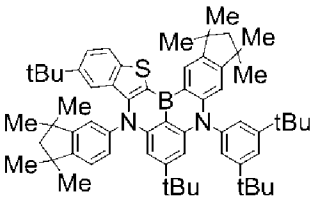
(1-2767)



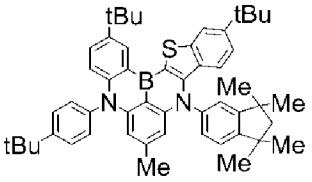
(1-2768)



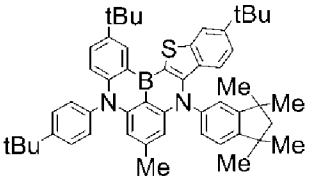
(1-2769)



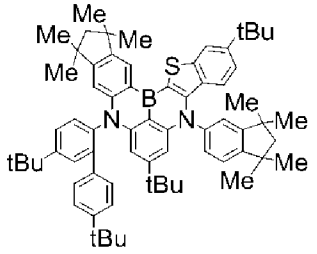
(1-2770)



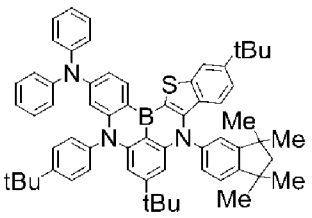
(1-2771)



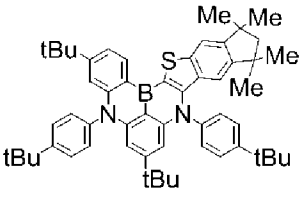
(1-2772)



(1-2773)

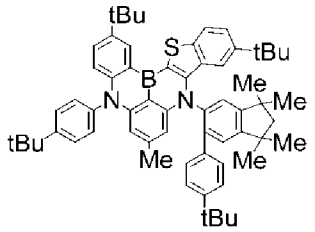


(1-2774)

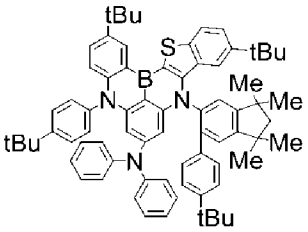


(1-2775)

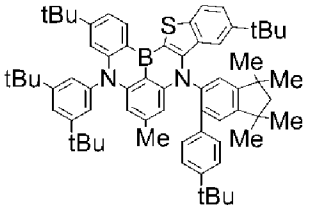
【0220】



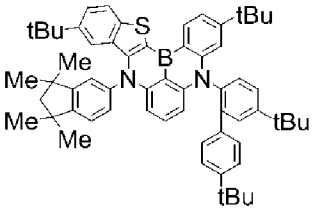
(1-2781)



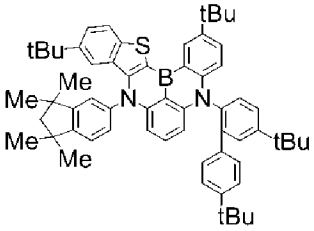
(1-2782)



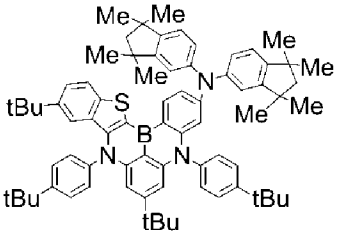
(1-2783)



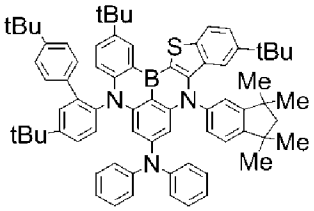
(1-2784)



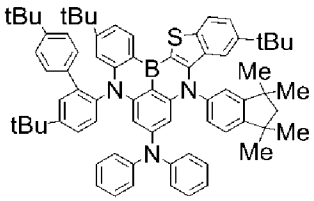
(1-2785)



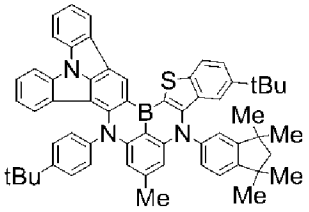
(1-2786)



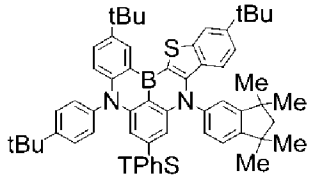
(1-2787)



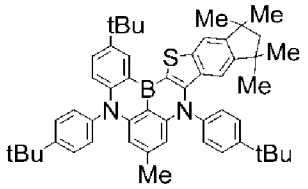
(1-2788)



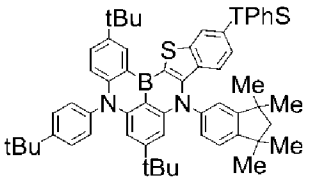
(1-2789)



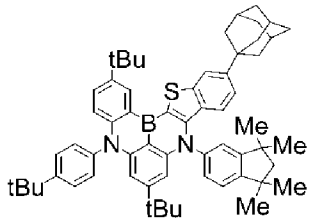
(1-2790)



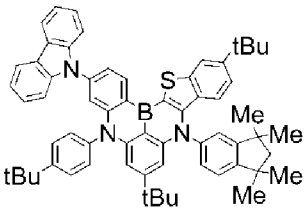
(1-2791)



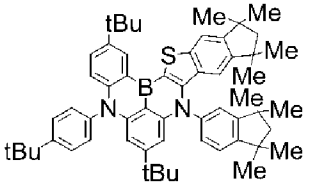
(1-2792)



(1-2793)

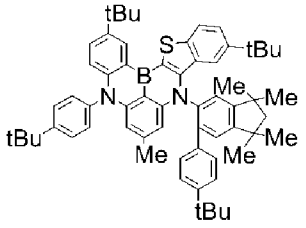


(1-2794)

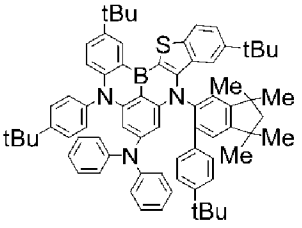


(1-2795)

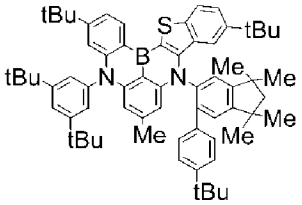
【0221】



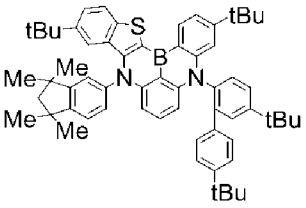
(1-2801)



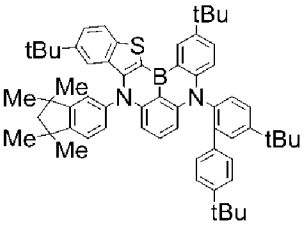
(1-2802)



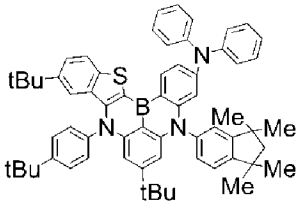
(1-2803)



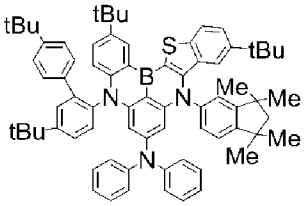
(1-2804)



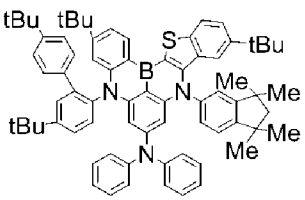
(1-2805)



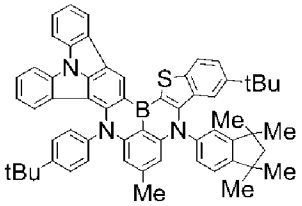
(1-2806)



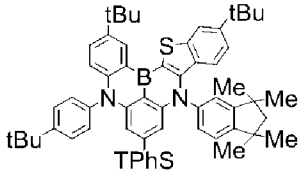
(1-2807)



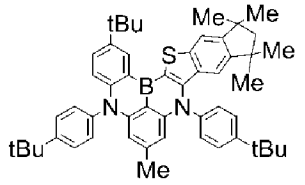
(1-2808)



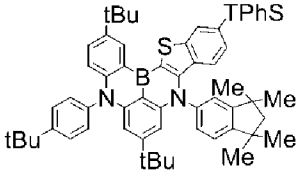
(1-2809)



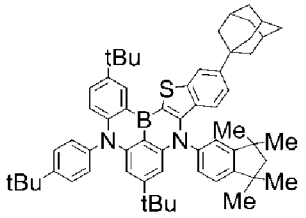
(1-2810)



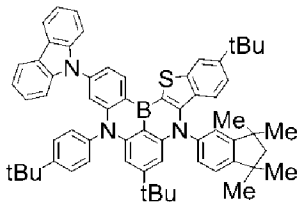
(1-2811)



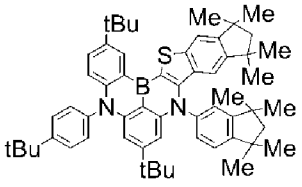
(1-2812)



(1-2813)

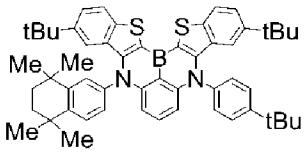


(1-2814)

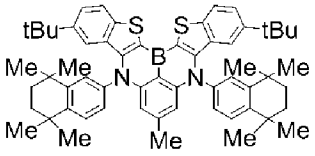


(1-2815)

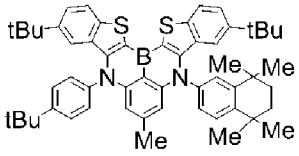
【0222】



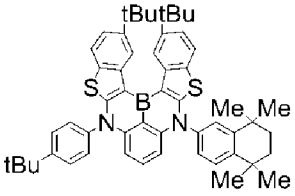
(1-2901)



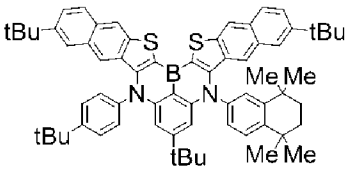
(1-2902)



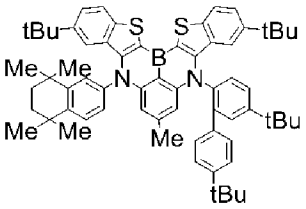
(1-2903)



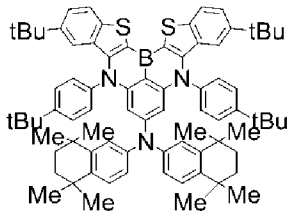
(1-2904)



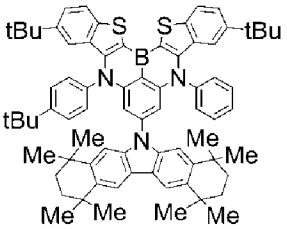
(1-2905)



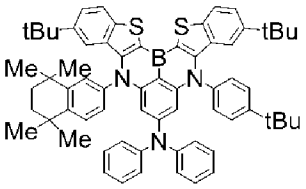
(1-2906)



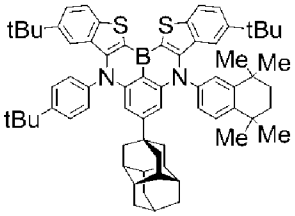
(1-2907)



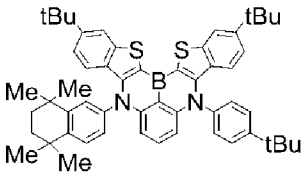
(1-2908)



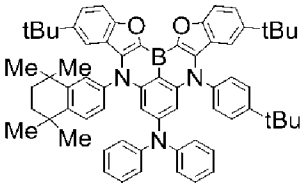
(1-2909)



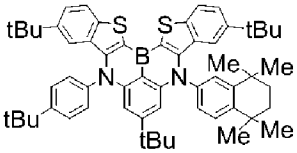
(1-2910)



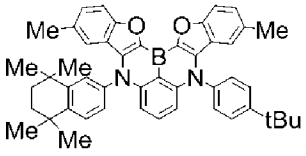
(1-2911)



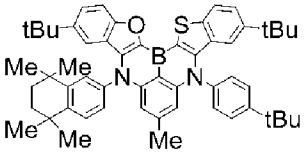
(1-2912)



(1-2913)

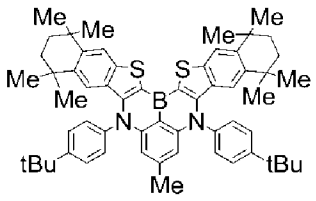


(1-2914)

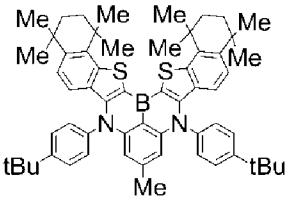


(1-2915)

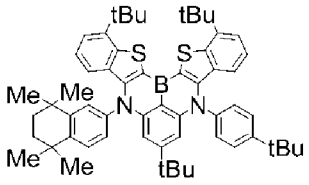
【0223】



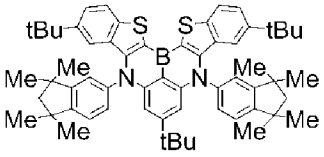
(1-2921)



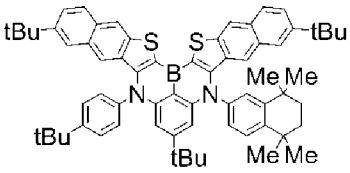
(1-2922)



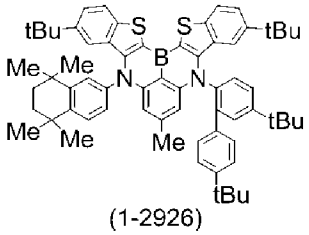
(1-2923)



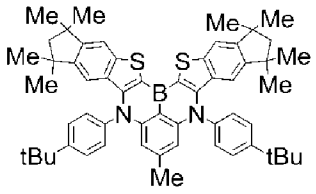
(1-2924)



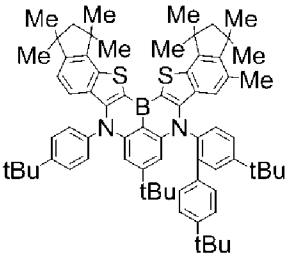
(1-2925)



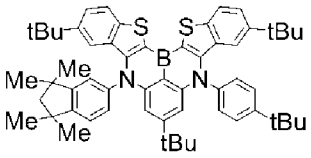
(1-2926)



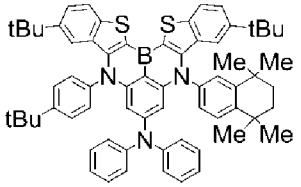
(1-2927)



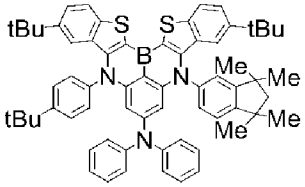
(1-2928)



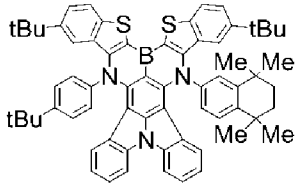
(1-2929)



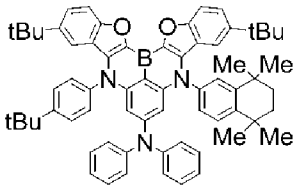
(1-2930)



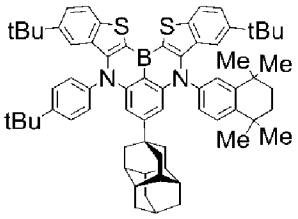
(1-2931)



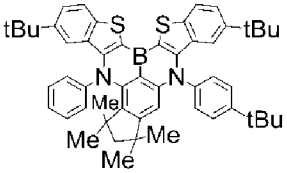
(1-2932)



(1-2933)

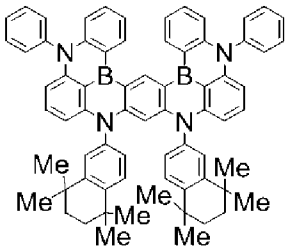


(1-2934)

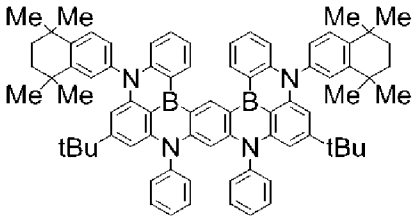


(1-2935)

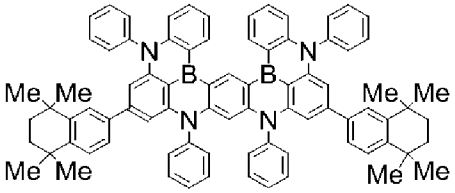
【0224】



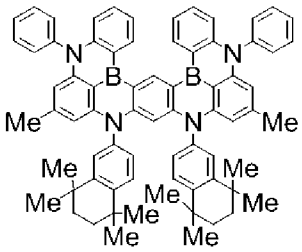
(1-3001)



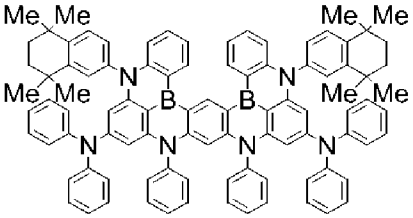
(1-3002)



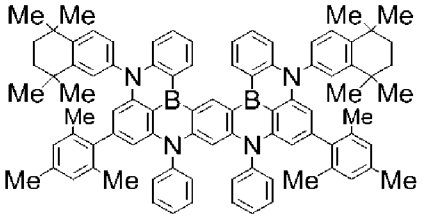
(1-3003)



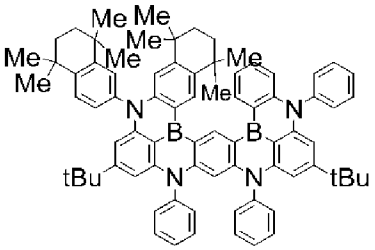
(1-3004)



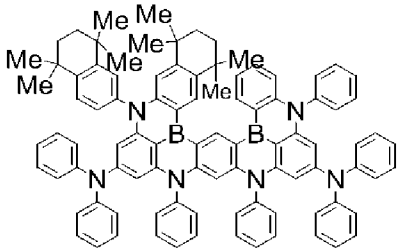
(1-3005)



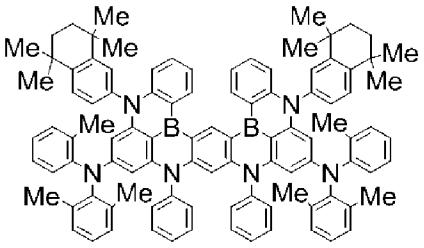
(1-3006)



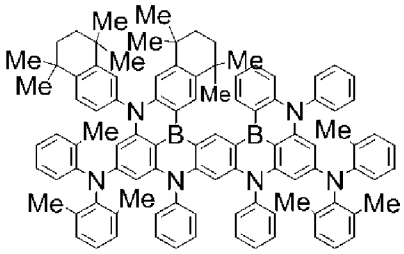
(1-3007)



(1-3008)

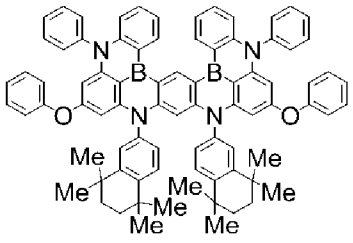


(1-3009)

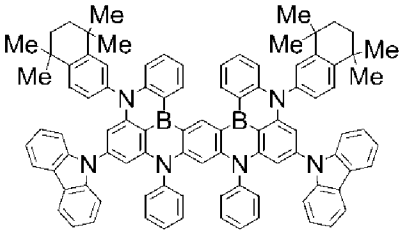


(1-3010)

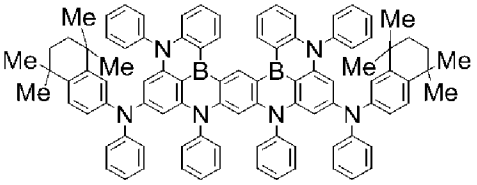
【0225】



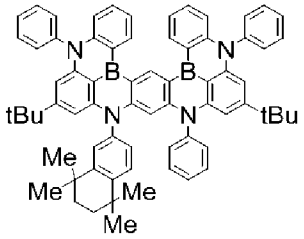
(1-3021)



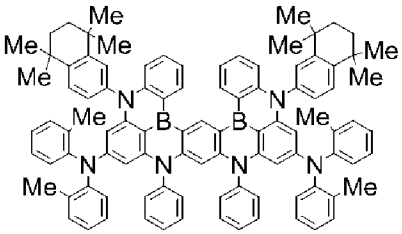
(1-3022)



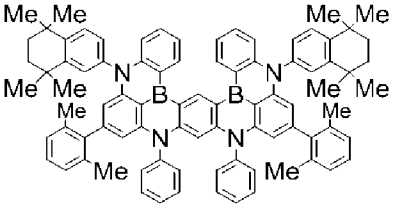
(1-3023)



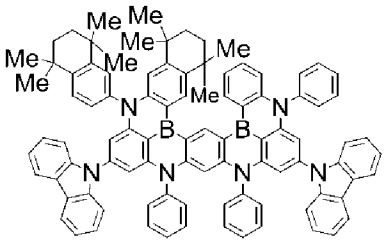
(1-3024)



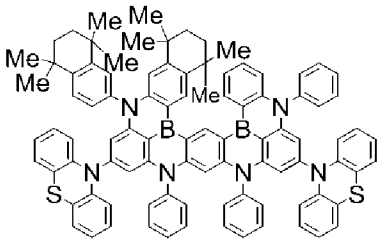
(1-3025)



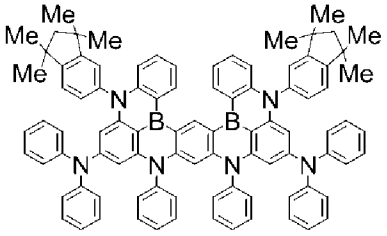
(1-3026)



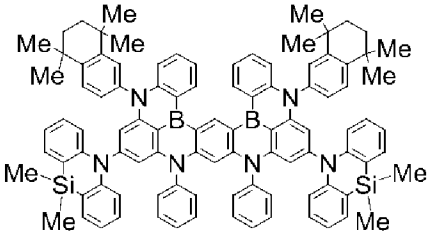
(1-3027)



(1-3028)

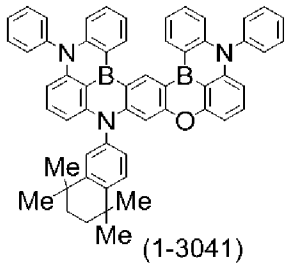


(1-3029)

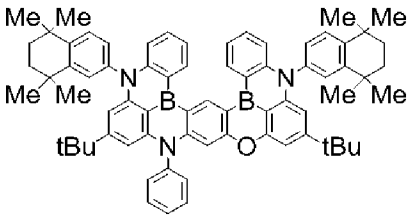


(1-3030)

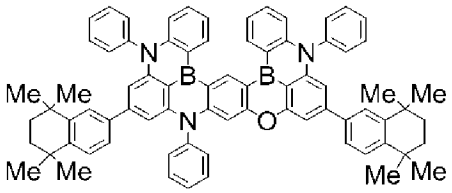
【0226】



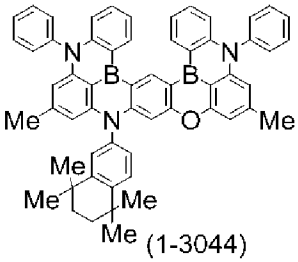
(1-3041)



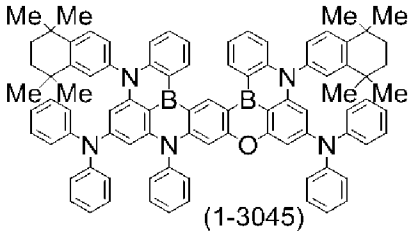
(1-3042)



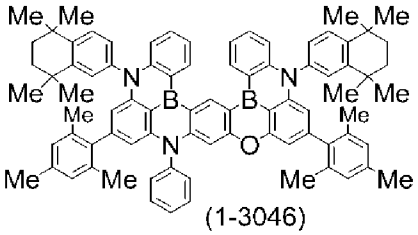
(1-3043)



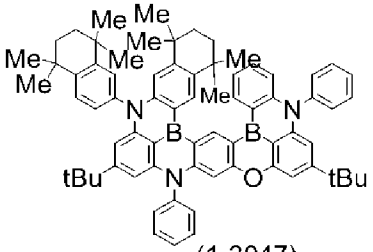
(1-3044)



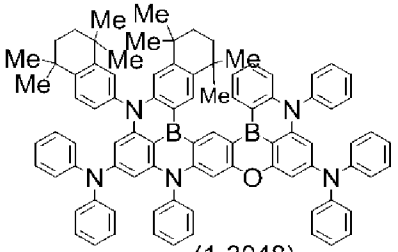
(1-3045)



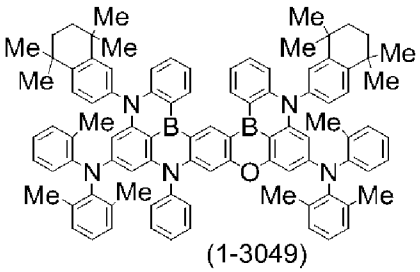
(1-3046)



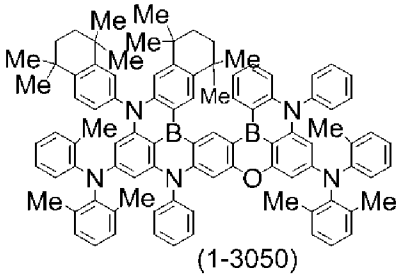
(1-3047)



(1-3048)

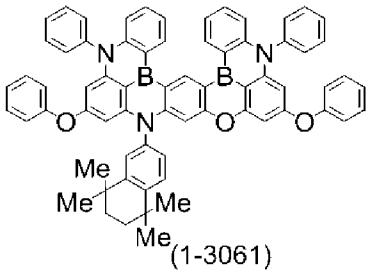


(1-3049)

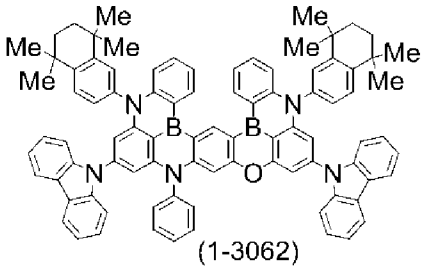


(1-3050)

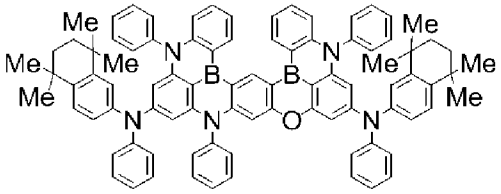
【0227】



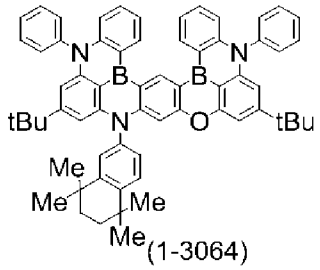
(1-3061)



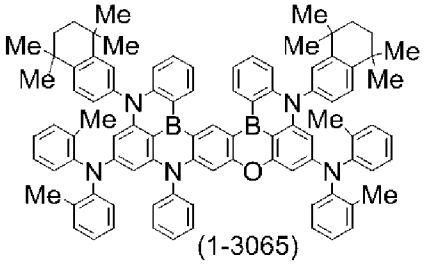
(1-3062)



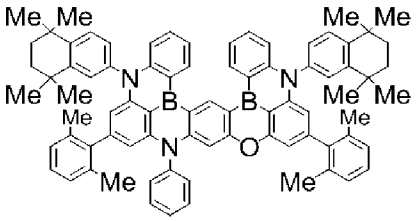
(1-3063)



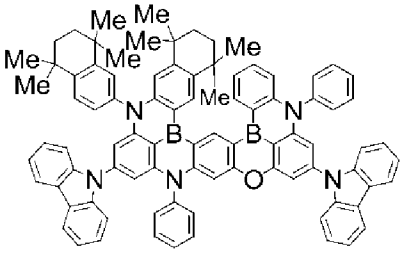
(1-3064)



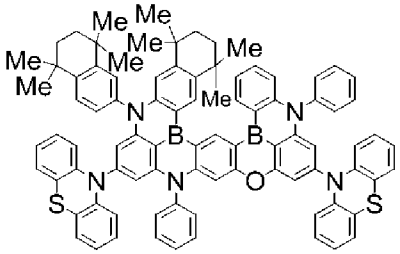
(1-3065)



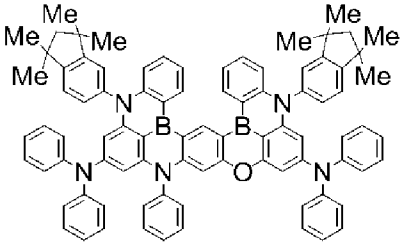
(1-3066)



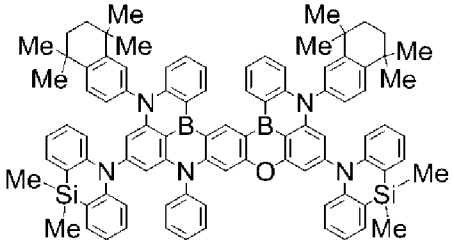
(1-3067)



(1-3068)

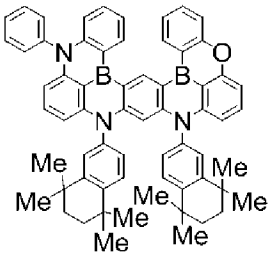


(1-3069)

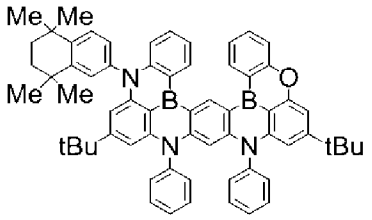


(1-3070)

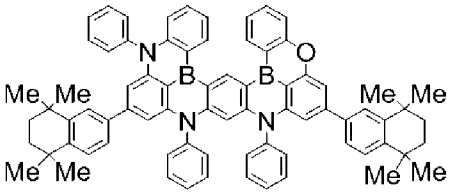
【0228】



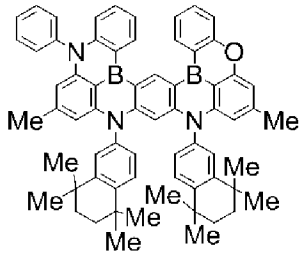
(1-3081)



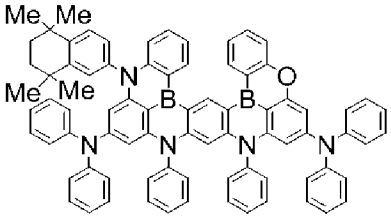
(1-3082)



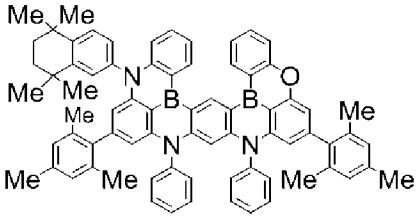
(1-3083)



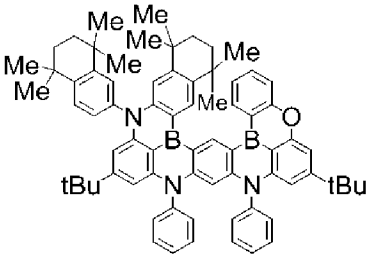
(1-3084)



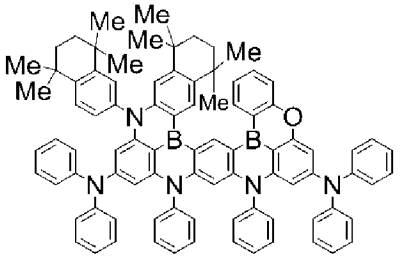
(1-3085)



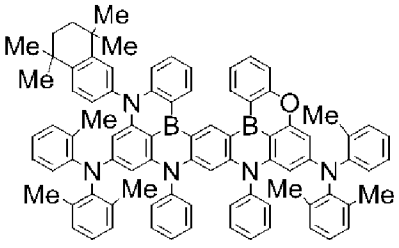
(1-3086)



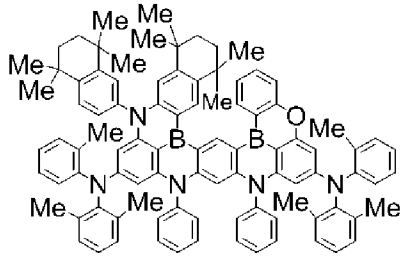
(1-3087)



(1-3088)

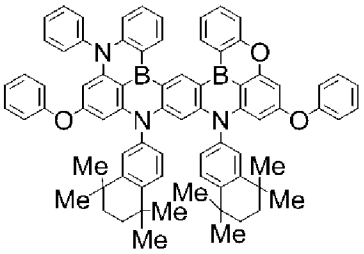


(1-3089)

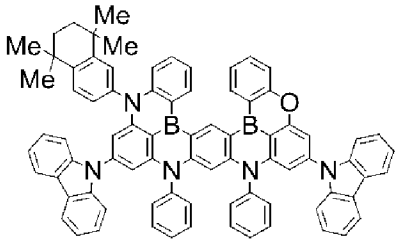


(1-3090)

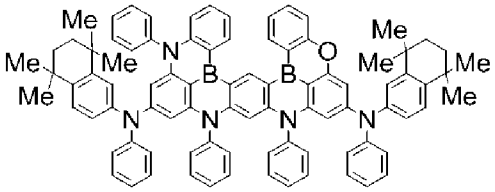
【0229】



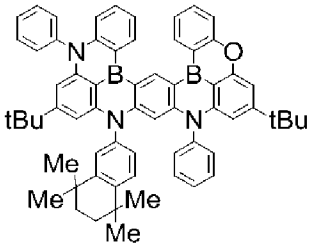
(1-3101)



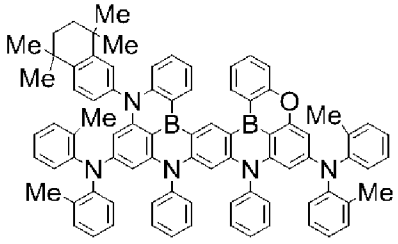
(1-3102)



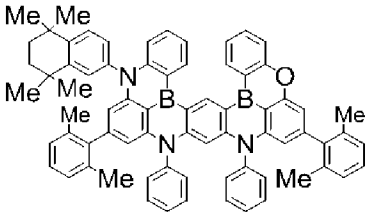
(1-3103)



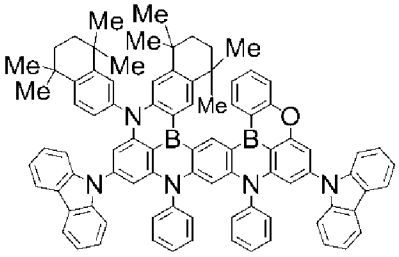
(1-3104)



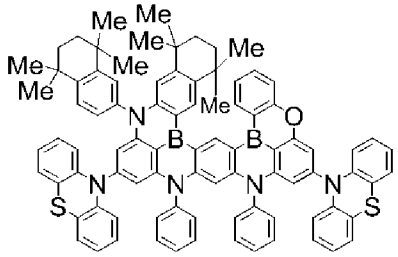
(1-3105)



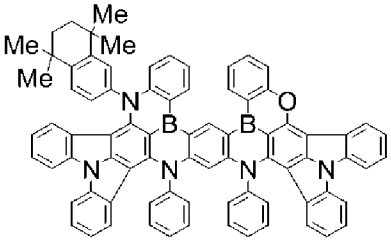
(1-3106)



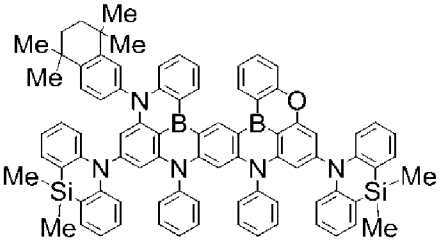
(1-3107)



(1-3108)

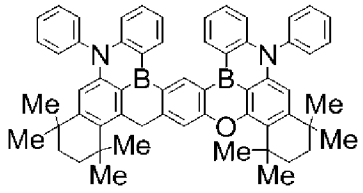


(1-3109)

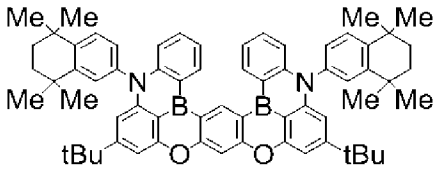


(1-3110)

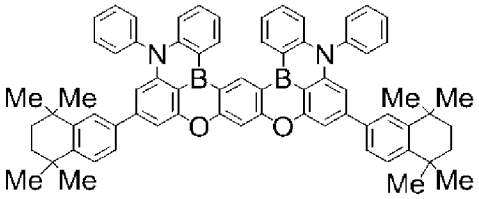
【0230】



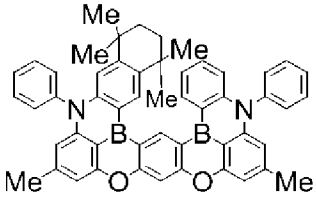
(1-3121)



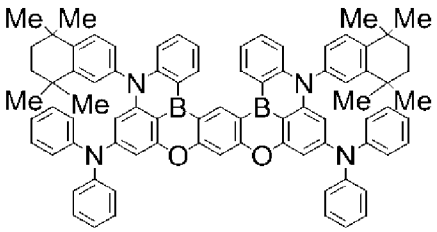
(1-3122)



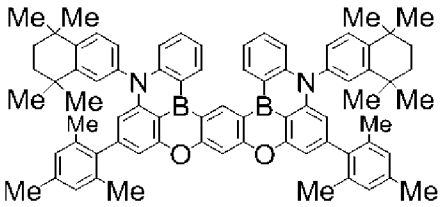
(1-3123)



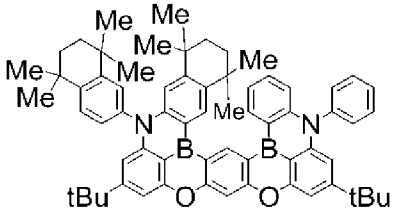
(1-3124)



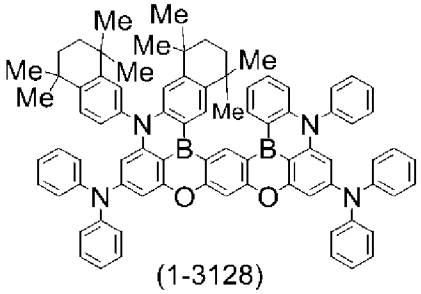
(1-3125)



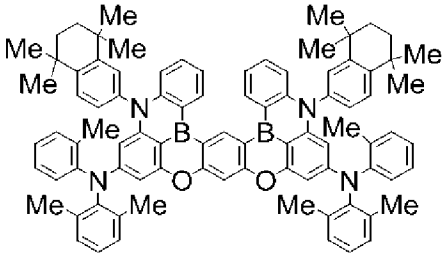
(1-3126)



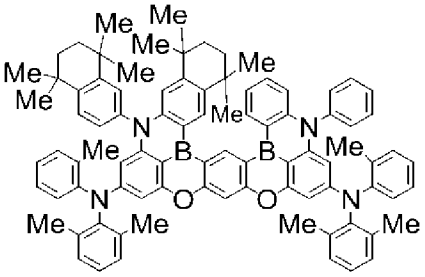
(1-3127)



(1-3128)

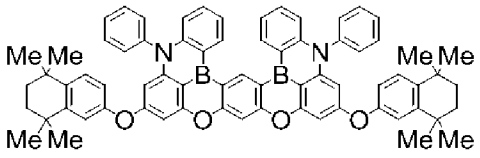


(1-3129)

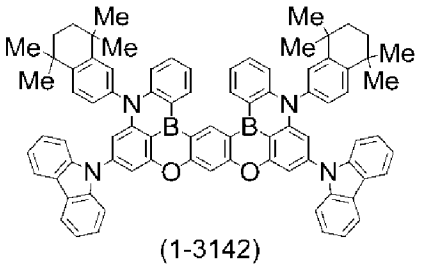


(1-3130)

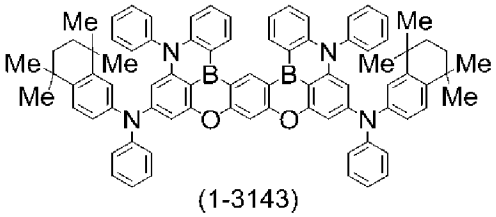
【0231】



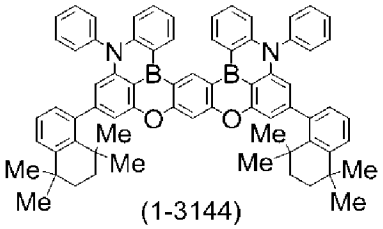
(1-3141)



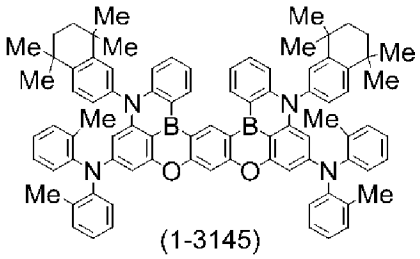
(1-3142)



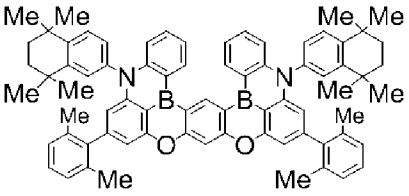
(1-3143)



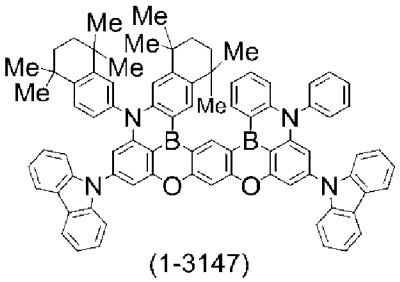
(1-3144)



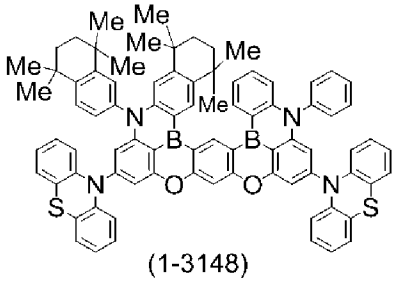
(1-3145)



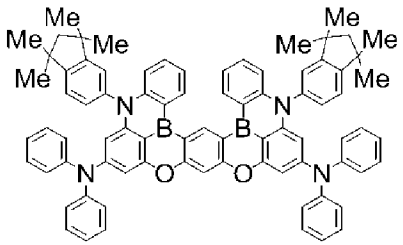
(1-3146)



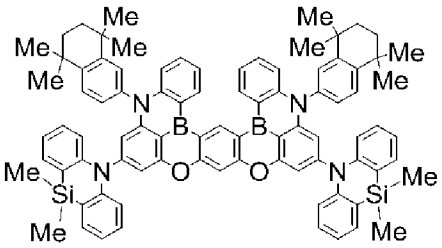
(1-3147)



(1-3148)

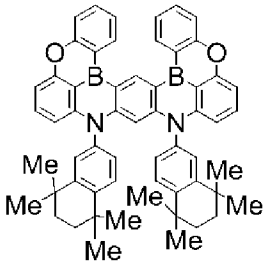


(1-3149)

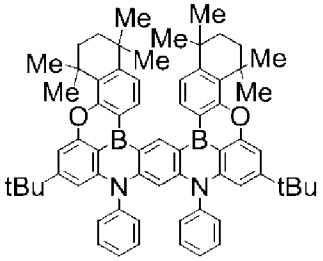


(1-3150)

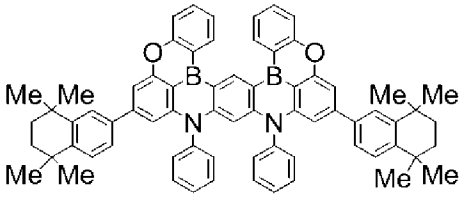
【0232】



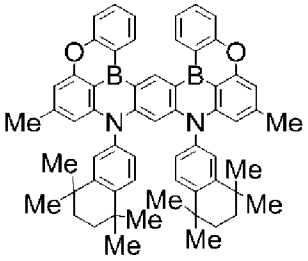
(1-3161)



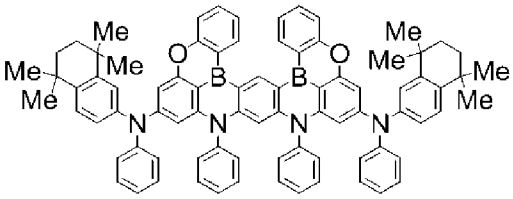
(1-3162)



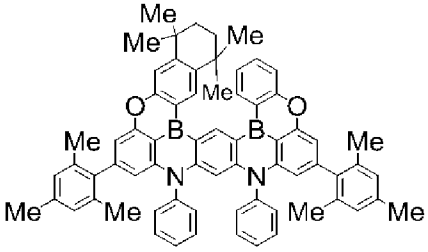
(1-3163)



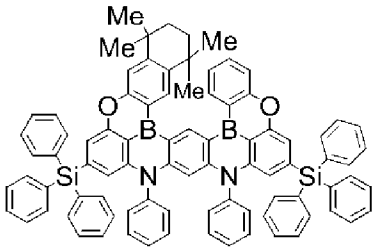
(1-3164)



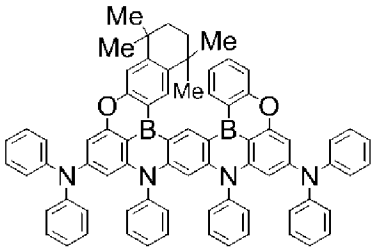
(1-3165)



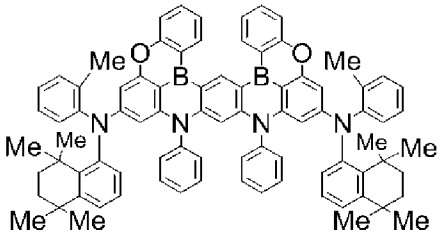
(1-3166)



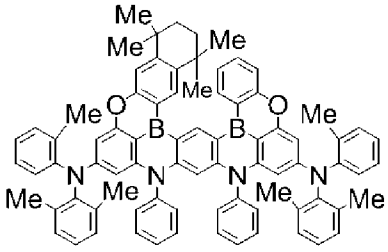
(1-3167)



(1-3168)

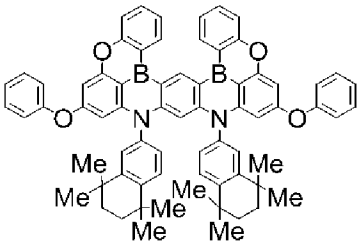


(1-3169)

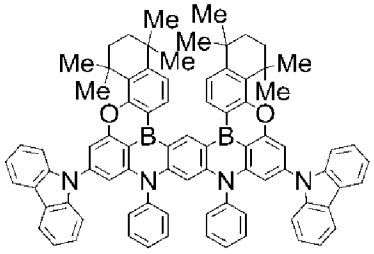


(1-3170)

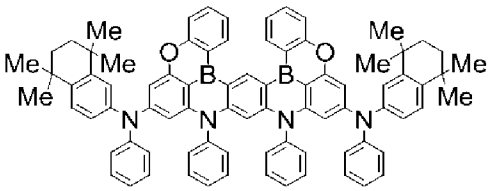
【0233】



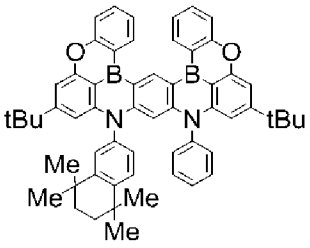
(1-3181)



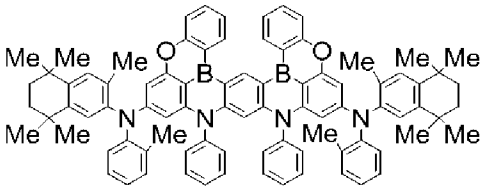
(1-3182)



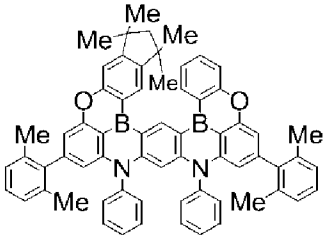
(1-3183)



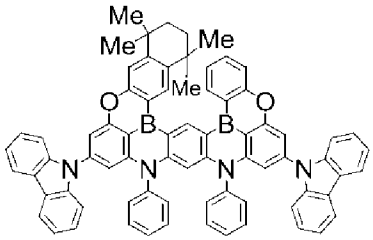
(1-3184)



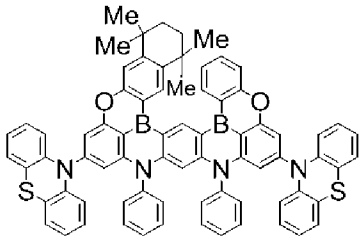
(1-3185)



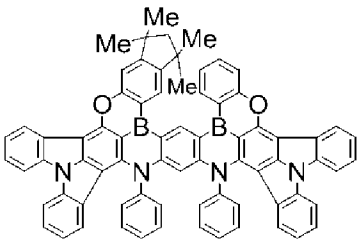
(1-3186)



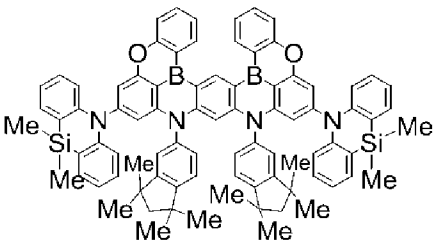
(1-3187)



(1-3188)

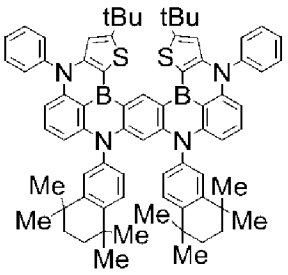


(1-3189)

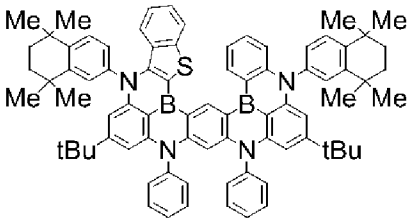


(1-3190)

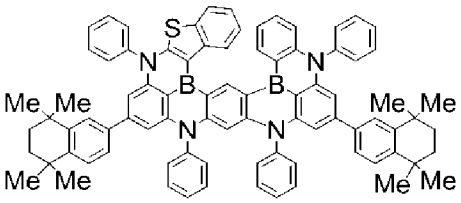
【0234】



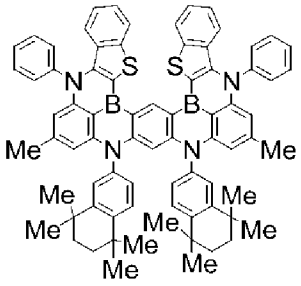
(1-3301)



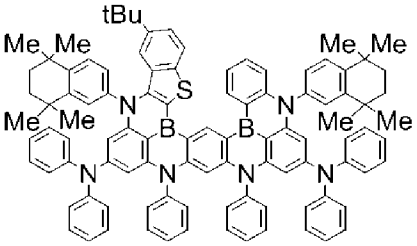
(1-3302)



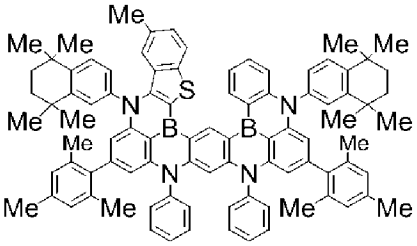
(1-3303)



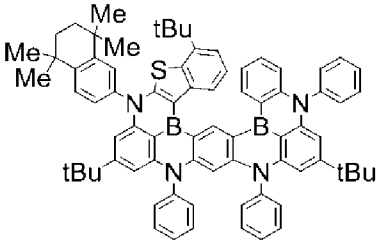
(1-3304)



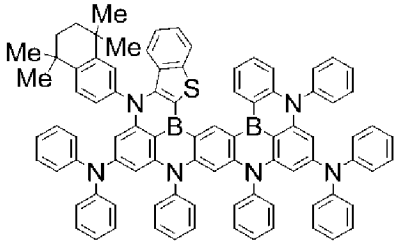
(1-3305)



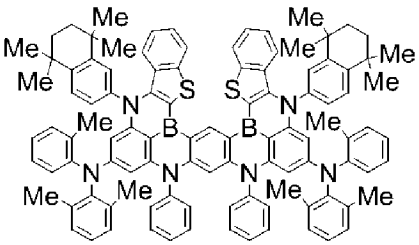
(1-3306)



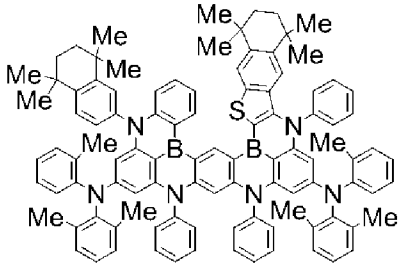
(1-3307)



(1-3308)

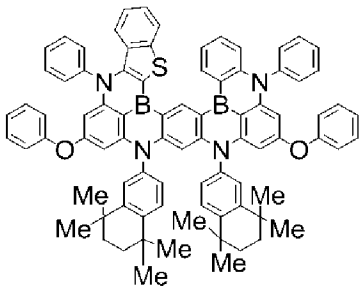


(1-3309)

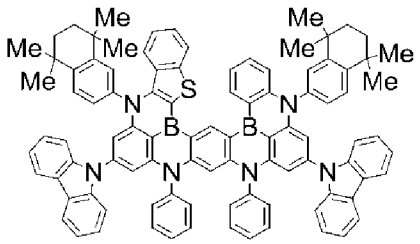


(1-3310)

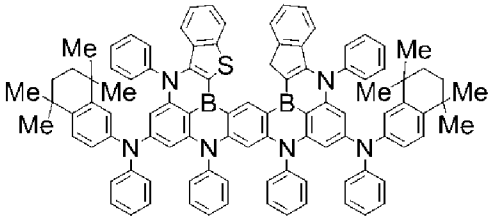
【0235】



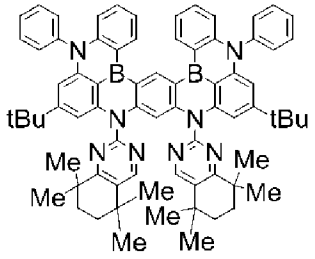
(1-3321)



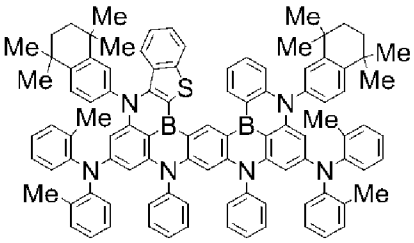
(1-3322)



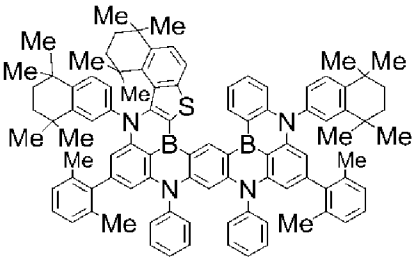
(1-3323)



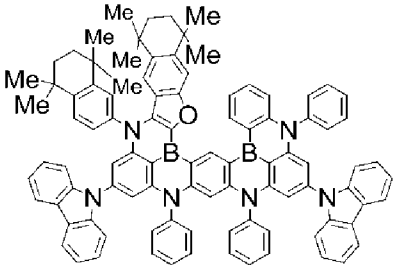
(1-3324)



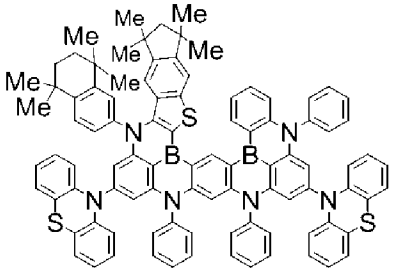
(1-3325)



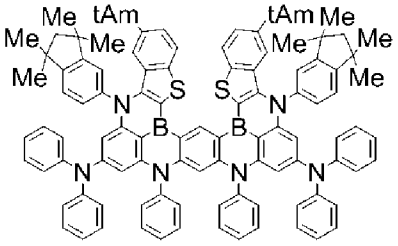
(1-3326)



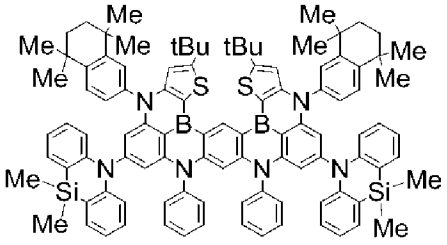
(1-3327)



(1-3328)

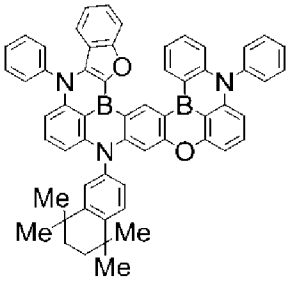


(1-3329)

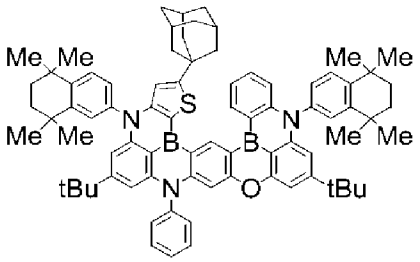


(1-3330)

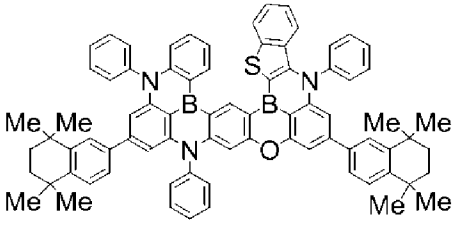
【0236】



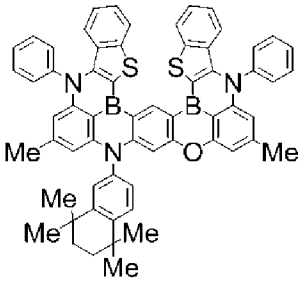
(1-3341)



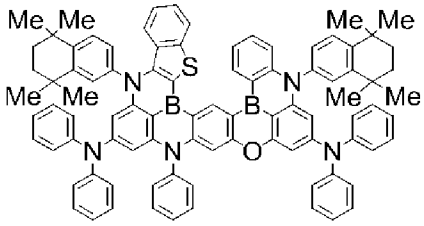
(1-3342)



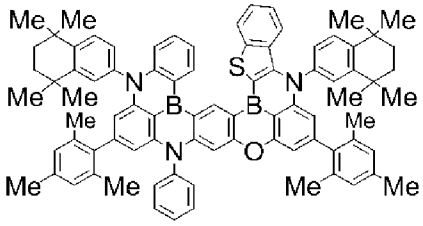
(1-3343)



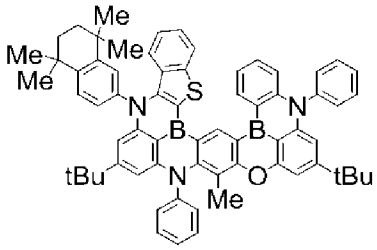
(1-3344)



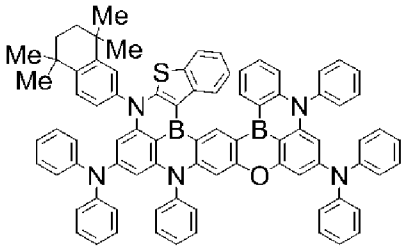
(1-3345)



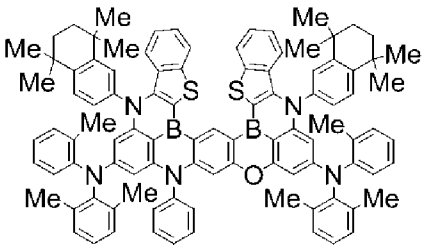
(1-3346)



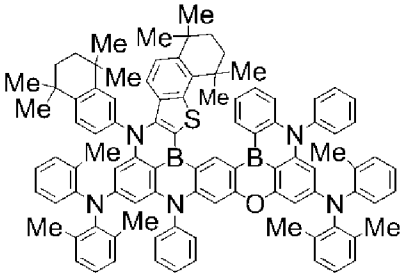
(1-3347)



(1-3348)

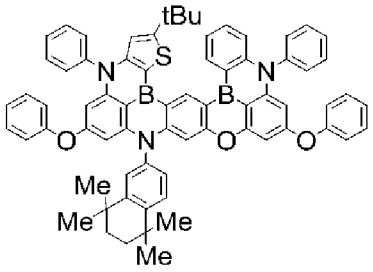


(1-3349)

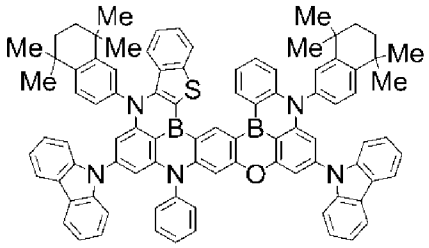


(1-3350)

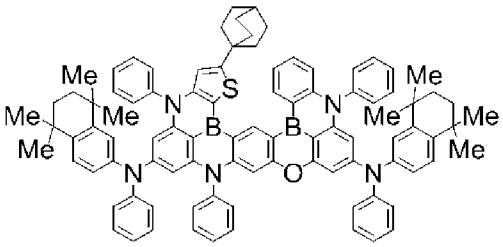
【0237】



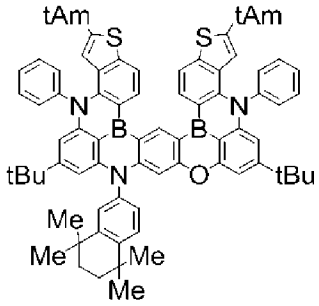
(1-3361)



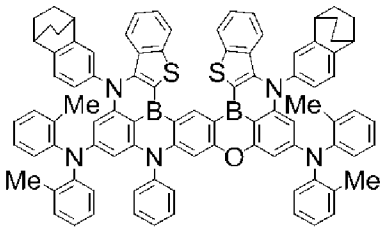
(1-3362)



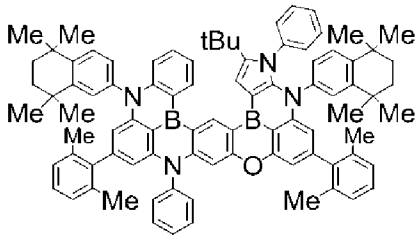
(1-3363)



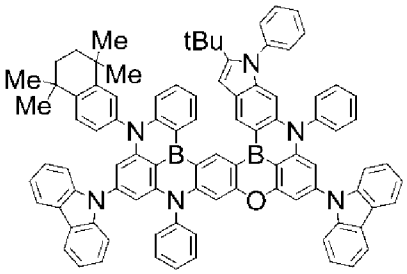
(1-3364)



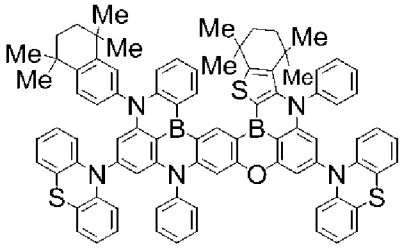
(1-3365)



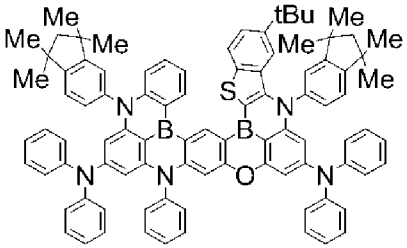
(1-3366)



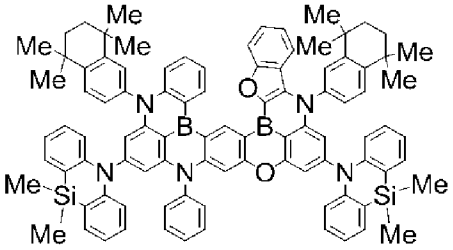
(1-3367)



(1-3368)

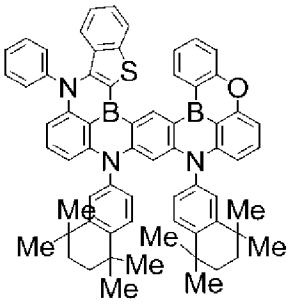


(1-3369)

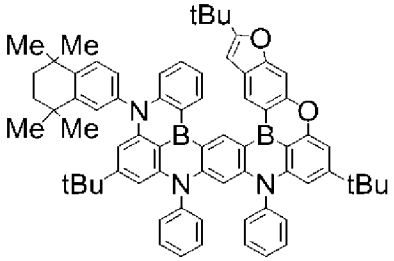


(1-3370)

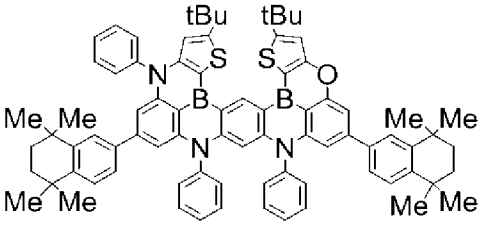
【0238】



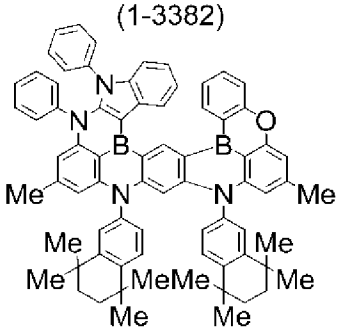
(1-3381)



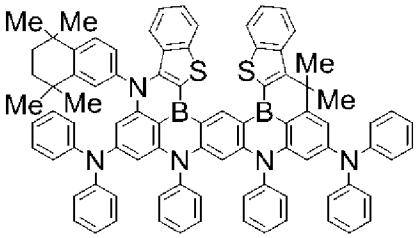
(1-3382)



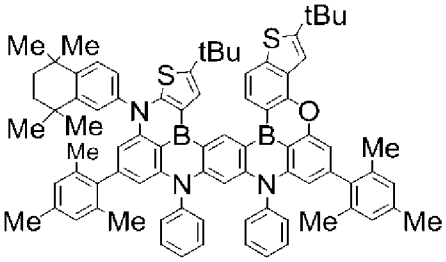
(1-3383)



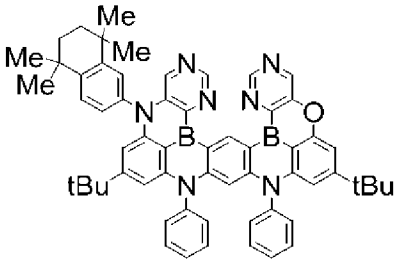
(1-3384)



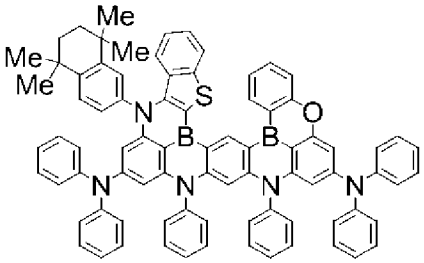
(1-3385)



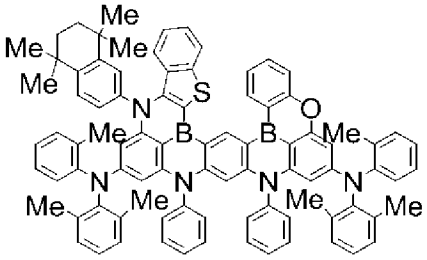
(1-3386)



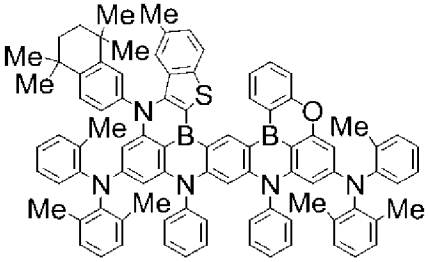
(1-3387)



(1-3388)

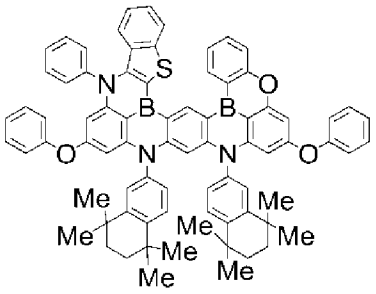


(1-3389)

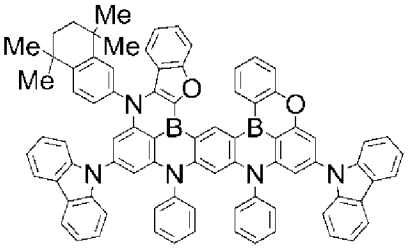


(1-3390)

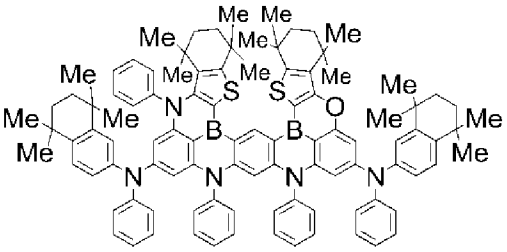
【0239】



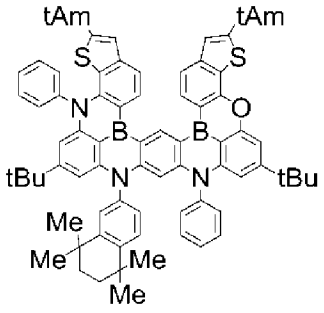
(1-3401)



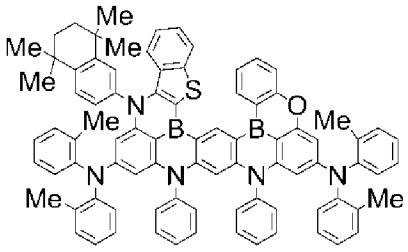
(1-3402)



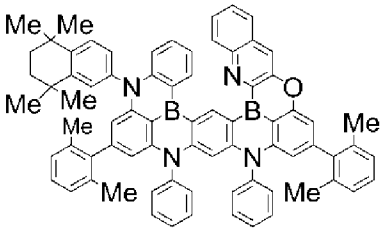
(1-3403)



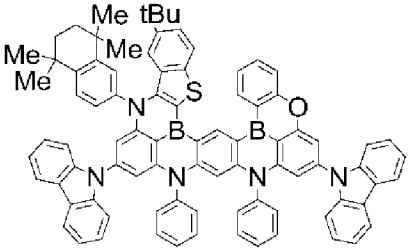
(1-3404)



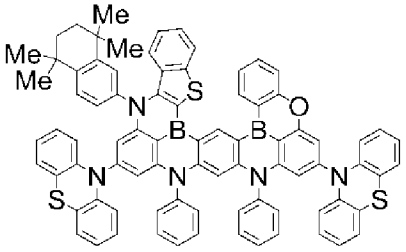
(1-3405)



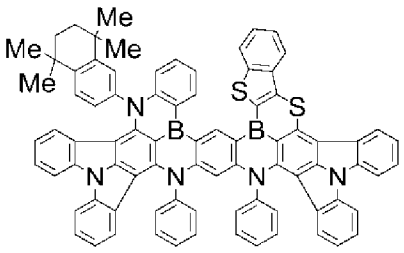
(1-3406)



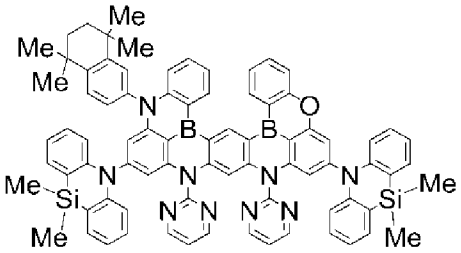
(1-3407)



(1-3408)

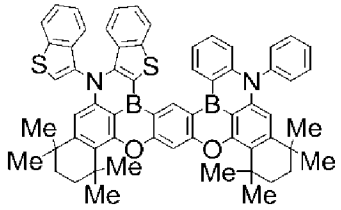


(1-3409)

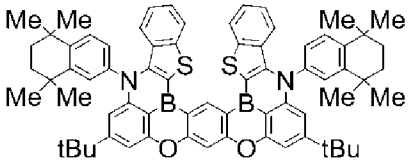


(1-3410)

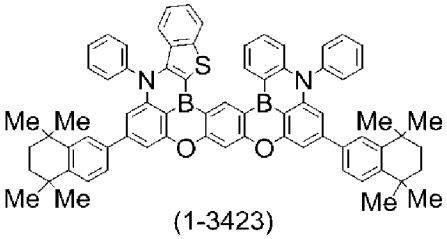
【0240】



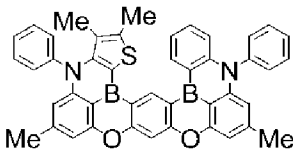
(1-3421)



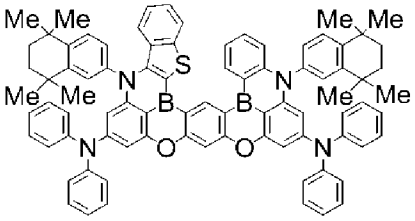
(1-3422)



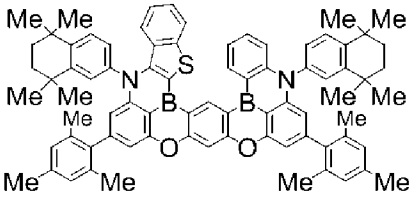
(1-3423)



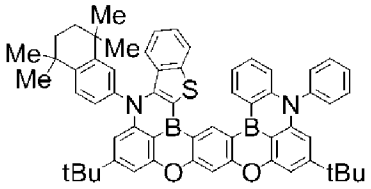
(1-3424)



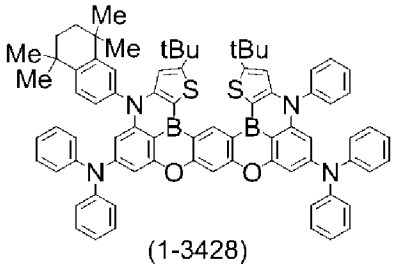
(1-3425)



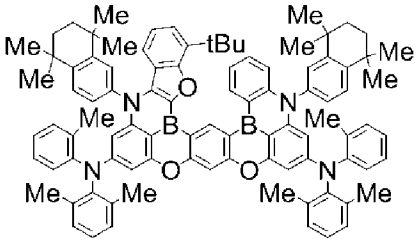
(1-3426)



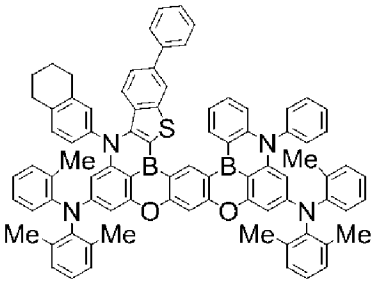
(1-3427)



(1-3428)

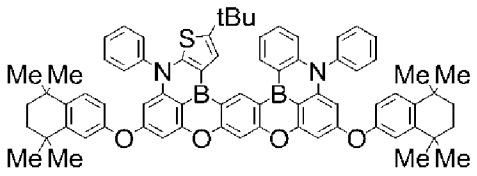


(1-3429)

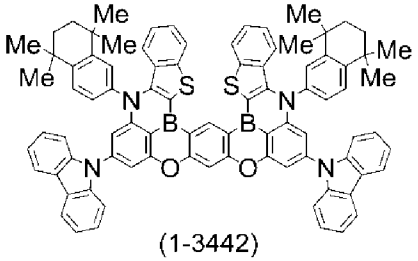


(1-3430)

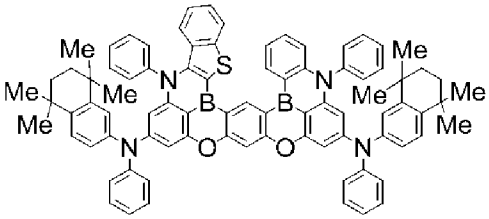
【0241】



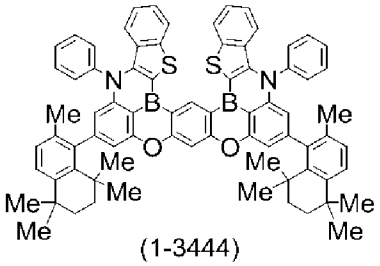
(1-3441)



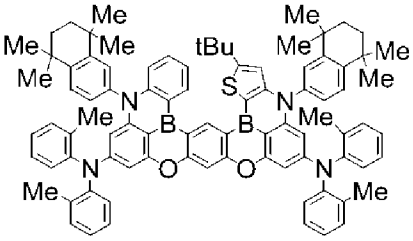
(1-3442)



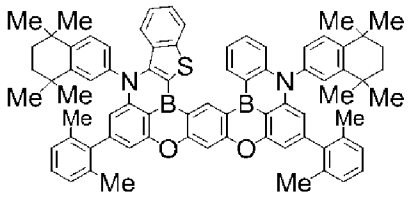
(1-3443)



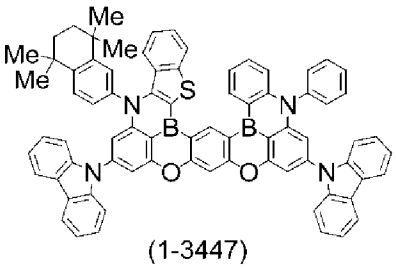
(1-3444)



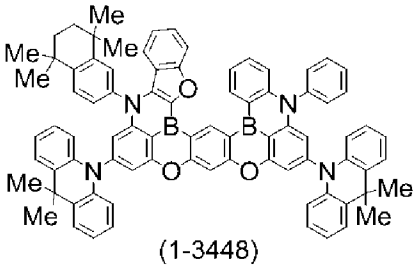
(1-3445)



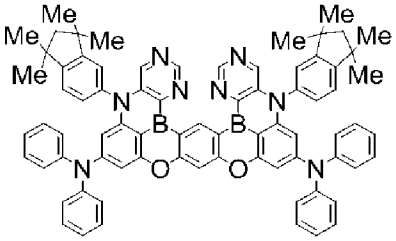
(1-3446)



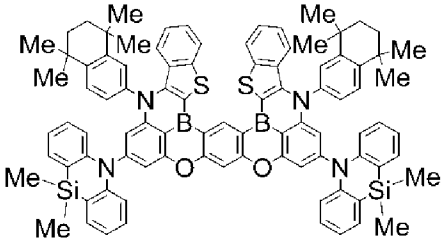
(1-3447)



(1-3448)

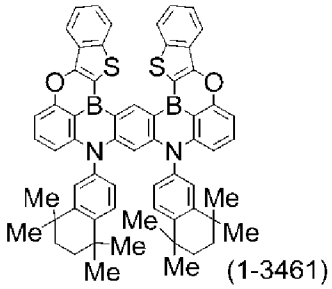


(1-3449)

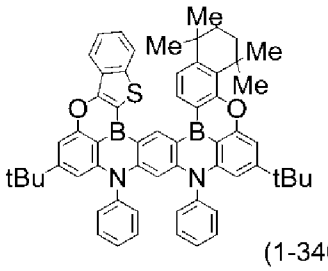


(1-3450)

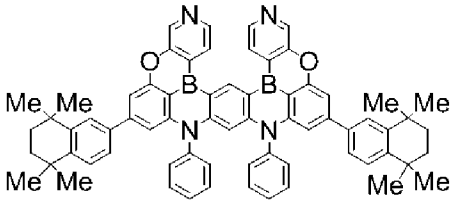
【0242】



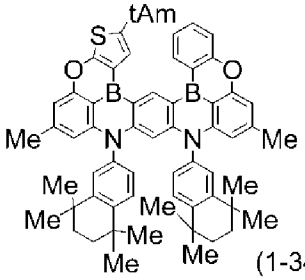
(1-3461)



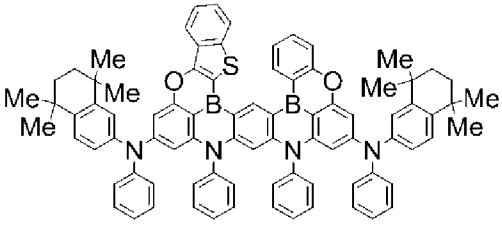
(1-3462)



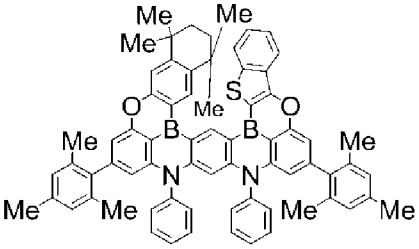
(1-3463)



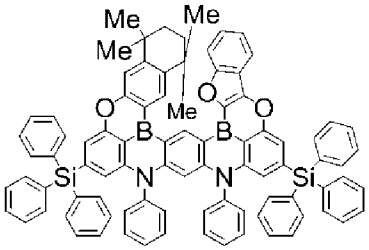
(1-3464)



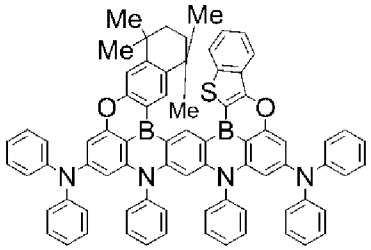
(1-3465)



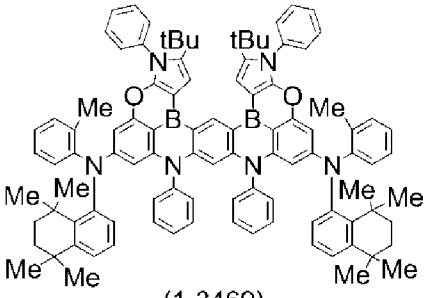
(1-3466)



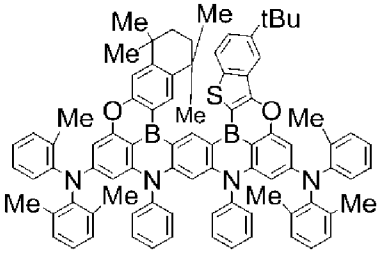
(1-3467)



(1-3468)

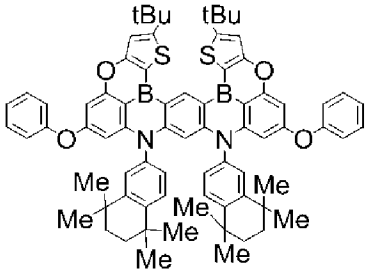


(1-3469)

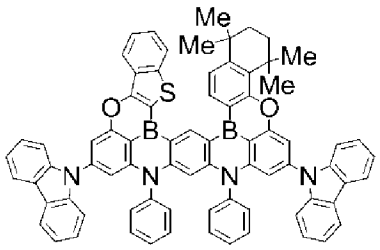


(1-3470)

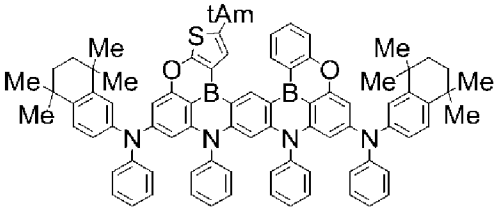
【0243】



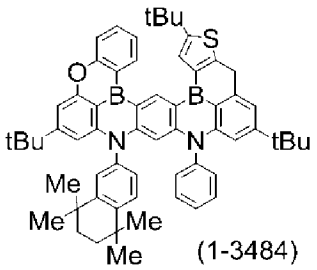
(1-3481)



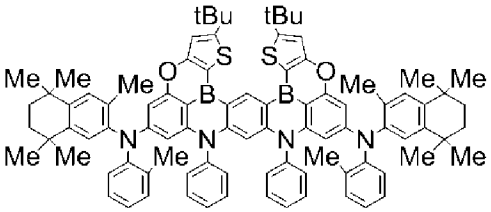
(1-3482)



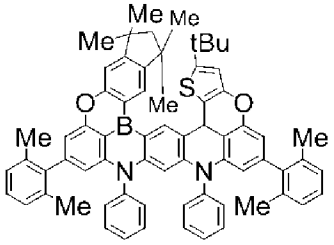
(1-3483)



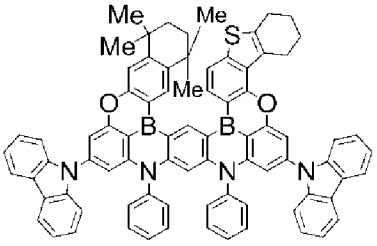
(1-3484)



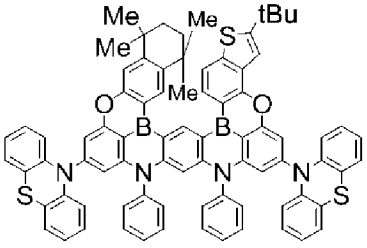
(1-3485)



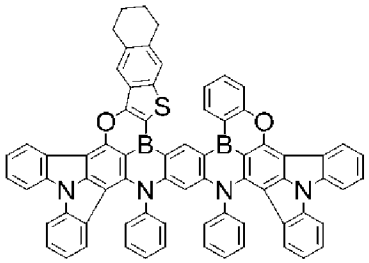
(1-3486)



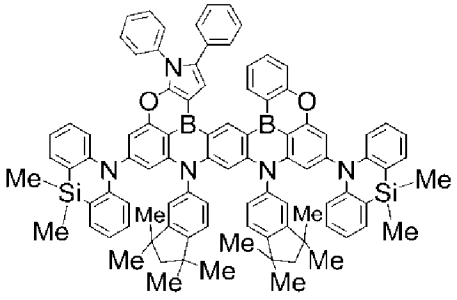
(1-3487)



(1-3488)

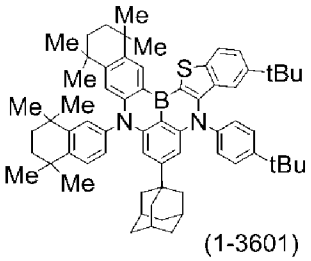


(1-3489)

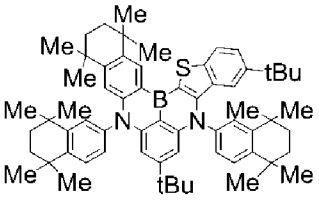


(1-3490)

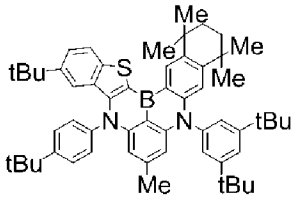
【0244】



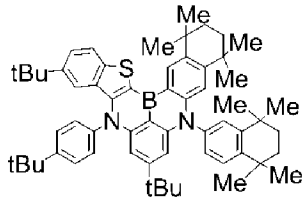
(1-3601)



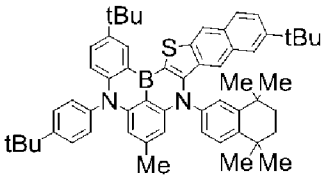
(1-3602)



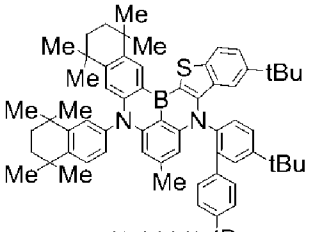
(1-3603)



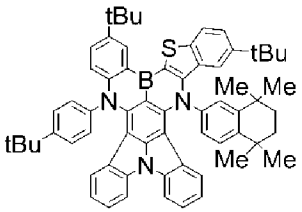
(1-3604)



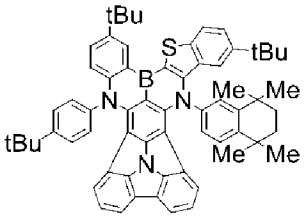
(1-3605)



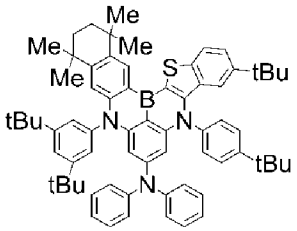
(1-3606)



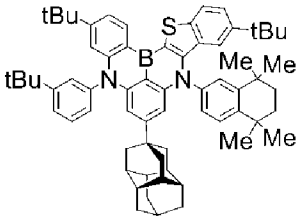
(1-3607)



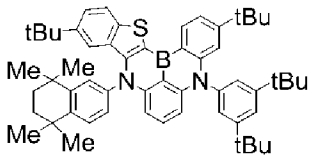
(1-3608)



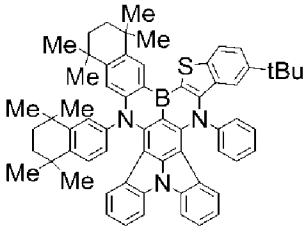
(1-3609)



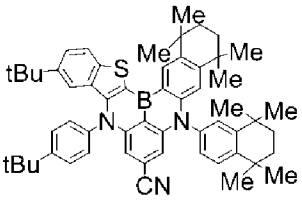
(1-3610)



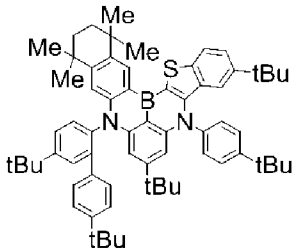
(1-3611)



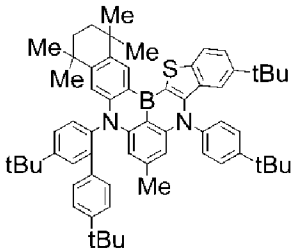
(1-3612)



(1-3613)

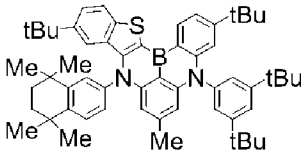


(1-3614)

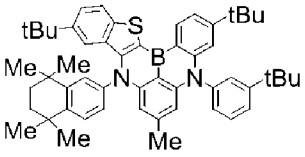


(1-3615)

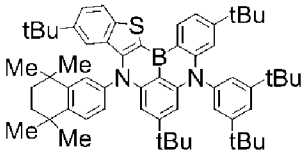
【0245】



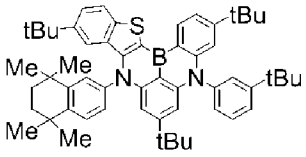
(1-3621)



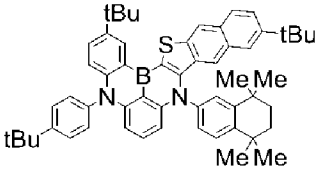
(1-3622)



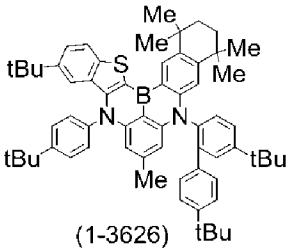
(1-3623)



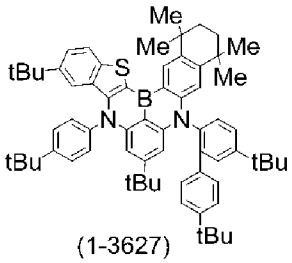
(1-3624)



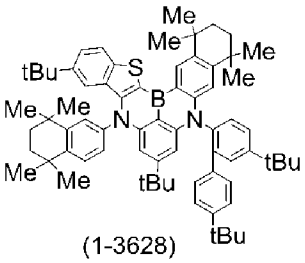
(1-3625)



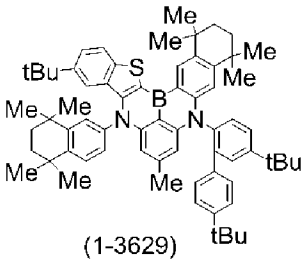
(1-3626)



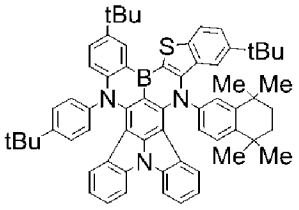
(1-3627)



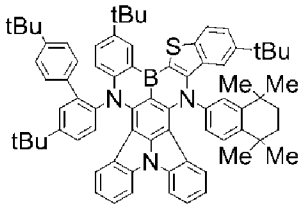
(1-3628)



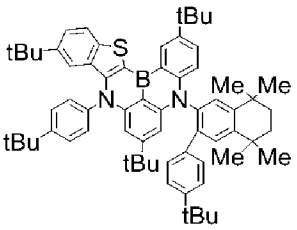
(1-3629)



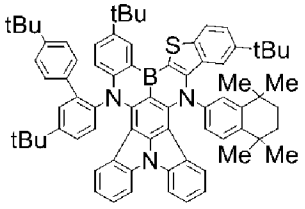
(1-3630)



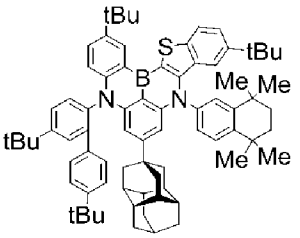
(1-3631)



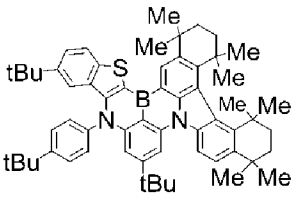
(1-3632)



(1-3633)

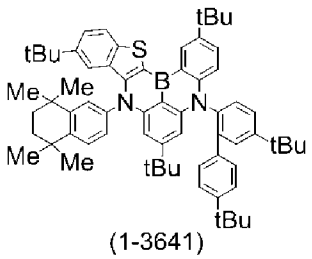


(1-3634)

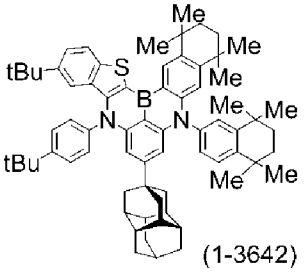


(1-3635)

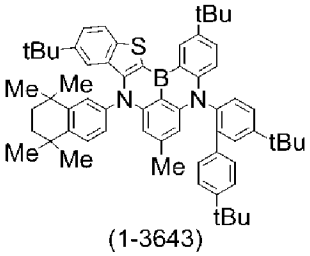
【0246】



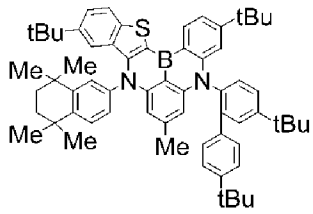
(1-3641)



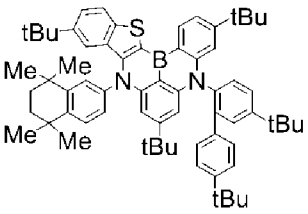
(1-3642)



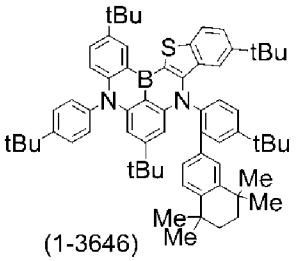
(1-3643)



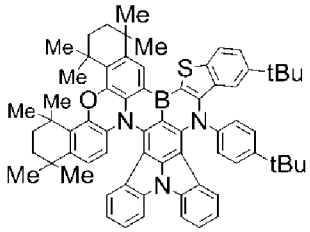
(1-3644)



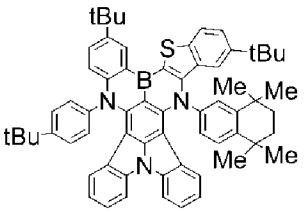
(1-3645)



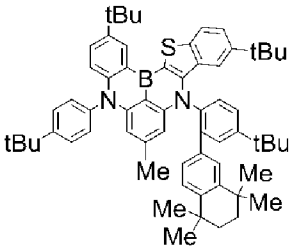
(1-3646)



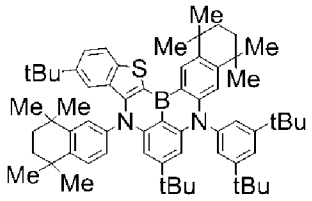
(1-3647)



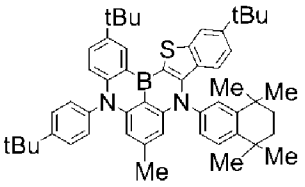
(1-3648)



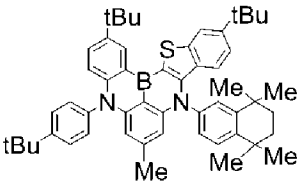
(1-3649)



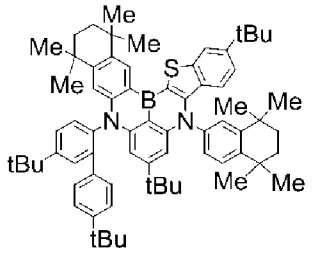
(1-3650)



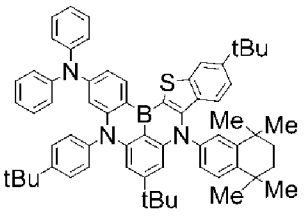
(1-3651)



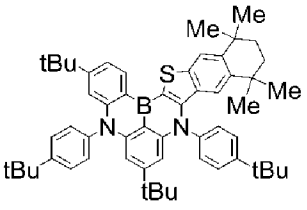
(1-3652)



(1-3653)

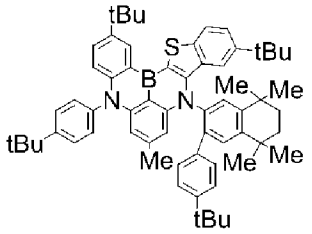


(1-3654)

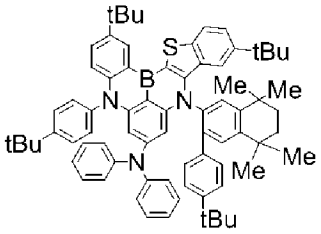


(1-3655)

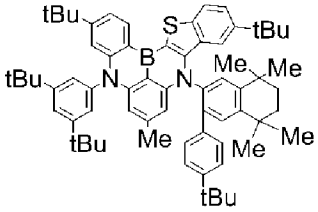
【0247】



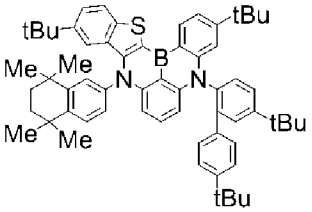
(1-3661)



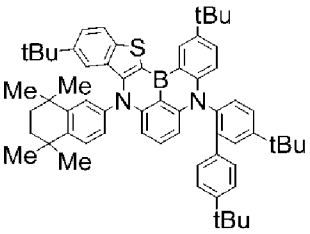
(1-3662)



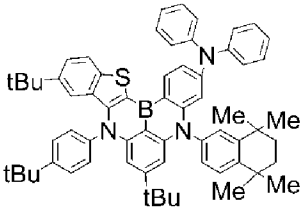
(1-3663)



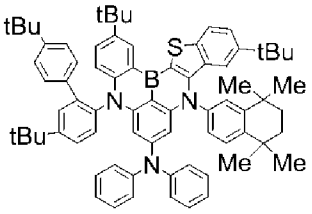
(1-3664)



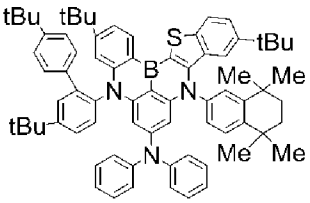
(1-3665)



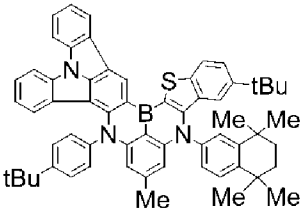
(1-3666)



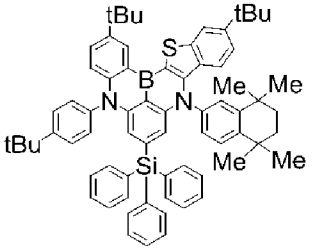
(1-3667)



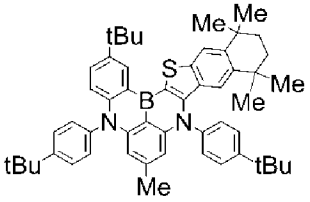
(1-3668)



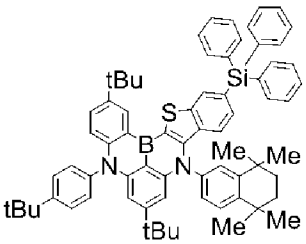
(1-3669)



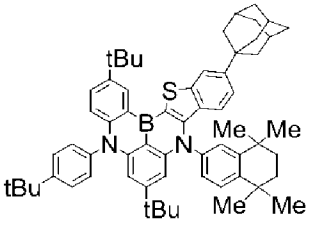
(1-3670)



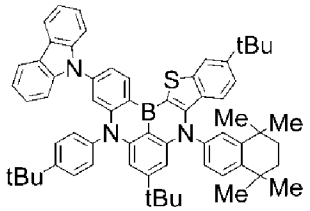
(1-3671)



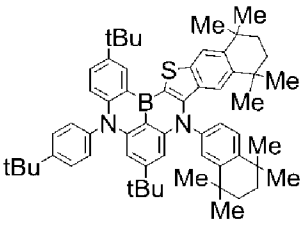
(1-3672)



(1-3673)

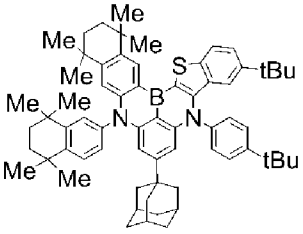


(1-3674)

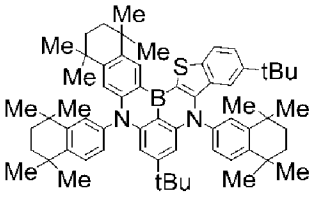


(1-3675)

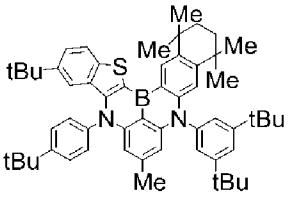
【0248】



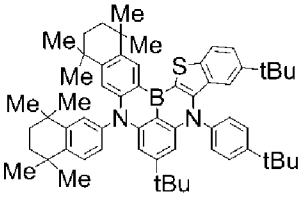
(1-3681)



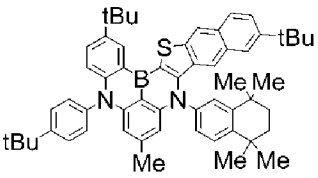
(1-3682)



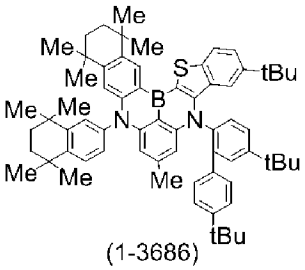
(1-3683)



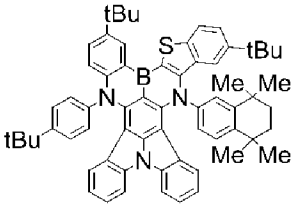
(1-3684)



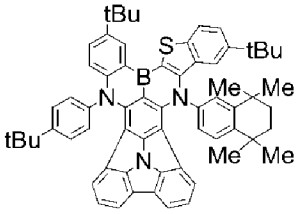
(1-3685)



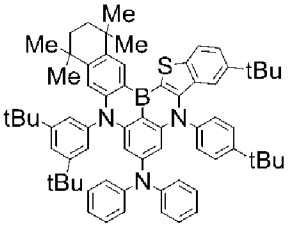
(1-3686)



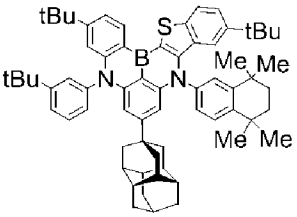
(1-3687)



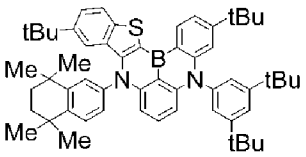
(1-3688)



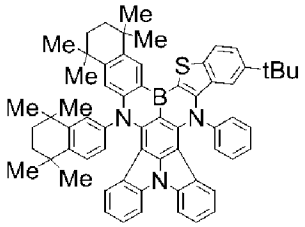
(1-3689)



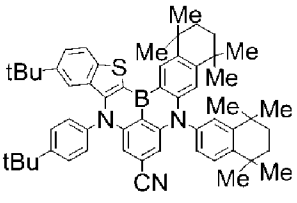
(1-3690)



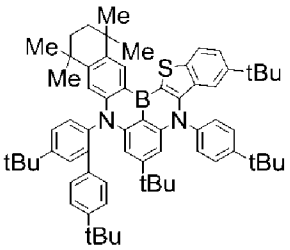
(1-3691)



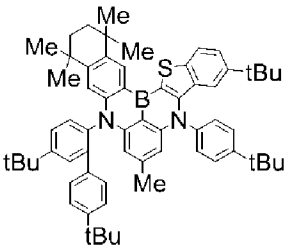
(1-3692)



(1-3693)

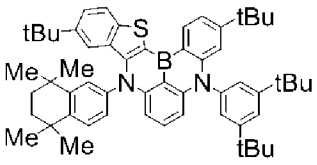


(1-3694)

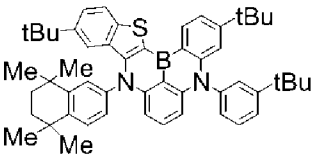


(1-3695)

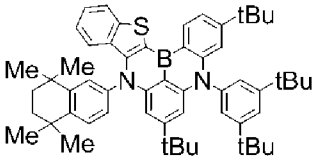
【0249】



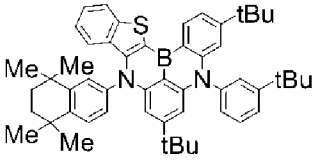
(1-3701)



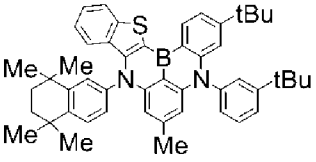
(1-3702)



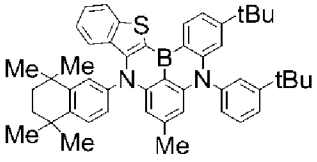
(1-3703)



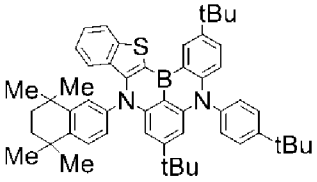
(1-3704)



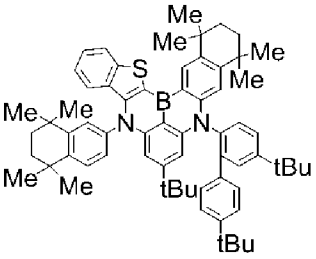
(1-3705)



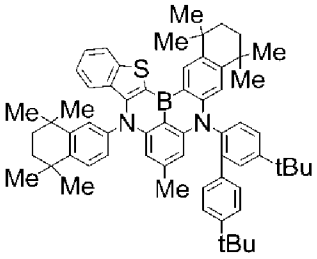
(1-3706)



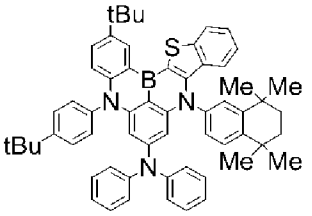
(1-3707)



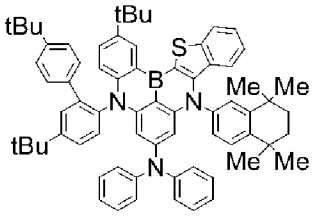
(1-3708)



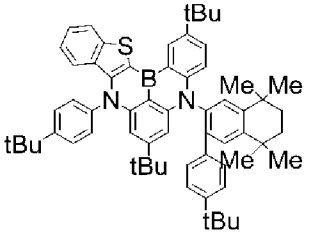
(1-3709)



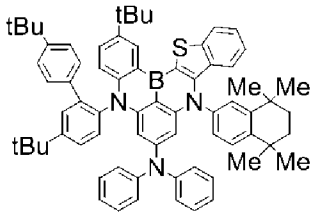
(1-3710)



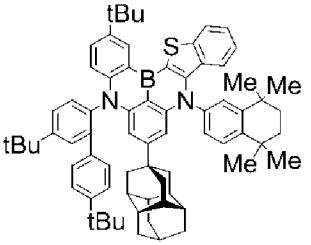
(1-3711)



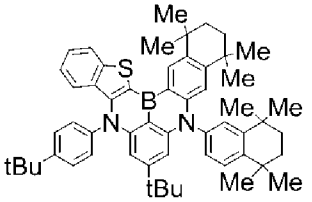
(1-3712)



(1-3713)

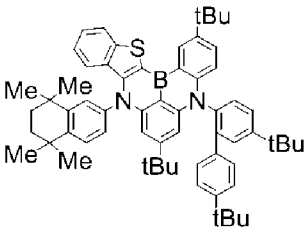


(1-3714)

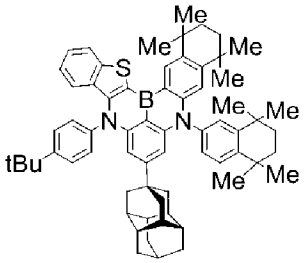


(1-3715)

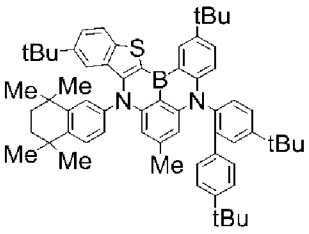
【0250】



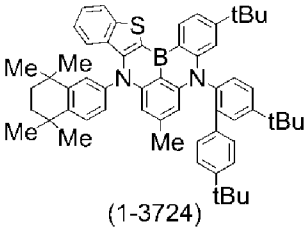
(1-3721)



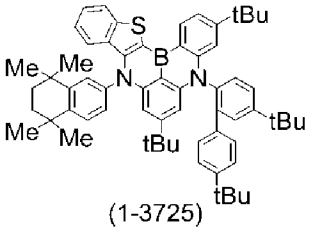
(1-3722)



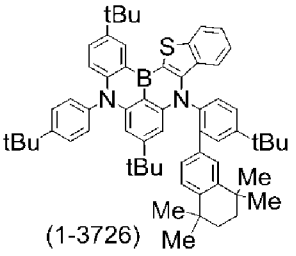
(1-3723)



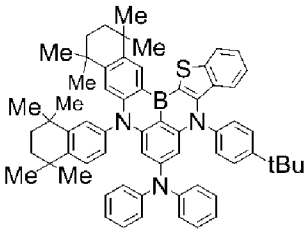
(1-3724)



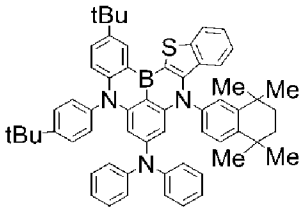
(1-3725)



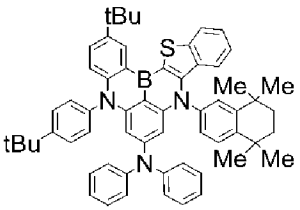
(1-3726)



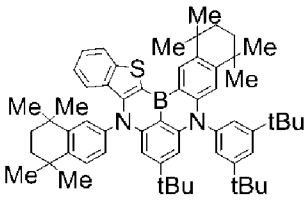
(1-3727)



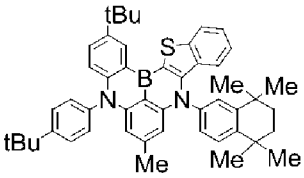
(1-3728)



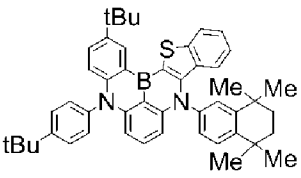
(1-3729)



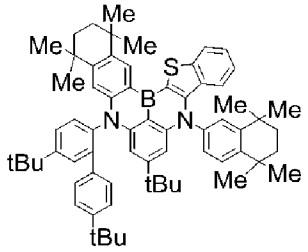
(1-3730)



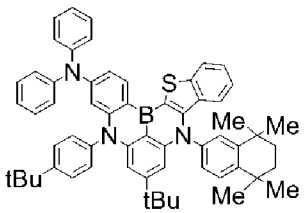
(1-3731)



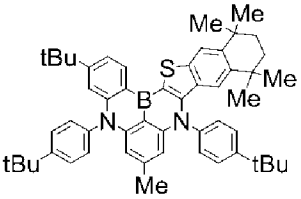
(1-3732)



(1-3733)

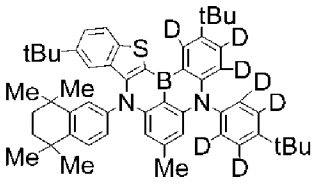


(1-3734)

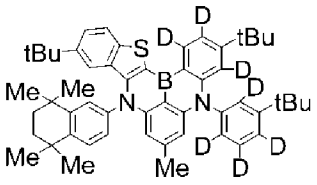


(1-3735)

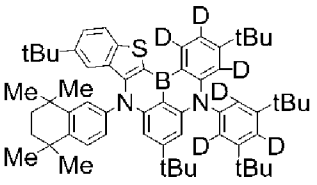
【0251】



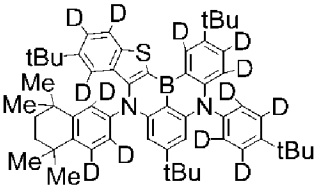
(1-3741)



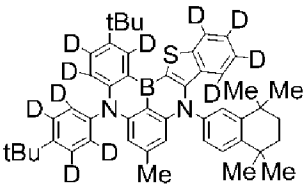
(1-3742)



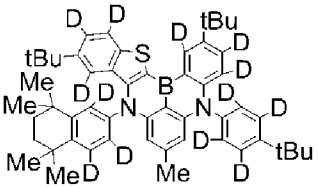
(1-3743)



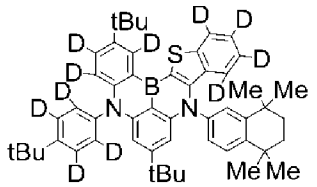
(1-3744)



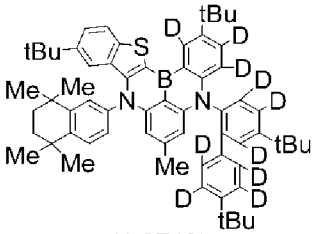
(1-3745)



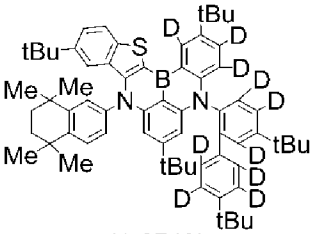
(1-3746)



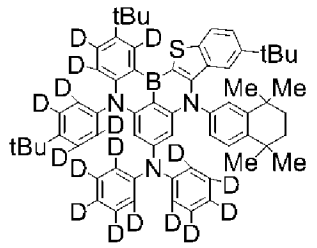
(1-3747)



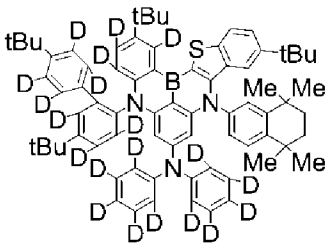
(1-3748)



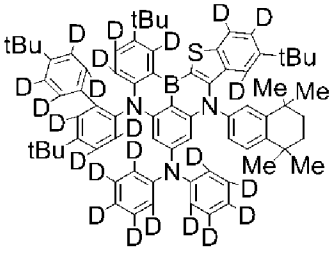
(1-3749)



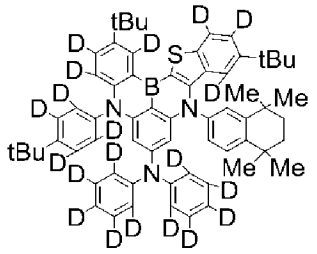
(1-3750)



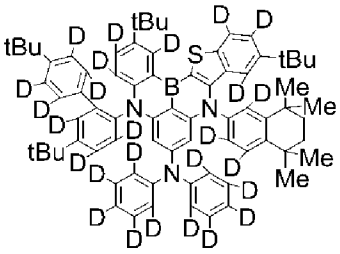
(1-3751)



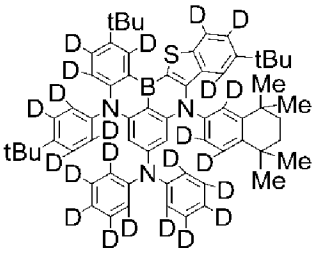
(1-3752)



(1-3753)

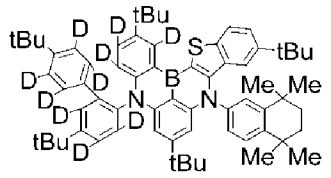


(1-3754)

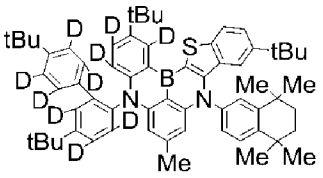


(1-3755)

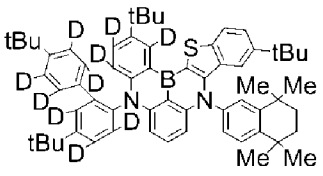
【0252】



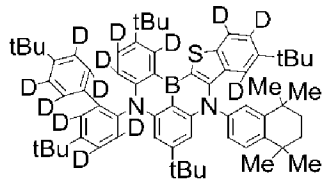
(1-3761)



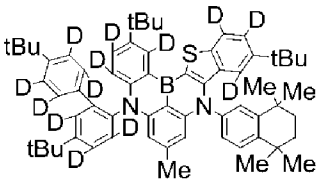
(1-3762)



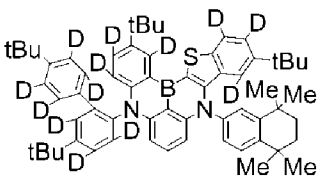
(1-3763)



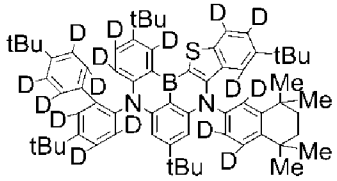
(1-3764)



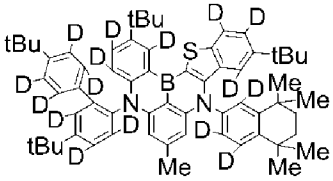
(1-3765)



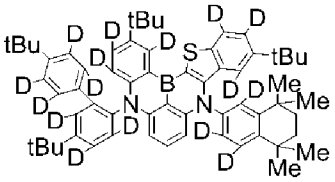
(1-3766)



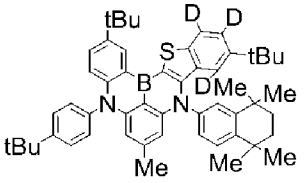
(1-3767)



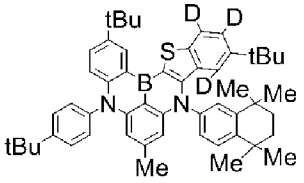
(1-3768)



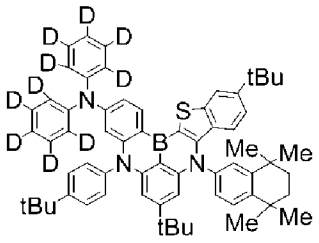
(1-3769)



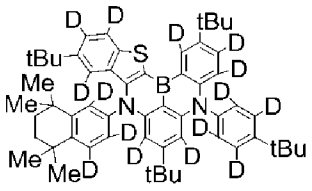
(1-3770)



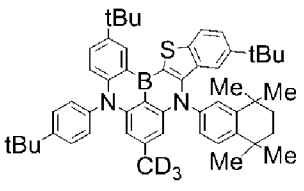
(1-3771)



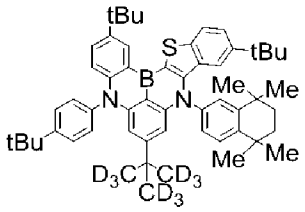
(1-3772)



(1-3773)

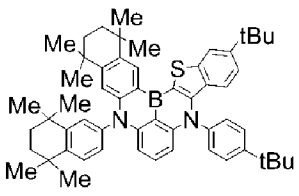


(1-3774)

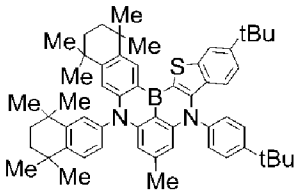


(1-3775)

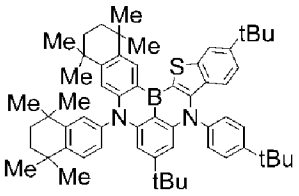
【0253】



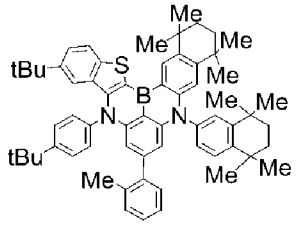
(1-3801)



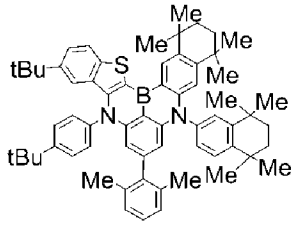
(1-3802)



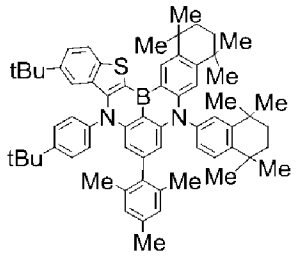
(1-3803)



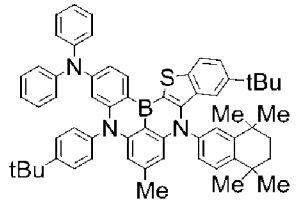
(1-3804)



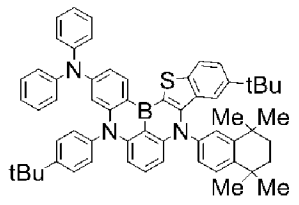
(1-3805)



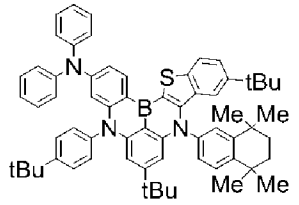
(1-3806)



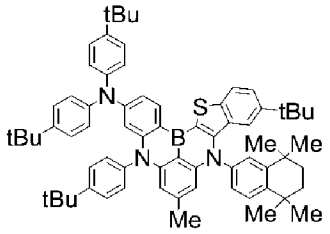
(1-3807)



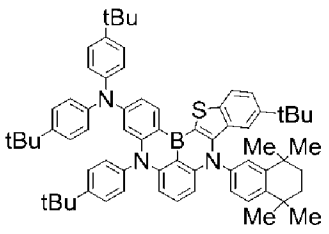
(1-3808)



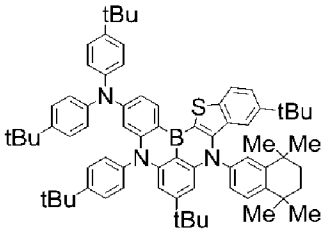
(1-3809)



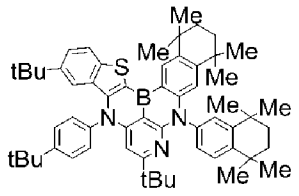
(1-3810)



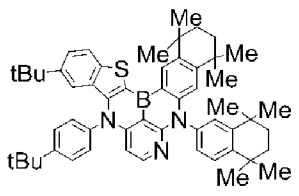
(1-3811)



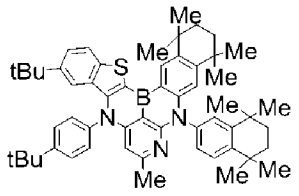
(1-3812)



(1-3813)

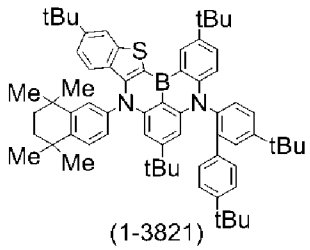


(1-3814)

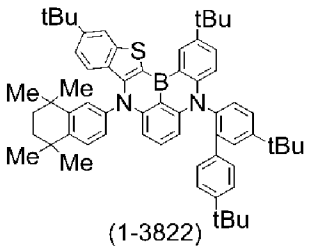


(1-3815)

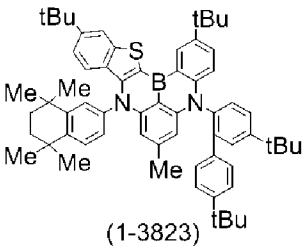
【0254】



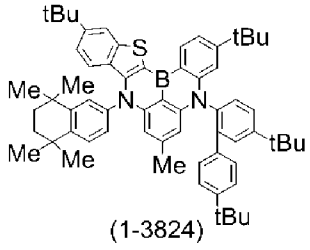
(1-3821)



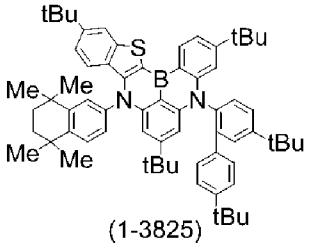
(1-3822)



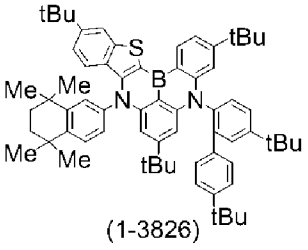
(1-3823)



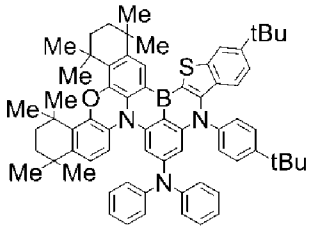
(1-3824)



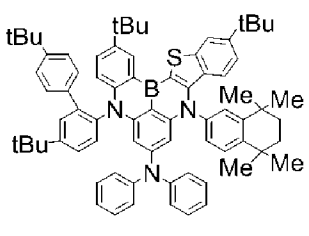
(1-3825)



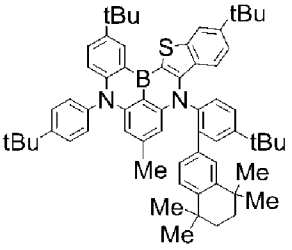
(1-3826)



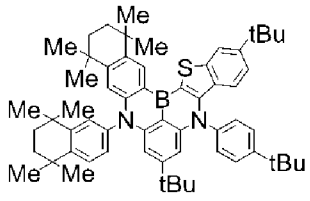
(1-3827)



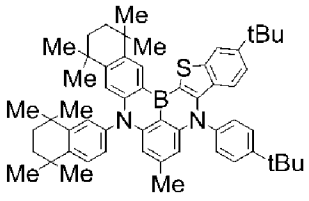
(1-3828)



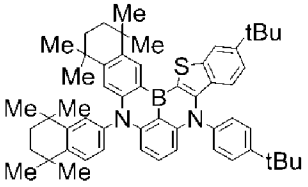
(1-3829)



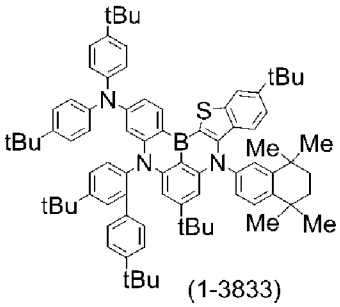
(1-3830)



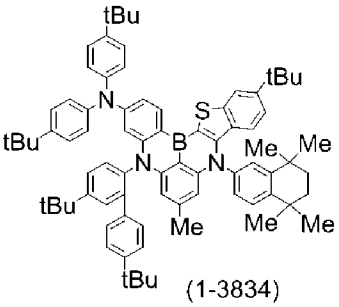
(1-3831)



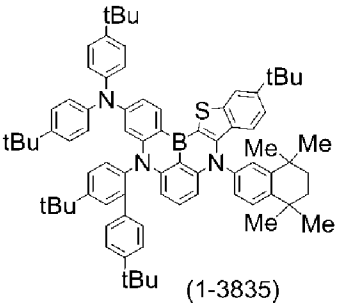
(1-3832)



(1-3833)

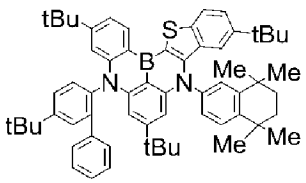


(1-3834)

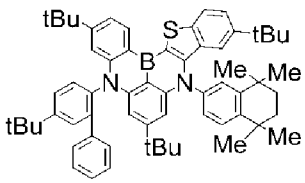


(1-3835)

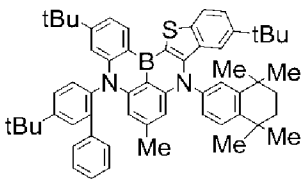
【0255】



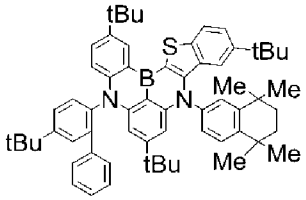
(1-3841)



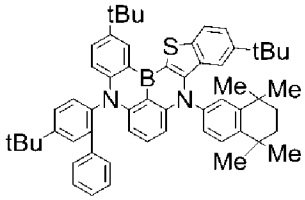
(1-3842)



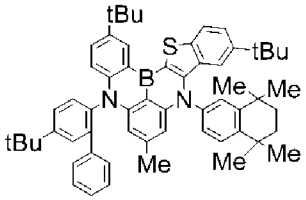
(1-3843)



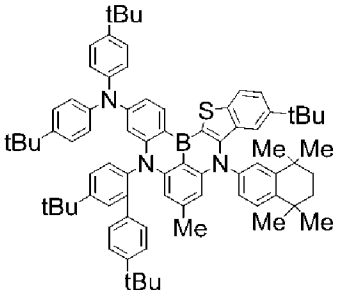
(1-3844)



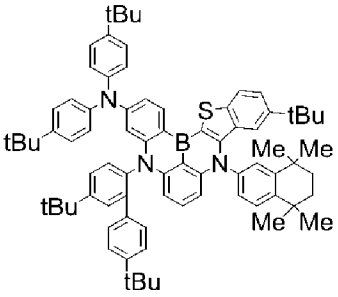
(1-3845)



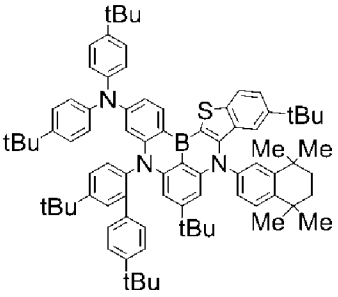
(1-3846)



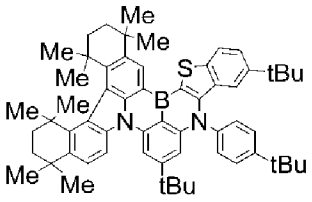
(1-3847)



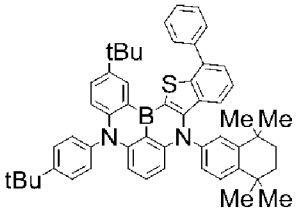
(1-3848)



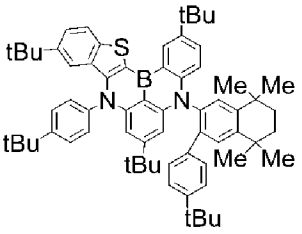
(1-3849)



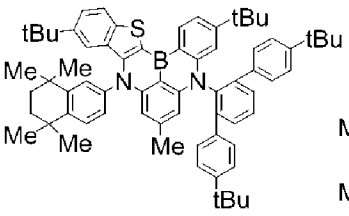
(1-3850)



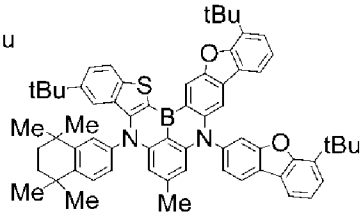
(1-3851)



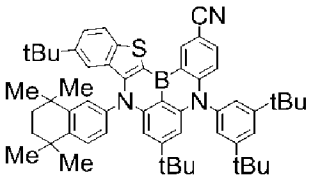
(1-3852)



(1-3853)

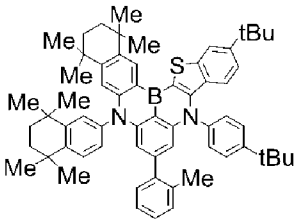


(1-3854)

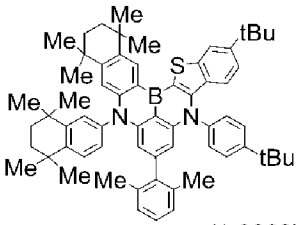


(1-3855)

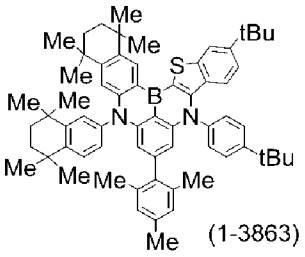
【0256】



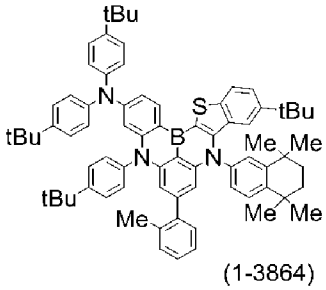
(1-3861)



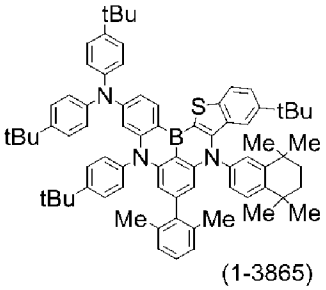
(1-3862)



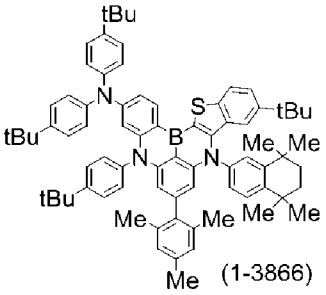
(1-3863)



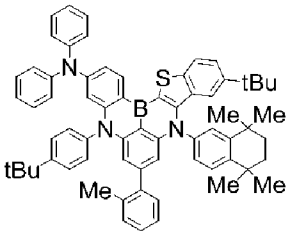
(1-3864)



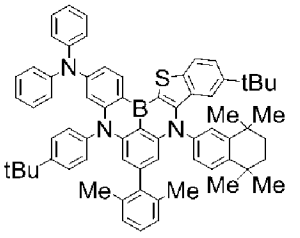
(1-3865)



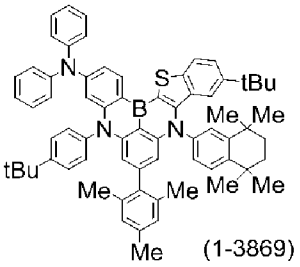
(1-3866)



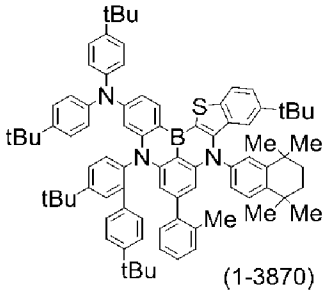
(1-3867)



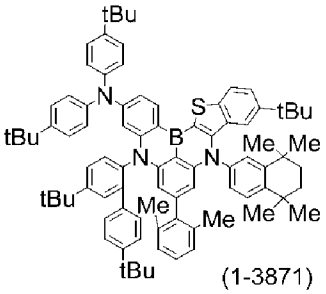
(1-3868)



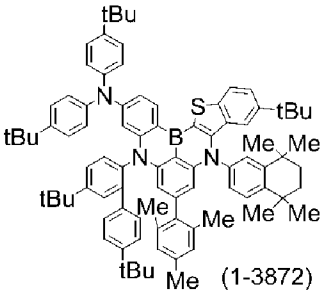
(1-3869)



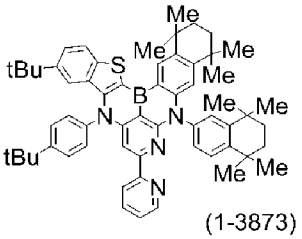
(1-3870)



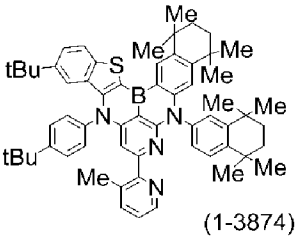
(1-3871)



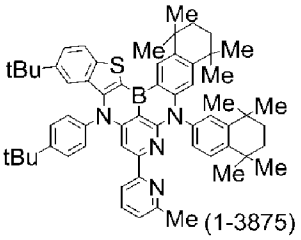
(1-3872)



(1-3873)

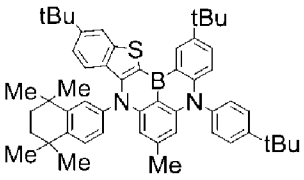


(1-3874)

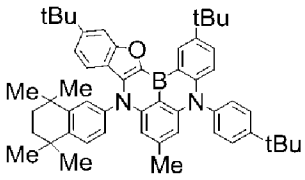


(1-3875)

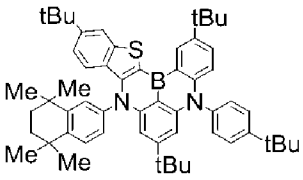
【0257】



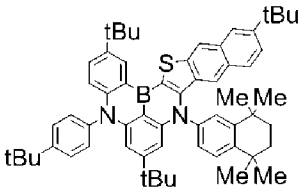
(1-3881)



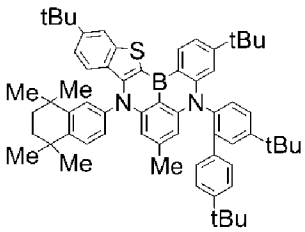
(1-3882)



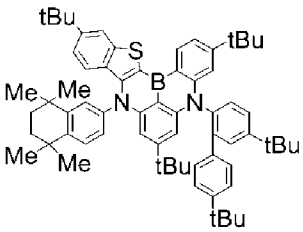
(1-3883)



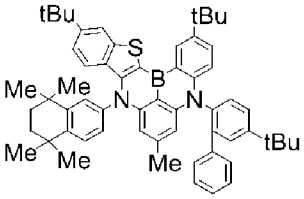
(1-3884)



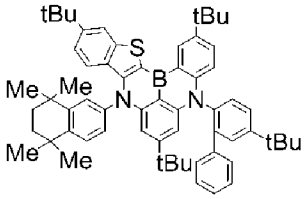
(1-3885)



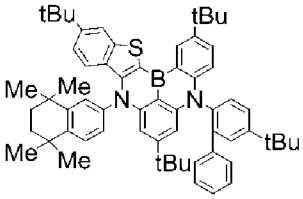
(1-3886)



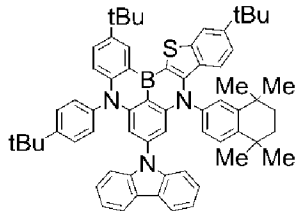
(1-3887)



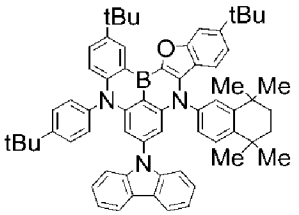
(1-3888)



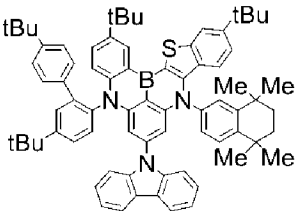
(1-3889)



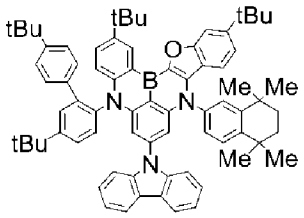
(1-3890)



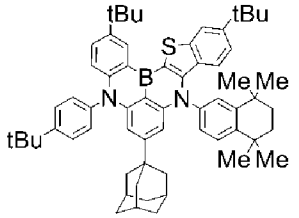
(1-3891)



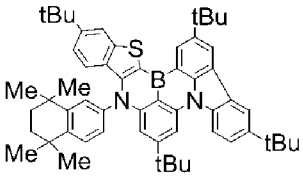
(1-3892)



(1-3893)

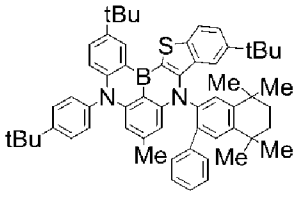


(1-3894)

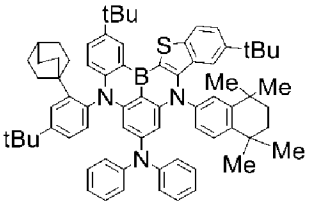


(1-3895)

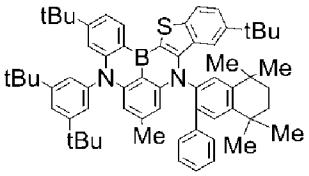
【0258】



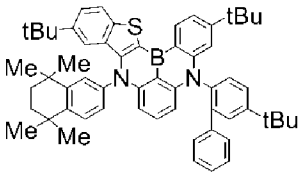
(1-3901)



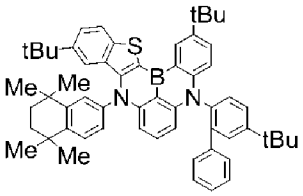
(1-3902)



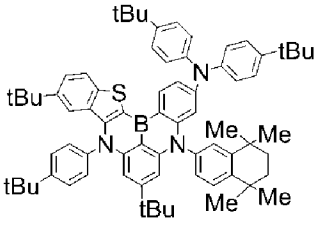
(1-3903)



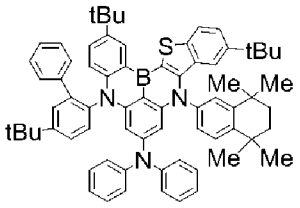
(1-3904)



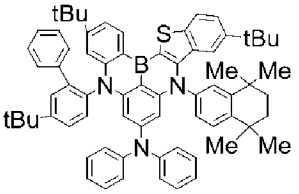
(1-3905)



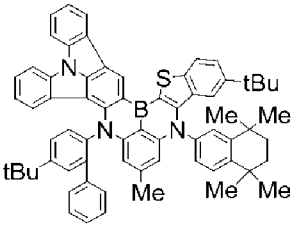
(1-3906)



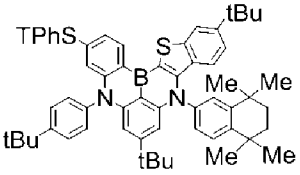
(1-3907)



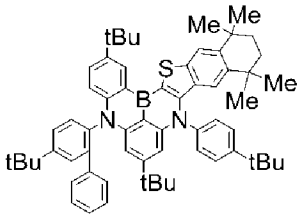
(1-3908)



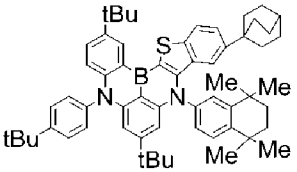
(1-3909)



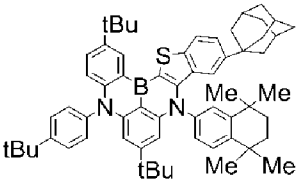
(1-3910)



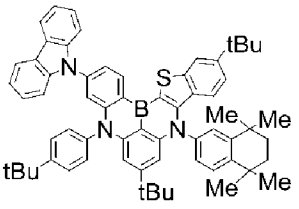
(1-3911)



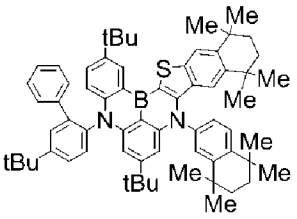
(1-3912)



(1-3913)

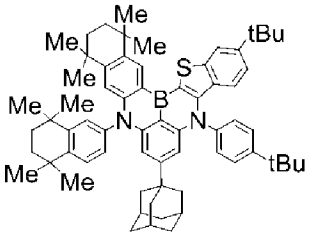


(1-3914)

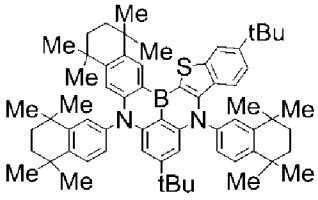


(1-3915)

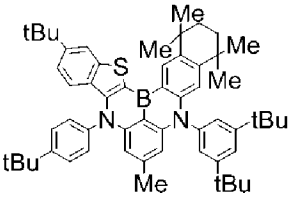
【0259】



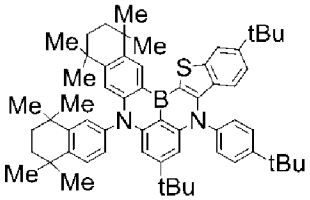
(1-3921)



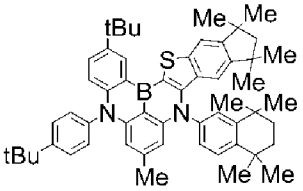
(1-3922)



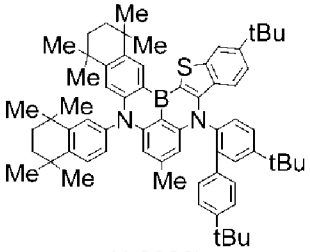
(1-3923)



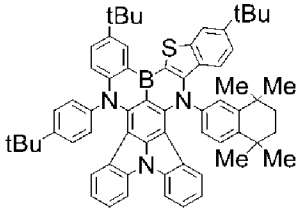
(1-3924)



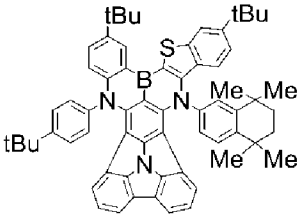
(1-3925)



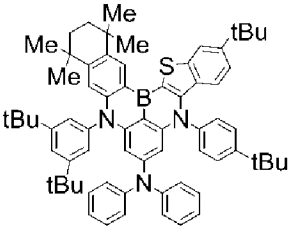
(1-3926)



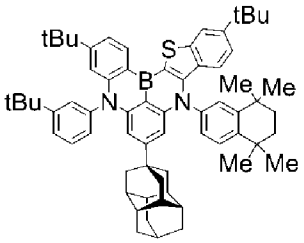
(1-3927)



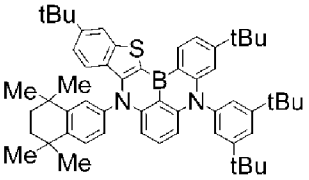
(1-3928)



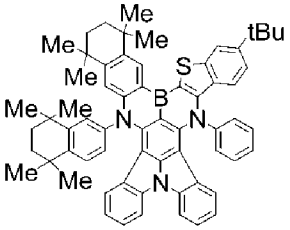
(1-3929)



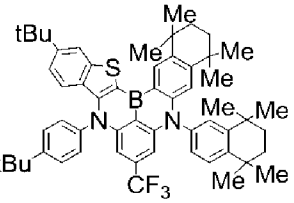
(1-3930)



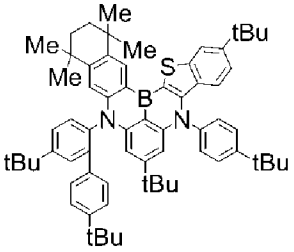
(1-3931)



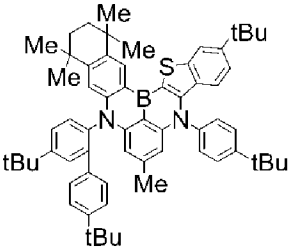
(1-3932)



(1-3933)

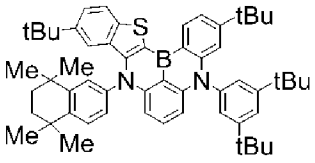


(1-3934)

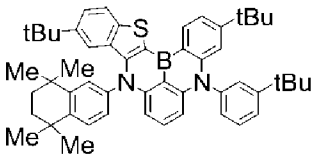


(1-3935)

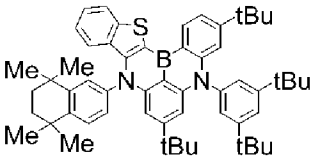
【0260】



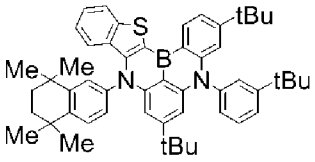
(1-3941)



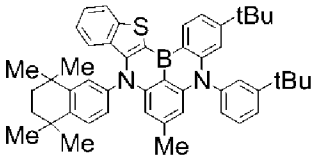
(1-3942)



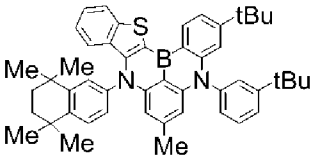
(1-3943)



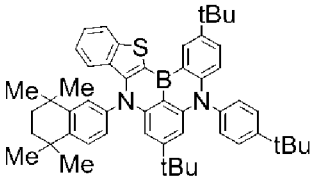
(1-3944)



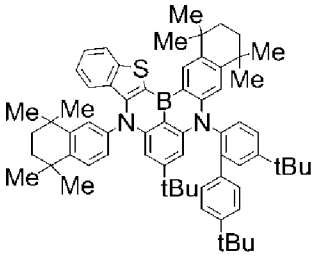
(1-3945)



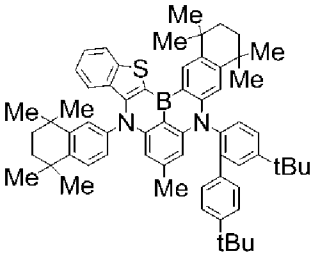
(1-3946)



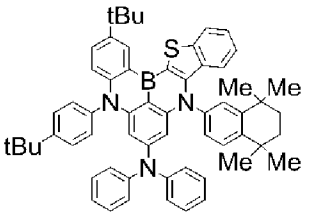
(1-3947)



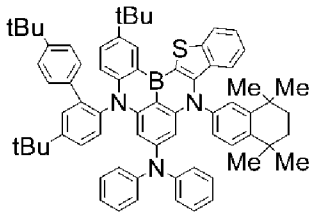
(1-3948)



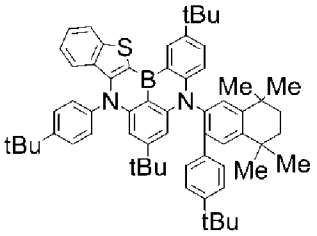
(1-3949)



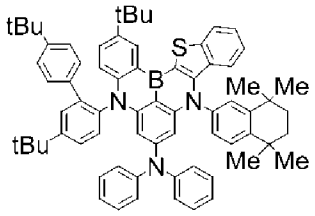
(1-3950)



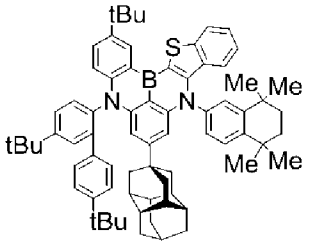
(1-3951)



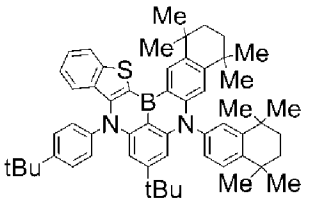
(1-3952)



(1-3953)

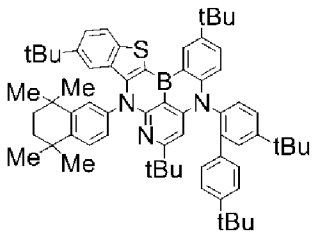


(1-3954)

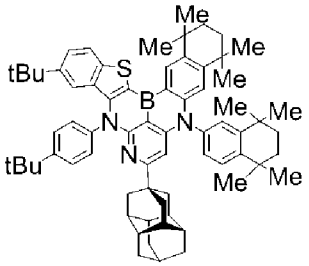


(1-3955)

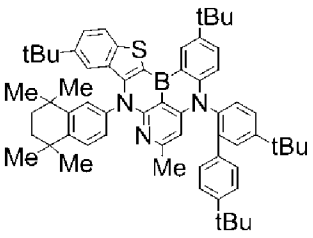
【0261】



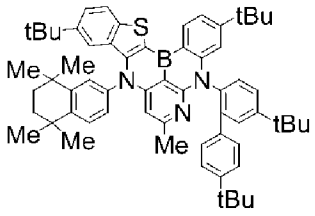
(1-3961)



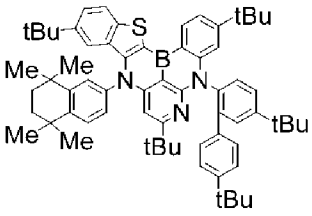
(1-3962)



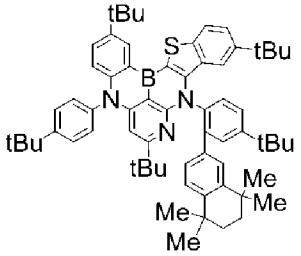
(1-3963)



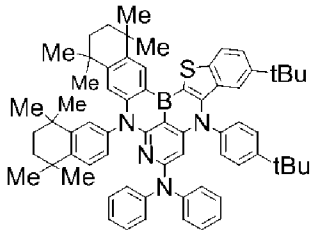
(1-3964)



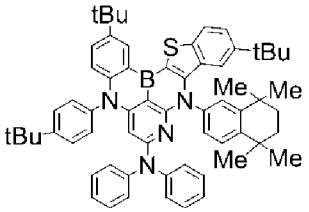
(1-3965)



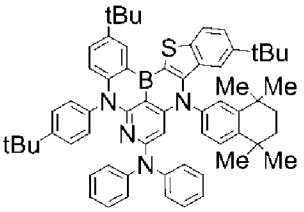
(1-3966)



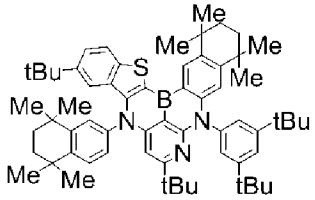
(1-3967)



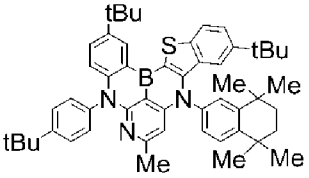
(1-3968)



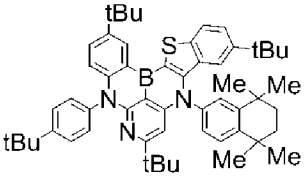
(1-3969)



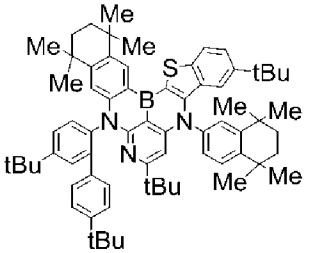
(1-3970)



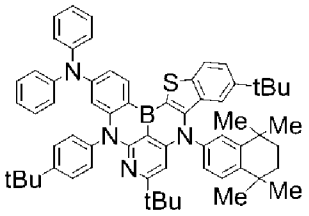
(1-3971)



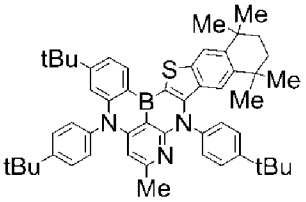
(1-3972)



(1-3973)

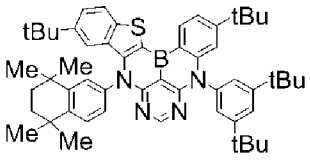


(1-3974)

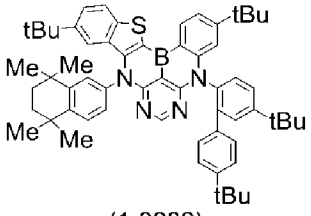


(1-3975)

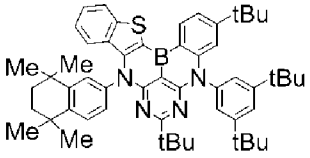
【0262】



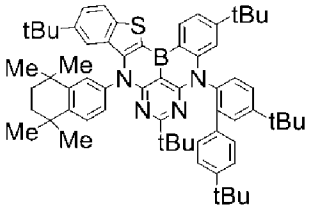
(1-3981)



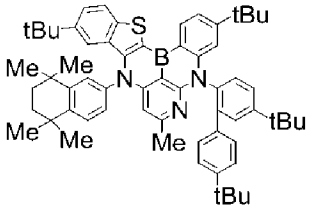
(1-3982)



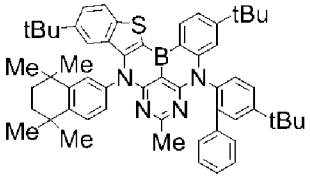
(1-3983)



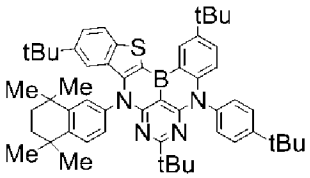
(1-3984)



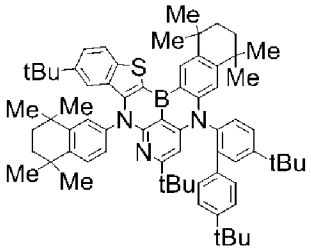
(1-3985)



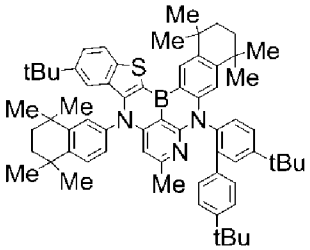
(1-3986)



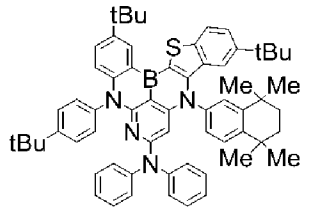
(1-3987)



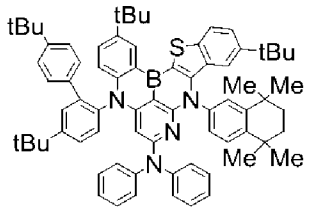
(1-3988)



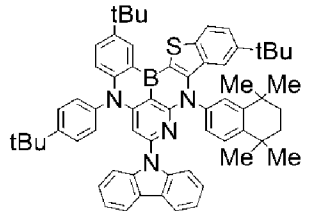
(1-3989)



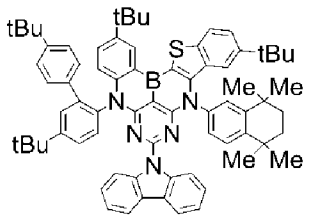
(1-3990)



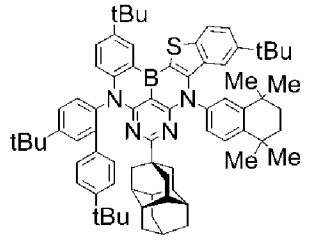
(1-3991)



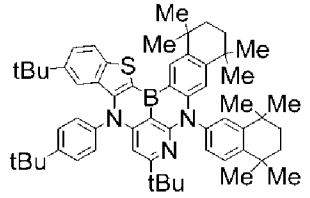
(1-3992)



(1-3993)

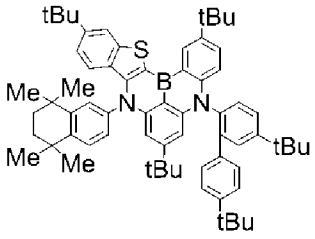


(1-3994)

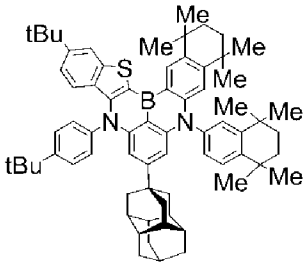


(1-3995)

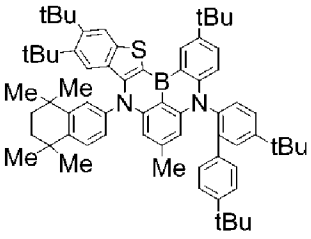
【0263】



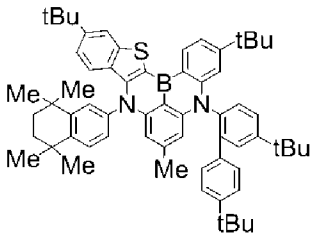
(1-4001)



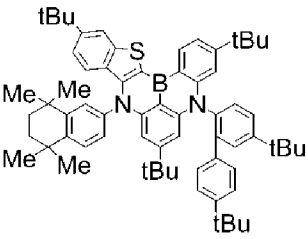
(1-4002)



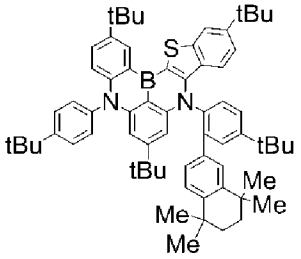
(1-4003)



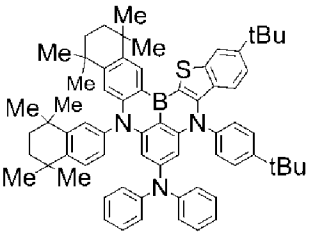
(1-4004)



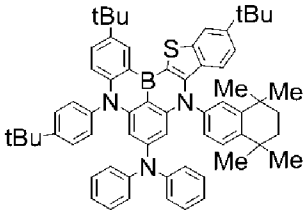
(1-4005)



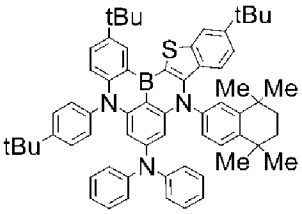
(1-4006)



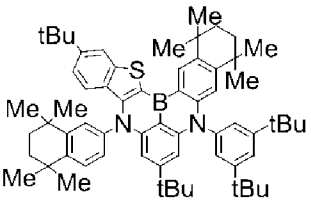
(1-4007)



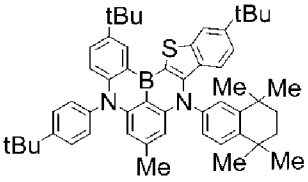
(1-4008)



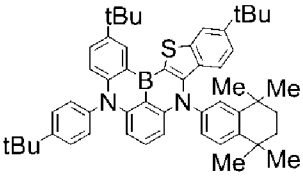
(1-4009)



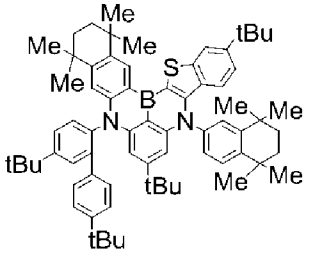
(1-4010)



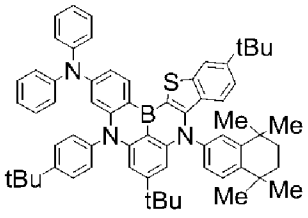
(1-4011)



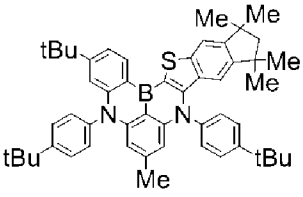
(1-4012)



(1-4013)

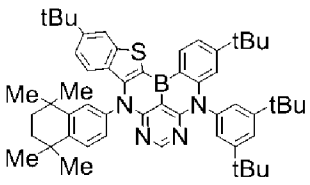


(1-4014)

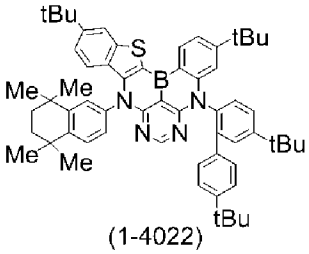


(1-4015)

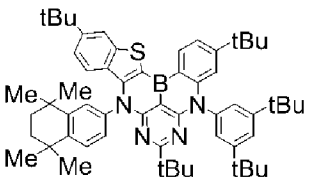
【0264】



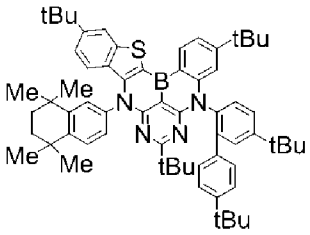
(1-4021)



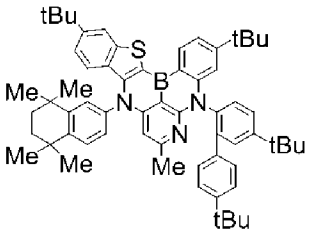
(1-4022)



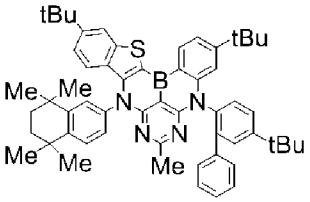
(1-4023)



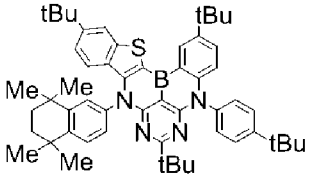
(1-4024)



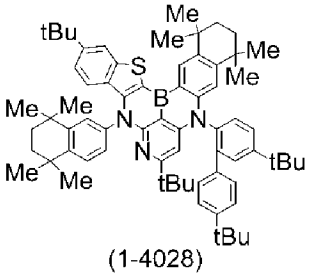
(1-4025)



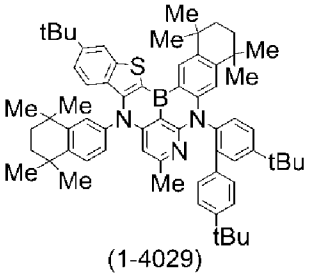
(1-4026)



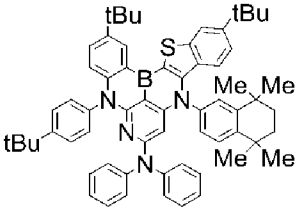
(1-4027)



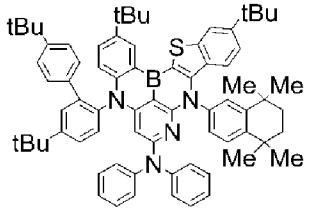
(1-4028)



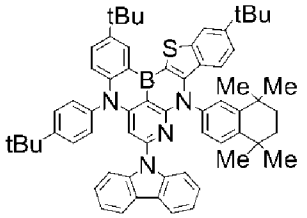
(1-4029)



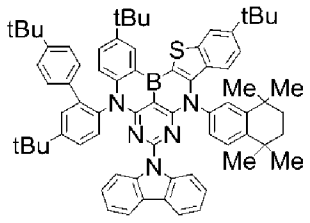
(1-4030)



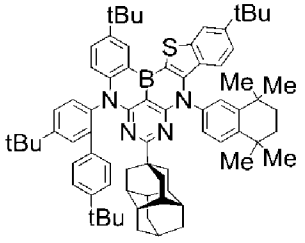
(1-4031)



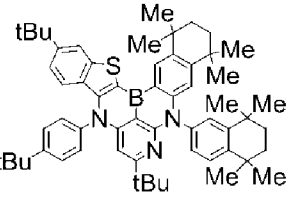
(1-4032)



(1-4033)

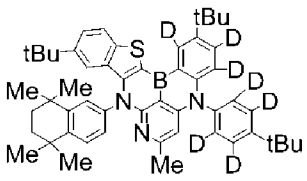


(1-4034)

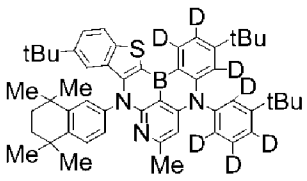


(1-4035)

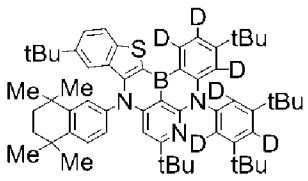
【0265】



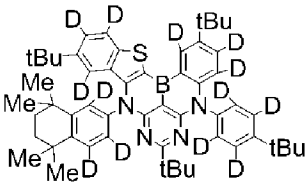
(1-4041)



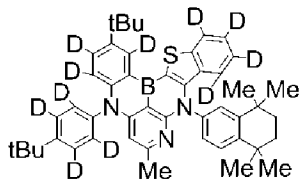
(1-4042)



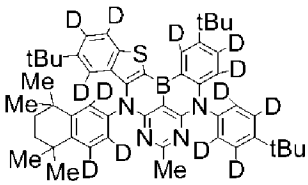
(1-4043)



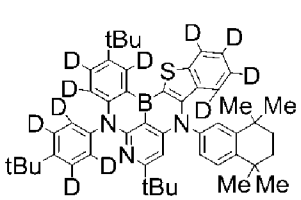
(1-4044)



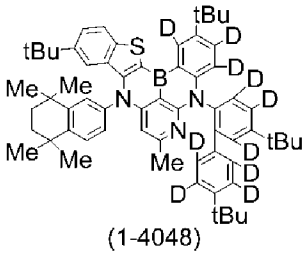
(1-4045)



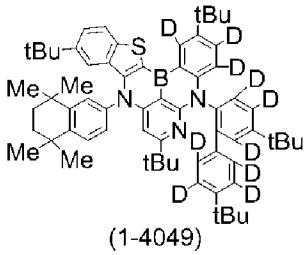
(1-4046)



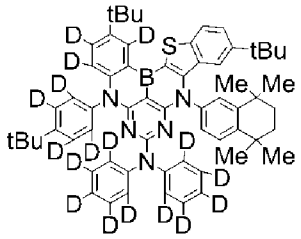
(1-4047)



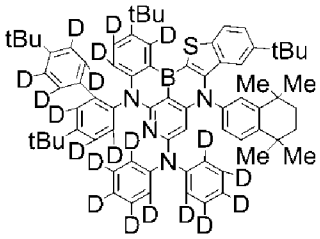
(1-4048)



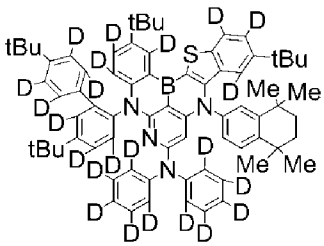
(1-4049)



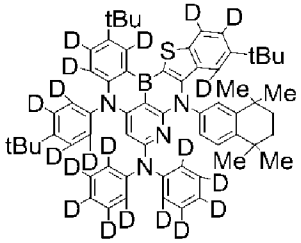
(1-4050)



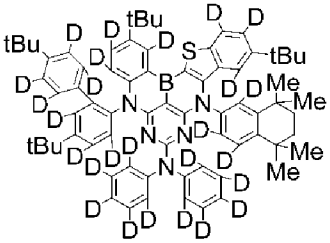
(1-4051)



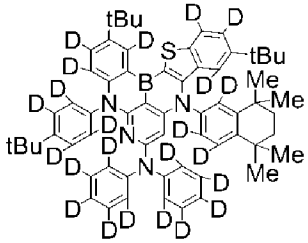
(1-4052)



(1-4053)

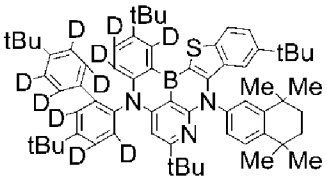


(1-4054)

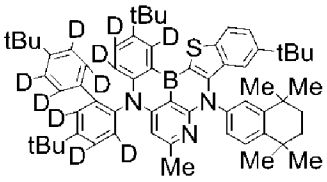


(1-4055)

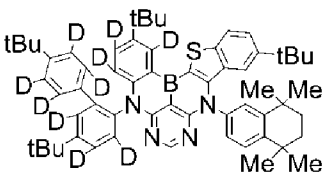
【0266】



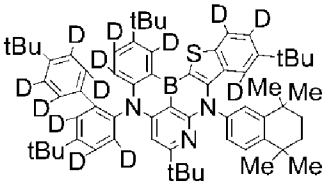
(1-4061)



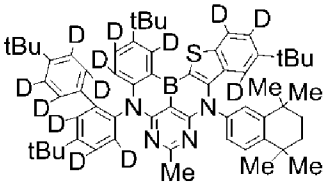
(1-4062)



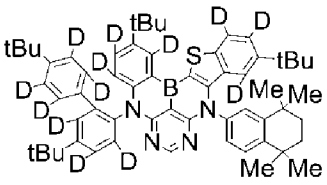
(1-4063)



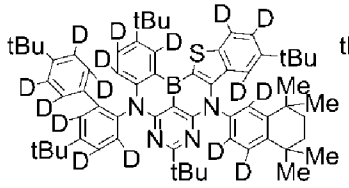
(1-4064)



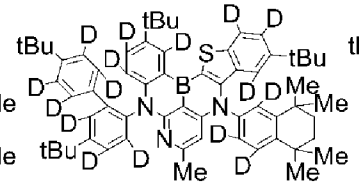
(1-4065)



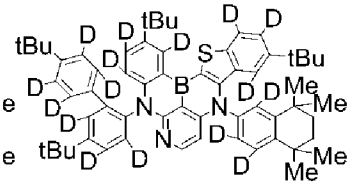
(1-4066)



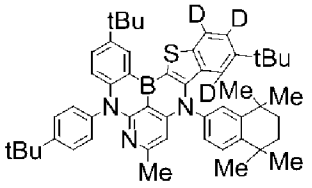
(1-4067)



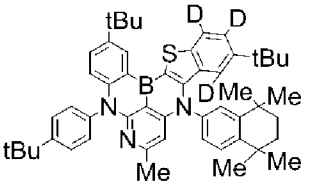
(1-4068)



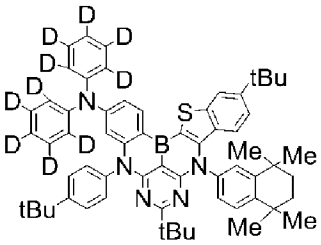
(1-4069)



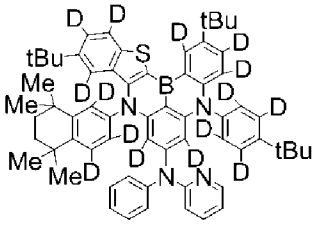
(1-4070)



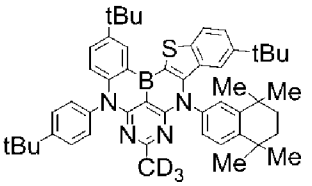
(1-4071)



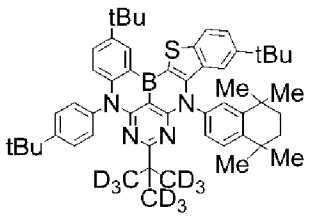
(1-4072)



(1-4073)

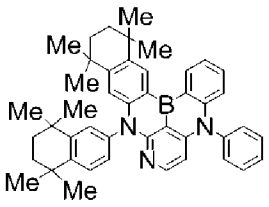


(1-4074)

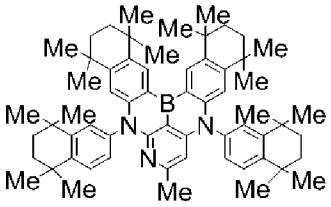


(1-4075)

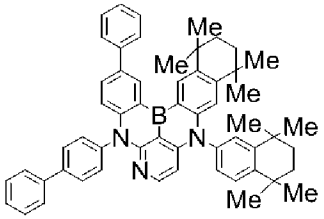
【0267】



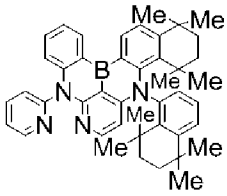
(1-4081)



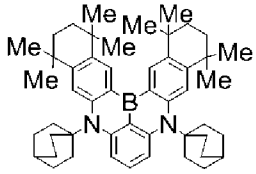
(1-4082)



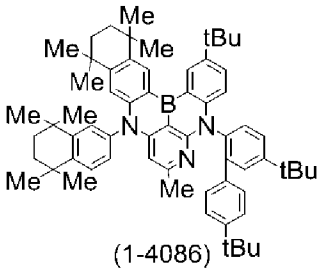
(1-4083)



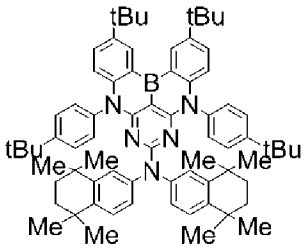
(1-4084)



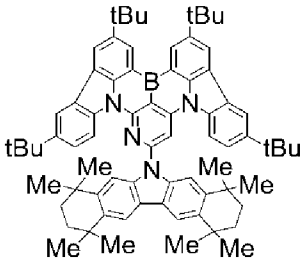
(1-4085)



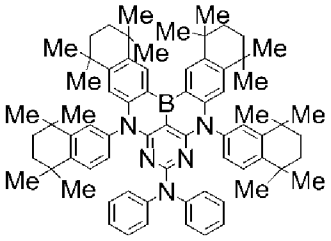
(1-4086)



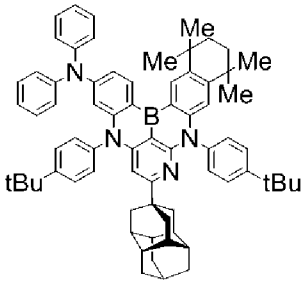
(1-4087)



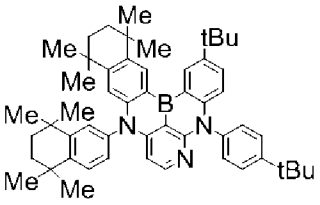
(1-4088)



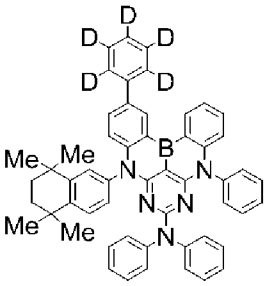
(1-4089)



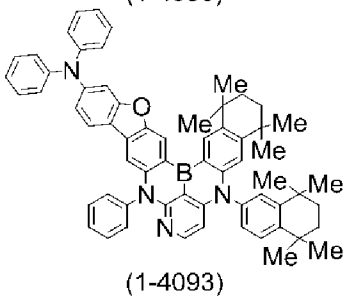
(1-4090)



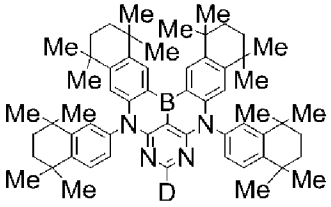
(1-4091)



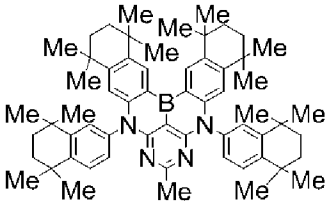
(1-4092)



(1-4093)

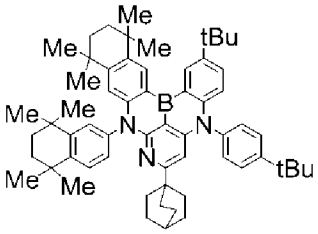


(1-4094)

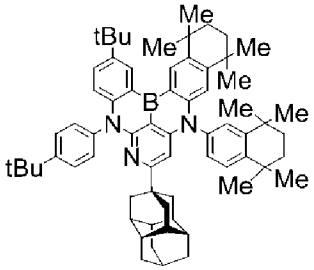


(1-4095)

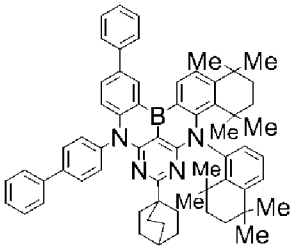
【0268】



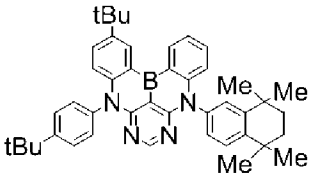
(1-4101)



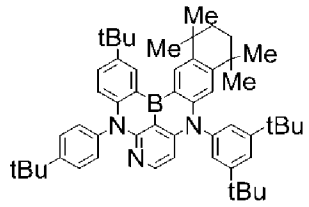
(1-4102)



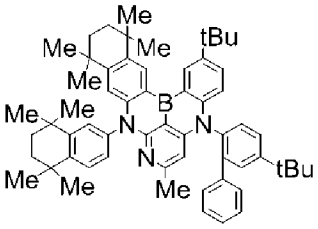
(1-4103)



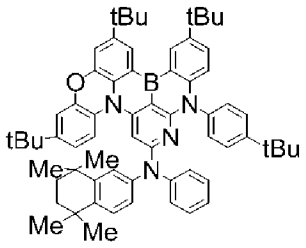
(1-4104)



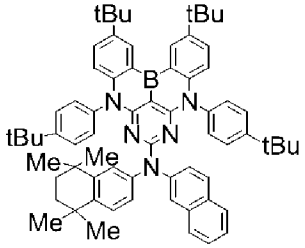
(1-4105)



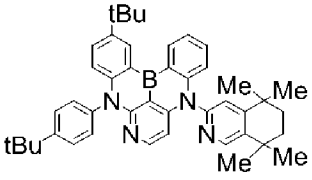
(1-4106)



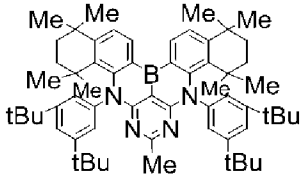
(1-4107)



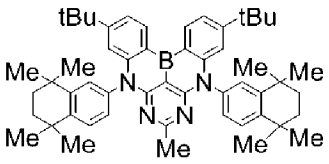
(1-4108)



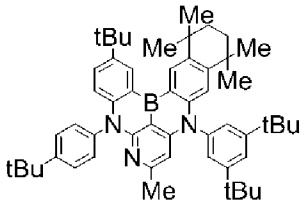
(1-4109)



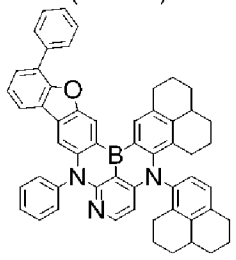
(1-4110)



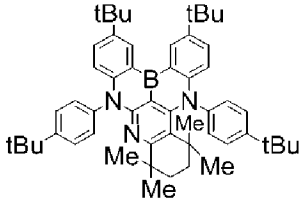
(1-4111)



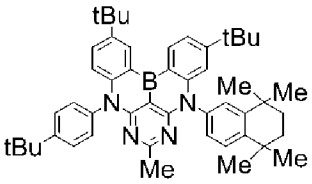
(1-4112)



(1-4113)

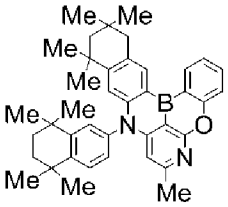


(1-4114)

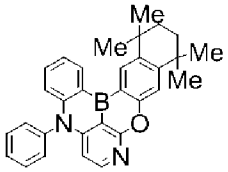


(1-4115)

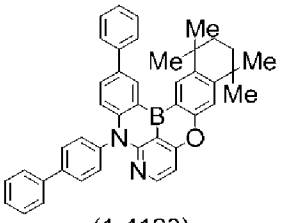
【0269】



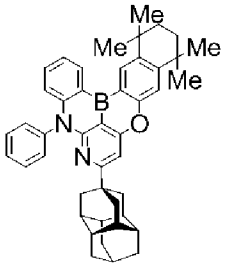
(1-4121)



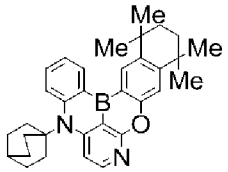
(1-4122)



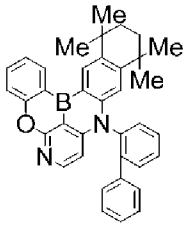
(1-4123)



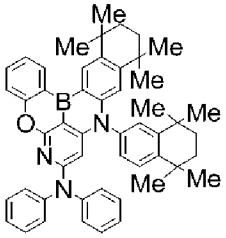
(1-4124)



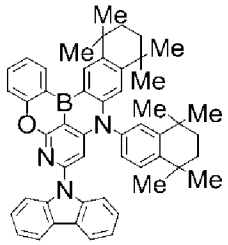
(1-4125)



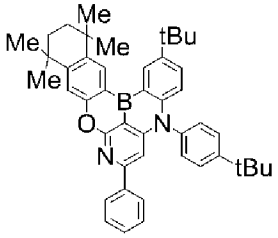
(1-4126)



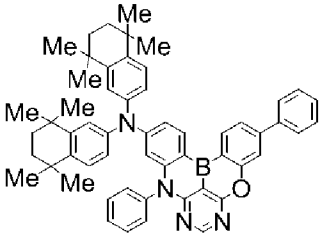
(1-4127)



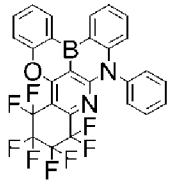
(1-4128)



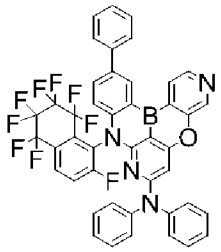
(1-4129)



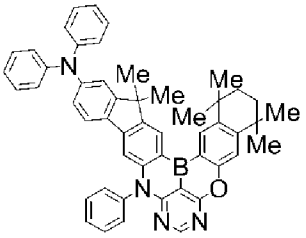
(1-4130)



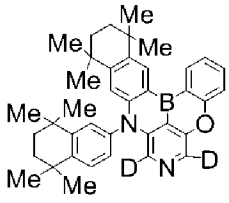
(1-4131)



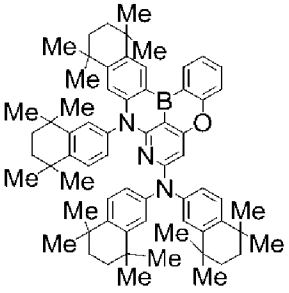
(1-4132)



(1-4133)

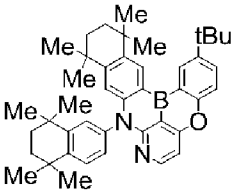


(1-4134)

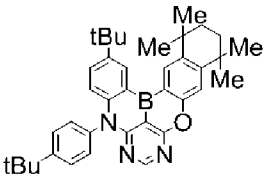


(1-4135)

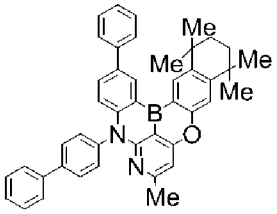
【0270】



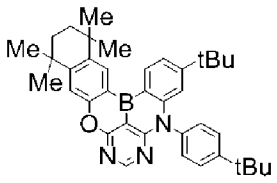
(1-4141)



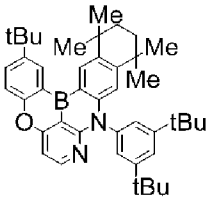
(1-4142)



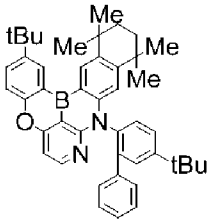
(1-4143)



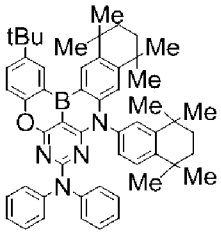
(1-4144)



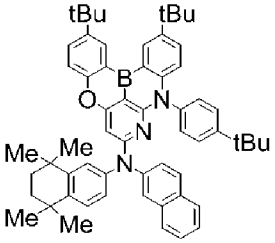
(1-4145)



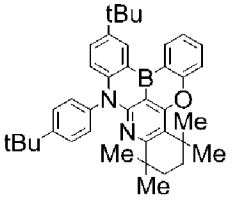
(1-4146)



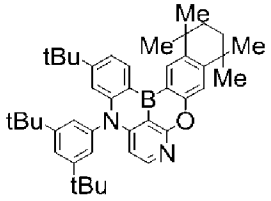
(1-4147)



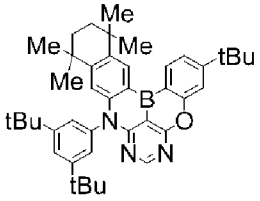
(1-4148)



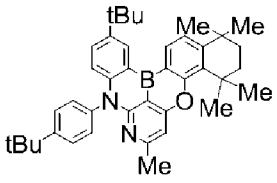
(1-4149)



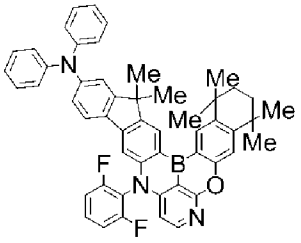
(1-4150)



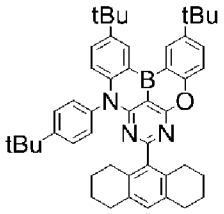
(1-4151)



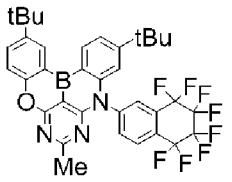
(1-4152)



(1-4153)

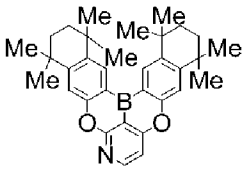


(1-4154)

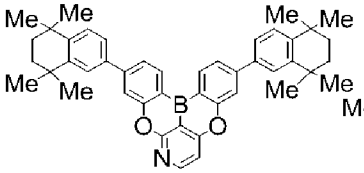


(1-4155)

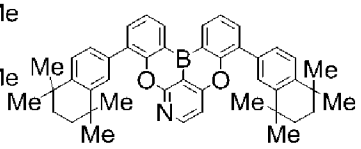
【0271】



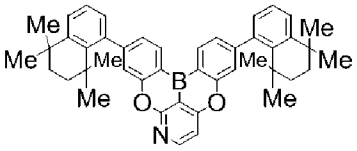
(1-4161)



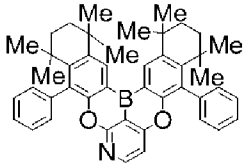
(1-4162)



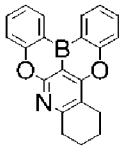
(1-4163)



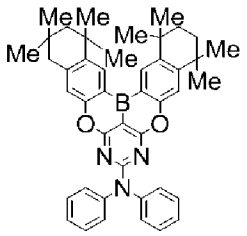
(1-4164)



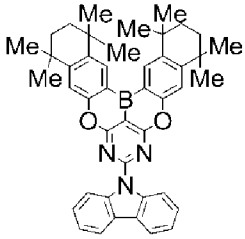
(1-4165)



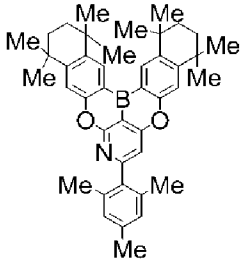
(1-4166)



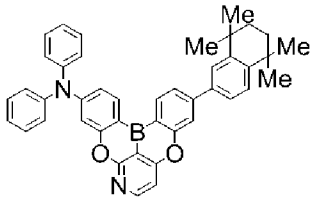
(1-4167)



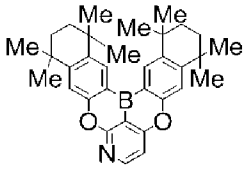
(1-4168)



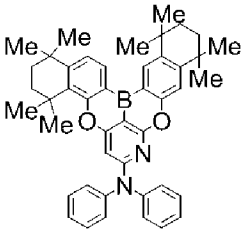
(1-4169)



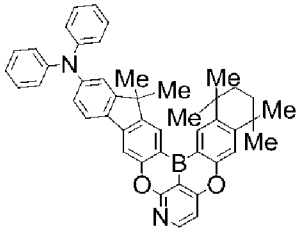
(1-4170)



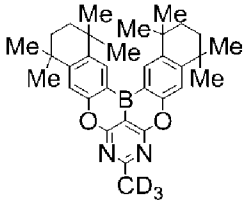
(1-4171)



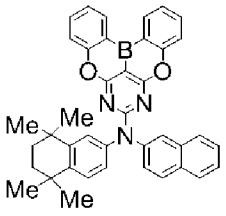
(1-4172)



(1-4173)

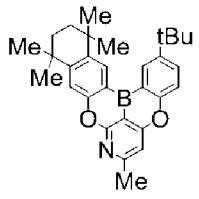


(1-4174)

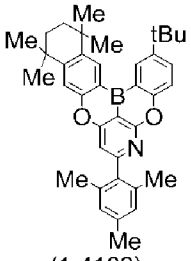


(1-4175)

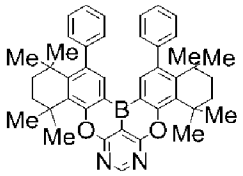
【0272】



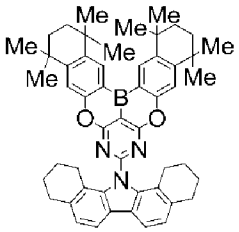
(1-4181)



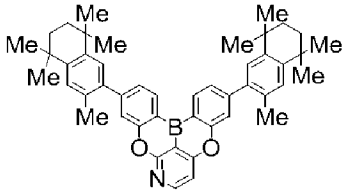
(1-4182)



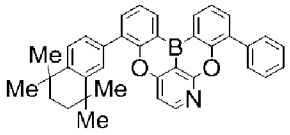
(1-4183)



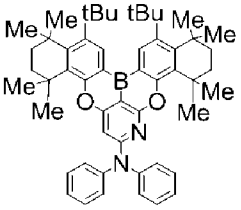
(1-4184)



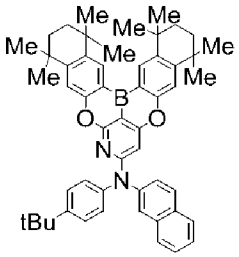
(1-4185)



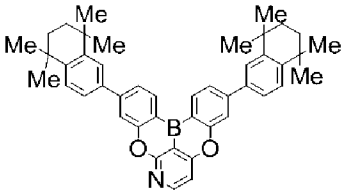
(1-4186)



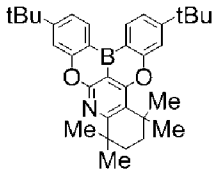
(1-4187)



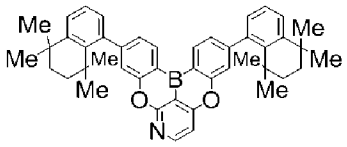
(1-4188)



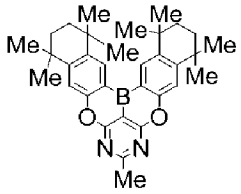
(1-4189)



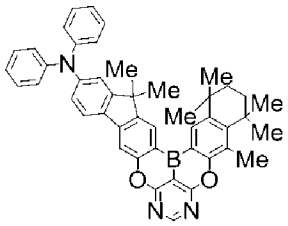
(1-4190)



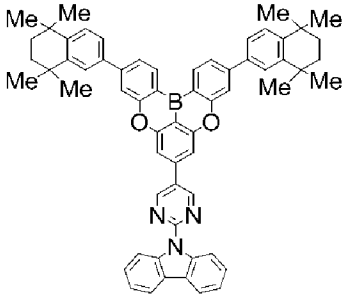
(1-4191)



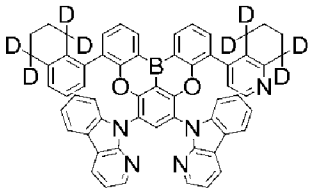
(1-4192)



(1-4193)

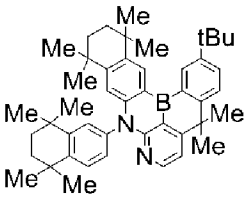


(1-4194)

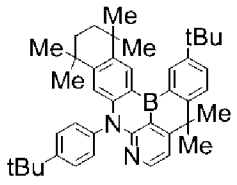


(1-4195)

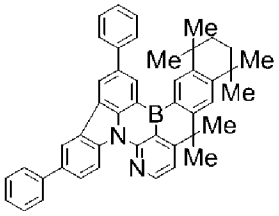
【0273】



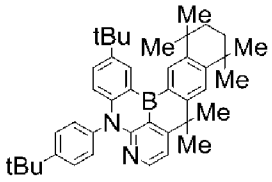
(1-4201)



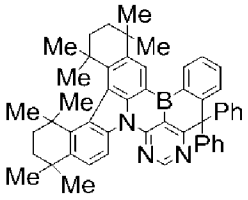
(1-4202)



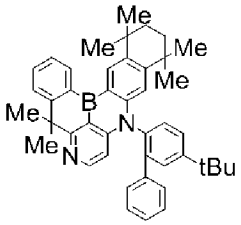
(1-4203)



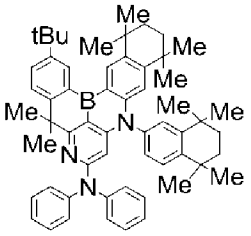
(1-4204)



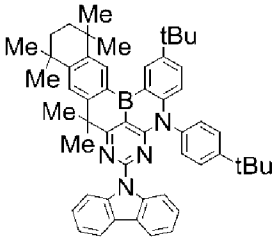
(1-4205)



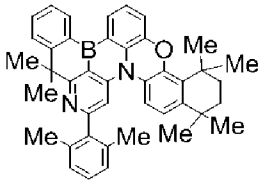
(1-4206)



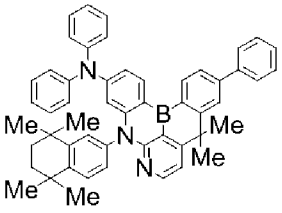
(1-4207)



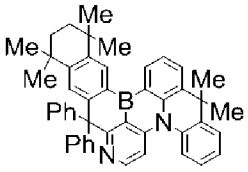
(1-4208)



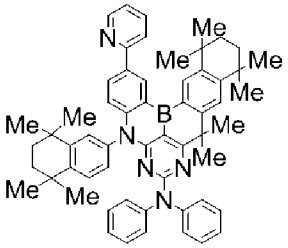
(1-4209)



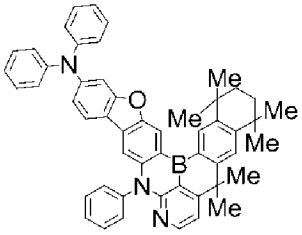
(1-4210)



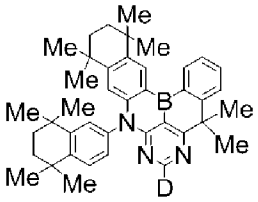
(1-4211)



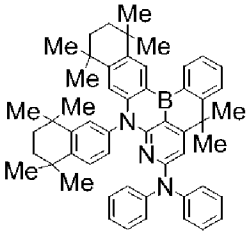
(1-4212)



(1-4213)

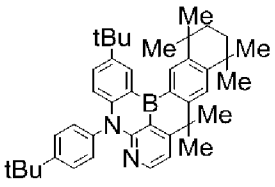


(1-4214)

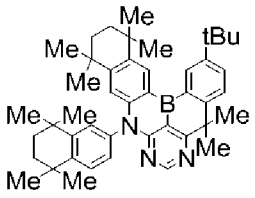


(1-4215)

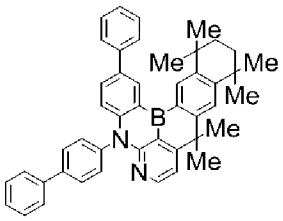
【0274】



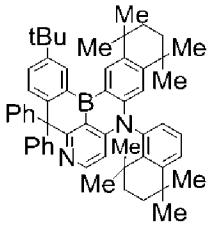
(1-4221)



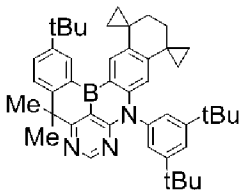
(1-4222)



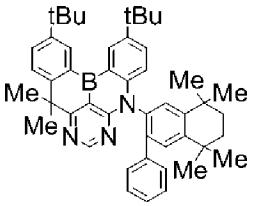
(1-4223)



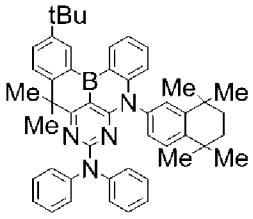
(1-4224)



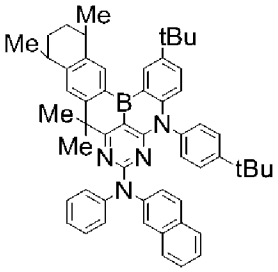
(1-4225)



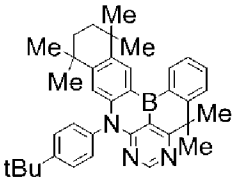
(1-4226)



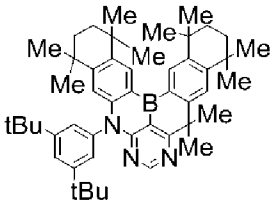
(1-4227)



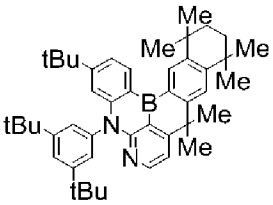
(1-4228)



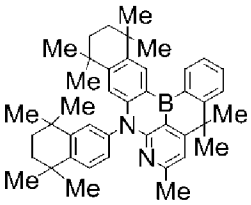
(1-4229)



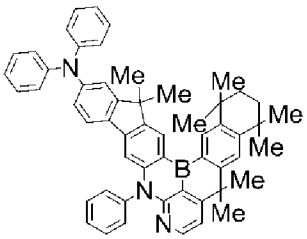
(1-4230)



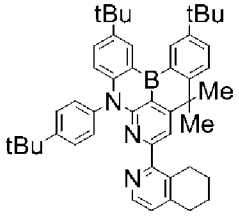
(1-4231)



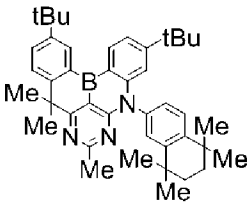
(1-4232)



(1-4233)

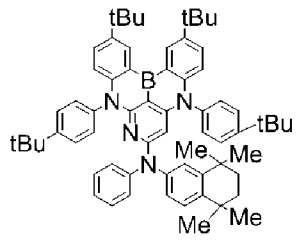


(1-4234)

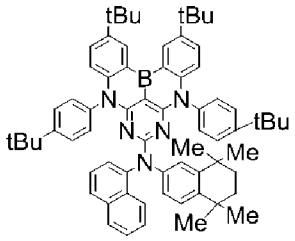


(1-4235)

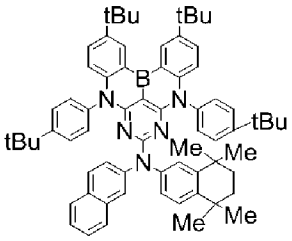
【0275】



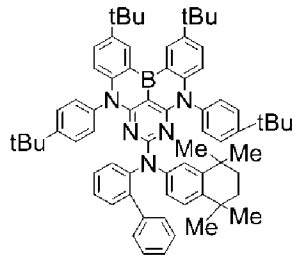
(1-4241)



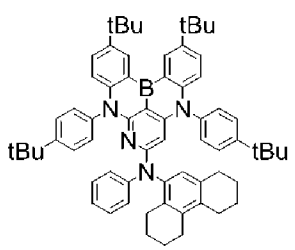
(1-4242)



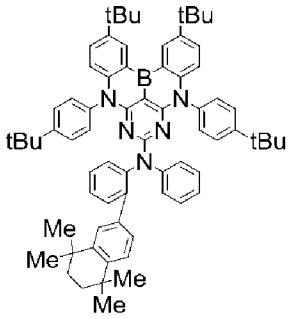
(1-4243)



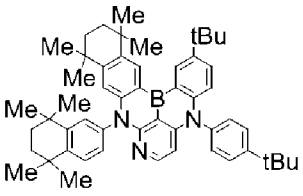
(1-4244)



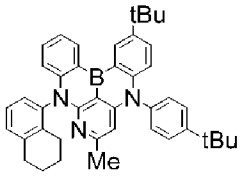
(1-4245)



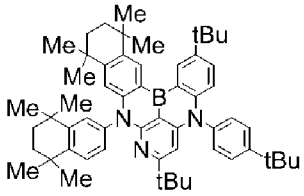
(1-4246)



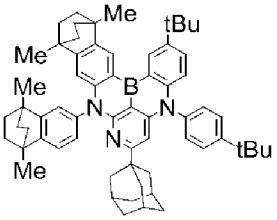
(1-4247)



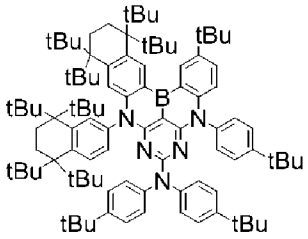
(1-4248)



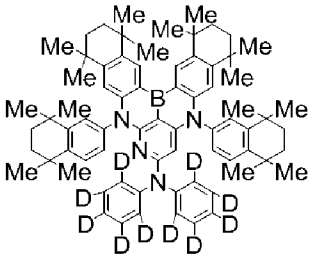
(1-4249)



(1-4250)

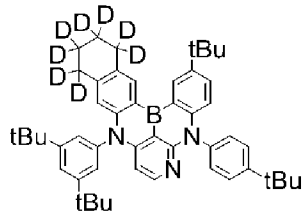


(1-4251)

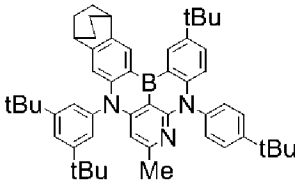


(1-4252)

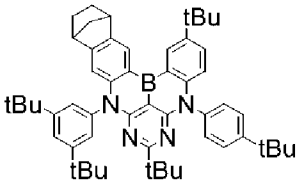
【0276】



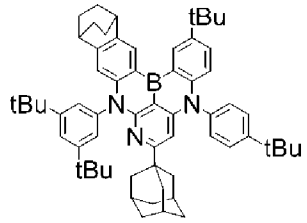
(1-4261)



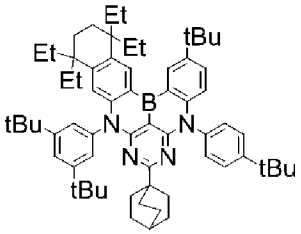
(1-4262)



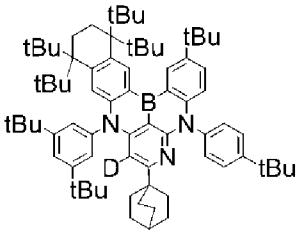
(1-4263)



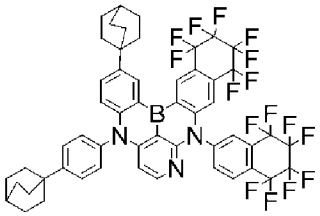
(1-4264)



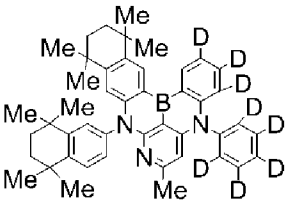
(1-4265)



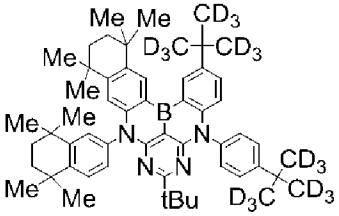
(1-4266)



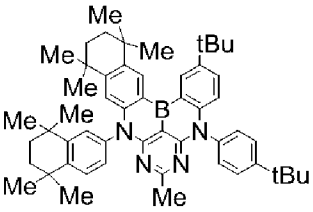
(1-4267)



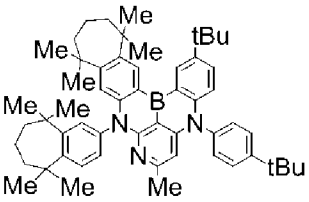
(1-4268)



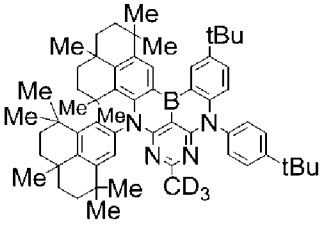
(1-4269)



(1-4270)

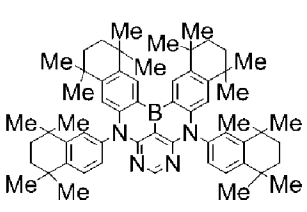


(1-4271)

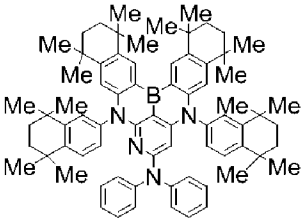


(1-4272)

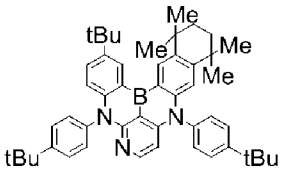
【0277】



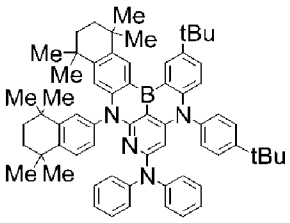
(1-4281)



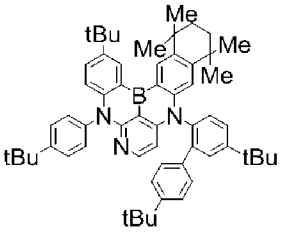
(1-4282)



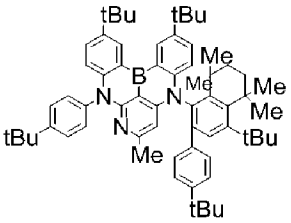
(1-4283)



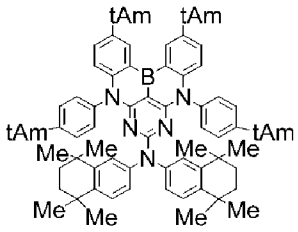
(1-4284)



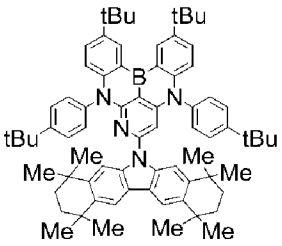
(1-4285)



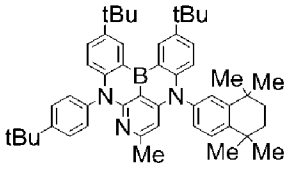
(1-4286)



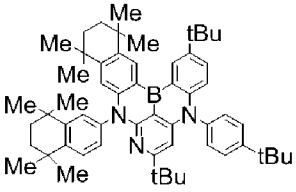
(1-4287)



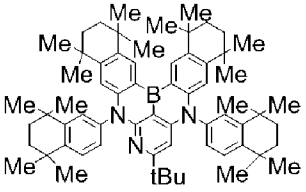
(1-4288)



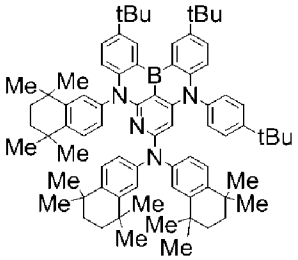
(1-4289)



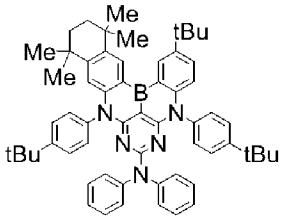
(1-4290)



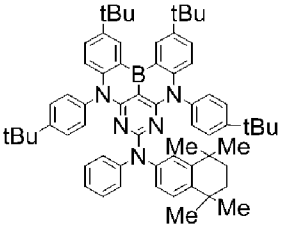
(1-4291)



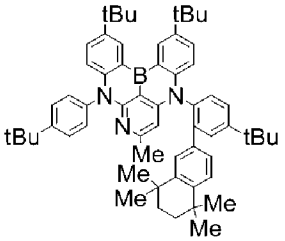
(1-4292)



(1-4293)

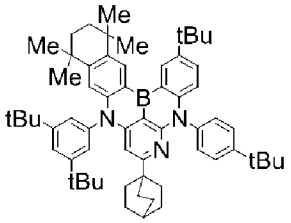


(1-4294)

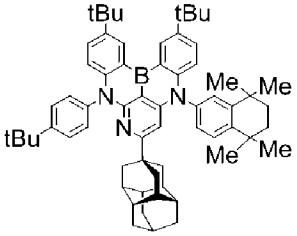


(1-4295)

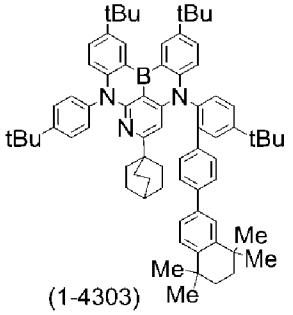
【0278】



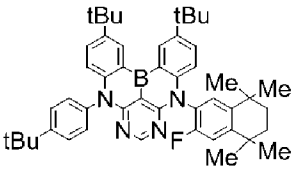
(1-4301)



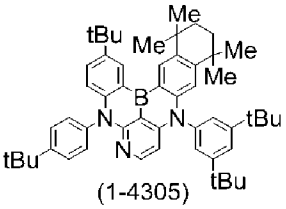
(1-4302)



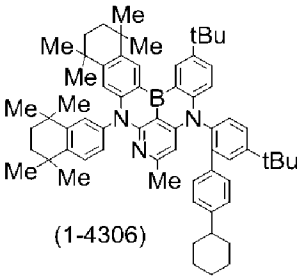
(1-4303)



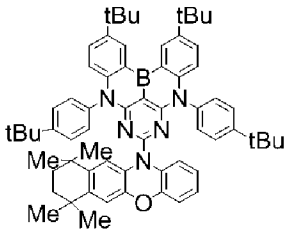
(1-4304)



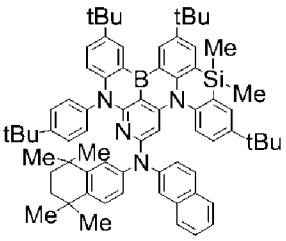
(1-4305)



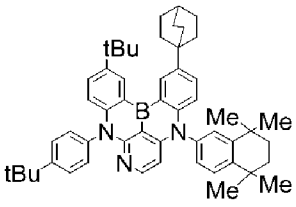
(1-4306)



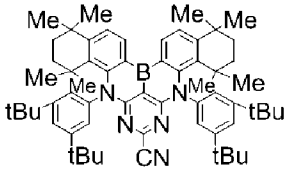
(1-4307)



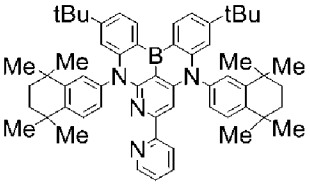
(1-4308)



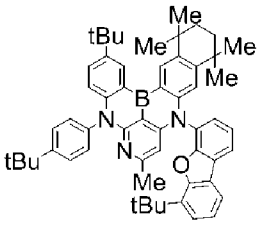
(1-4309)



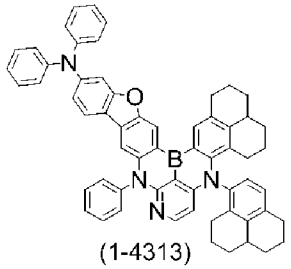
(1-4310)



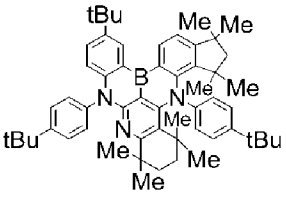
(1-4311)



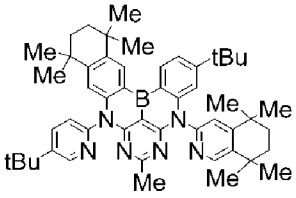
(1-4312)



(1-4313)

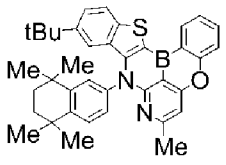


(1-4314)

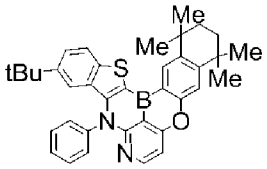


(1-4315)

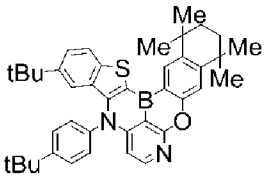
【0279】



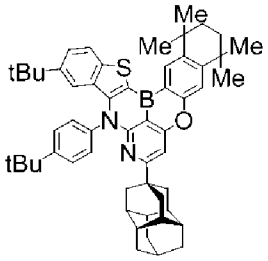
(1-4321)



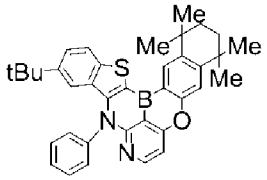
(1-4322)



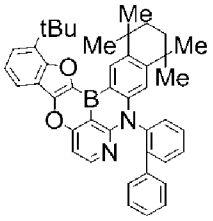
(1-4323)



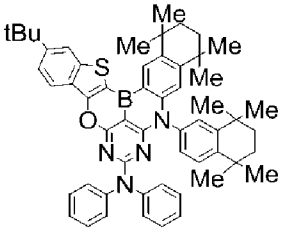
(1-4324)



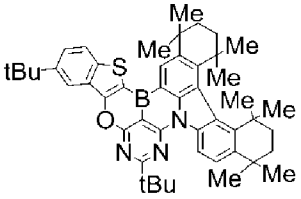
(1-4325)



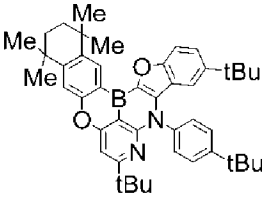
(1-4326)



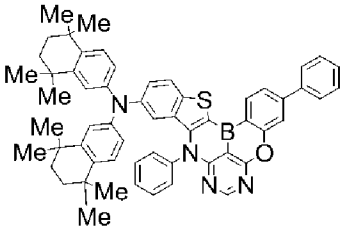
(1-4327)



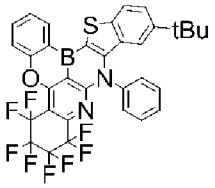
(1-4328)



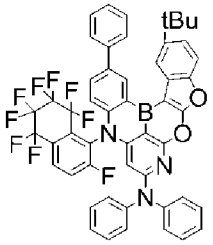
(1-4329)



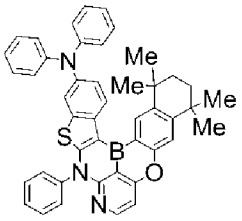
(1-4330)



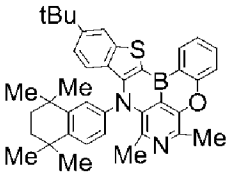
(1-4331)



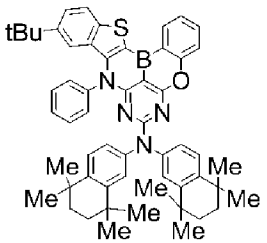
(1-4332)



(1-4333)

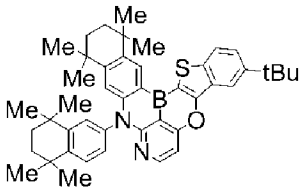


(1-4334)

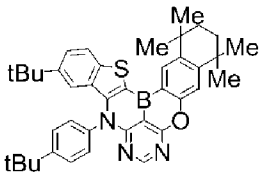


(1-4335)

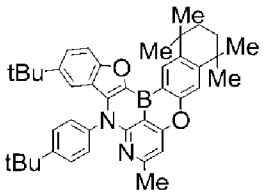
【0280】



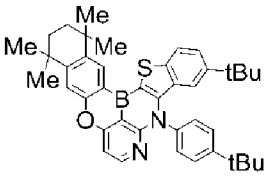
(1-4341)



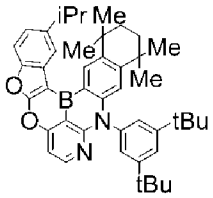
(1-4342)



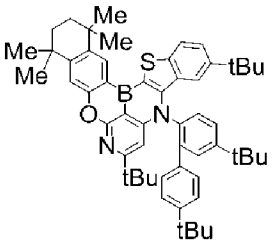
(1-4343)



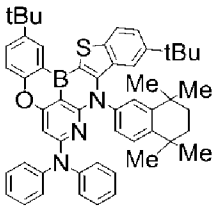
(1-4344)



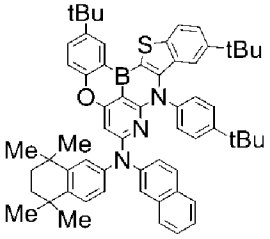
(1-4345)



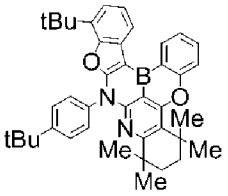
(1-4346)



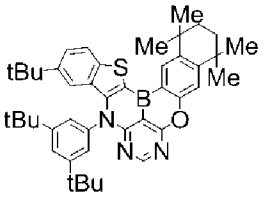
(1-4347)



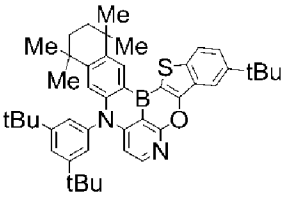
(1-4348)



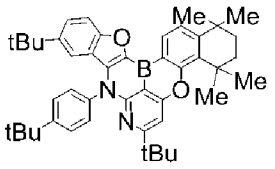
(1-4349)



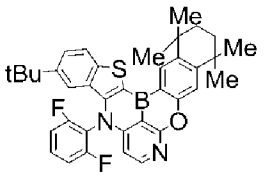
(1-4350)



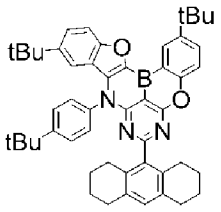
(1-4351)



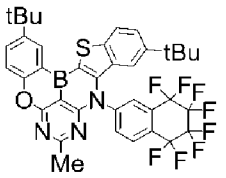
(1-4352)



(1-4353)

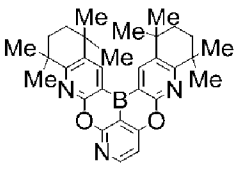


(1-4354)

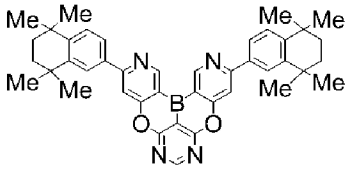


(1-4355)

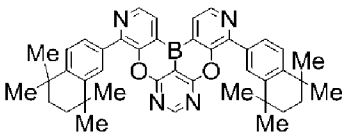
【0281】



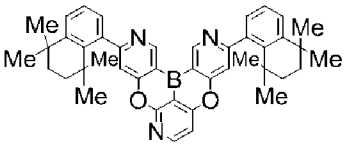
(1-4361)



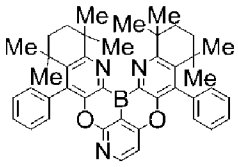
(1-4362)



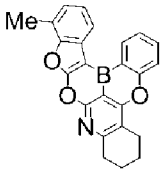
(1-4363)



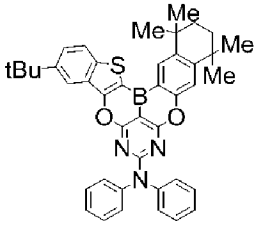
(1-4364)



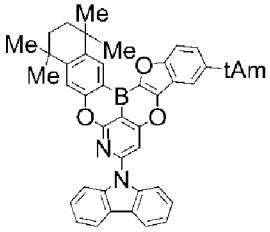
(1-4365)



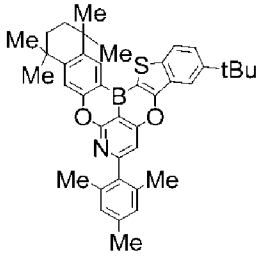
(1-4366)



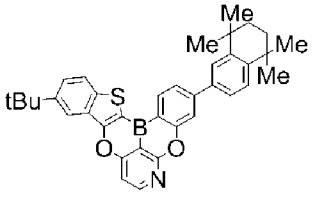
(1-4367)



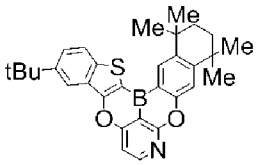
(1-4368)



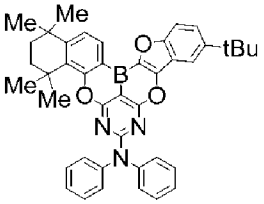
(1-4369)



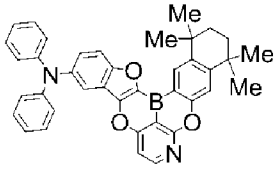
(1-4370)



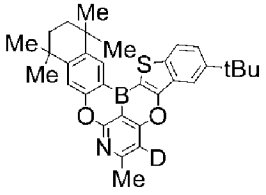
(1-4371)



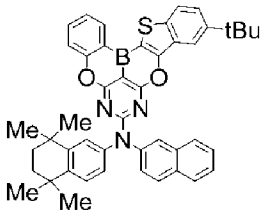
(1-4372)



(1-4373)

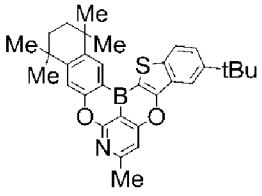


(1-4374)

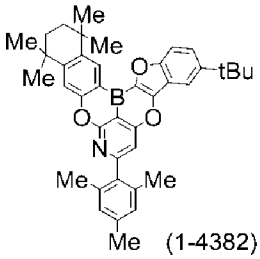


(1-4375)

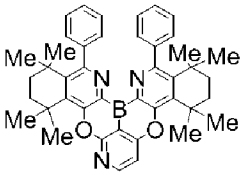
【0282】



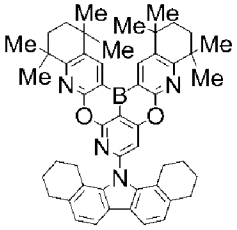
(1-4381)



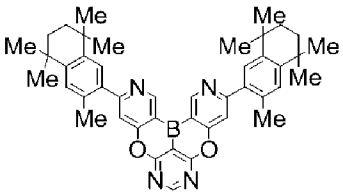
(1-4382)



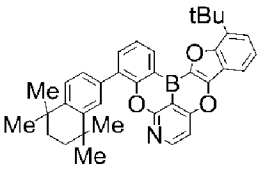
(1-4383)



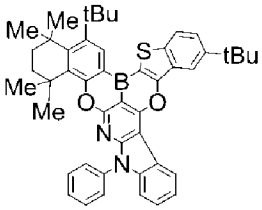
(1-4384)



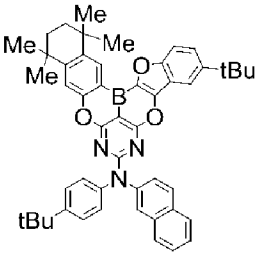
(1-4385)



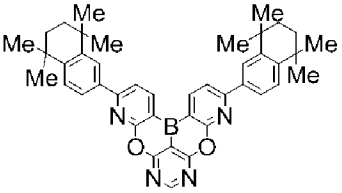
(1-4386)



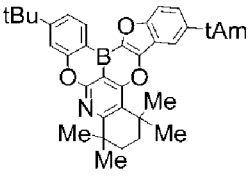
(1-4387)



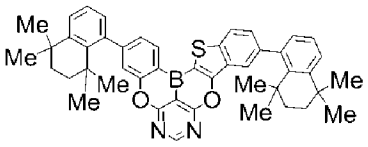
(1-4388)



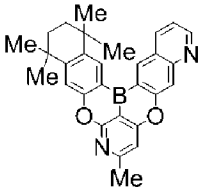
(1-4389)



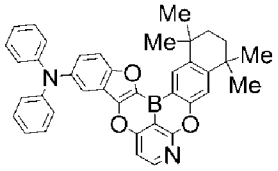
(1-4390)



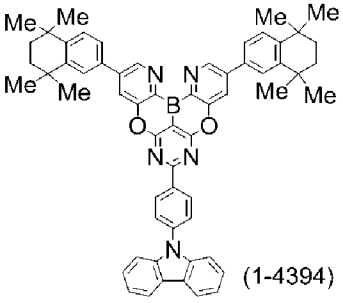
(1-4391)



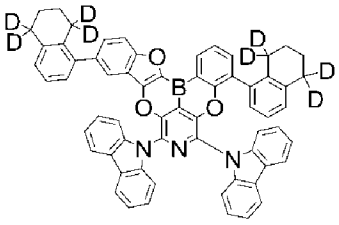
(1-4392)



(1-4393)

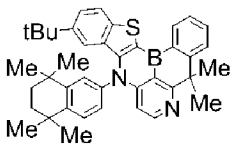


(1-4394)

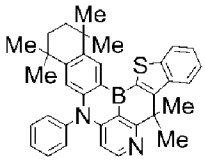


(1-4395)

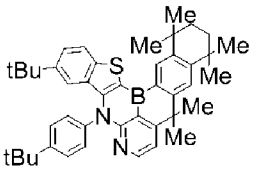
【0283】



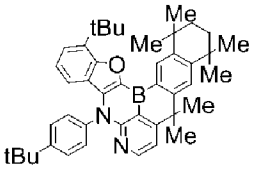
(1-4401)



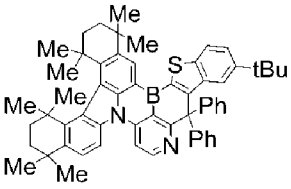
(1-4402)



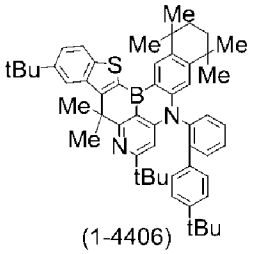
(1-4403)



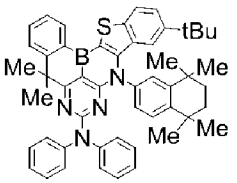
(1-4404)



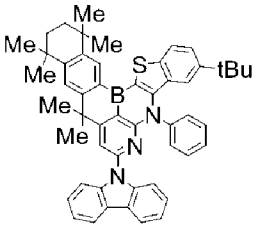
(1-4405)



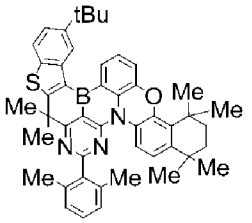
(1-4406)



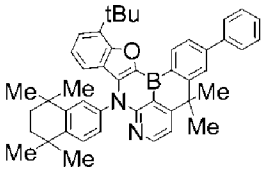
(1-4407)



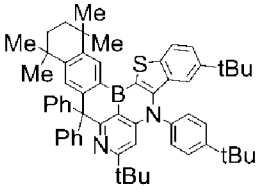
(1-4408)



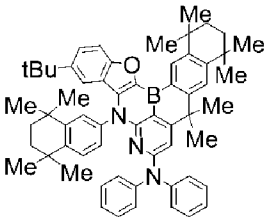
(1-4409)



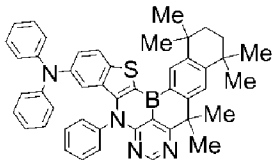
(1-4410)



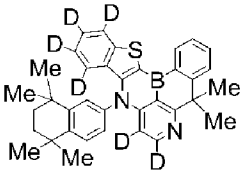
(1-4411)



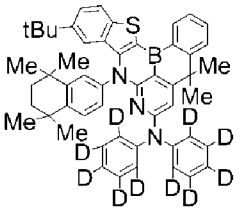
(1-4412)



(1-4413)

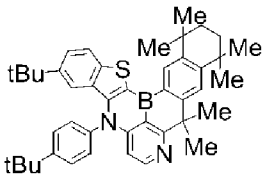


(1-4414)

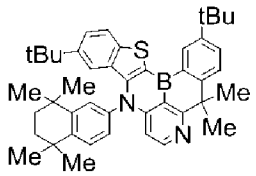


(1-4415)

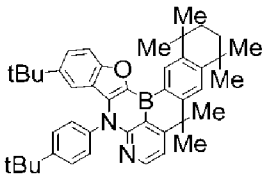
【0284】



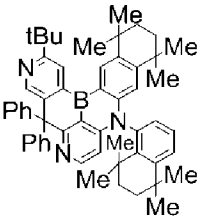
(1-4421)



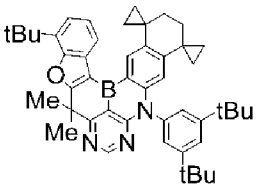
(1-4422)



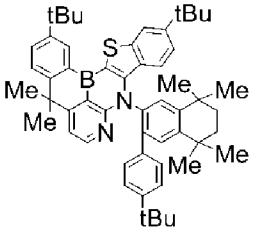
(1-4423)



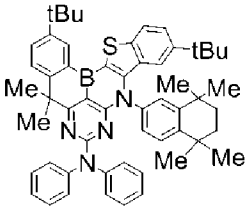
(1-4424)



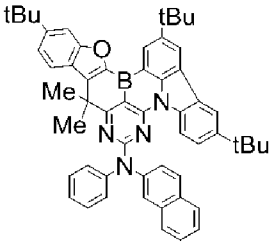
(1-4425)



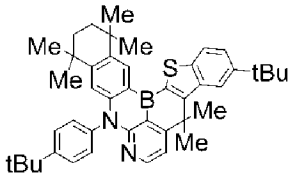
(1-4426)



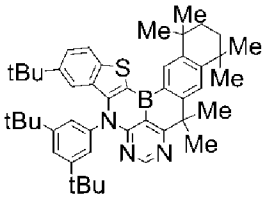
(1-4427)



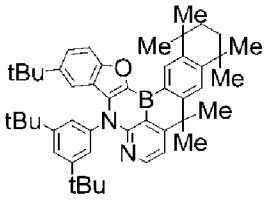
(1-4428)



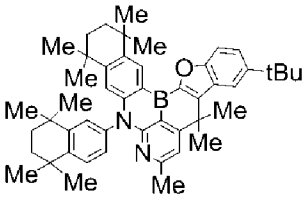
(1-4429)



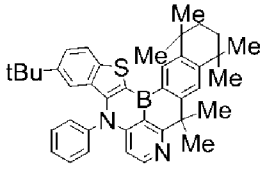
(1-4430)



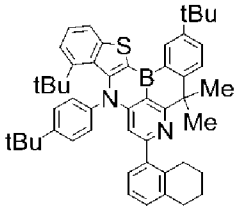
(1-4431)



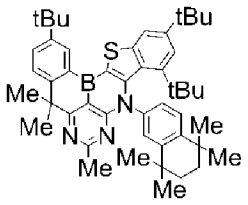
(1-4432)



(1-4433)

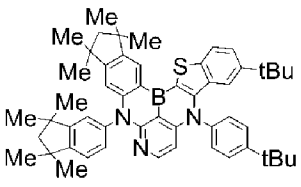


(1-4434)

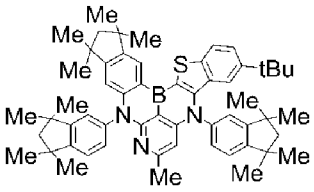


(1-4435)

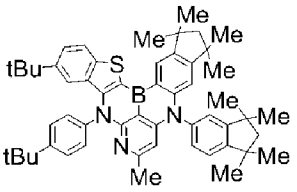
【0285】



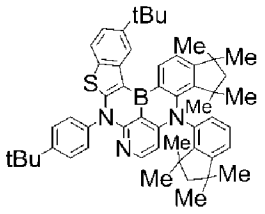
(1-4441)



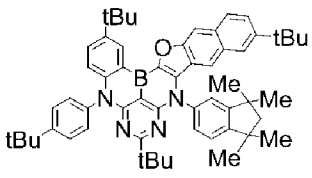
(1-4442)



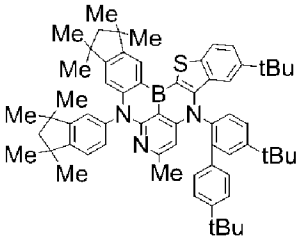
(1-4443)



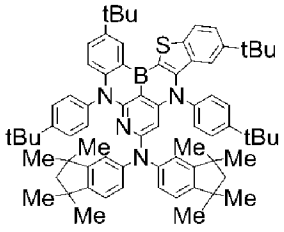
(1-4444)



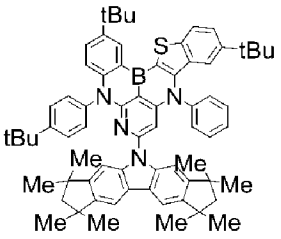
(1-4445)



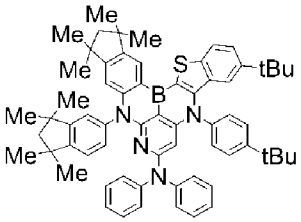
(1-4446)



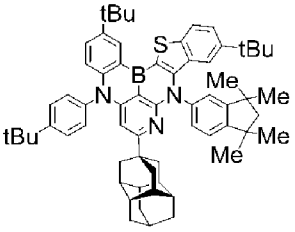
(1-4447)



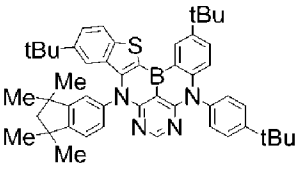
(1-4448)



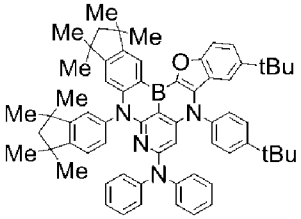
(1-4449)



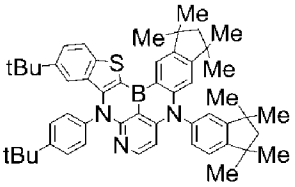
(1-4450)



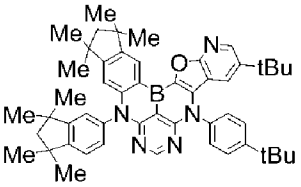
(1-4451)



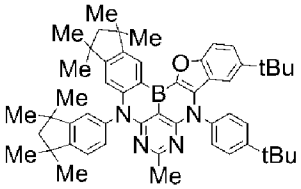
(1-4452)



(1-4453)

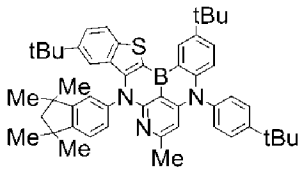


(1-4454)

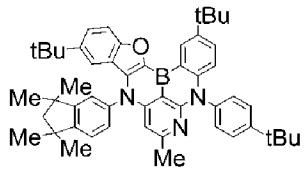


(1-4455)

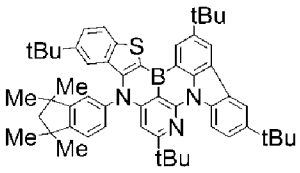
【0286】



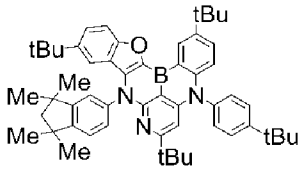
(1-4461)



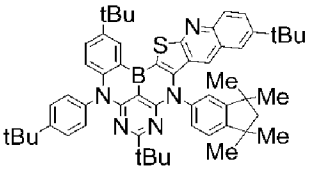
(1-4462)



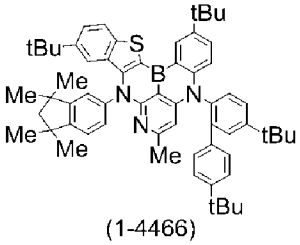
(1-4463)



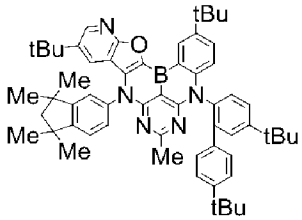
(1-4464)



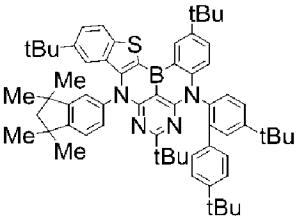
(1-4465)



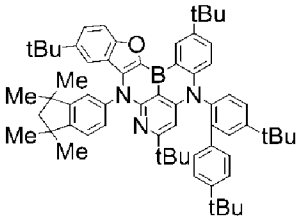
(1-4466)



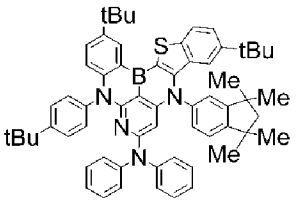
(1-4467)



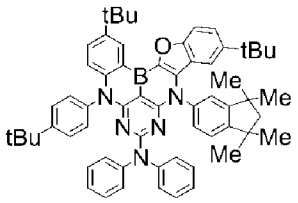
(1-4468)



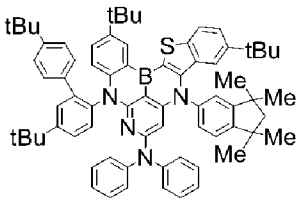
(1-4469)



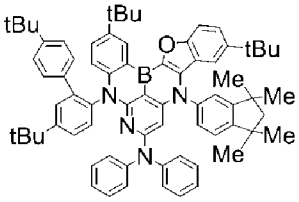
(1-4470)



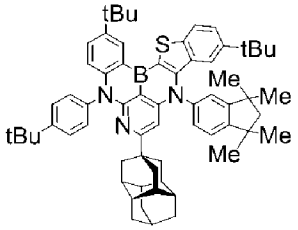
(1-4471)



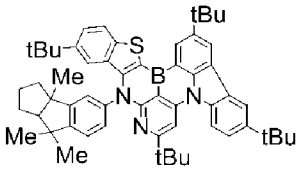
(1-4472)



(1-4473)

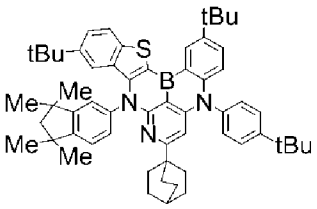


(1-4474)

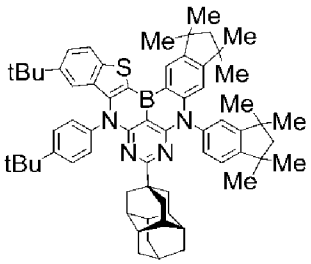


(1-4475)

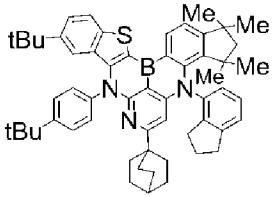
【0287】



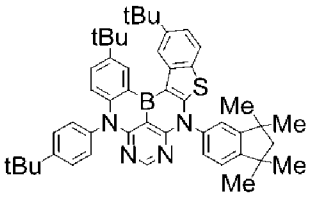
(1-4481)



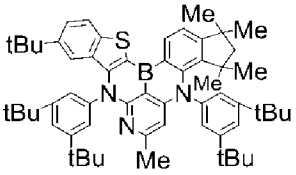
(1-4482)



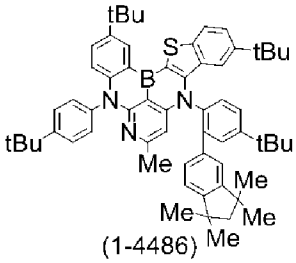
(1-4483)



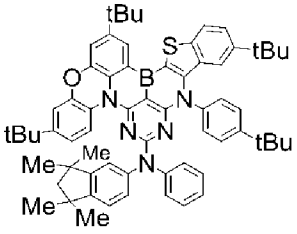
(1-4484)



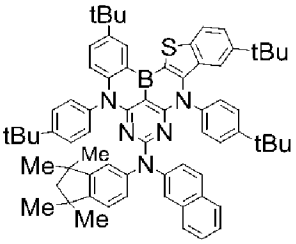
(1-4485)



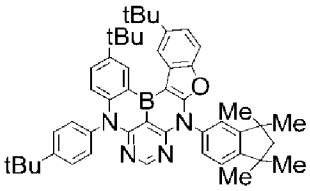
(1-4486)



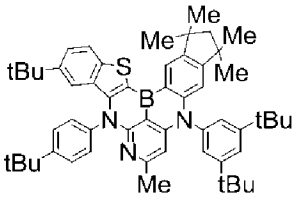
(1-4487)



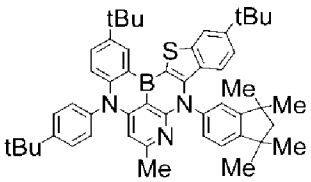
(1-4488)



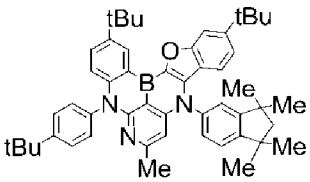
(1-4489)



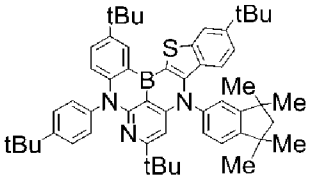
(1-4490)



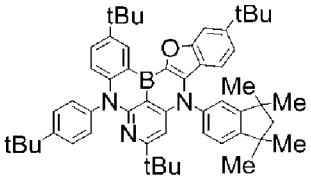
(1-4491)



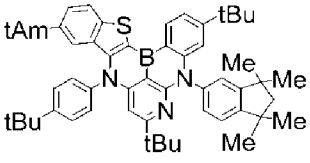
(1-4492)



(1-4493)

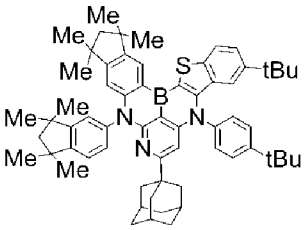


(1-4494)

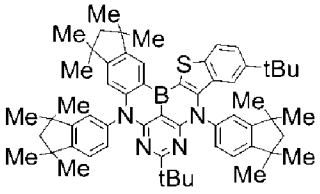


(1-4495)

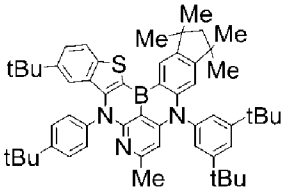
【0288】



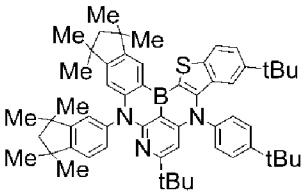
(1-4501)



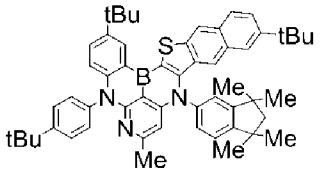
(1-4502)



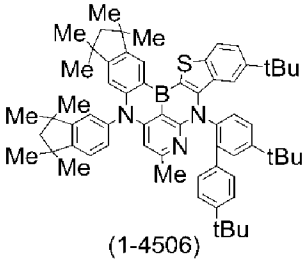
(1-4503)



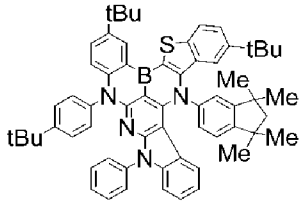
(1-4504)



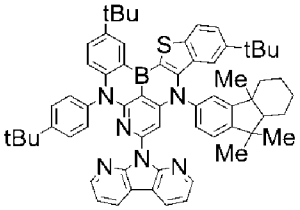
(1-4505)



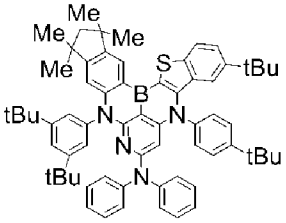
(1-4506)



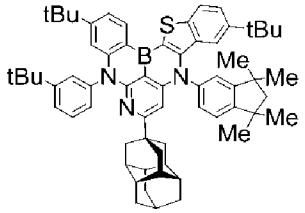
(1-4507)



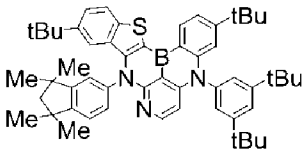
(1-4508)



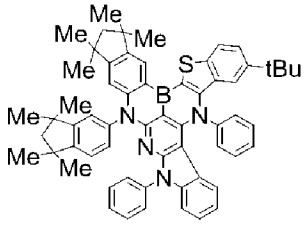
(1-4509)



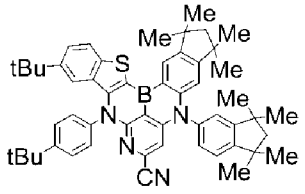
(1-4510)



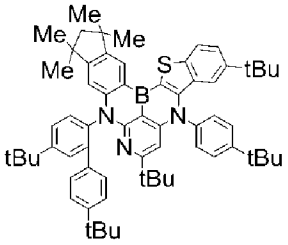
(1-4511)



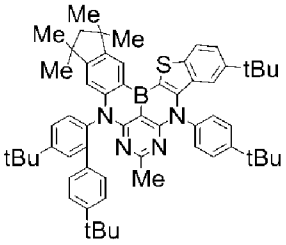
(1-4512)



(1-4513)

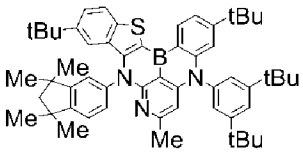


(1-4514)

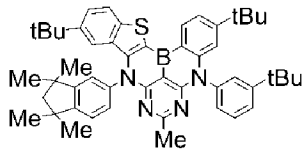


(1-4515)

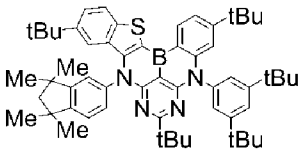
【0289】



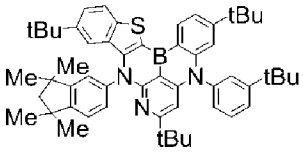
(1-4521)



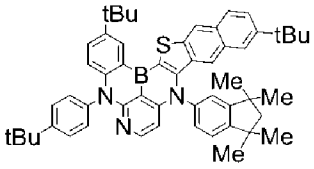
(1-4522)



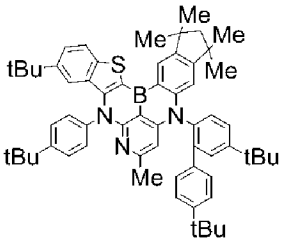
(1-4523)



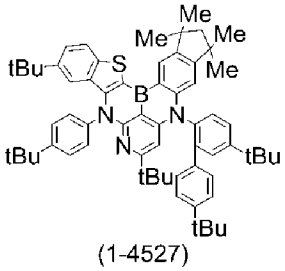
(1-4524)



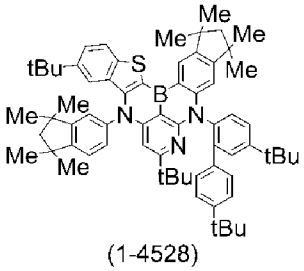
(1-4525)



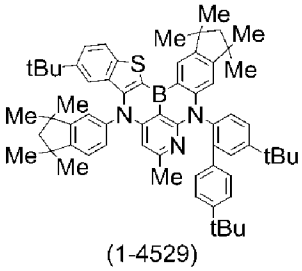
(1-4526)



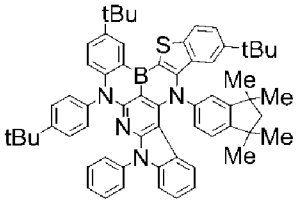
(1-4527)



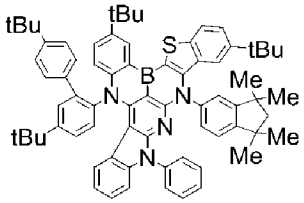
(1-4528)



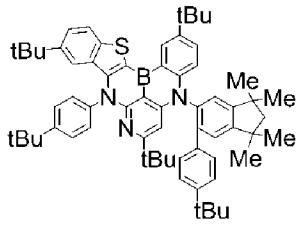
(1-4529)



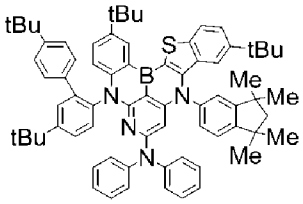
(1-4530)



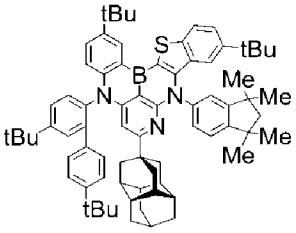
(1-4531)



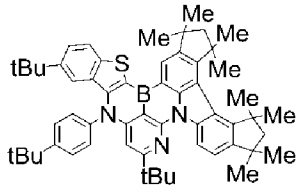
(1-4532)



(1-4533)

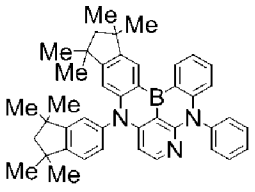


(1-4534)

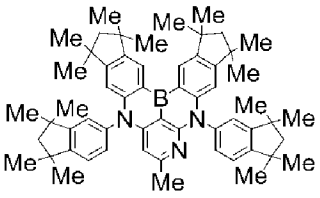


(1-4535)

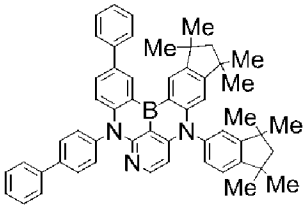
【0290】



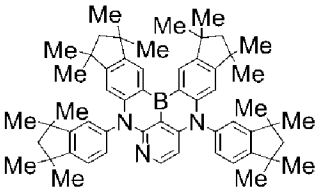
(1-4541)



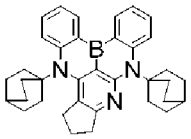
(1-4542)



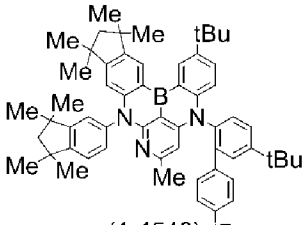
(1-4543)



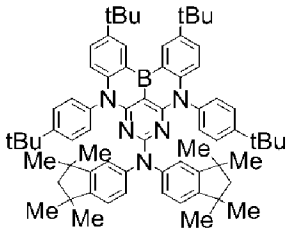
(1-4544)



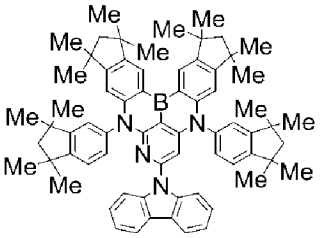
(1-4545)



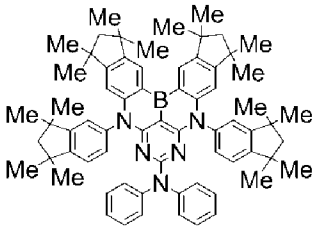
(1-4546)



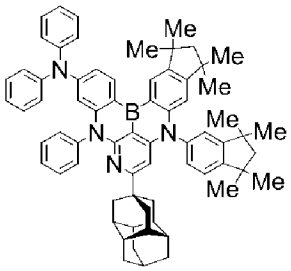
(1-4547)



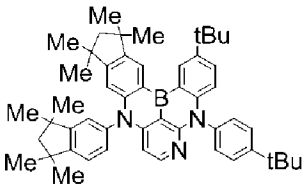
(1-4548)



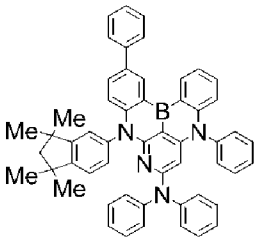
(1-4549)



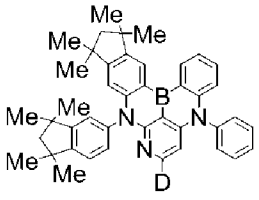
(1-4550)



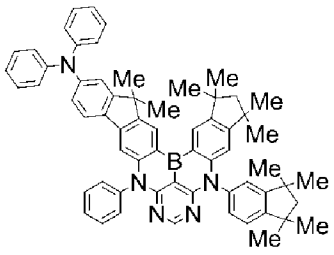
(1-4551)



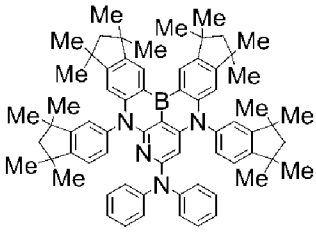
(1-4552)



(1-4553)

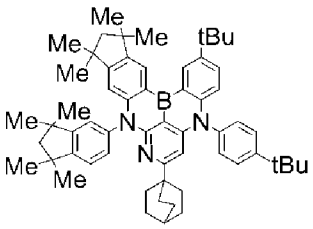


(1-4554)

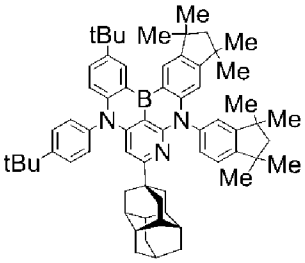


(1-4555)

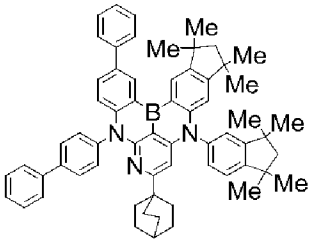
【0291】



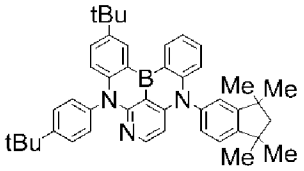
(1-4561)



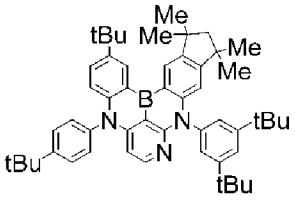
(1-4562)



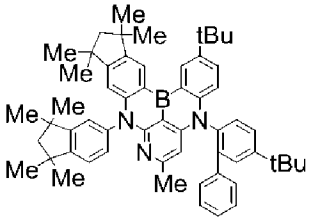
(1-4563)



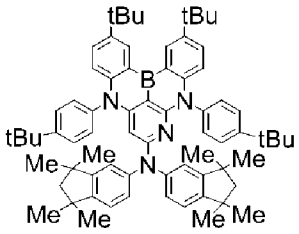
(1-4564)



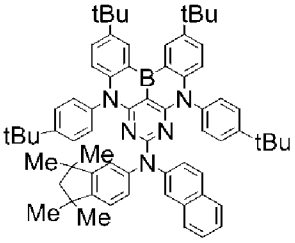
(1-4565)



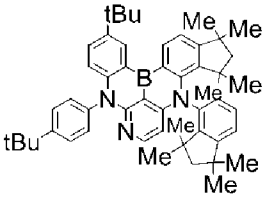
(1-4566)



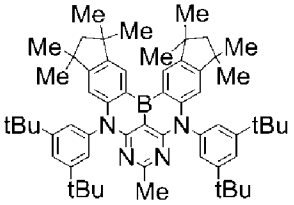
(1-4567)



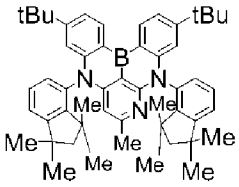
(1-4568)



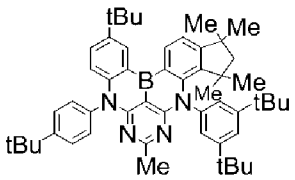
(1-4569)



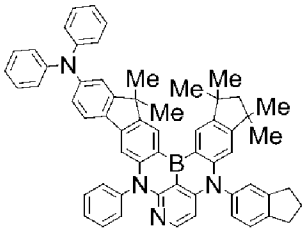
(1-4570)



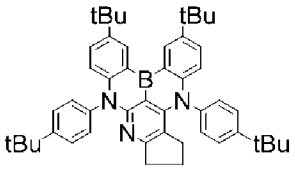
(1-4571)



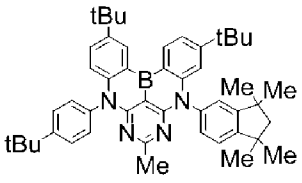
(1-4572)



(1-4573)

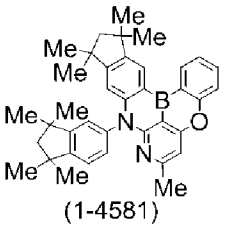


(1-4574)

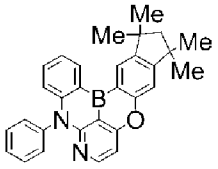


(1-4575)

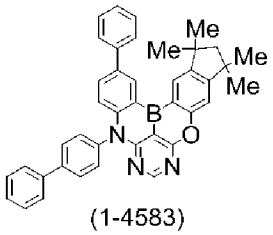
【0292】



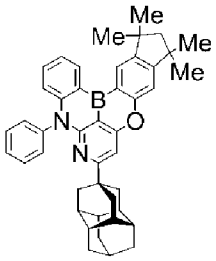
(1-4581)



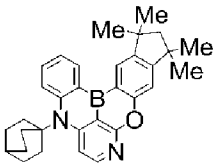
(1-4582)



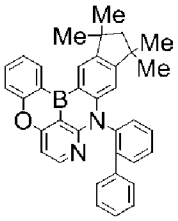
(1-4583)



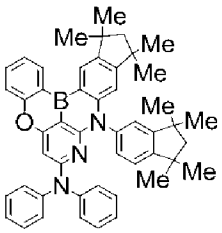
(1-4584)



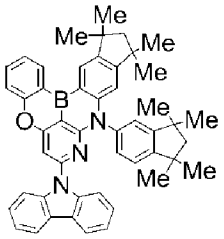
(1-4585)



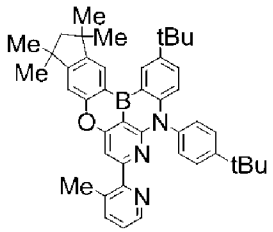
(1-4586)



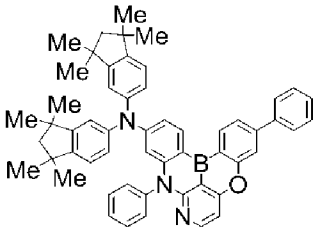
(1-4587)



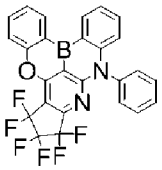
(1-4588)



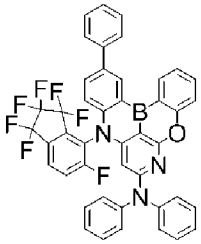
(1-4589)



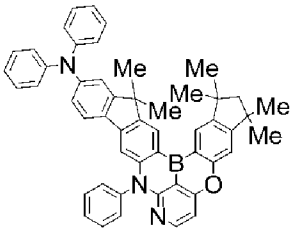
(1-4590)



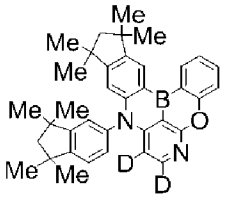
(1-4591)



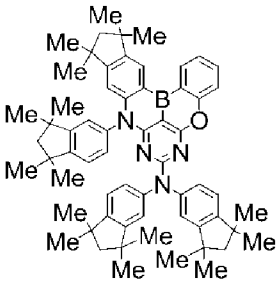
(1-4592)



(1-4593)

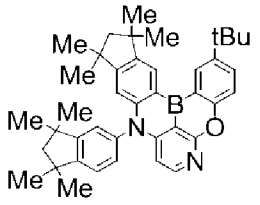


(1-4594)

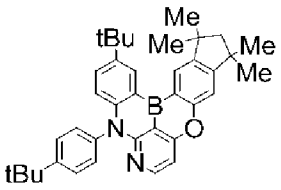


(1-4595)

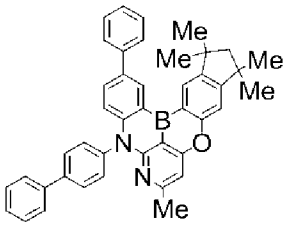
【0293】



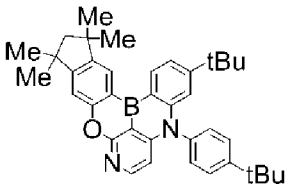
(1-4601)



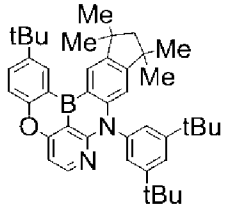
(1-4602)



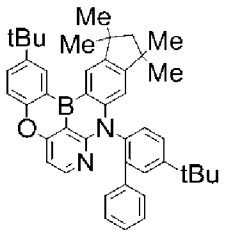
(1-4603)



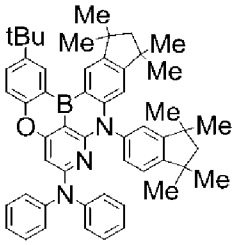
(1-4604)



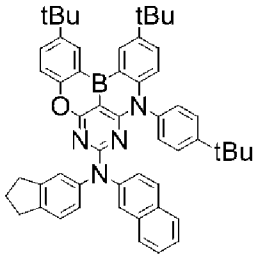
(1-4605)



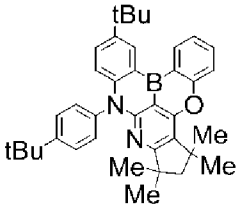
(1-4606)



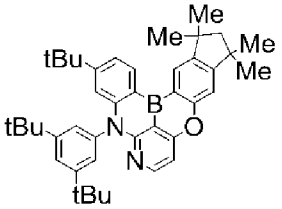
(1-4607)



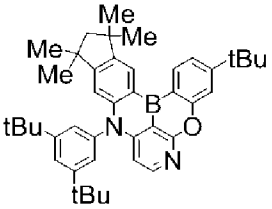
(1-4608)



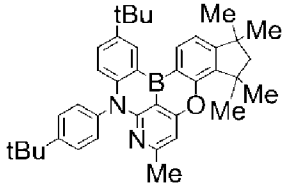
(1-4609)



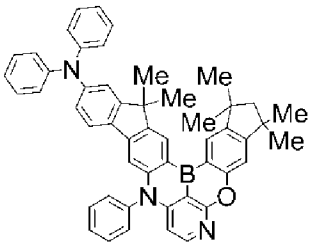
(1-4610)



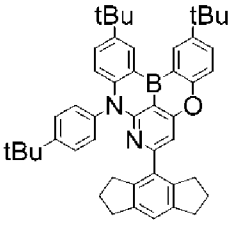
(1-4611)



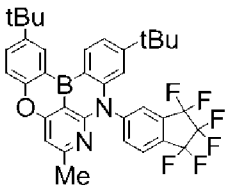
(1-4612)



(1-4613)

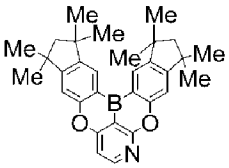


(1-4614)

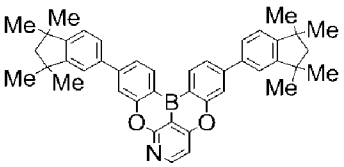


(1-4615)

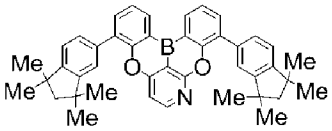
【0294】



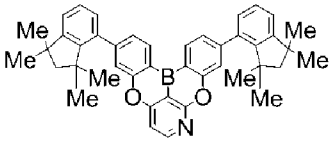
(1-4621)



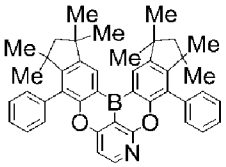
(1-4622)



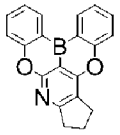
(1-4623)



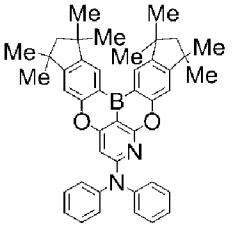
(1-4624)



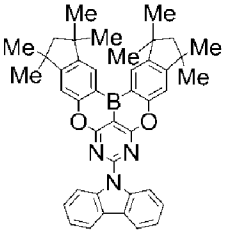
(1-4625)



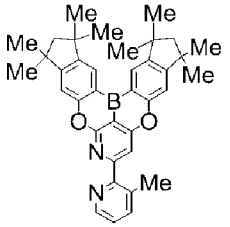
(1-4626)



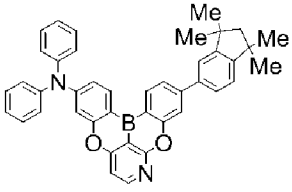
(1-4627)



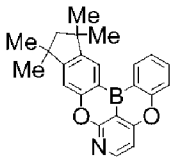
(1-4628)



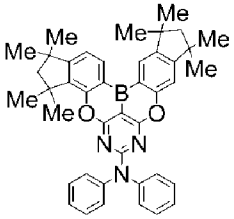
(1-4629)



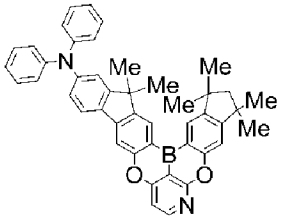
(1-4630)



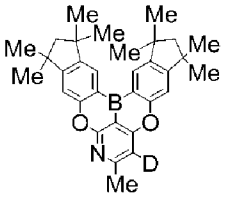
(1-4631)



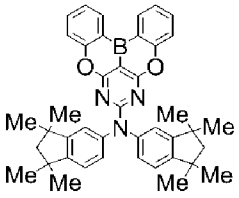
(1-4632)



(1-4633)

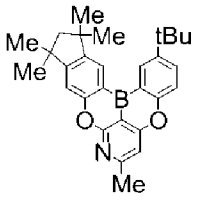


(1-4634)

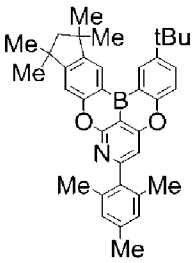


(1-4635)

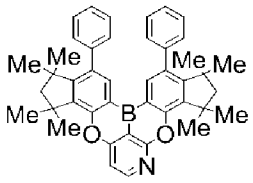
【0295】



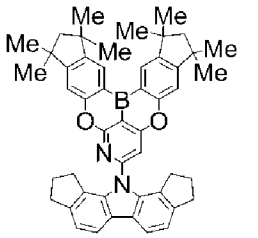
(1-4641)



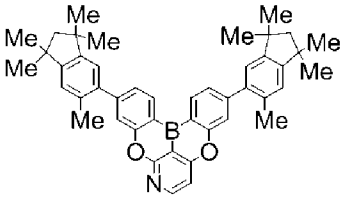
(1-4642)



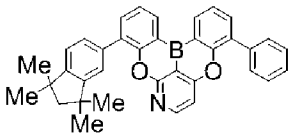
(1-4643)



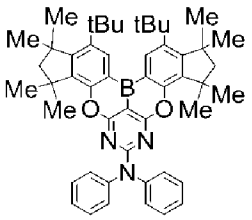
(1-4644)



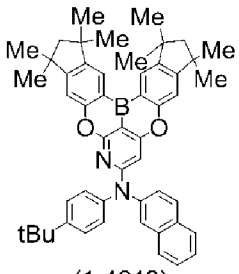
(1-4645)



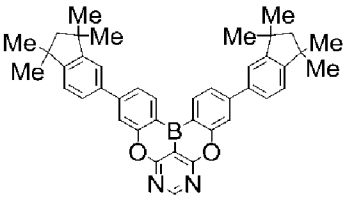
(1-4646)



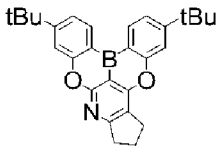
(1-4647)



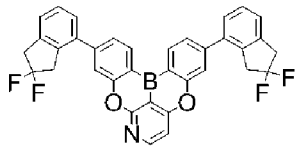
(1-4648)



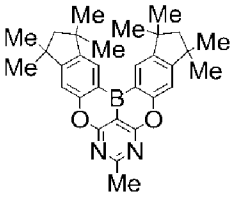
(1-4649)



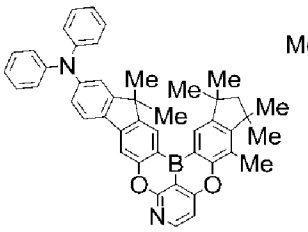
(1-4650)



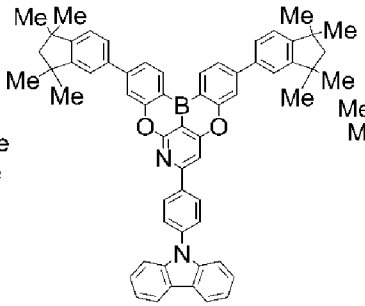
(1-4651)



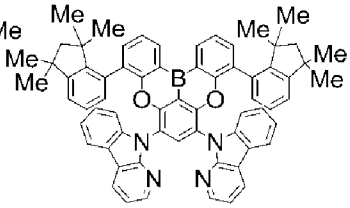
(1-4652)



(1-4653)

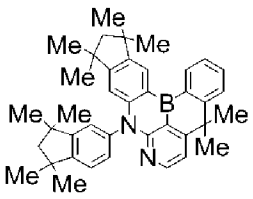


(1-4654)

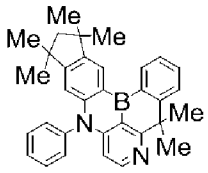


(1-4655)

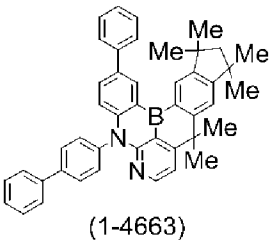
【0296】



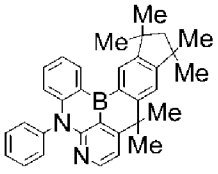
(1-4661)



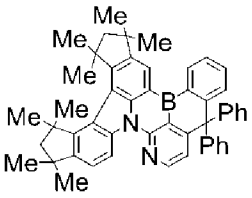
(1-4662)



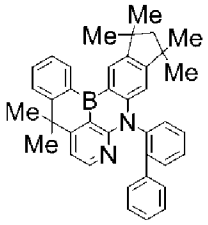
(1-4663)



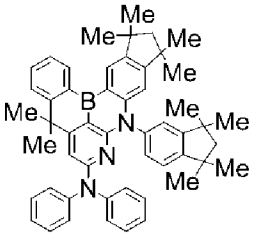
(1-4664)



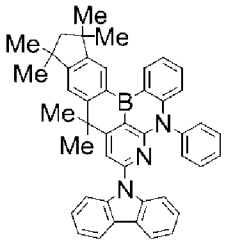
(1-4665)



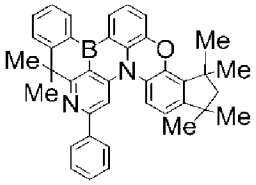
(1-4666)



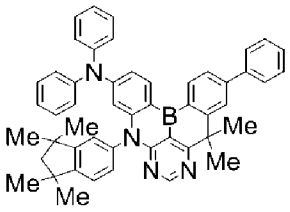
(1-4667)



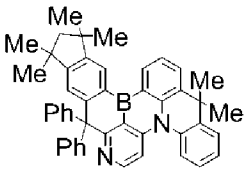
(1-4668)



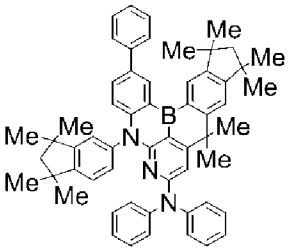
(1-4669)



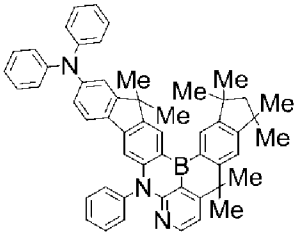
(1-4670)



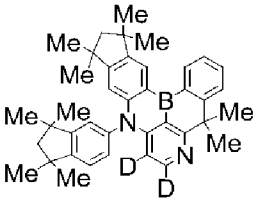
(1-4671)



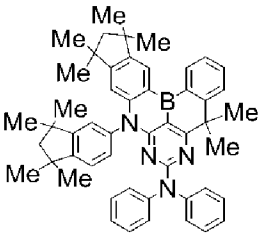
(1-4672)



(1-4673)

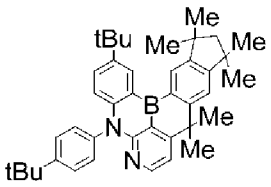


(1-4674)

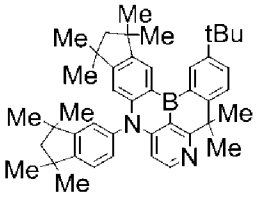


(1-4675)

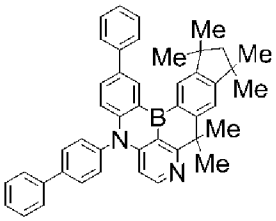
【0297】



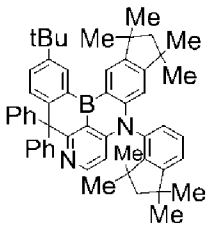
(1-4681)



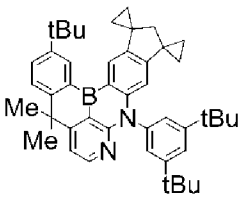
(1-4682)



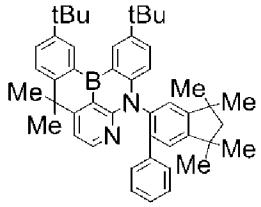
(1-4683)



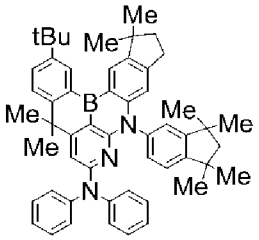
(1-4684)



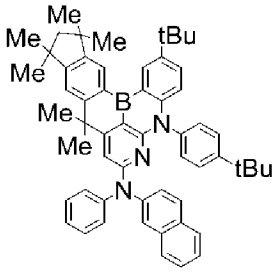
(1-4685)



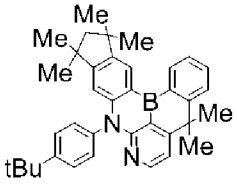
(1-4686)



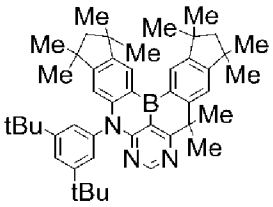
(1-4687)



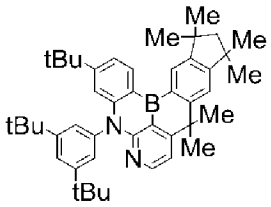
(1-4688)



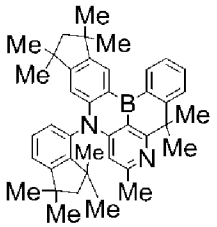
(1-4689)



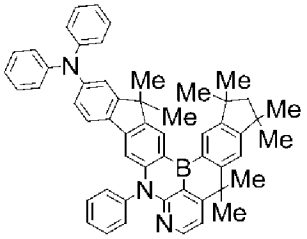
(1-4690)



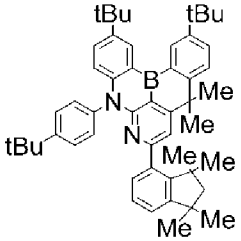
(1-4691)



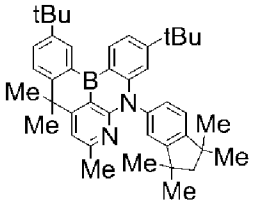
(1-4692)



(1-4693)

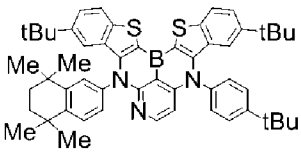


(1-4694)

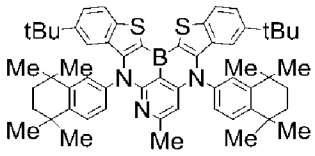


(1-4695)

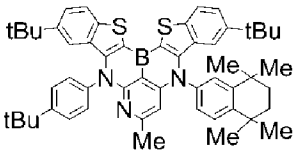
【0298】



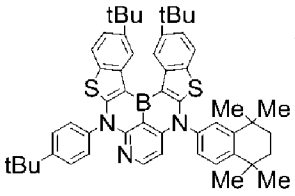
(1-4701)



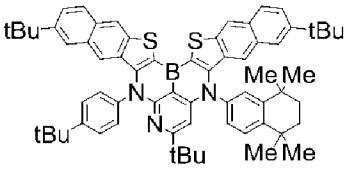
(1-4702)



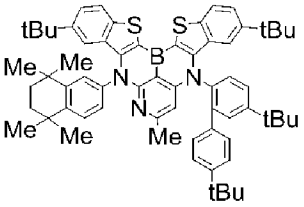
(1-4703)



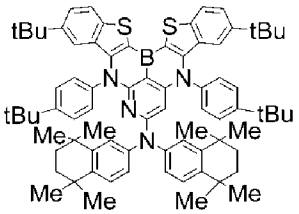
(1-4704)



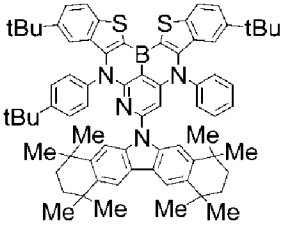
(1-4705)



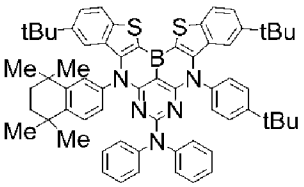
(1-4706)



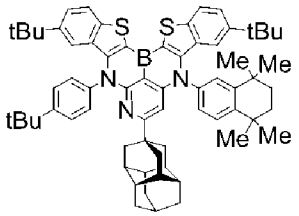
(1-4707)



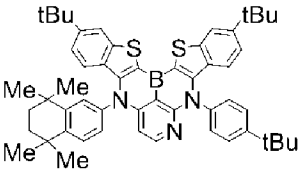
(1-4708)



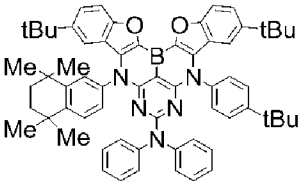
(1-4709)



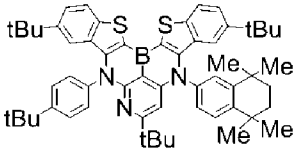
(1-4710)



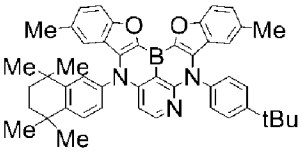
(1-4711)



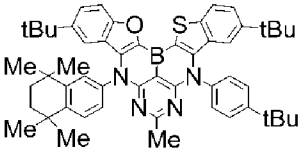
(1-4712)



(1-4713)

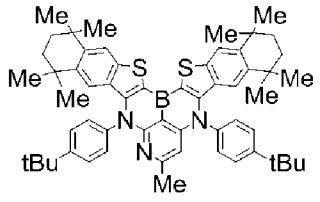


(1-4714)

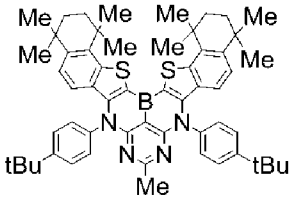


(1-4715)

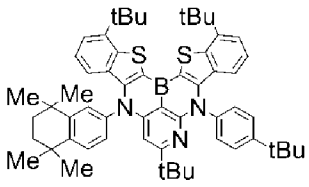
【0299】



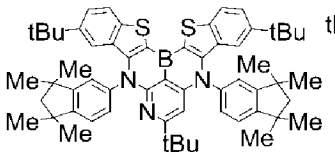
(1-4721)



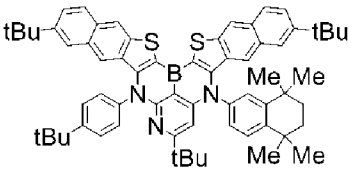
(1-4722)



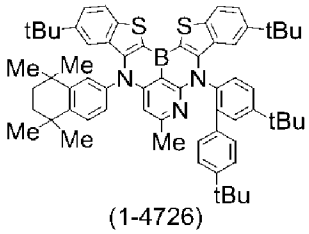
(1-4723)



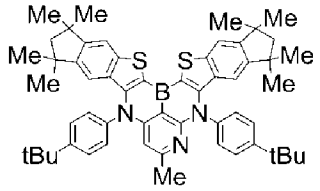
(1-4724)



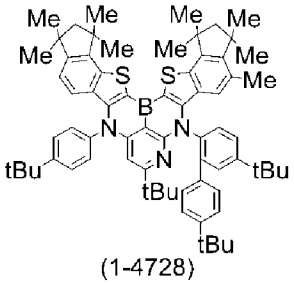
(1-4725)



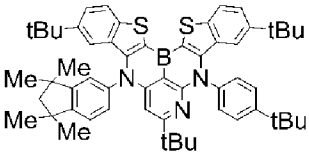
(1-4726)



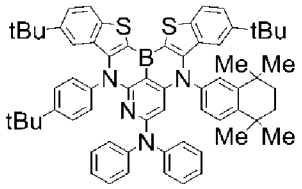
(1-4727)



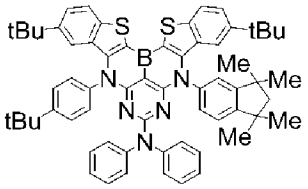
(1-4728)



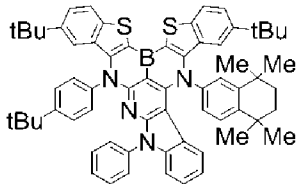
(1-4729)



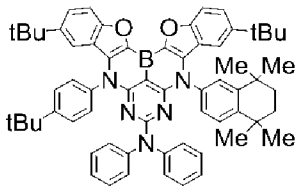
(1-4730)



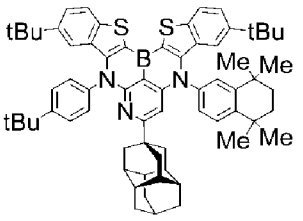
(1-4731)



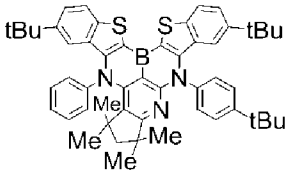
(1-4732)



(1-4733)

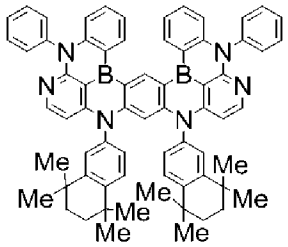


(1-4734)

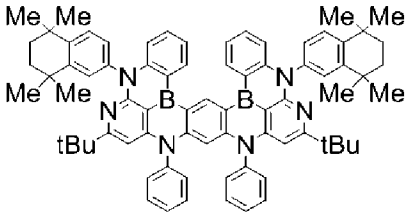


(1-4735)

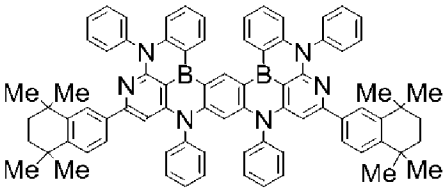
【0300】



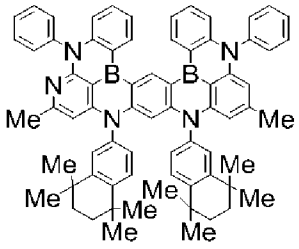
(1-4741)



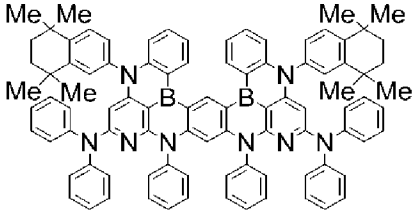
(1-4742)



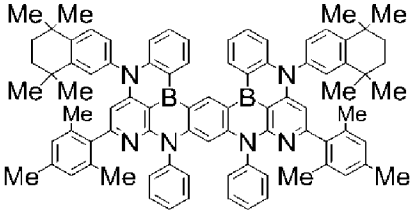
(1-4743)



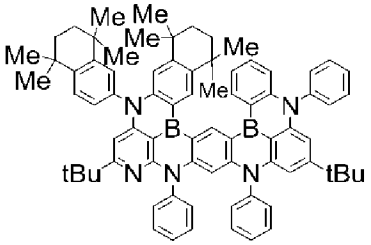
(1-4744)



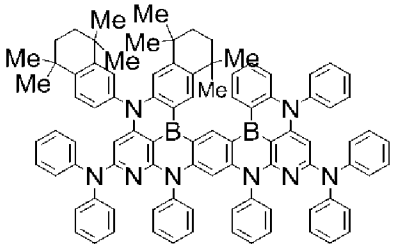
(1-4745)



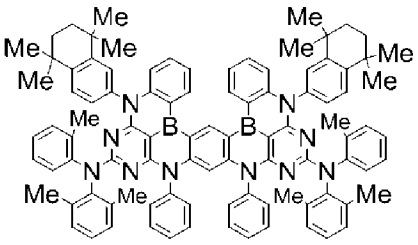
(1-4746)



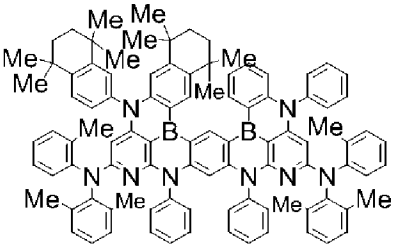
(1-4747)



(1-4748)

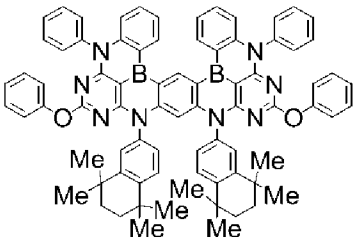


(1-4749)

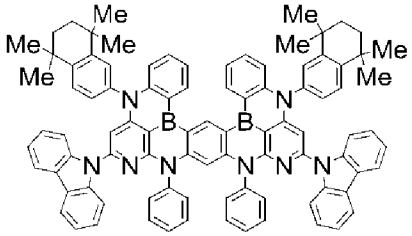


(1-4750)

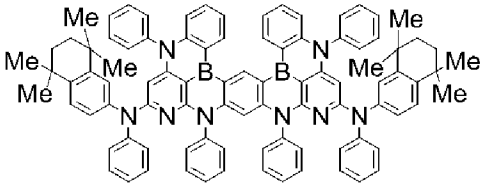
【0301】



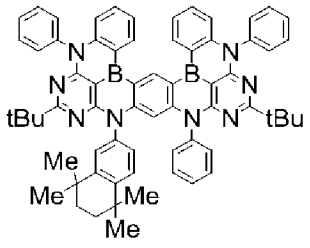
(1-4761)



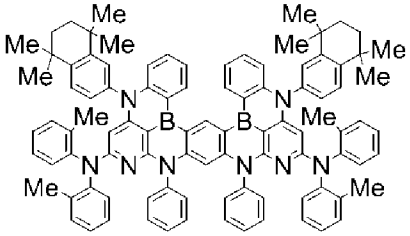
(1-4762)



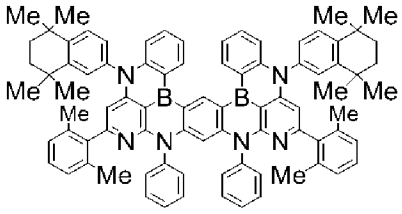
(1-4763)



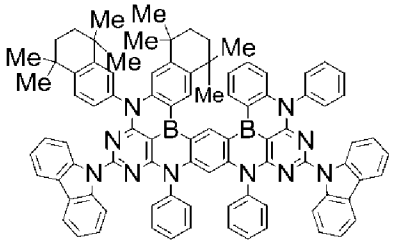
(1-4764)



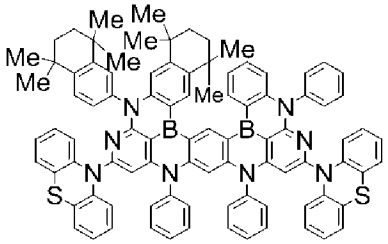
(1-4765)



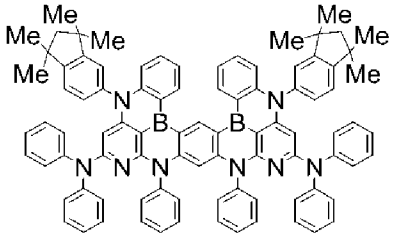
(1-4766)



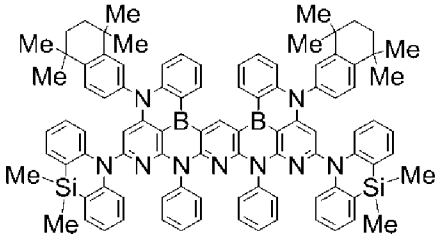
(1-4767)



(1-4768)

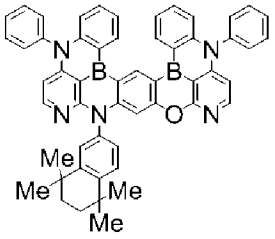


(1-4769)

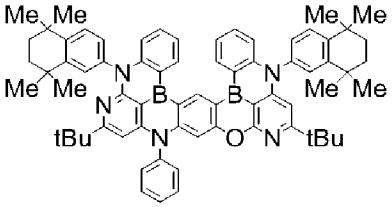


(1-4770)

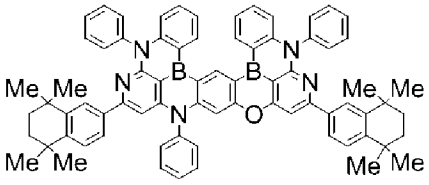
【0302】



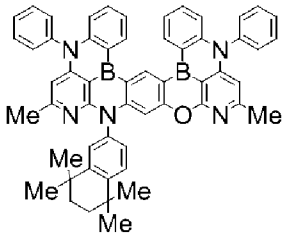
(1-4781)



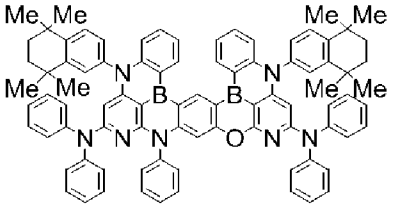
(1-4782)



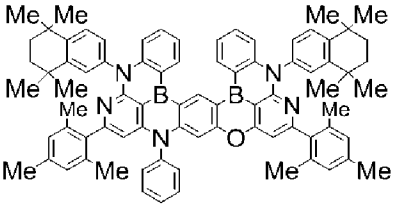
(1-4783)



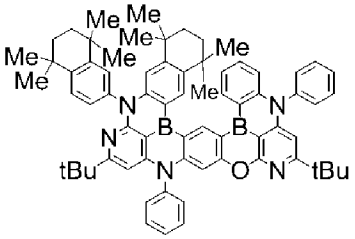
(1-4784)



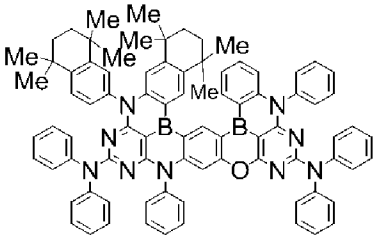
(1-4785)



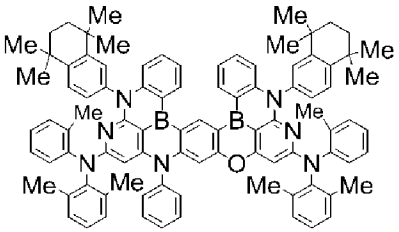
(1-4786)



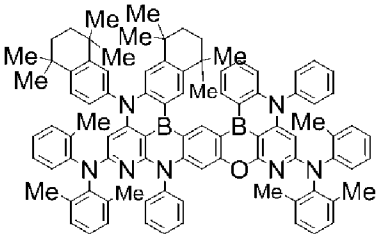
(1-4787)



(1-4788)

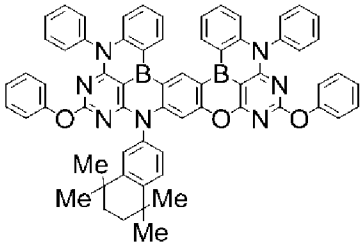


(1-4789)

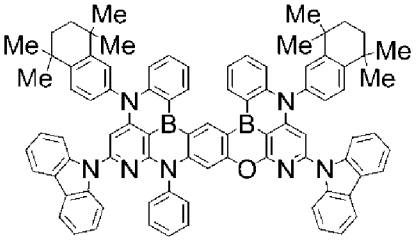


(1-4790)

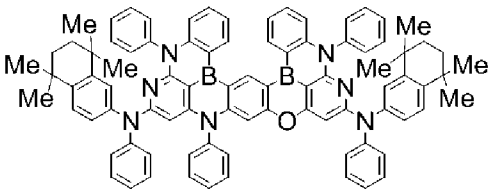
【0303】



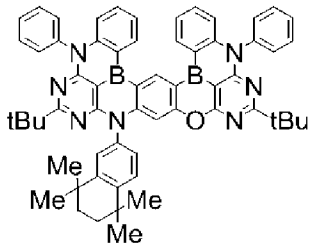
(1-4801)



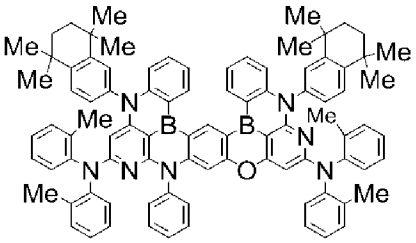
(1-4802)



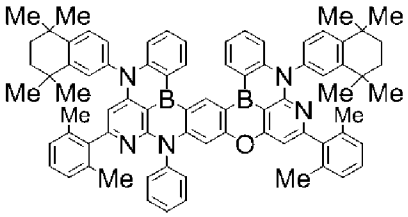
(1-4803)



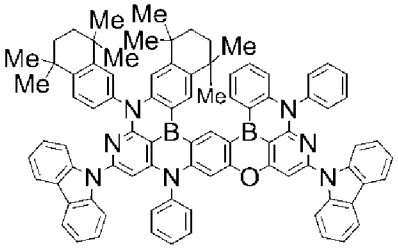
(1-4804)



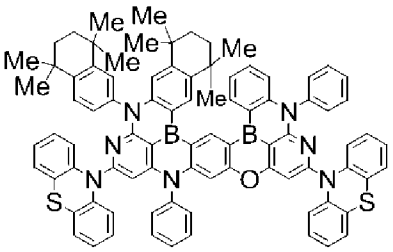
(1-4805)



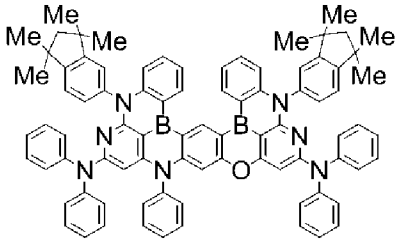
(1-4806)



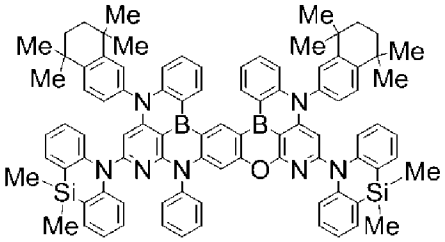
(1-4807)



(1-4808)

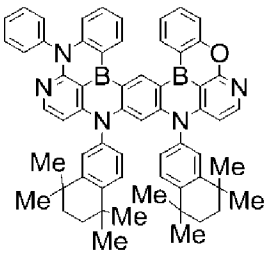


(1-4809)

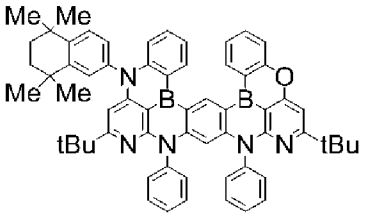


(1-4810)

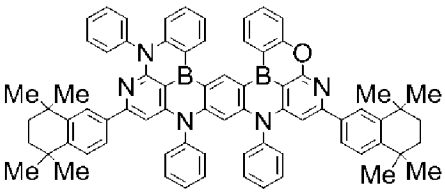
【0304】



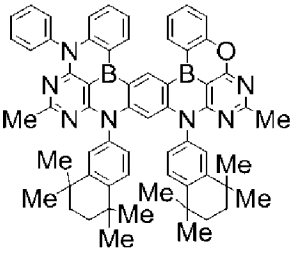
(1-4821)



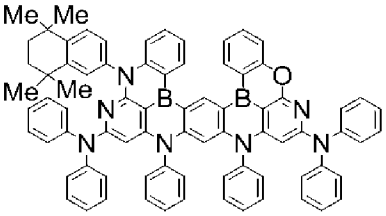
(1-4822)



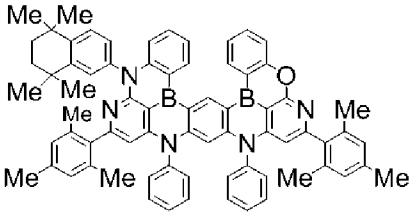
(1-4823)



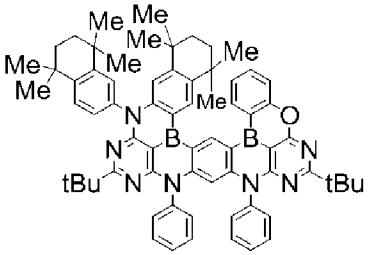
(1-4824)



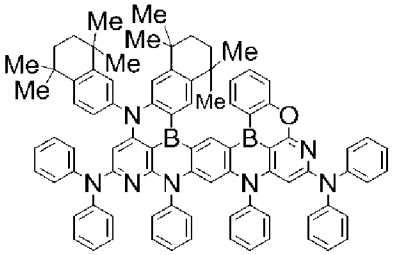
(1-4825)



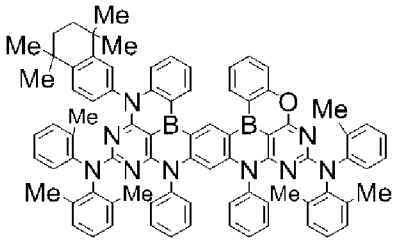
(1-4826)



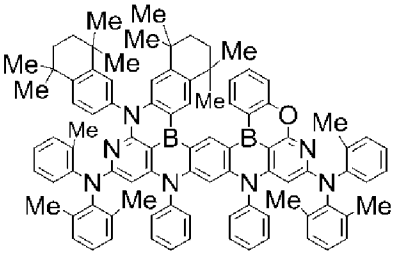
(1-4827)



(1-4828)

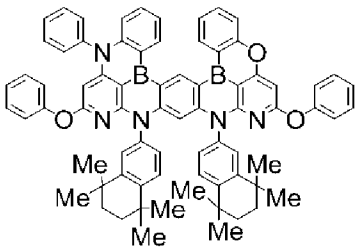


(1-4829)

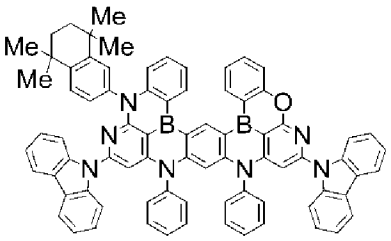


(1-4830)

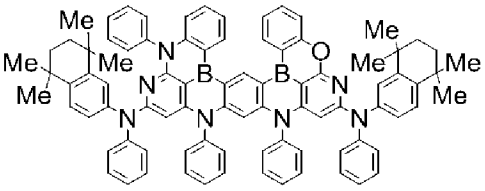
【0305】



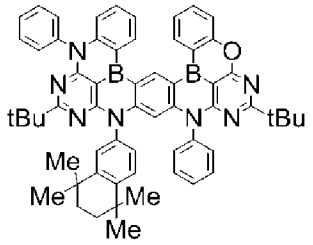
(1-4841)



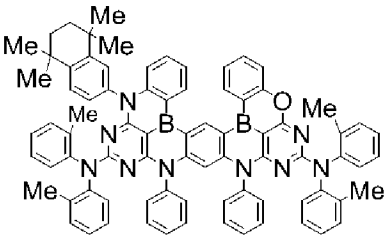
(1-4842)



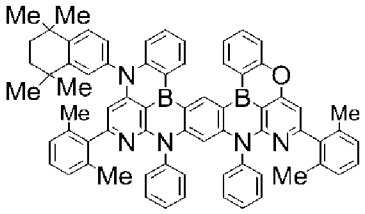
(1-4843)



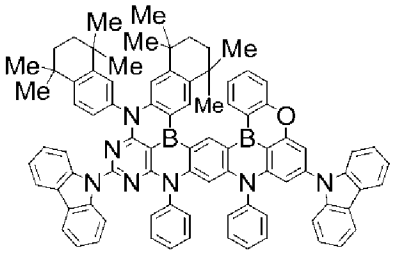
(1-4844)



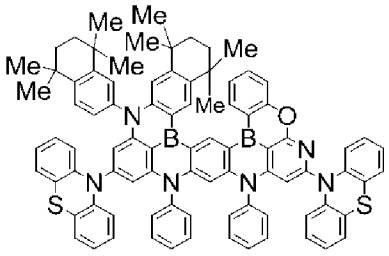
(1-4845)



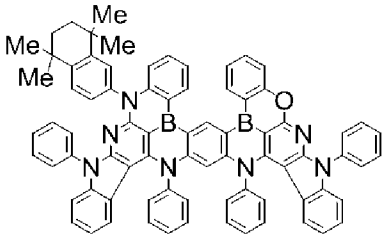
(1-4846)



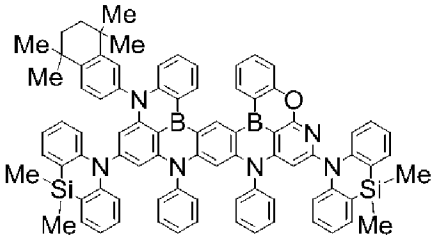
(1-4847)



(1-4848)

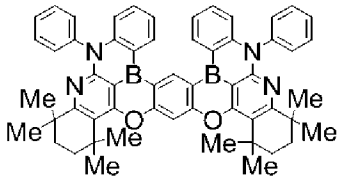


(1-4849)

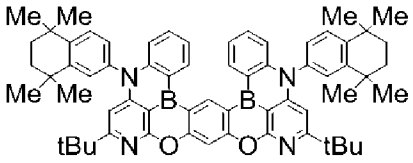


(1-4850)

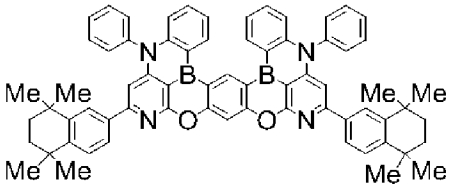
【0306】



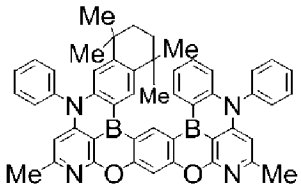
(1-4861)



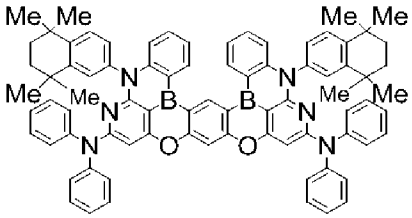
(1-4862)



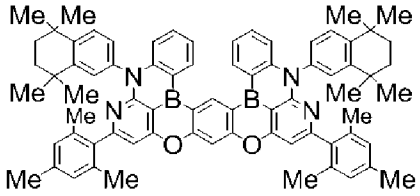
(1-4863)



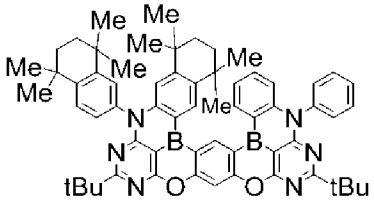
(1-4864)



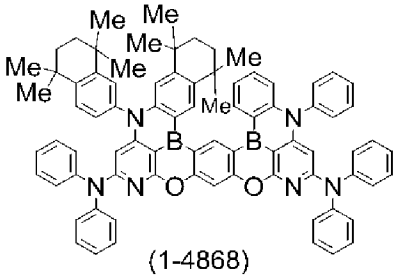
(1-4865)



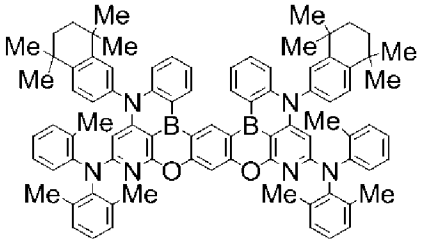
(1-4866)



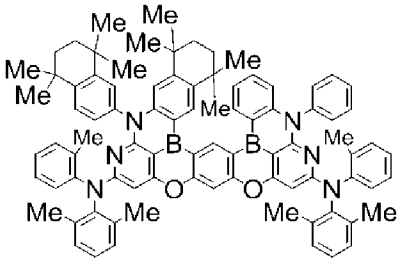
(1-4867)



(1-4868)

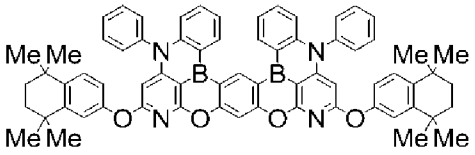


(1-4869)

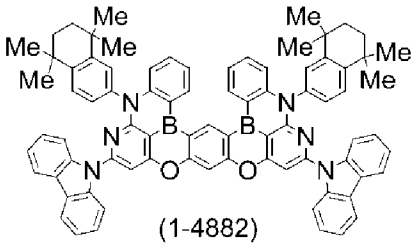


(1-4870)

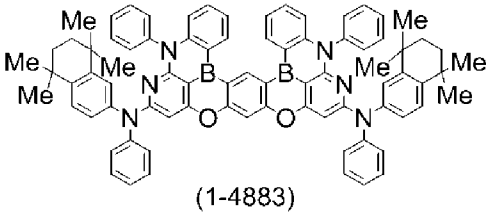
【0307】



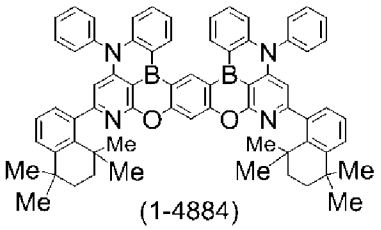
(1-4881)



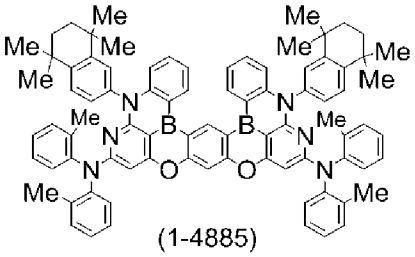
(1-4882)



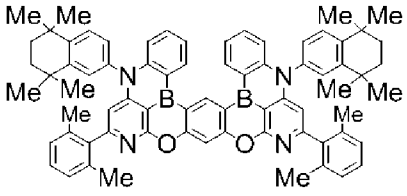
(1-4883)



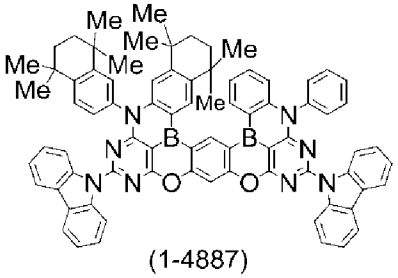
(1-4884)



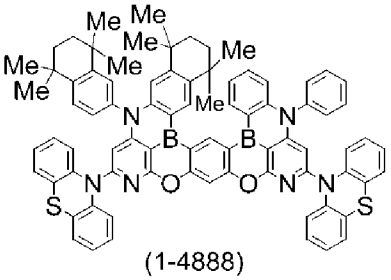
(1-4885)



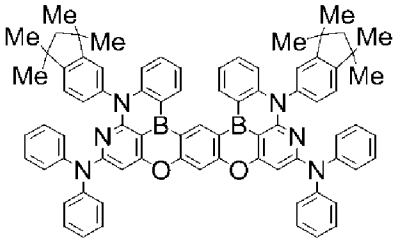
(1-4886)



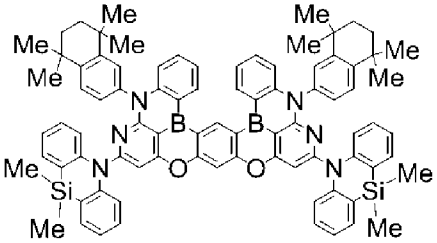
(1-4887)



(1-4888)

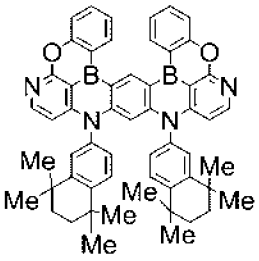


(1-4889)

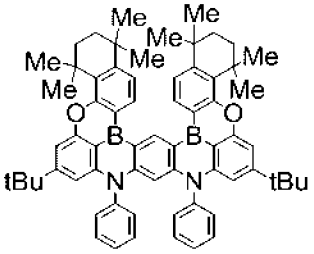


(1-4890)

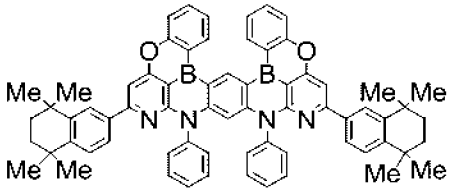
【0308】



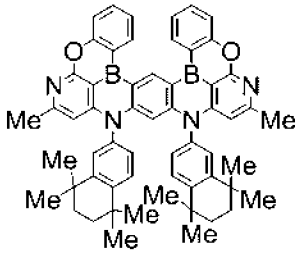
(1-4901)



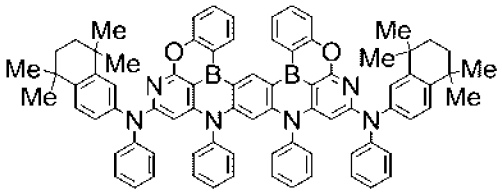
(1-4902)



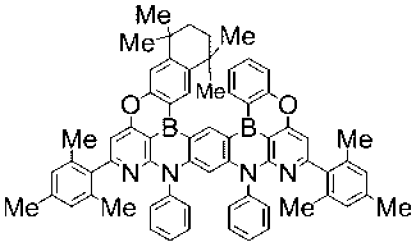
(1-4903)



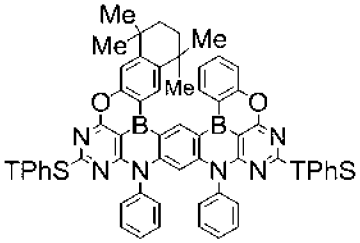
(1-4904)



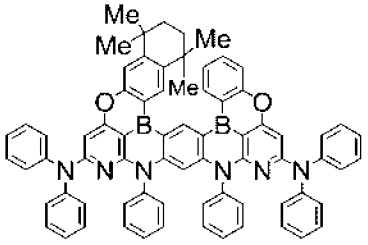
(1-4905)



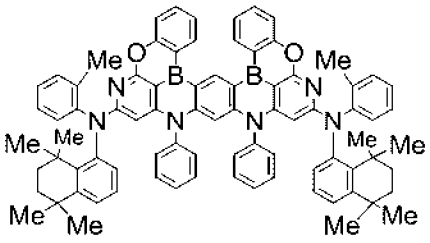
(1-4906)



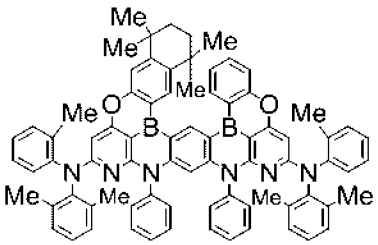
(1-4907)



(1-4908)

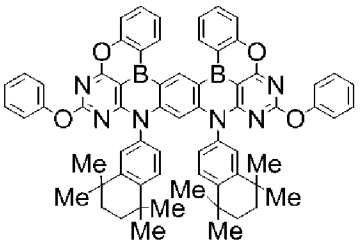


(1-4909)

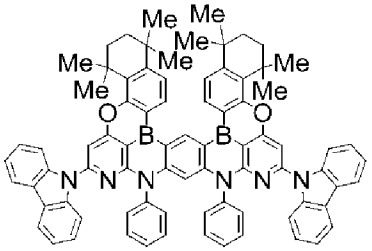


(1-4910)

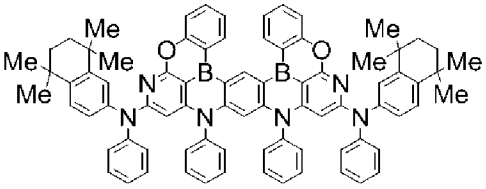
【0309】



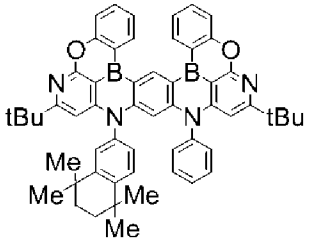
(1-4921)



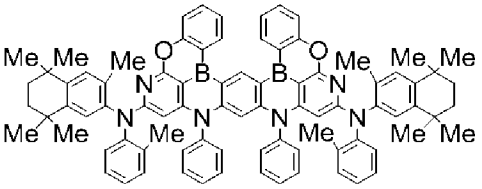
(1-4922)



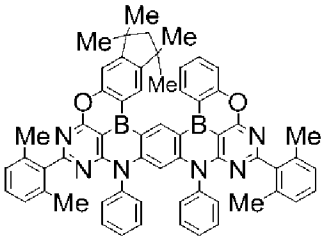
(1-4923)



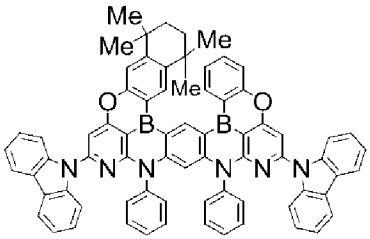
(1-4924)



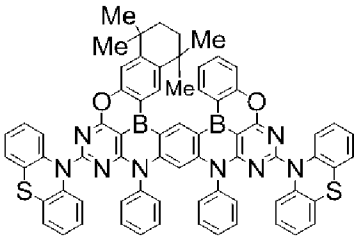
(1-4925)



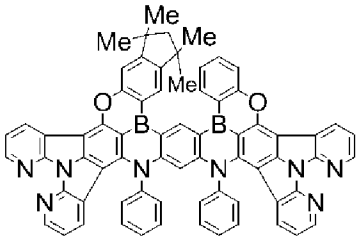
(1-4926)



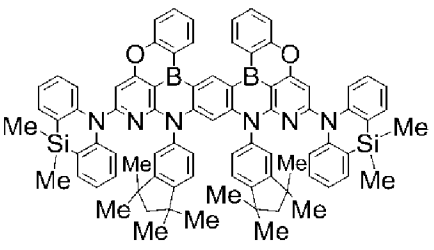
(1-4927)



(1-4928)

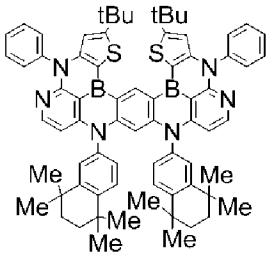


(1-4929)

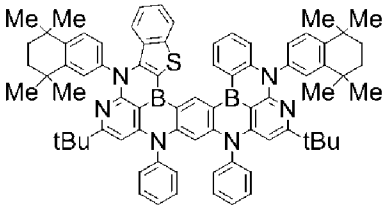


(1-4930)

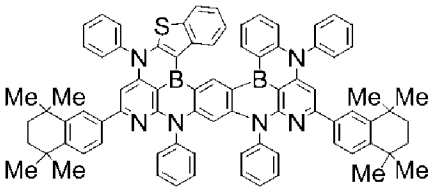
【0310】



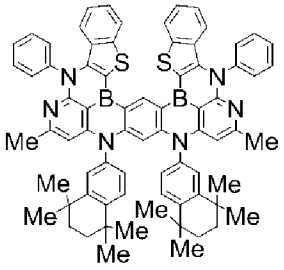
(1-4941)



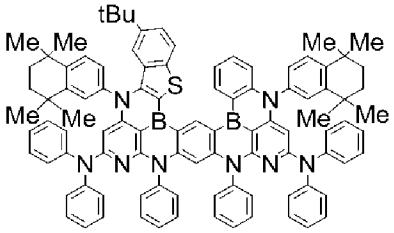
(1-4942)



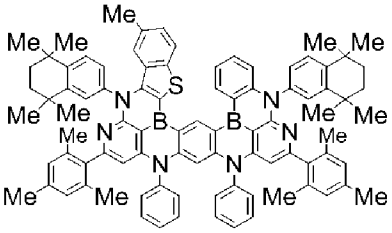
(1-4943)



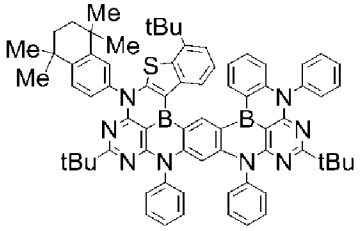
(1-4944)



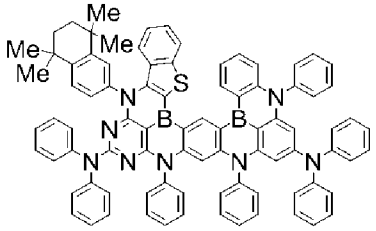
(1-4945)



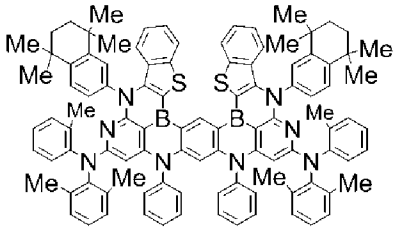
(1-4946)



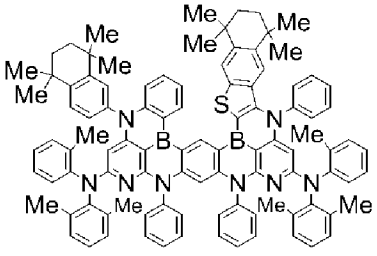
(1-4947)



(1-4948)

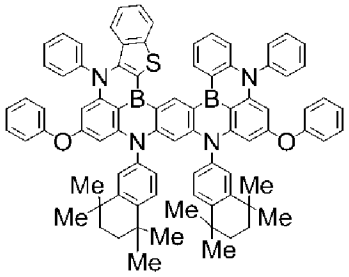


(1-4949)

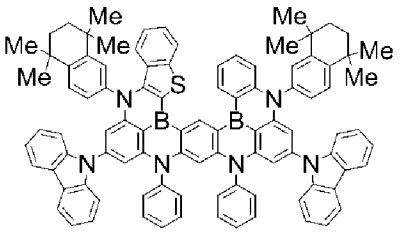


(1-4950)

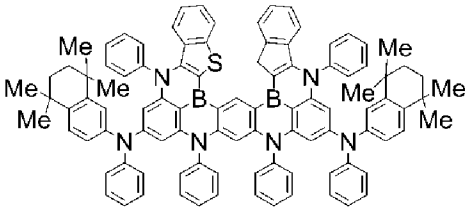
【0311】



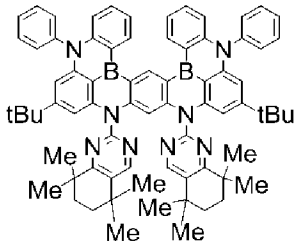
(1-4961)



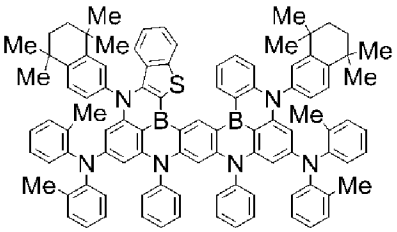
(1-4962)



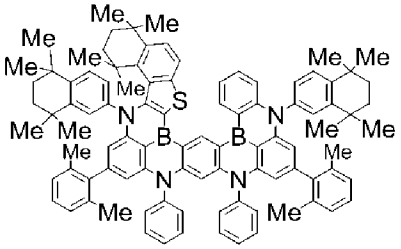
(1-4963)



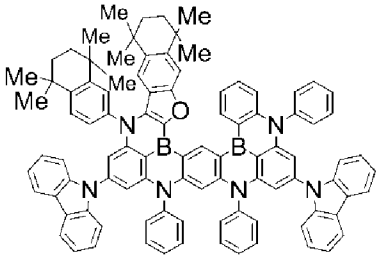
(1-4964)



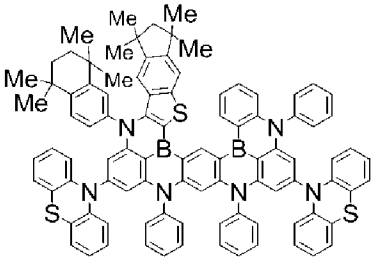
(1-4965)



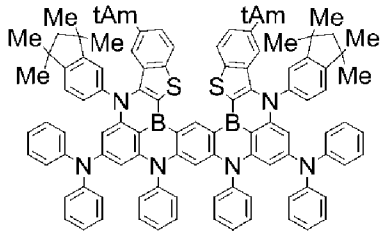
(1-4966)



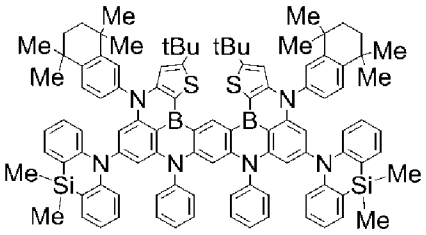
(1-4967)



(1-4968)

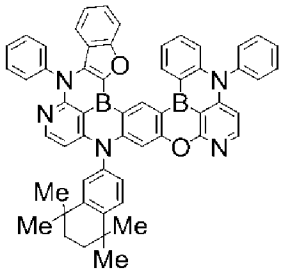


(1-4969)

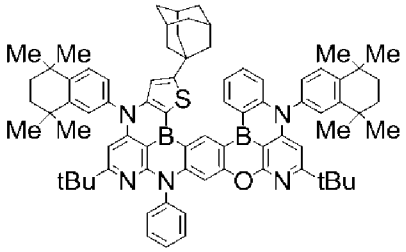


(1-4970)

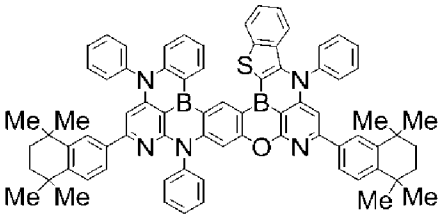
【0312】



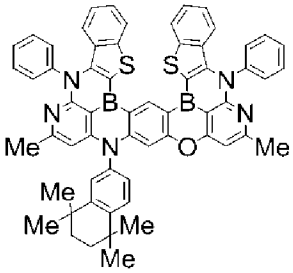
(1-4981)



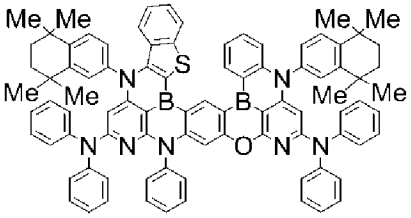
(1-4982)



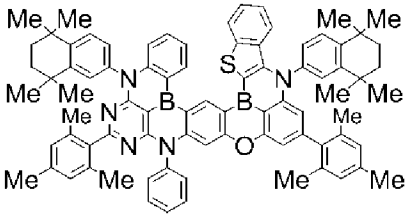
(1-4983)



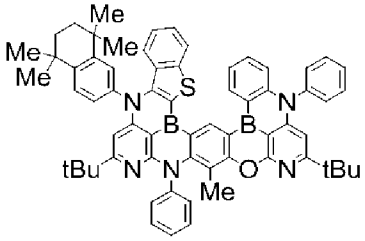
(1-4984)



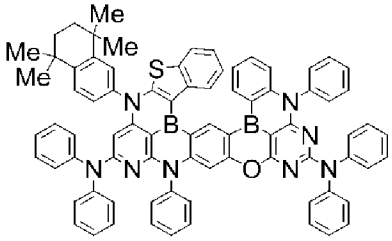
(1-4985)



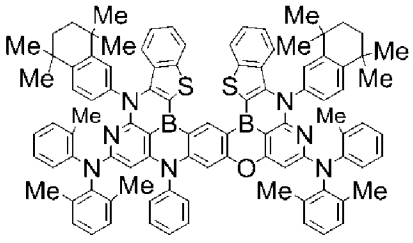
(1-4986)



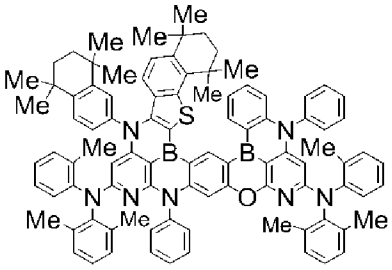
(1-4987)



(1-4988)

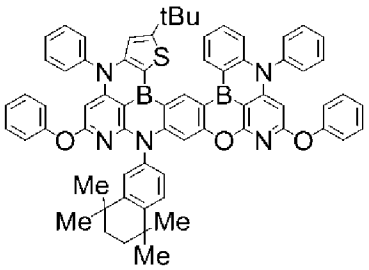


(1-4989)

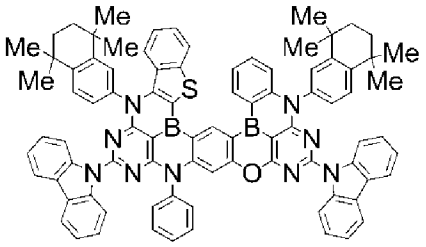


(1-4990)

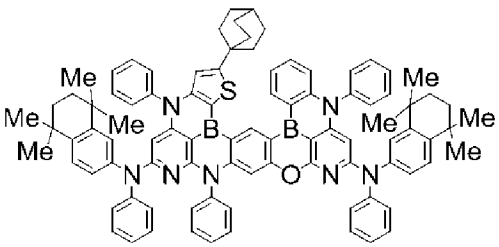
【0313】



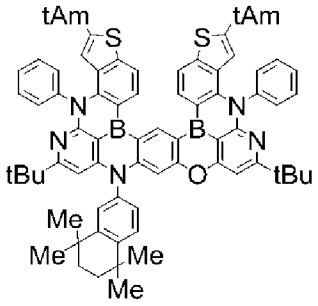
(1-5001)



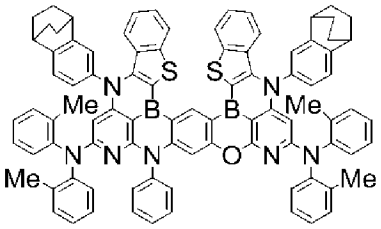
(1-5002)



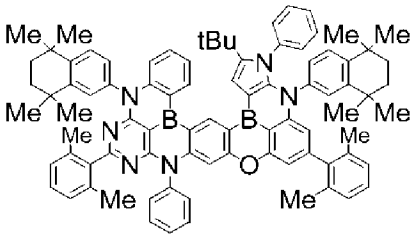
(1-5003)



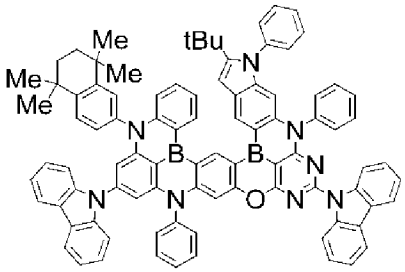
(1-5004)



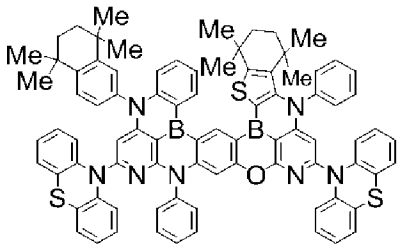
(1-5005)



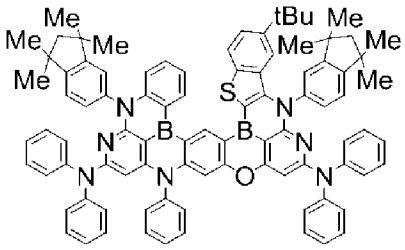
(1-5006)



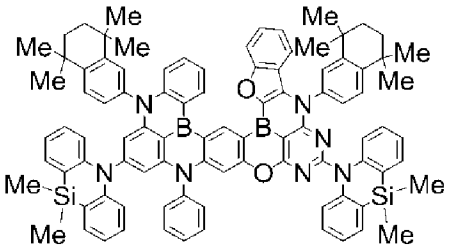
(1-5007)



(1-5008)

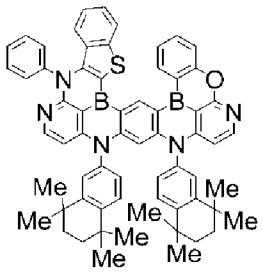


(1-5009)

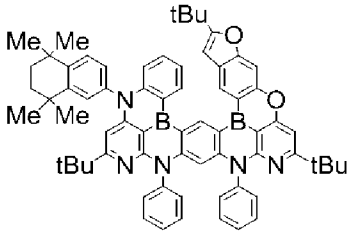


(1-5010)

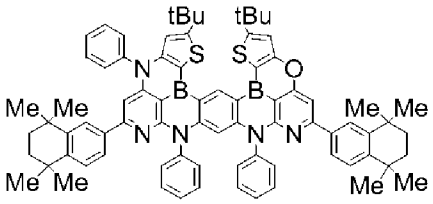
【0314】



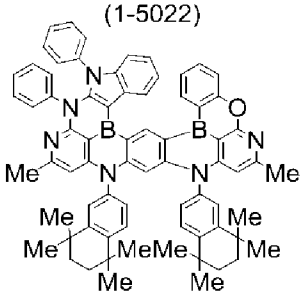
(1-5021)



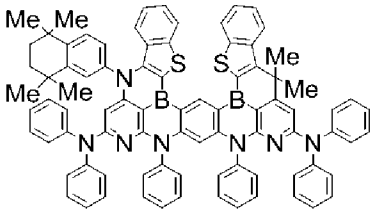
(1-5022)



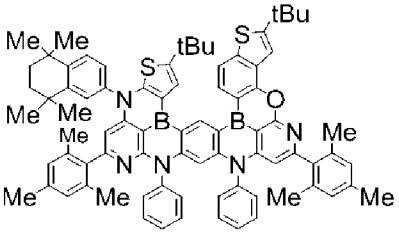
(1-5023)



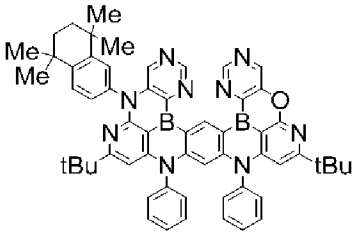
(1-5024)



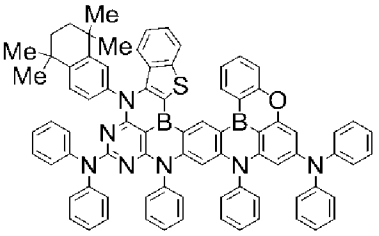
(1-5025)



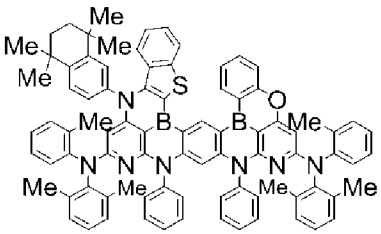
(1-5026)



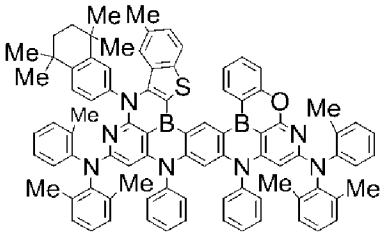
(1-5027)



(1-5028)

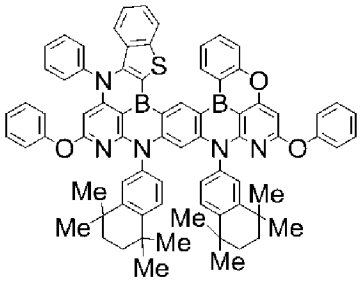


(1-5029)

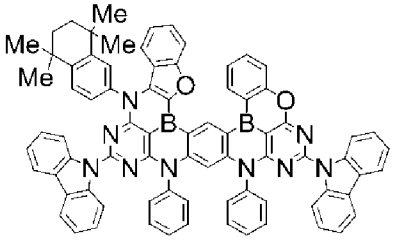


(1-5030)

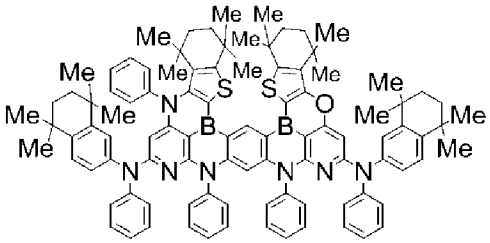
【0315】



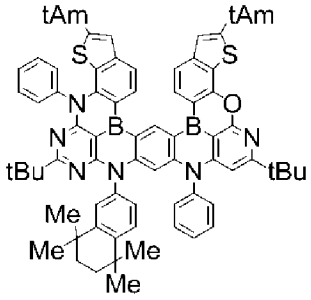
(1-5041)



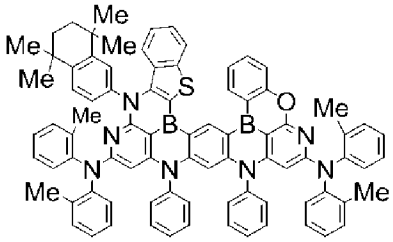
(1-5042)



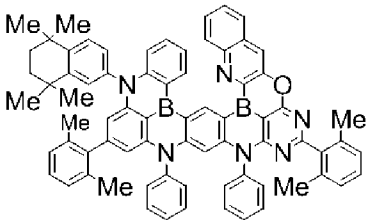
(1-5043)



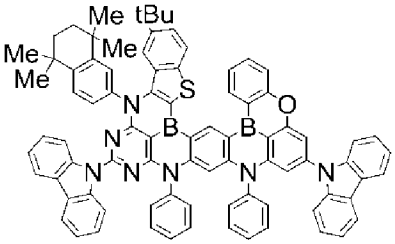
(1-5044)



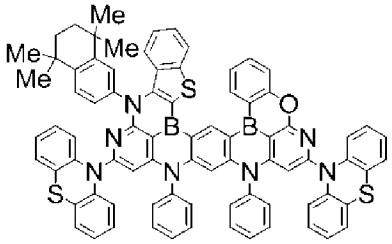
(1-5045)



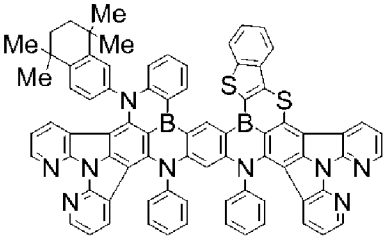
(1-5046)



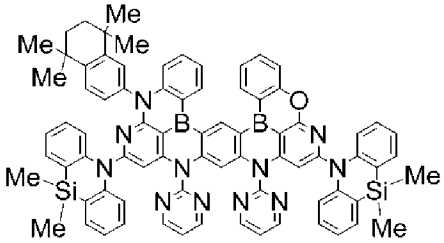
(1-5047)



(1-5048)

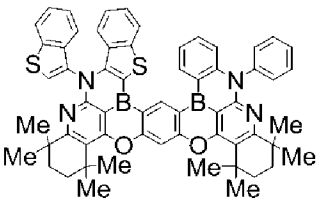


(1-5049)

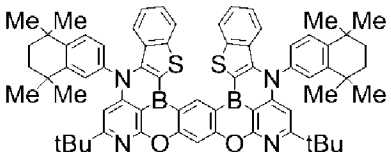


(1-5050)

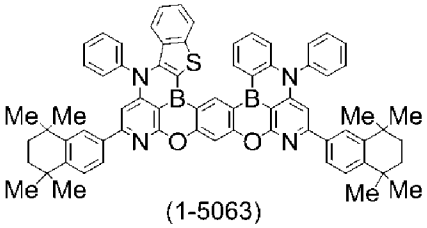
【0316】



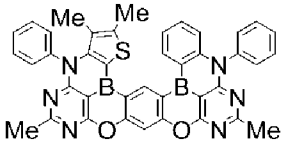
(1-5061)



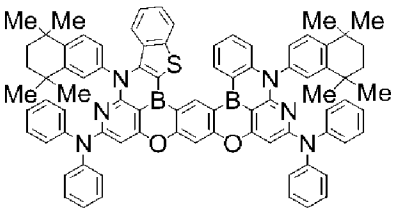
(1-5062)



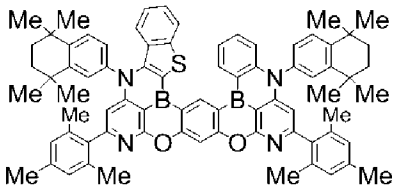
(1-5063)



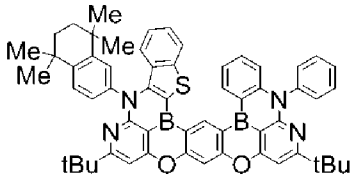
(1-5064)



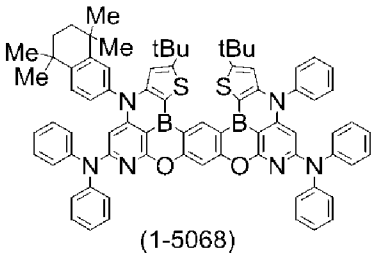
(1-5065)



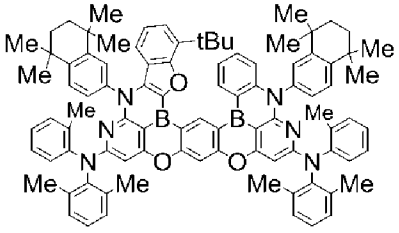
(1-5066)



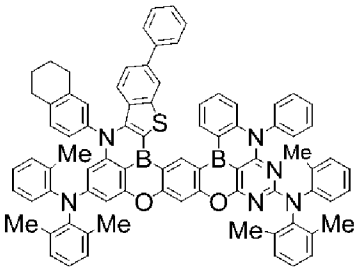
(1-5067)



(1-5068)

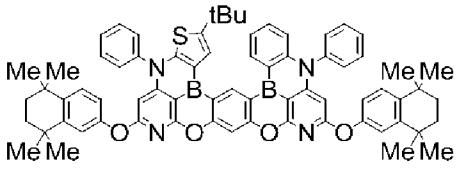


(1-5069)

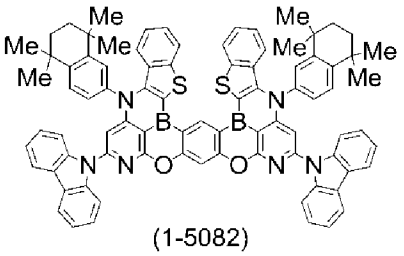


(1-5070)

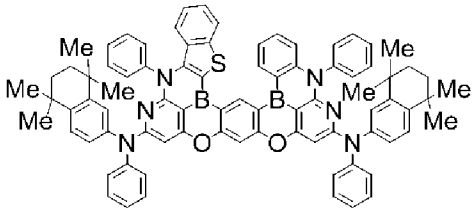
【0317】



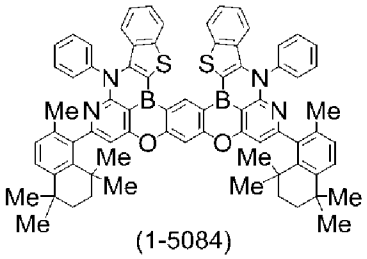
(1-5081)



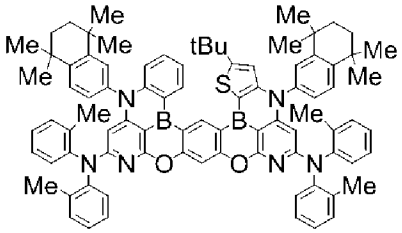
(1-5082)



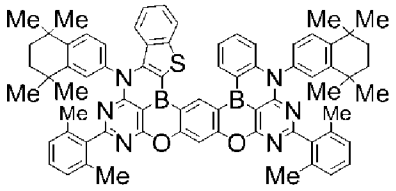
(1-5083)



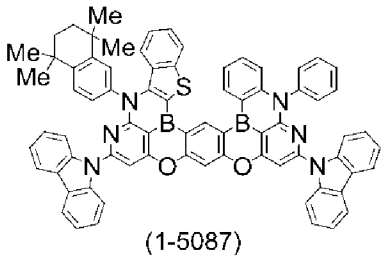
(1-5084)



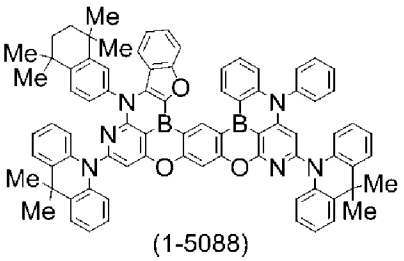
(1-5085)



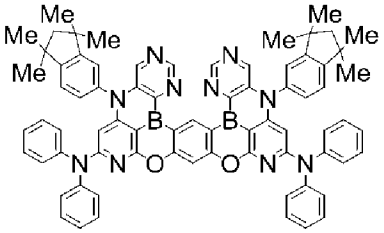
(1-5086)



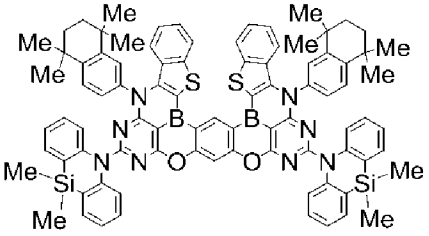
(1-5087)



(1-5088)

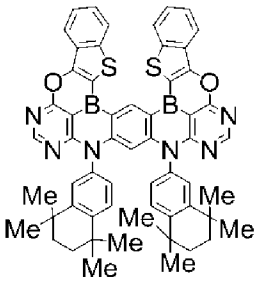


(1-5089)

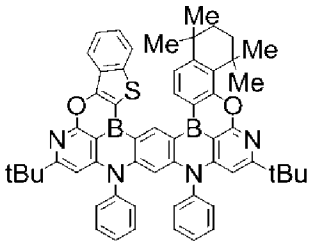


(1-5090)

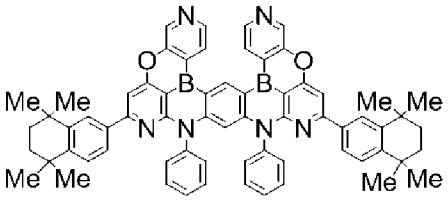
【0318】



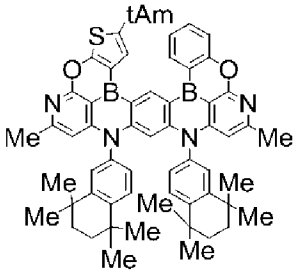
(1-5101)



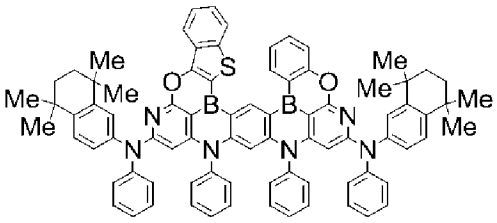
(1-5102)



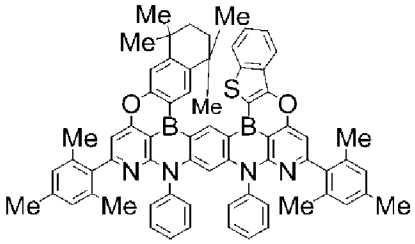
(1-5103)



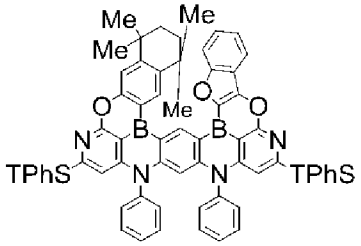
(1-5104)



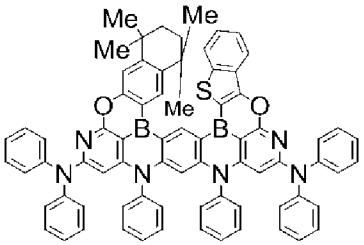
(1-5105)



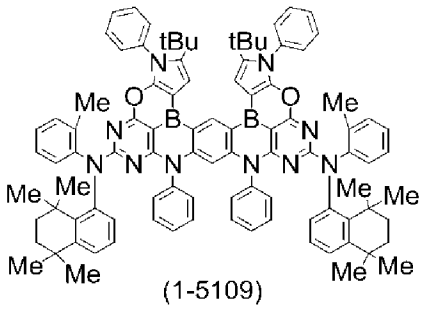
(1-5106)



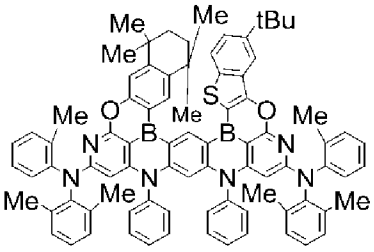
(1-5107)



(1-5108)

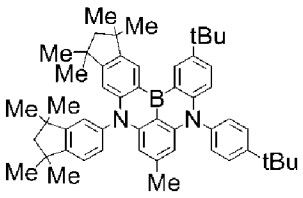


(1-5109)

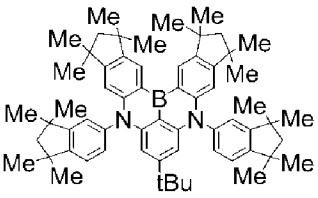


(1-5110)

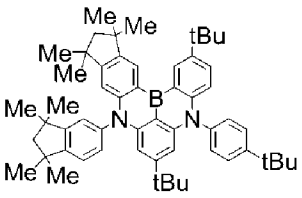
【0319】



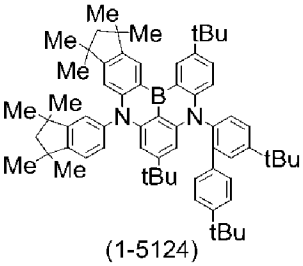
(1-5121)



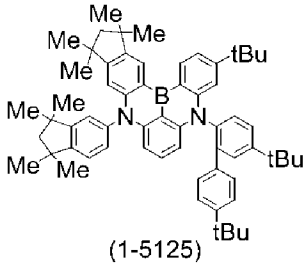
(1-5122)



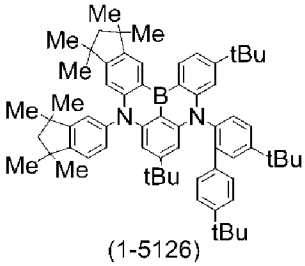
(1-5123)



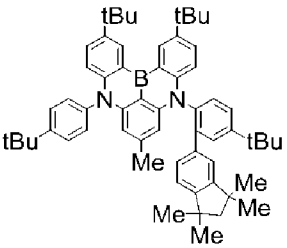
(1-5124)



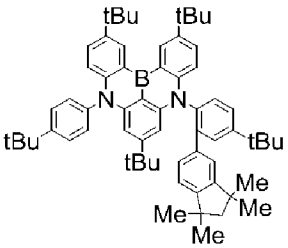
(1-5125)



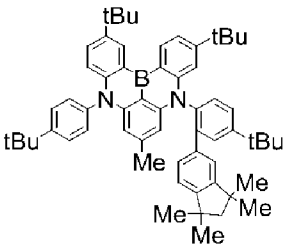
(1-5126)



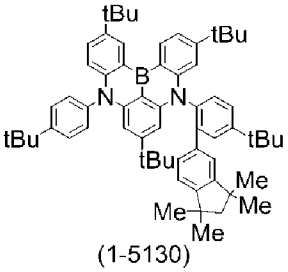
(1-5127)



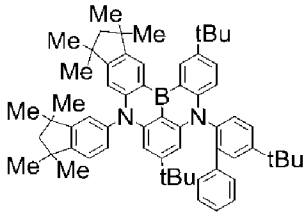
(1-5128)



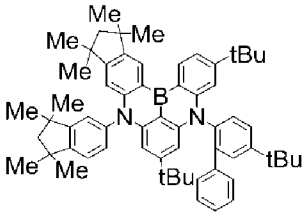
(1-5129)



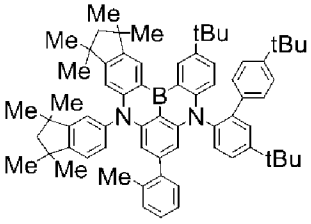
(1-5130)



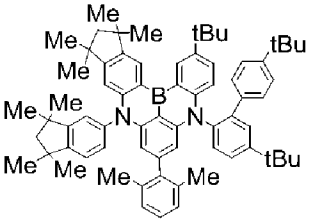
(1-5131)



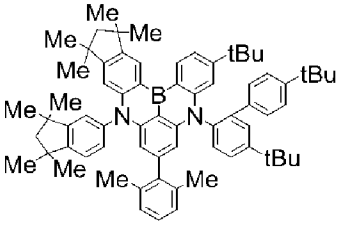
(1-5132)



(1-5133)

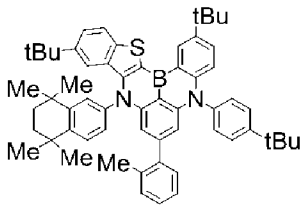


(1-5134)

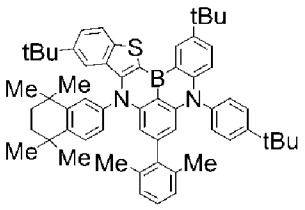


(1-5135)

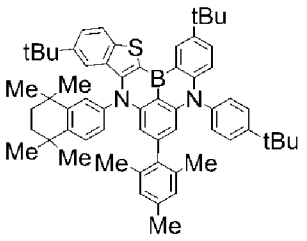
【0320】



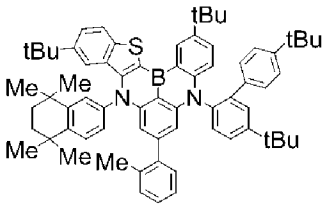
(1-5141)



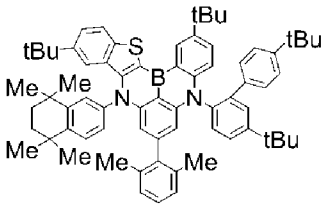
(1-5142)



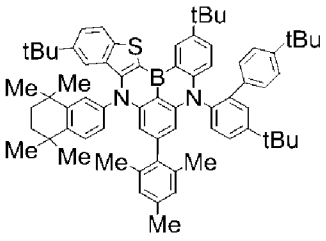
(1-5143)



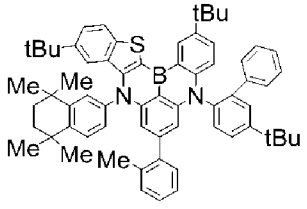
(1-5144)



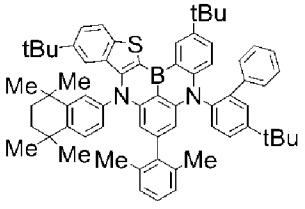
(1-5145)



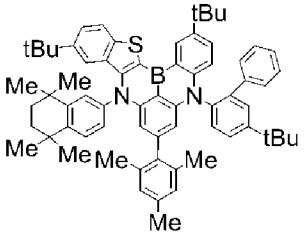
(1-5146)



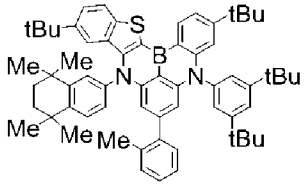
(1-5147)



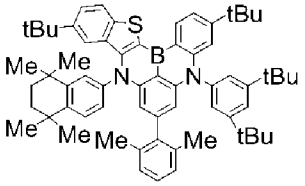
(1-5148)



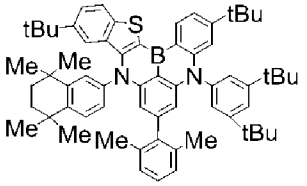
(1-5149)



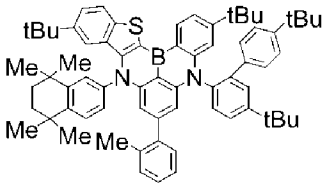
(1-5150)



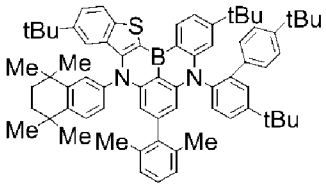
(1-5151)



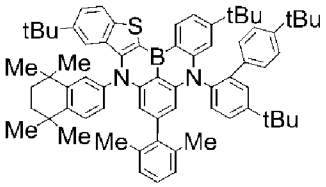
(1-5152)



(1-5153)

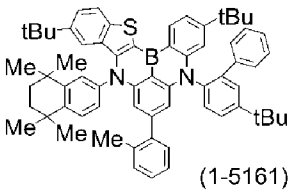


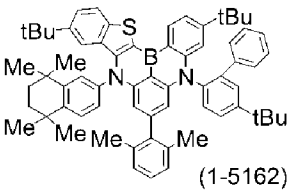
(1-5154)

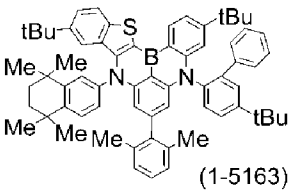


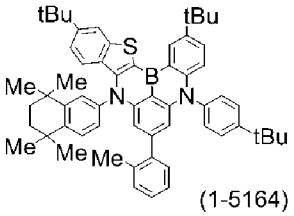
(1-5155)

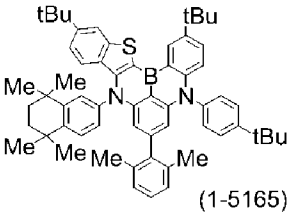
【0321】

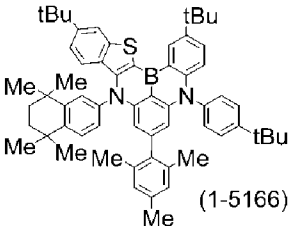

(1-5161)

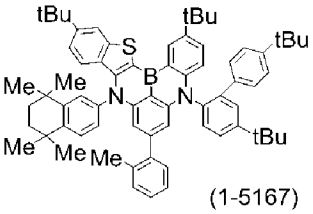

(1-5162)

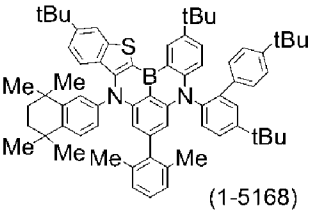

(1-5163)

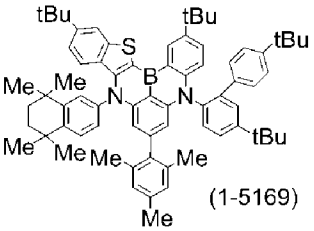

(1-5164)

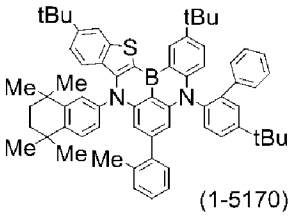

(1-5165)

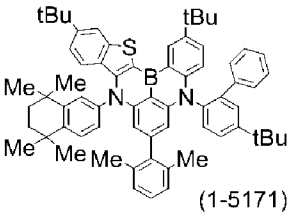

(1-5166)

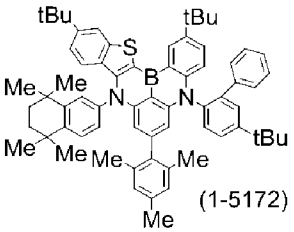

(1-5167)

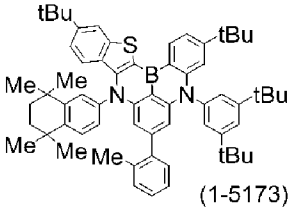

(1-5168)

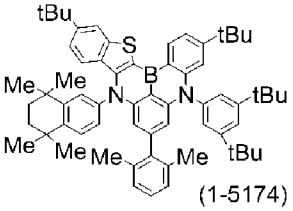

(1-5169)

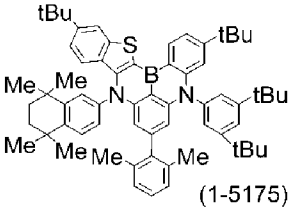

(1-5170)

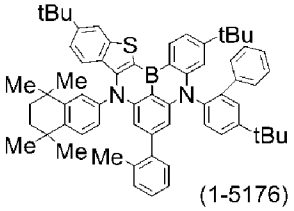

(1-5171)

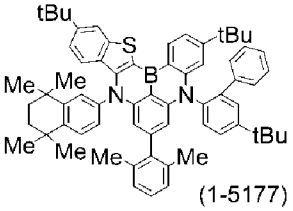

(1-5172)

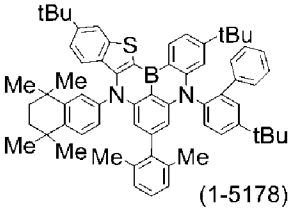

(1-5173)


(1-5174)

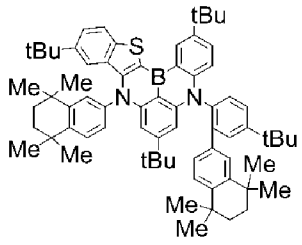

(1-5175)

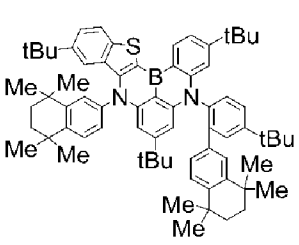

(1-5176)

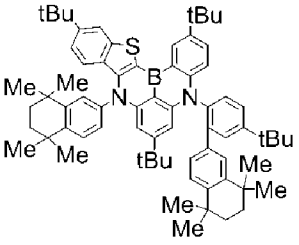

(1-5177)

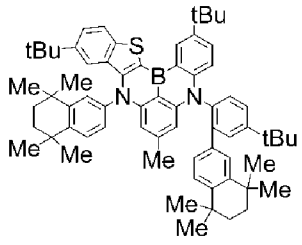

(1-5178)

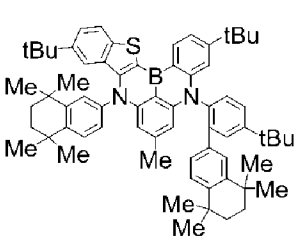
【0322】

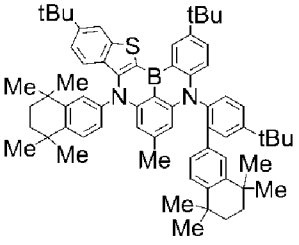

(1-5179)

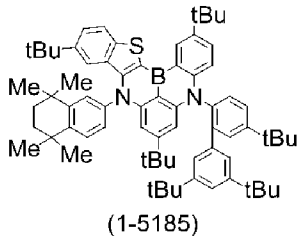

(1-5180)

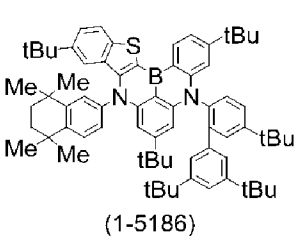

(1-5181)

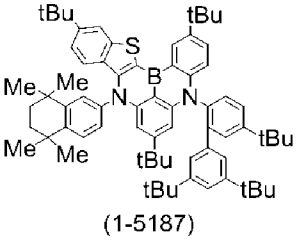

(1-5182)

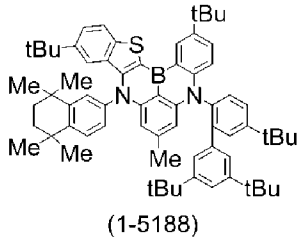

(1-5183)

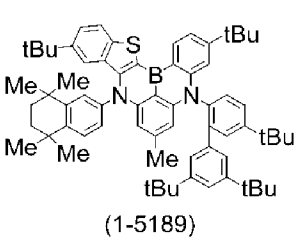

(1-5184)

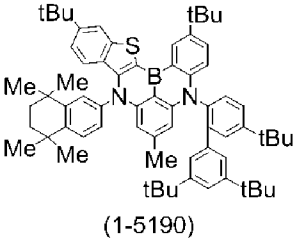

(1-5185)

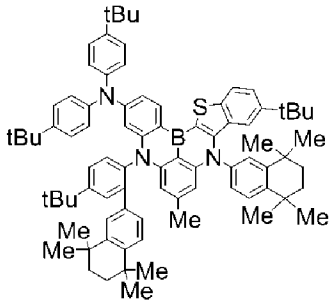

(1-5186)

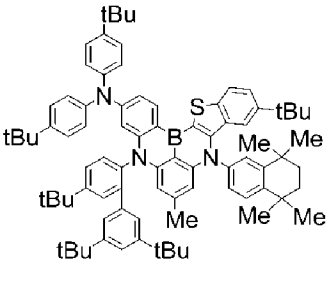

(1-5187)

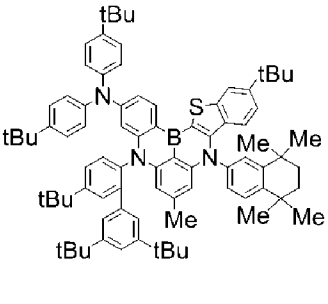

(1-5188)


(1-5189)


(1-5190)


(1-5191)


(1-5192)


(1-5193)

【0323】 再者，

（A）較佳為所述式（1）中的 A 環、B 環、C 環及＞N-R 的 R 中的至少一個為雜芳基環或雜芳基，較佳為所述式（2）中的 a 環、b 環、c 環、R^1～R^{11} 中的鄰接的基彼此鍵結並與 a 環、b 環或

c 環一同形成的環、及＞N-R 的 R 中的至少一個為雜芳基環或雜芳基。

另外，

（B）較佳為所述式（2）中的 a 環、b 環及 c 環中的至少一個「-C(-R)=」（此處，R 為式（2）中的 R^1～R^{11}）由「-N=」取代，或至少一個「-C(-R)=C(-R)-」（此處，R 為式（2）中的 R^1～R^{11}）由「-N(-R)-」、「-O-」或「-S-」取代。

進而，

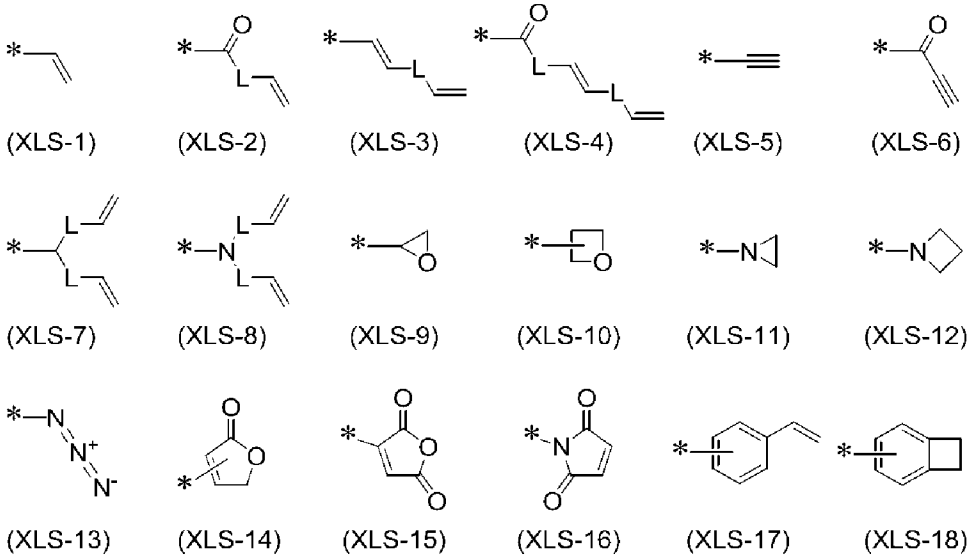
（C）較佳為所述式（2）中的 a 環、b 環及 c 環中的至少一個「-C(-R)=C(-R)-」（此處，R 為式（2）中的 R^1～R^{11}）由「-S-」取代。

以上的（A）～（C）更佳為 Y^1 為 B 且 X^1 及 X^2 為＞N-R 的情況。

【0324】 本發明的通式（1）所表示的多環芳香族化合物及其多聚體亦可作為如下的高分子化合物（用於獲得該高分子化合物的所述單體具有聚合性取代基）或高分子交聯體（用於獲得該高分子交聯體的所述高分子化合物具有交聯性取代基）、或者如下的懸掛型高分子化合物（用於獲得該懸掛型高分子化合物的所述反應性化合物具有反應性取代基）或懸掛型高分子交聯體（用於獲得該懸掛型高分子交聯體的所述懸掛型高分子化合物具有交聯性取代基）而用於有機元件用材料、例如有機電致發光元件用材料、有機場效電晶體用材料或有機薄膜太陽電池用材料，其中，所述

高分子化合物是使於所述通式（1）所表示的多環芳香族化合物及其多聚體中取代有反應性取代基的反應性化合物作為單體進行高分子化而成，所述高分子交聯體是使該高分子化合物進一步交聯而成，所述懸掛型高分子化合物是使主鏈型高分子與所述反應性化合物反應而成，所述懸掛型高分子交聯體是使該懸掛型高分子化合物進一步交聯而成。

【0325】 作為所述反應性取代基（包含所述聚合性取代基、所述交聯性取代基、及用於獲得懸掛型高分子的反應性取代基，以下，亦簡稱為「反應性取代基」），若為可使所述多環芳香族化合物或其多聚體進行高分子量化的取代基、可使以此種方式獲得的高分子化合物進一步交聯化的取代基、以及可於主鏈型高分子中進行懸掛反應的取代基，則無特別限定，較佳為以下結構的取代基。各結構式中的*表示鍵結位置。



【0326】 L 分別獨立地為單鍵、-O-、-S-、＞C=O、-O-C(=O)-、碳數 1～12 的伸烷基、碳數 1～12 的氧伸烷基及碳數 1～12 的聚氧伸烷基。於所述取代基中，較佳為式（XLS-1）、式（XLS-2）、式（XLS-3）、式（XLS-9）、式（XLS-10）或式（XLS-17）所表示的基，更佳為式（XLS-1）、式（XLS-3）或式（XLS-17）所表示的基。

【0327】 關於此種高分子化合物、高分子交聯體、懸掛型高分子化合物及懸掛型高分子交聯體（以下，亦簡稱為「高分子化合物及高分子交聯體」）的用途的詳細情況，於後文敘述。

【0328】 2.經環烷烴縮合的多環芳香族化合物及其多聚體的製造方法

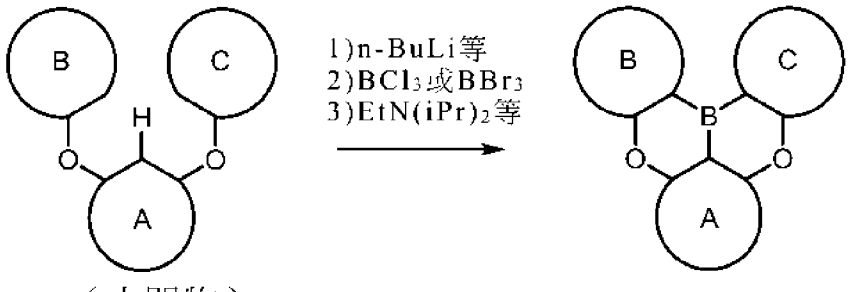
關於通式（1）或通式（2）所表示的多環芳香族化合物及其多聚體，基本而言首先利用鍵結基（包含 X^1 或 X^2 的基）使 A 環（a 環）與 B 環（b 環）及 C 環（c 環）鍵結，藉此製造中間物（第一反應），其後，利用鍵結基（包含 Y^1 的基）使 A 環（a 環）、B 環（b 環）及 C 環（c 環）鍵結，藉此可製造最終產物（第二反應）。第一反應中，例如若為醚化反應，則可利用親核取代反應、烏爾曼反應（Ullmann Reaction）等通常的反應，若為胺基化反應，則可利用布赫瓦爾德-哈特維希反應（Buchwald-Hartwig Reaction）等通常的反應。另外，第二反應中，可利用串聯式雜夫里德耳-夸夫特反應（Tandem Hetero-Friedel-Crafts Reaction）（連續的芳香族親電子取代反應，以下相同）。另外，於該些反應步驟中的某處，

使用經環烷烴縮合的原料、或者追加縮合環烷烴的步驟，藉此，可製造所期望的位置經環烷烴縮合的本發明的化合物。

【0329】 如下述流程（1）或流程（2）所示，第二反應為將鍵結A環（a環）、B環（b環）及C環（c環）的Y^1導入的反應，作為例子，以下表示Y^1為硼原子、X^1及X^2為氧原子的情況。首先，利用正丁基鋰、第二丁基鋰或第三丁基鋰等對X^1與X^2之間的氫原子進行鄰位金屬化。繼而，加入三氯化硼或三溴化硼等，進行鋰-硼的金屬交換後，加入N,N-二異丙基乙胺等布忍斯特鹼（Bronsted base），藉此進行串聯式硼雜夫里德耳-夸夫特反應（Tandem Bora-Friedel-Crafts Reaction），從而可獲得目標物。於第二反應中，為了促進反應，亦可加入三氯化鋁等路易斯酸（Lewis acid）。再者，下述流程（1）及流程（2）中、進而其後的流程（3）～流程（28）中的各結構式的符號的定義與所述定義相同。

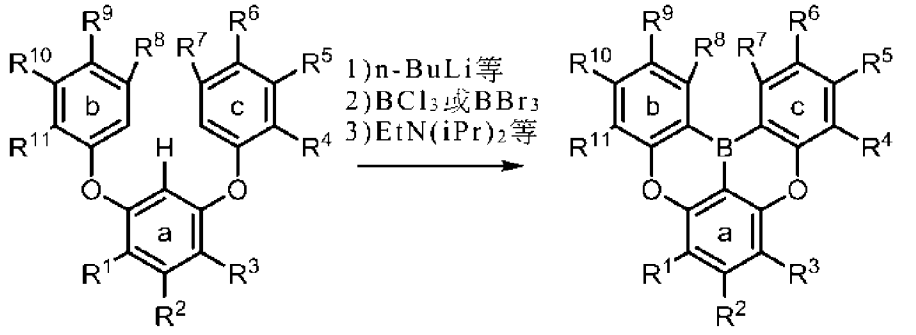
【0330】

流程（1）



（中間物） 通式（1）系化合物

流程（2）

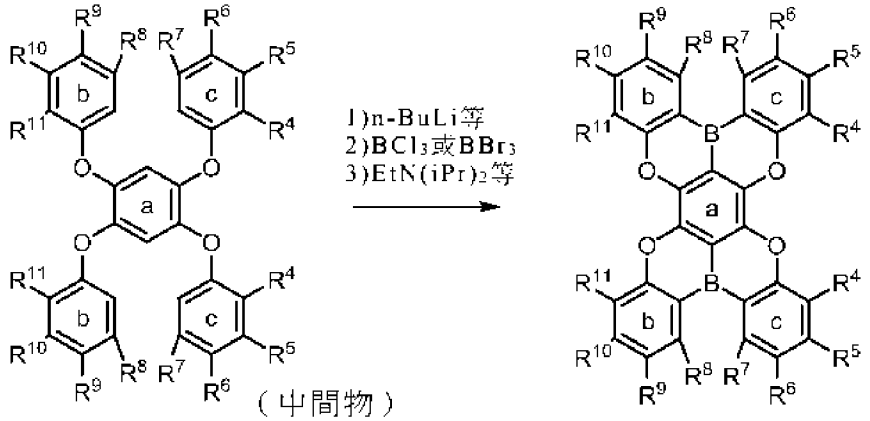


（中間物）　　通式（2）系化合物

【0331】 再者，所述流程（1）或流程（2）主要表示通式（1）或通式（2）所表示的多環芳香族化合物的製造方法，但關於其多聚體，可藉由使用具有多個 A 環（a 環）、B 環（b 環）及 C 環（c 環）的中間物來製造。詳細而言，藉由下述流程（3）～流程（5）進行說明。該情況下，藉由將所使用的丁基鋰等試劑的量設為 2 倍量、3 倍量，可獲得目標物。

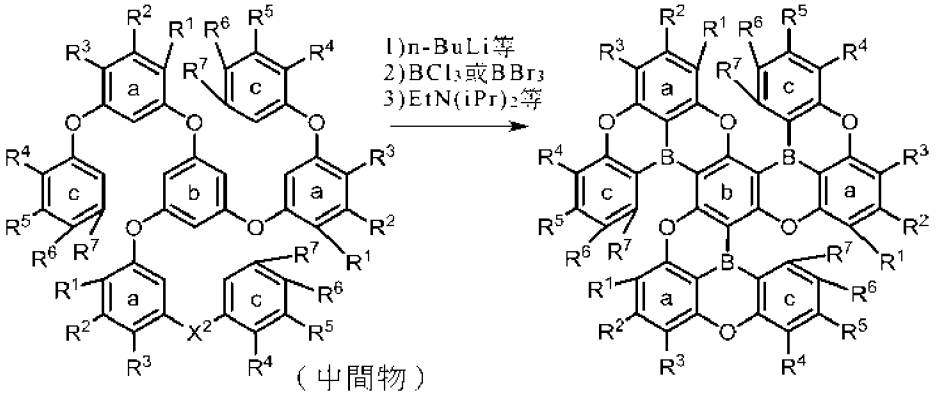
【0332】

流程（3）

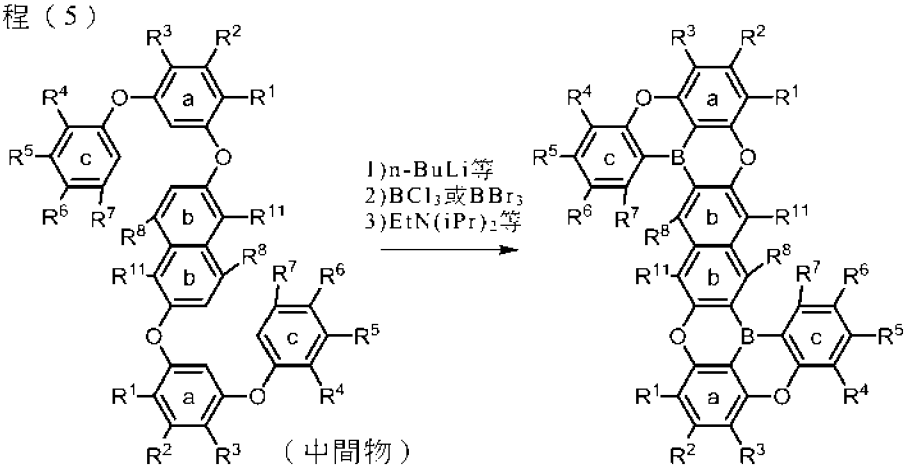


（中間物）

流程（4）



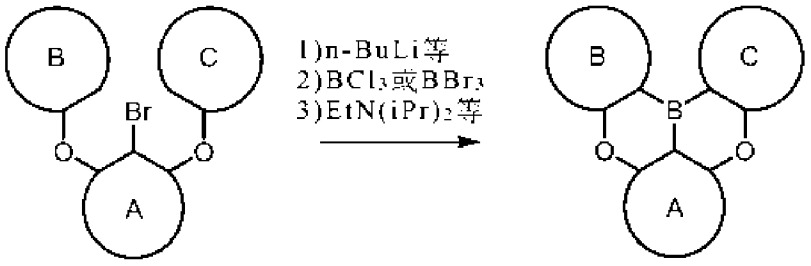
流程（5）



【0333】 於所述流程中，藉由鄰位金屬化而朝所期望的位置上導入鋰，但可如下述流程（6）及流程（7）般在欲導入鋰的位置上導入溴原子等，並亦藉由鹵素-金屬交換而朝所期望的位置上導入鋰。

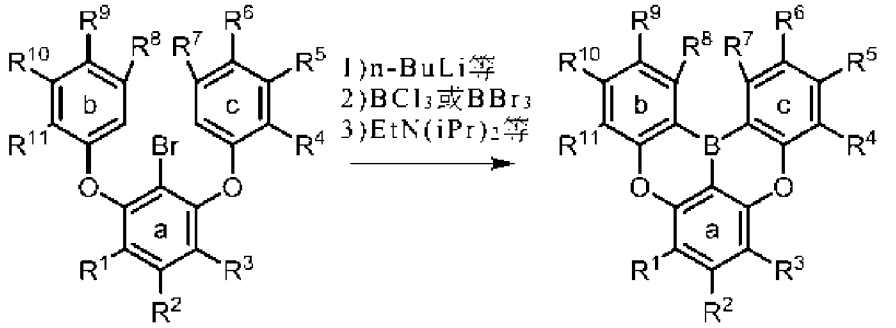
【0334】

流程（6）



（中間物）　　通式（1）系化合物

流程（7）

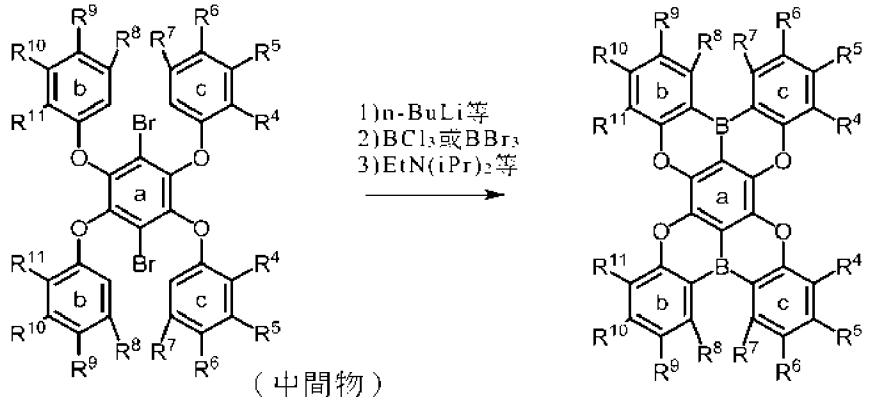


（中間物）　　通式（2）系化合物

【0335】 另外，關於流程（3）中說明的多聚體的製造方法，亦可如所述流程（6）及流程（7）般在欲導入鋰的位置上導入溴原子或氯原子等鹵素，並亦藉由鹵素-金屬交換而朝所期望的位置上導入鋰（下述流程（8）、流程（9）及流程（10））。

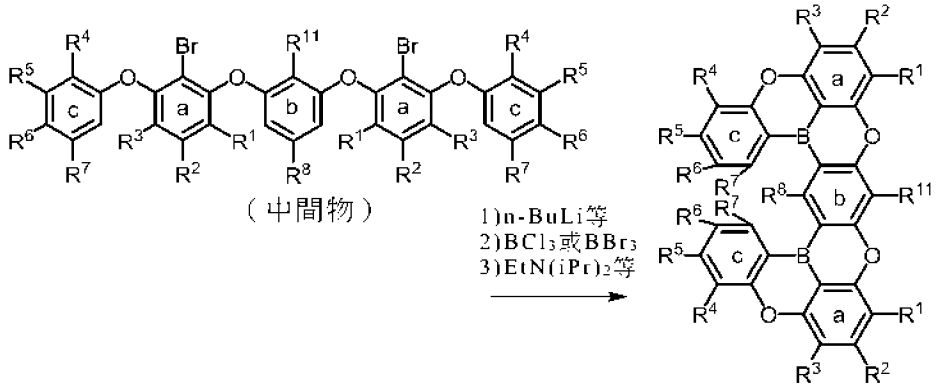
【0336】

流程（8）



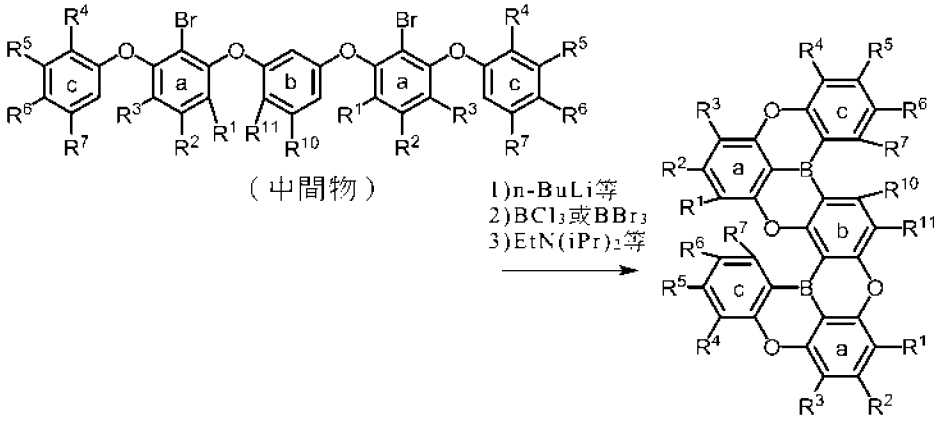
（中間物）

流程（9）



（中間物）

流程（10）



（中間物）

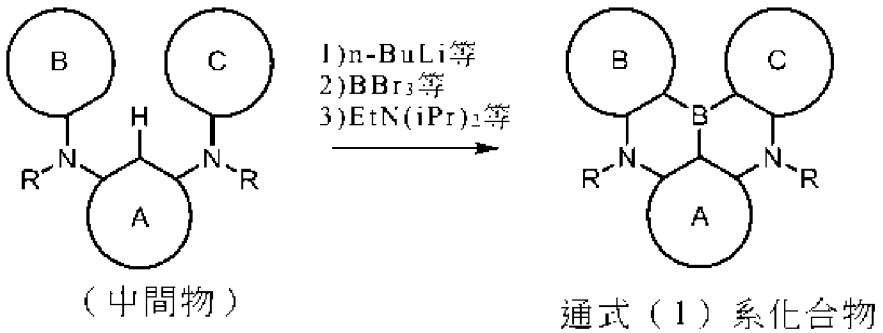
【0337】 根據該方法，即便於因取代基的影響而無法進行鄰位金屬化的情況下亦可合成目標物，從而有用。

【0338】 藉由適當選擇所述合成法，且亦適當選擇所使用的原料，可合成所期望的位置經環烷烴縮合、於所期望的位置上具有取代基、且 Y^1 為硼原子、X^1 及 X^2 為氧原子的多環芳香族化合物及其多聚體。

【0339】 繼而，將 Y^1 為硼原子、X^1 及 X^2 為氮原子的情況作為例子而示於下述流程（11）及流程（12）中。與 X^1 及 X^2 為氧原子的情況同樣地，首先，利用正丁基鋰等對 X^1 與 X^2 之間的氫原子進行鄰位金屬化。繼而，加入三溴化硼等，進行鋰-硼的金屬交換後，加入 N,N-二異丙基乙胺等布忍斯特鹼，藉此進行串聯式硼雜夫里德耳-夸夫特反應，從而可獲得目標物。此處，為了促進反應，亦可加入三氯化鋁等路易斯酸。另外，於該些反應步驟中的某處，使用經環烷烴縮合的原料、或者追加縮合環烷烴的步驟，藉此，可製造所期望的位置經環烷烴縮合的本發明的化合物。

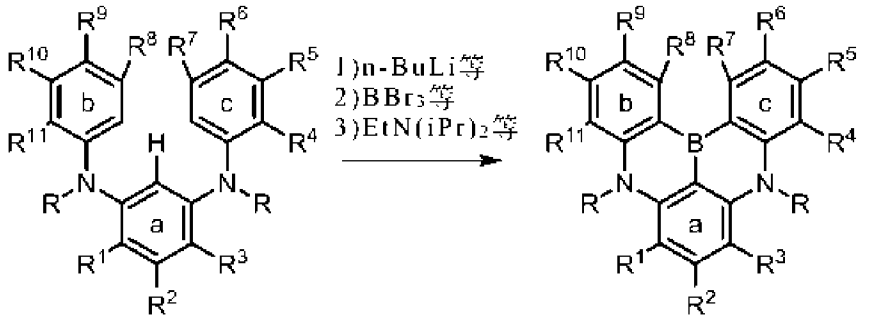
【0340】

流程（11）



（中間物）　　通式（1）系化合物

流程（12）

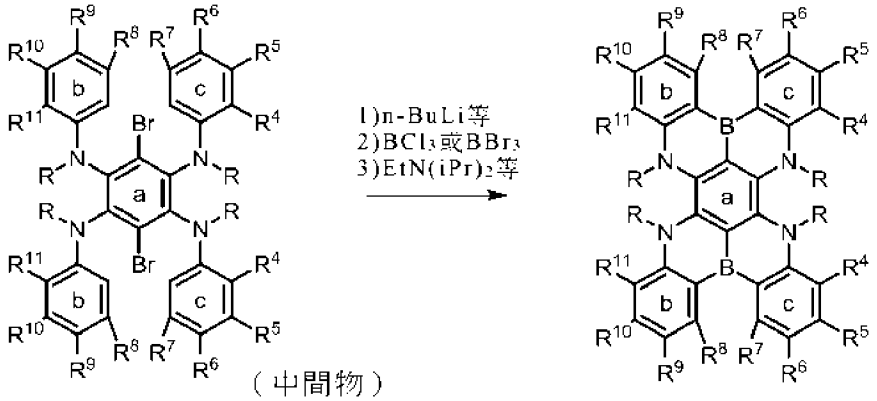


（中間物）　　通式（2）系化合物

【0341】 另外，關於 Y^1 為硼原子、X^1 及 X^2 為氮原子時的多聚體，亦可如所述流程（6）及流程（7）般在欲導入鋰的位置上導入溴原子或氯原子等鹵素，並亦藉由鹵素-金屬交換而朝所期望的位置上導入鋰（下述流程（13）、流程（14）及流程（15））。

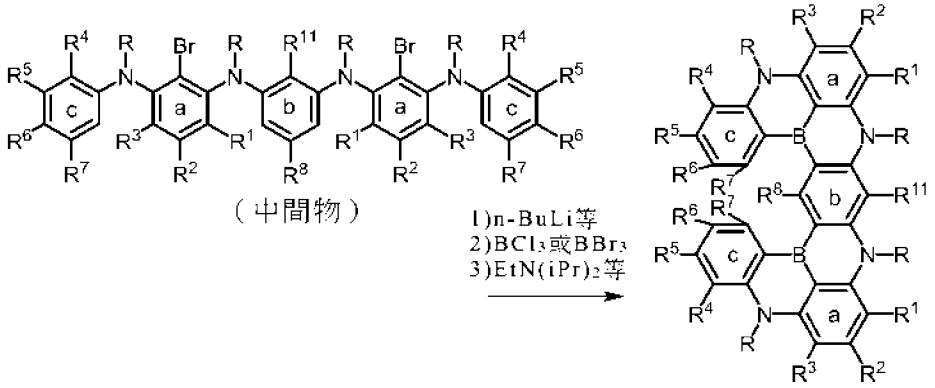
【0342】

流程（13）

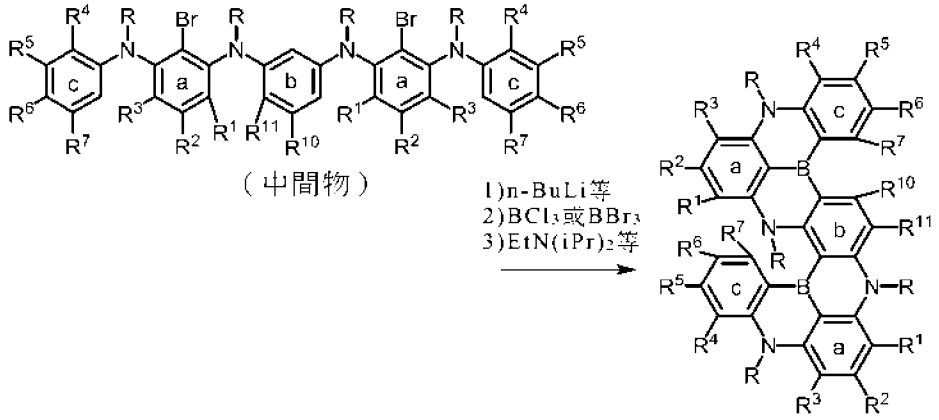


（中間物）

流程（14）



流程（15）

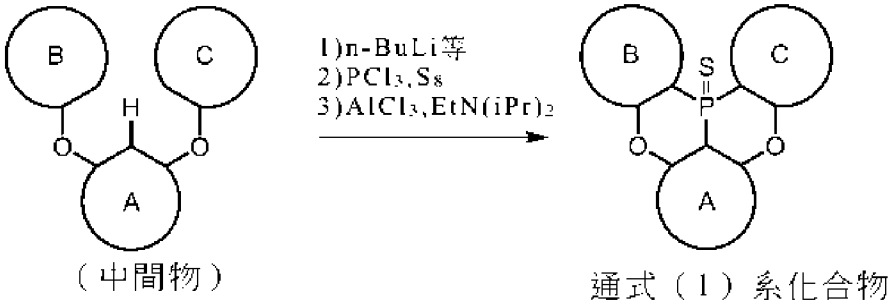


【0343】 繼而，將 Y^1 為硫化磷、氧化磷或磷原子，X^1 及 X^2 為氧原子的情況作為例子而示於下述流程（16）～流程（19）中。與迄今為止同樣地，首先利用正丁基鋰等對 X^1 與 X^2 之間的氫原子進行鄰位金屬化。繼而，依次添加三氯化磷、硫，最後加入三氯化鋁等路易斯酸及 N,N-二異丙基乙胺等布忍斯特鹼，藉此進行串聯式磷雜夫里德耳-夸夫特反應（Tandem Phospha-Friedel-Crafts Reaction），從而可獲得 Y^1 為硫化磷的化合物。另外，藉由利用間氯過苯甲酸（m-chloroperbenzoic acid，m-CPBA）對所獲得的硫化磷化合物進行處理而可獲得 Y^1 為氧化磷的化合物，藉由利用三乙

基膦進行處理而可獲得 Y^1 為磷原子的化合物。另外，於該些反應步驟中的某處，使用經環烷烴縮合的原料、或者追加縮合環烷烴的步驟，藉此，可製造所期望的位置經環烷烴縮合的本發明的化合物。

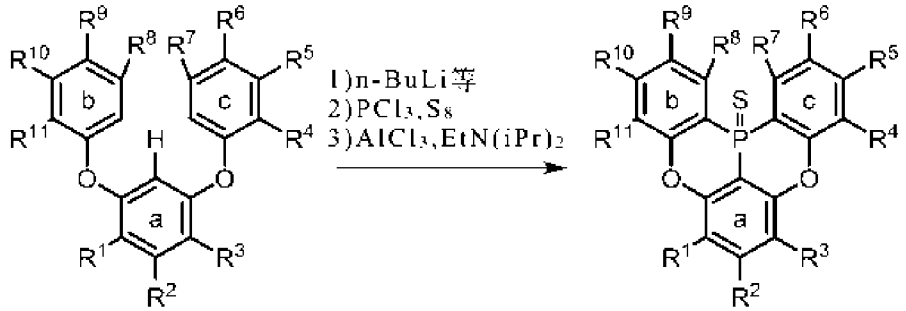
【0344】

流程（16）



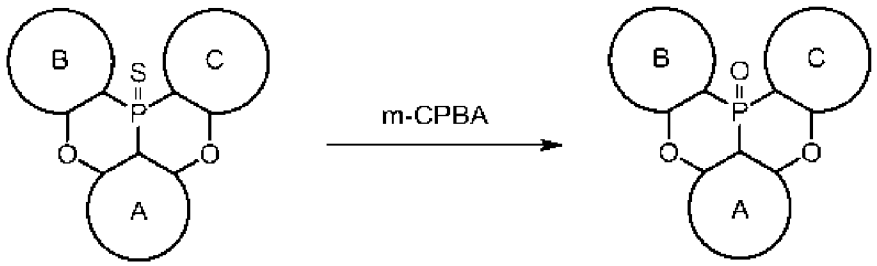
（中間物）　　通式（1）系化合物

流程（17）

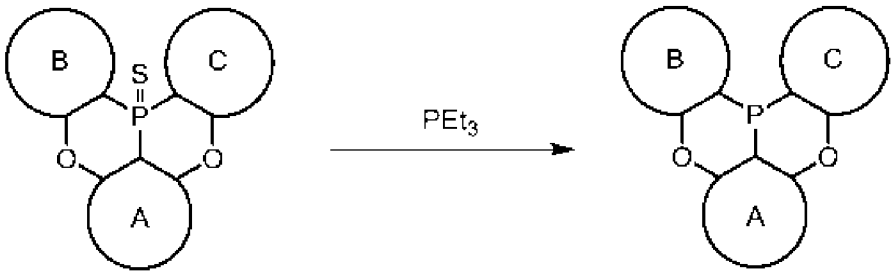


（中間物）　　通式（2）系化合物

流程（18）



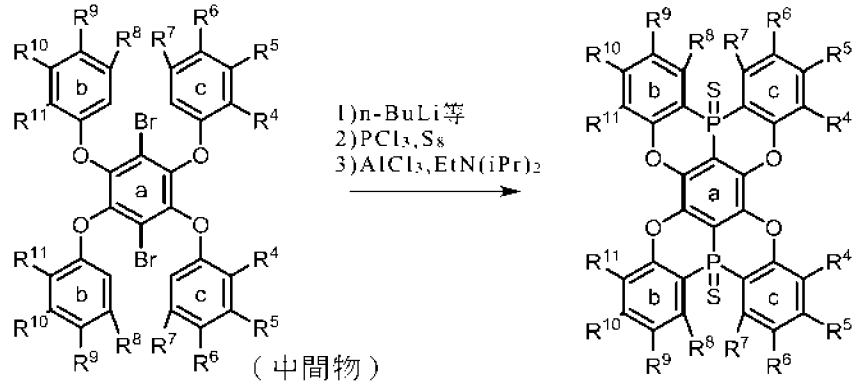
流程（19）



【0345】 另外，關於 Y^1 為硫化磷、X^1 及 X^2 為氧原子時的多聚體，亦可如所述流程（6）及流程（7）般在欲導入鋰的位置上導入溴原子或氯原子等鹵素，並亦藉由鹵素-金屬交換而朝所期望的位置上導入鋰（下述流程（20）、流程（21）及流程（22））。另外，以所述方式形成的 Y^1 為硫化磷、X^1 及 X^2 為氧原子時的多聚體亦如所述流程（18）及流程（19）般，藉由利用間氯過苯甲酸（m-CPBA）進行處理而可獲得 Y^1 為氧化磷的化合物，藉由利用三乙基膦進行處理而可獲得 Y^1 為磷原子的化合物。

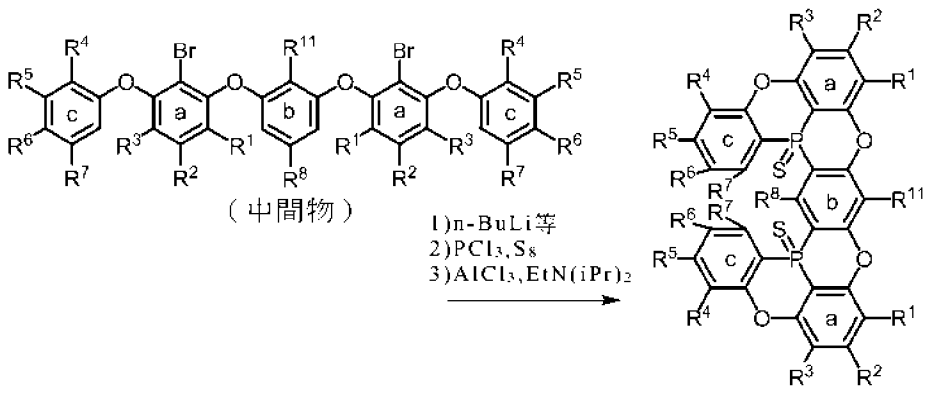
【0346】

流程（20）

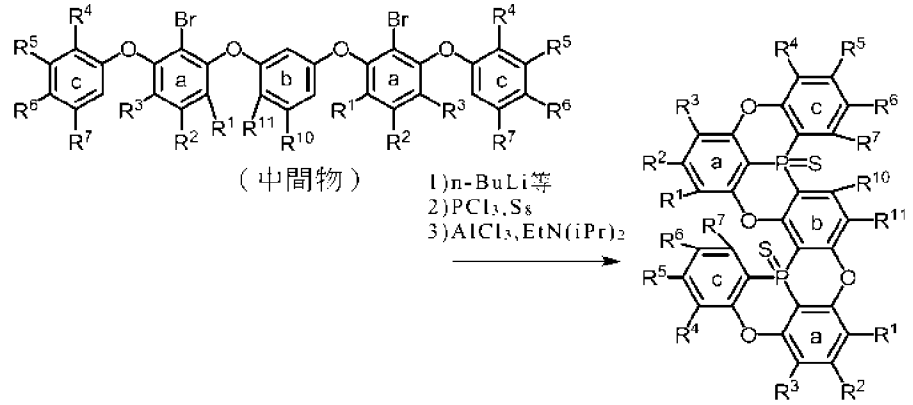


（中間物）

流程（21）



流程（22）



【0347】 此處，記載了 Y^1 為 B、P、P=O 或 P=S，X^1 及 X^2 為 O 或 NR 的例子，但藉由適當變更原料，亦可合成 Y^1 為 Al、Ga、As、Si-R 或 Ge-R，或者 X^1 及 X^2 為 S 的化合物。

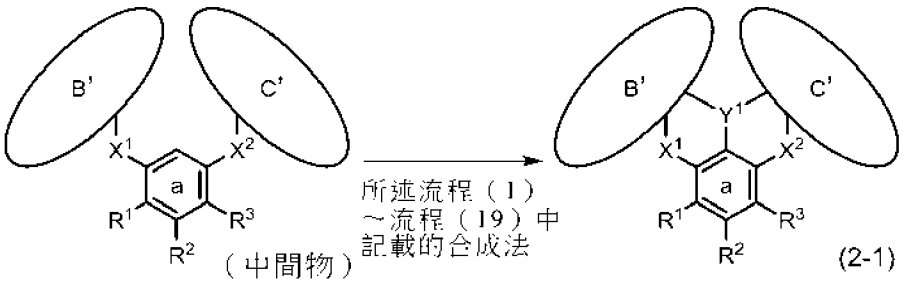
【0348】 以上的反應中所使用的溶媒的具體例為第三丁基苯或二甲苯等。

【0349】 另外，通式（2）中，a 環、b 環及 c 環的取代基 R^1～R^{11} 中的鄰接的基彼此可鍵結並與 a 環、b 環或 c 環一同形成芳基環或雜芳基環，所形成的環中的至少一個氫可由芳基或雜芳基取代。

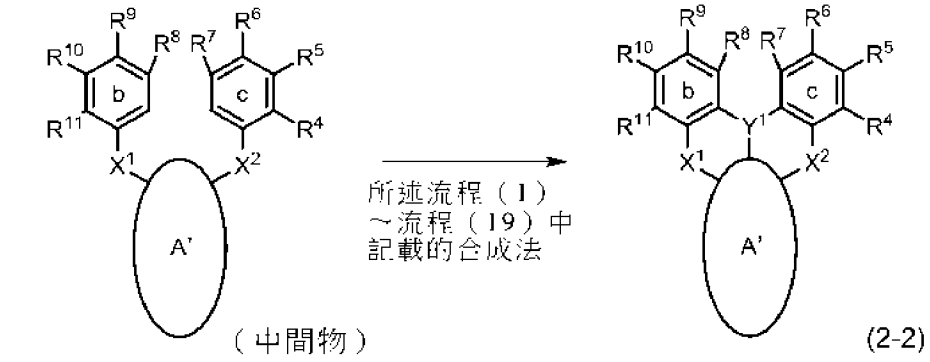
因此，通式（2）所表示的多環芳香族化合物根據 a 環、b 環及 c 環中的取代基的相互的鍵結形態，如下述流程（23）及流程（24）的式（2-1）及式（2-2）所示，構成化合物的環結構發生變化。該些化合物可藉由將所述流程（1）～流程（19）中示出的合成法應用於下述流程（23）及流程（24）中所示的中間物來合成。另外，於該些反應步驟中的某處，使用經環烷烴縮合的原料、或者追加縮合環烷烴的步驟，藉此，可製造所期望的位置經環烷烴縮合的本發明的化合物。

【0350】

流程（23）



流程（24）



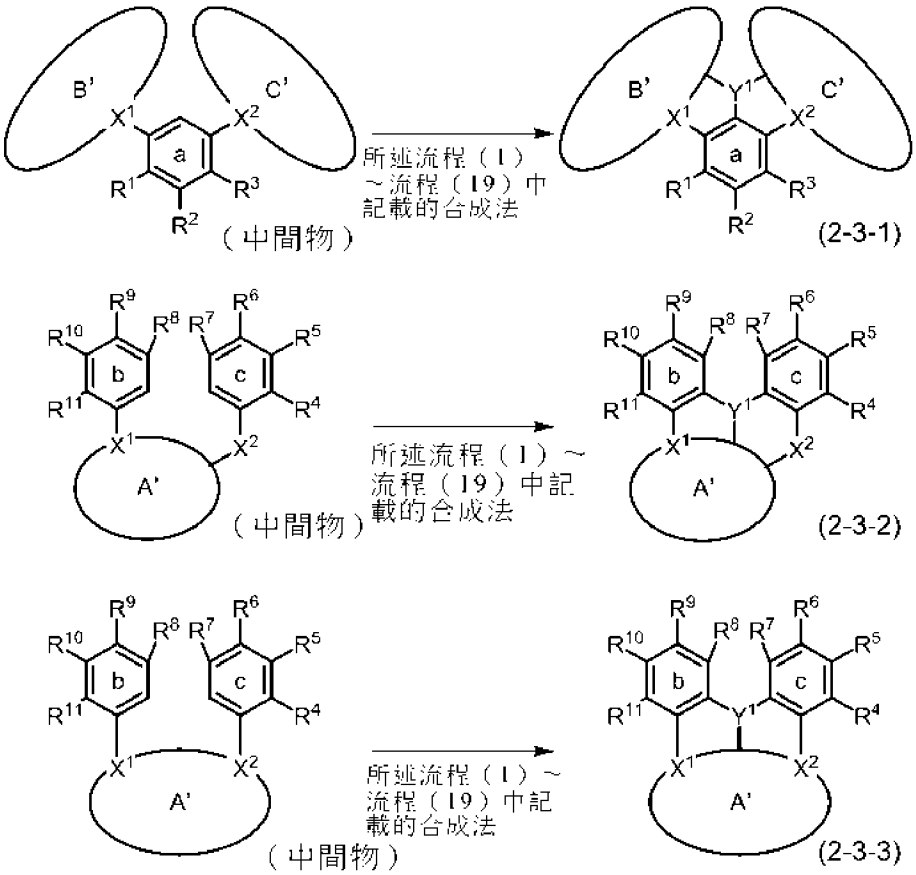
【0351】 所述式（2-1）及式（2-2）中的 A'環、B'環及 C'環表示

取代基 R^1～R^{11} 中的鄰接的基彼此鍵結並分別與 a 環、b 環及 c 環一同形成的芳基環或雜芳基環（亦可稱為其他環結構於 a 環、b 環或 c 環中縮合而成的縮合環）。再者，雖然式中未表示，但亦存在 a 環、b 環及 c 環全部變化成 A'環、B'環及 C'環的化合物。

【0352】 另外，通式（2）中的「所述＞N-R 的 R 及所述＞-C(-R)$_2$-的 R 的至少一個藉由-O-、-S-、-C(-R)$_2$-或單鍵而與所述 a 環、b 環及 c 環的至少一個鍵結」的規定可由如下的化合物來表現，該化合物是由下述流程（25）的式（2-3-1）表示、且具有 X^1 或 X^2 被導入至縮合環 B'及縮合環 C'的環結構，或者由式（2-3-2）或式（2-3-3）表示、且具有 X^1 或 X^2 被導入至縮合環 A'的環結構。該些化合物可藉由將所述流程（1）～流程（19）中示出的合成法應用於下述流程（25）中示出的中間物來合成。另外，於該些反應步驟中的某處，使用經環烷烴縮合的原料、或者追加縮合環烷烴的步驟，藉此，可製造所期望的位置經環烷烴縮合的本發明的化合物。

【0353】

流程（25）



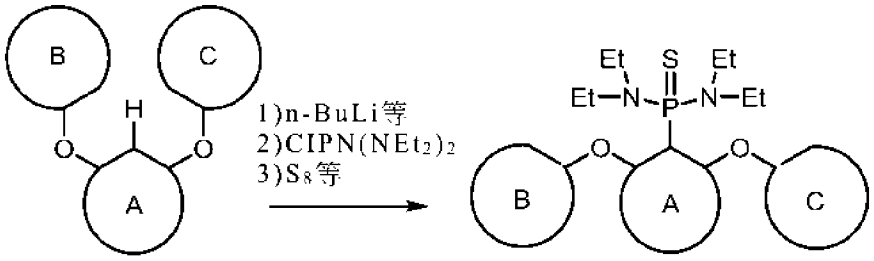
【0354】 另外，於所述流程（1）～流程（17）及流程（20）～流程（25）的合成法中，表示在加入三氯化硼或三溴化硼等之前，利用丁基鋰等對 X^1 與 X^2 之間的氫原子（或鹵素原子）進行鄰位金屬化，藉此進行串聯式雜夫里德耳-夸夫特反應的例子，但亦可不進行利用丁基鋰等的鄰位金屬化，而藉由添加三氯化硼或三溴化硼等來進行反應。

【0355】 另外，於 Y^1 為磷系的情況下，如下述流程（26）或流程（27）所示，利用正丁基鋰、第二丁基鋰或第三丁基鋰等對 X^1 與 X^2（下述式中為 O）之間的氫原子進行鄰位金屬化，繼而加入雙(二乙胺基)氯膦，進行鋰-磷的金屬交換後，加入三氯化鋁等路

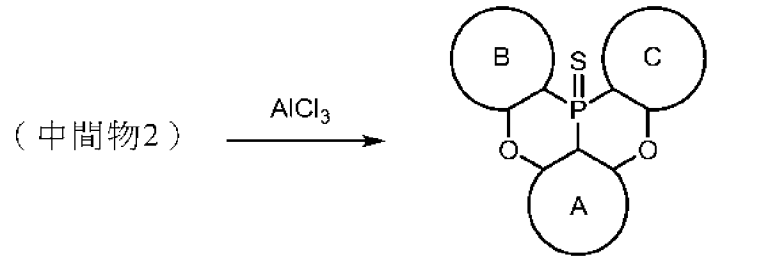
易斯酸，藉此進行串聯式磷雜夫里德耳-夸夫特反應，從而可獲得目標物。該反應方法於國際公開第 2010/104047 號公報（例如 27 頁）中亦有記載。另外，於該些反應步驟中的某處，使用經環烷烴縮合的原料、或者追加縮合環烷烴的步驟，藉此，可製造所期望的位置經環烷烴縮合的本發明的化合物。

【0356】

流程（26）

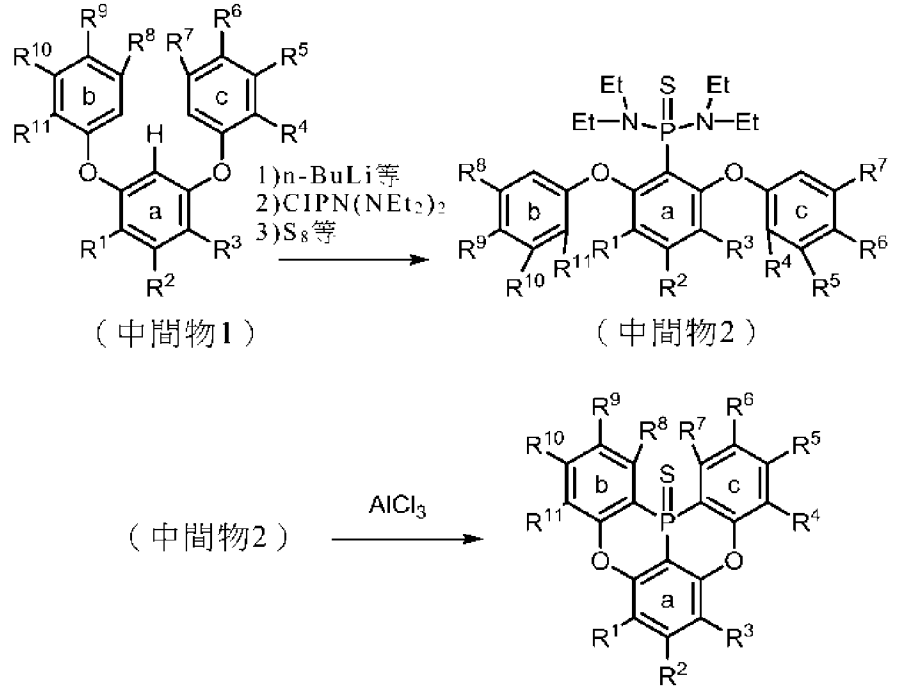


（中間物1）　　（中間物2）



通式（1）系化合物

流程（27）



（中間物1）　（中間物2）

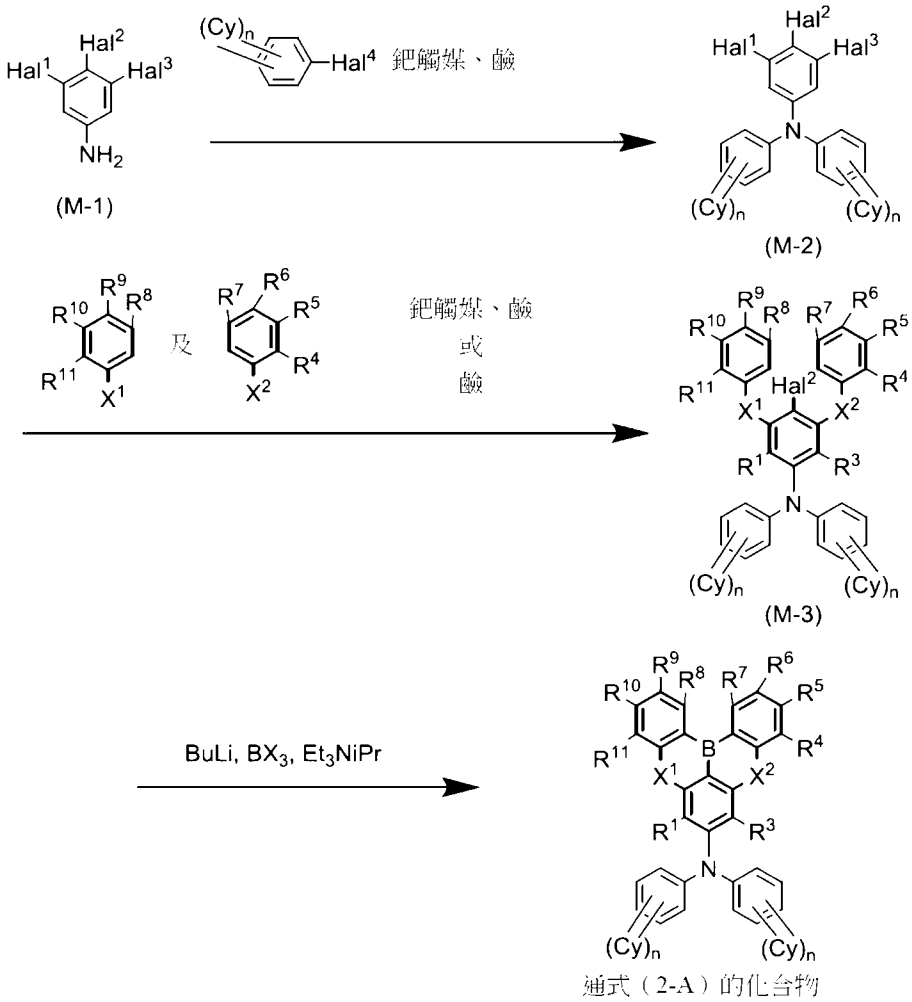
（中間物2）　通式（2）系化合物

【0357】 再者，於所述流程（26）或流程（27）中，相對於中間物 1 的莫耳量，使用 2 倍、3 倍的莫耳量的丁基鋰等鄰位金屬化試劑，藉此亦可合成多聚體化合物。另外，在欲導入鋰等金屬的位置上事先導入溴原子或氯原子等鹵素，並進行鹵素-金屬交換，藉此可朝所期望的位置上導入金屬。

【0358】 此外，關於通式（2-A）所表示的多環芳香族化合物，如下述流程（28）般，合成經環烷烴縮合的中間物，並使其環化，藉此可合成所期望的位置由環烷烴縮合的多環芳香族化合物。流程（28）中，X 表示鹵素或氫，其他符號的定義與通式（20）中的符號的定義相同。

【0359】

流程（28）



通式（2-A）的化合物

【0360】 流程（28）中的環化前的中間物亦可利用流程（1）等所示的方法來合成。即，可藉由將布赫瓦爾德-哈特維希反應或鈴木偶合反應、或者利用親核取代反應或烏爾曼反應等的醚化反應等適當組合來合成具有所期望的取代基的中間物。於該些反應中，成為經環烷烴縮合的前驅物的原料亦可利用市售品。

【0361】 具有經環烷烴縮合的二苯基胺基的通式（2-A）的化合物例如亦可利用如下方法來合成。即，對環烷烴縮合溴苯與三鹵

化苯胺藉由如布赫瓦爾德-哈特維希反應般的胺基化反應導入經環烷烴縮合的二苯基胺基後，於 X^1、X^2 為 N-R 的情況下，利用如布赫瓦爾德-哈特維希反應般的胺基化反應而衍生為中間物（M-3），於 X^1、X^2 為 O 的情況下，藉由使用苯酚的醚化而衍生為中間物（M-3），其後，例如藉由使丁基鋰般的金屬化試劑發揮作用並進行反式金屬化、之後使三溴化硼般的鹵化硼發揮作用、之後使二乙基異丙基胺般的布忍斯特鹼發揮作用的串聯式硼雜夫里德耳-夸夫特反應，而可合成通式（2-A）的化合物。該些反應亦可應用於其他經環烷烴縮合的化合物。

【0362】 再者，作為所述流程（1）～流程（28）中所使用的鄰位金屬化試劑，可列舉：甲基鋰、正丁基鋰、第二丁基鋰、第三丁基鋰等烷基鋰，二異丙基醯胺鋰、四甲基哌啶化鋰、六甲基二矽胺化鋰、六甲基二矽胺化鉀等有機鹼性化合物、有機溶媒分散 Na 等分散鹼金屬。

【0363】 再者，作為所述流程（1）～流程（28）中所使用的金屬-Y^1 的金屬交換試劑，可列舉：Y^1 的三氟化物、Y^1 的三氯化物、Y^1 的三溴化物、Y^1 的三碘化物等 Y^1 的鹵化物，$ClPN(NEt_2)_2$ 等 Y^1 的胺基化鹵化物，Y^1 的烷氧基化物，Y^1 的芳氧基化物等。

【0364】 再者，作為所述流程（1）～流程（28）中所使用的布忍斯特鹼，可列舉：N,N-二異丙基乙胺、三乙胺、2,2,6,6-四甲基哌啶、1,2,2,6,6-五甲基哌啶、N,N-二甲基苯胺、N,N-二甲基甲苯胺、2,6-二甲吡啶、四苯基硼酸鈉、四苯基硼酸鉀、三苯基硼烷、

四苯基矽烷、Ar_4BNa、Ar_4BK、Ar_3B、Ar_4Si（再者，Ar為苯基等芳基）等。

【0365】 作為所述流程（1）～流程（28）中所使用的路易斯酸，可列舉：$AlCl_3$、$AlBr_3$、AlF_3、$BF_3{\cdot}OEt_2$、BCl_3、BBr_3、$GaCl_3$、$GaBr_3$、$InCl_3$、$InBr_3$、$In(OTf)_3$、$SnCl_4$、$SnBr_4$、AgOTf、$ScCl_3$、$Sc(OTf)_3$、$ZnCl_2$、$ZnBr_2$、$Zn(OTf)_2$、$MgCl_2$、$MgBr_2$、$Mg(OTf)_2$、LiOTf、NaOTf、KOTf、Me_3SiOTf、$Cu(OTf)_2$、$CuCl_2$、YCl_3、$Y(OTf)_3$、$TiCl_4$、$TiBr_4$、$ZrCl_4$、$ZrBr_4$、$FeCl_3$、$FeBr_3$、$CoCl_3$、$CoBr_3$等。

【0366】 於所述流程（1）～流程（28）中，為了促進串聯式雜夫里德耳-夸夫特反應，亦可使用布忍斯特鹼或路易斯酸。其中，於使用 Y^1 的三氟化物、Y^1 的三氯化物、Y^1 的三溴化物、Y^1 的三碘化物等 Y^1 的鹵化物的情況下，隨著芳香族親電子取代反應的進行，而生成氟化氫、氯化氫、溴化氫、碘化氫等酸，因此使用捕捉酸的布忍斯特鹼是有效的。另一方面，於使用 Y^1 的胺基化鹵化物、Y^1 的烷氧基化物的情況下，隨著芳香族親電子取代反應的進行，而生成胺、醇，因此於多數情況下，無需使用布忍斯特鹼，但因胺基或烷氧基的脫離能力低，因此使用促進其脫離的路易斯酸是有效的。

【0367】 另外，本發明的多環芳香族化合物或其多聚體中亦包含至少一部分的氫原子由氘或氰基取代的化合物或者由氟或氯等鹵素取代的化合物，此種化合物等可藉由使用所期望的位置被氘化、氰化、氟化或氯化的原料而與所述同樣地合成。

【0368】 3.有機元件

本發明的經環烷烴縮合的多環芳香族化合物可用作有機元件用材料。作為有機元件，例如可列舉：有機電致發光元件、有機場效電晶體或有機薄膜太陽電池等。

【0369】 3-1.有機電致發光元件

以下，基於圖式對本實施形態的有機 EL 元件進行詳細說明。圖 1 是表示本實施形態的有機 EL 元件的概略剖面圖。

【0370】 ＜有機電致發光元件的結構＞

圖 1 所示的有機 EL 元件 100 包括：基板 101、設置於基板 101 上的陽極 102、設置於陽極 102 上的電洞注入層 103、設置於電洞注入層 103 上的電洞傳輸層 104、設置於電洞傳輸層 104 上的發光層 105、設置於發光層 105 上的電子傳輸層 106、設置於電子傳輸層 106 上的電子注入層 107、以及設置於電子注入層 107 上的陰極 108。

【0371】 再者，有機 EL 元件 100 亦可使製作順序相反而形成例如以下的構成，該構成包括：基板 101、設置於基板 101 上的陰極 108、設置於陰極 108 上的電子注入層 107、設置於電子注入層 107 上的電子傳輸層 106、設置於電子傳輸層 106 上的發光層 105、設置於發光層 105 上的電洞傳輸層 104、設置於電洞傳輸層 104 上的電洞注入層 103、以及設置於電洞注入層 103 上的陽極 102。

【0372】 並非需要所述各層的全部，將最小構成單元設為包括陽極 102、發光層 105 及陰極 108 的構成，電洞注入層 103、電洞傳

輸層 104、電子傳輸層 106、電子注入層 107 是任意設置的層。另外，所述各層可分別包含單一層，亦可包含多層。

【0373】 作為構成有機 EL 元件的層的形態，除所述「基板/陽極/電洞注入層/電洞傳輸層/發光層/電子傳輸層/電子注入層/陰極」的構成形態以外，亦可為「基板/陽極/電洞傳輸層/發光層/電子傳輸層/電子注入層/陰極」、「基板/陽極/電洞注入層/發光層/電子傳輸層/電子注入層/陰極」、「基板/陽極/電洞注入層/電洞傳輸層/發光層/電子注入層/陰極」、「基板/陽極/電洞注入層/電洞傳輸層/發光層/電子傳輸層/陰極」、「基板/陽極/發光層/電子傳輸層/電子注入層/陰極」、「基板/陽極/電洞傳輸層/發光層/電子注入層/陰極」、「基板/陽極/電洞傳輸層/發光層/電子傳輸層/陰極」、「基板/陽極/電洞注入層/發光層/電子注入層/陰極」、「基板/陽極/電洞注入層/發光層/電子傳輸層/陰極」、「基板/陽極/發光層/電子傳輸層/陰極」、「基板/陽極/發光層/電子注入層/陰極」的構成形態。

【0374】 ＜有機電致發光元件中的基板＞

基板 101 為有機 EL 元件 100 的支撐體，通常使用石英、玻璃、金屬、塑膠等。基板 101 根據目的而形成為板狀、膜狀或片狀，例如可使用玻璃板、金屬板、金屬箔、塑膠膜、塑膠片等。其中，較佳為玻璃板及聚酯、聚甲基丙烯酸酯、聚碳酸酯、聚碸等的透明的合成樹脂製的板。若為玻璃基板，則可使用鈉鈣玻璃或無鹼玻璃等，另外，厚度亦只要有足以保持機械強度的厚度即可，因此例如只要有 0.2 mm 以上即可。厚度的上限值例如為 2 mm

以下，較佳為 1 mm 以下。關於玻璃的材質，因來自玻璃的溶出離子越少越好，因此較佳為無鹼玻璃，由於施加了 SiO_2 等的隔離塗層的鈉鈣玻璃亦有市售，因此可使用該鈉鈣玻璃。另外，為了提高阻氣性，亦可於基板 101 的至少一面上設置細密的氧化矽膜等阻氣膜，尤其於將阻氣性低的合成樹脂製的板、膜或片用作基板 101 的情況下，較佳為設置阻氣膜。

【0375】 ＜有機電致發光元件中的陽極＞

陽極 102 發揮朝發光層 105 中注入電洞的作用。再者，於在陽極 102 與發光層 105 之間設置有電洞注入層 103 及電洞傳輸層 104 的至少一個層的情況下，經由該些層朝發光層 105 中注入電洞。

【0376】 作為形成陽極 102 的材料，可列舉無機化合物及有機化合物。作為無機化合物，例如可列舉：金屬（鋁、金、銀、鎳、鈀、鉻等）、金屬氧化物（銦的氧化物、錫的氧化物、銦-錫氧化物（Indium Tin Oxide，ITO）、銦-鋅氧化物（Indium Zinc Oxide，IZO）等）、鹵化金屬（碘化銅等）、硫化銅、碳黑、ITO 玻璃或奈塞（NESA）玻璃等。作為有機化合物，例如可列舉：聚(3-甲基噻吩)等聚噻吩、聚吡咯、聚苯胺等導電性聚合物等。此外，可自用作有機 EL 元件的陽極的物質中適當選擇來使用。

【0377】 透明電極的電阻只要可供給對於發光元件的發光而言充分的電流即可，因此並無限定，但就發光元件的消耗電力的觀點而言，理想的是低電阻。例如，若為 300 Ω/□以下的 ITO 基板，

則作為元件電極發揮功能，但現在亦能夠供給 10 Ω/□左右的基板，因此特別理想的是使用例如 100 Ω/□～5 Ω/□，較佳為 50 Ω/□～5 Ω/□的低電阻品。ITO 的厚度可配合電阻值而任意地選擇，但通常於 50 nm～300 nm 之間使用的情況多。

【0378】 ＜有機電致發光元件中的電洞注入層、電洞傳輸層＞

電洞注入層 103 發揮將自陽極 102 遷移而來的電洞高效地注入至發光層 105 內或電洞傳輸層 104 內的作用。電洞傳輸層 104 發揮將自陽極 102 所注入的電洞或自陽極 102 經由電洞注入層 103 所注入的電洞高效地傳輸至發光層 105 的作用。電洞注入層 103 及電洞傳輸層 104 分別將電洞注入·傳輸材料的一種或兩種以上加以積層、混合而形成，或者由電洞注入·傳輸材料與高分子黏結劑的混合物形成。另外，亦可向電洞注入·傳輸材料中添加如氯化鐵(III)般的無機鹽來形成層。

【0379】 作為電洞注入·傳輸性物質，需要於施加有電場的電極間高效地注入·傳輸來自正極的電洞，理想的是電洞注入效率高且高效地傳輸所注入的電洞。因此，較佳為游離電位小、且電洞遷移率大、進而穩定性優異、於製造時及使用時不易產生成為陷阱（trap）的雜質的物質。

【0380】 作為形成電洞注入層 103 及電洞傳輸層 104 的材料，可自於光導電材料中作為電洞的電荷傳輸材料一直以來所慣用的化合物，用於 p 型半導體、有機 EL 元件的電洞注入層及電洞傳輸層的公知的化合物中選擇任意的化合物來使用。該些材料的具體例

為咔唑衍生物（N-苯基咔唑、聚乙烯咔唑等）、雙(N-芳基咔唑)或雙(N-烷基咔唑)等雙咔唑衍生物、三芳基胺衍生物（主鏈或側鏈上具有芳香族三級胺基的聚合物、1,1-雙(4-二-對甲苯基胺基苯基)環己烷、N,N'-二苯基-N,N'-二(3-甲基苯基)-4,4'-二胺基聯苯、N,N'-二苯基-N,N'-二萘基-4,4'-二胺基聯苯、N,N'-二苯基-N,N'-二(3-甲基苯基)-4,4'-二苯基-1,1'-二胺、N,N'-二萘基-N,N'-二苯基-4,4'-二苯基-1,1'-二胺、N^4,$N^{4'}$-二苯基-N^4,$N^{4'}$-雙(9-苯基-9H-咔唑-3-基)-[1,1'-聯苯基]-4,4'-二胺、N^4,N^4,$N^{4'}$,$N^{4'}$-四[1,1'-聯苯]-4-基)-[1,1'-聯苯基]-4,4'-二胺、4,4',4''-三(3-甲基苯基(苯基)胺基)三苯基胺等三苯基胺衍生物、星爆狀胺衍生物等）、二苯乙烯衍生物、酞青衍生物（無金屬、銅酞青等）、吡唑啉衍生物、腙系化合物、苯並呋喃衍生物或噻吩衍生物、噁二唑衍生物、喹噁啉衍生物（例如1,4,5,8,9,12-六氮雜三伸苯-2,3,6,7,10,11-六碳腈等）、卟啉衍生物等雜環化合物、聚矽烷等。聚合物系中，較佳為側鏈上具有所述單體的聚碳酸酯或苯乙烯衍生物、聚乙烯咔唑及聚矽烷等，但只要是形成發光元件的製作所需的薄膜，可自陽極注入電洞，進而可傳輸電洞的化合物，則並無特別限定。

【0381】 另外，有機半導體的導電性因其摻雜而受到強烈影響這一點亦為人所知。此種有機半導體基質物質包含供電子性良好的化合物、或電子接受性良好的化合物。為了摻雜供電子物質，已知有四氰基醌二甲烷（Tetracyanoquinodimethane，TCNQ）或2,3,5,6-四氟四氰基-1,4-苯醌二甲烷

（ 2,3,5,6-tetrafluorotetracyano-1,4-benzoquinodimethane ，F4TCNQ）等強電子接受體（例如，參照文獻「M.法伊弗,A.拜爾,T.弗里茨,K.利奧（M.Pfeiffer, A.Beyer, T.Fritz, K.Leo），應用物理學快報（Appl.Phys.Lett.）, 73（22）, 3202-3204（1998）」及文獻「J.布洛赫維茨,M.法伊弗,T.弗里茨,K.利奧（J.Blochwitz, M.Pheiffer, T.Fritz, K.Leo），應用物理學快報（Appl.Phys.Lett.），73（6），729-731（1998）」）。該些藉由供電子型基礎物質（電洞傳輸物質）的電子遷移過程而生成所謂的電洞。基礎物質的傳導性根據電洞的數量及遷移率而產生相當大的變化。作為具有電洞傳輸特性的基質物質，已知有例如聯苯胺衍生物（TPD 等）或星爆狀胺衍生物（4,4',4''-三(N,N-二苯基胺基)三苯胺（4,4',4''-tris(N,N-diphenylamino)triphenylamine，TDATA）等）、或者特定的金屬酞青（尤其是鋅酞青（ZnPc）等）（日本專利特開2005-167175 號公報）。

【0382】 所述電洞注入層用材料及電洞傳輸層用材料亦可作為如下的高分子化合物或其高分子交聯體、或者如下的懸掛型高分子化合物或其懸掛型高分子交聯體而用於電洞層用材料，其中，所述高分子化合物是使於所述電洞注入層用材料及電洞傳輸層用材料中取代有反應性取代基的反應性化合物作為單體進行高分子化而成，所述懸掛型高分子化合物是使主鏈型高分子與所述反應性化合物反應而成。作為該情況下的反應性取代基，可引用式（1）所表示的多環芳香族化合物中的說明。

關於此種高分子化合物及高分子交聯體的用途的詳細情況，於後文敘述。

【0383】 ＜有機電致發光元件中的發光層＞

發光層 105 是藉由在施加有電場的電極間，使自陽極 102 所注入的電洞與自陰極 108 所注入的電子再結合而發光的層。形成發光層 105 的材料只要為藉由電洞與電子的再結合而得到激發來發光的化合物（發光性化合物）即可，較佳為可形成穩定的薄膜形狀、且於固體狀態下顯示強的發光（螢光）效率的化合物。於本發明中，作為發光層用的材料，可使用主體材料、與例如作為摻雜劑材料的所述通式（1）所表示的多環芳香族化合物。

【0384】 發光層可為單一層，亦可包含多層，任一者均可，且分別由發光層用材料（主體材料、摻雜劑材料）形成。主體材料與摻雜劑材料分別可為一種，亦可為多種的組合，任一者均可。摻雜劑材料可包含於主體材料整體內，亦可包含於部分主體材料內，任一者均可。作為摻雜方法，可藉由與主體材料的共蒸鍍法來形成，亦可事先與主體材料混合後同時蒸鍍。

【0385】 主體材料的使用量根據主體材料的種類而不同，只要配合該主體材料的特性來決定即可。主體材料的使用量的基準較佳為發光層用材料整體的 50 重量%～99.999 重量%，更佳為 80 重量%～99.95 重量%，進而佳為 90 重量%～99.9 重量%。

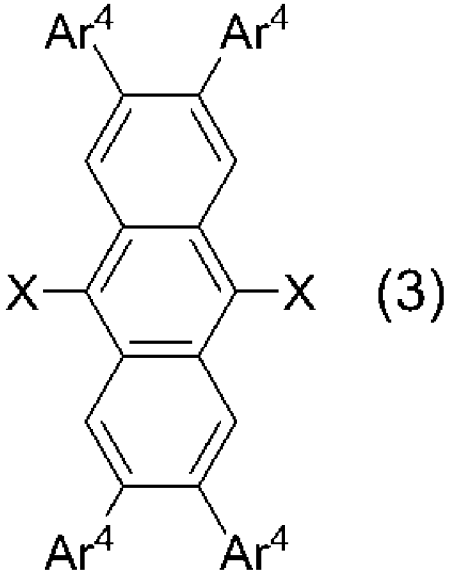
【0386】 摻雜劑材料的使用量根據摻雜劑材料的種類而不同，只要配合該摻雜劑材料的特性來決定即可。摻雜劑的使用量的基準

較佳為整個發光層用材料的 0.001 重量%～50 重量%，更佳為 0.05 重量%～20 重量%，進而佳為 0.1 重量%～10 重量%。若為所述範圍，則例如就可防止濃度淬滅現象的方面而言較佳。

【0387】 主體材料可列舉自以前作為發光體已知的蒽、芘、二苯並芘或芴等縮合環衍生物、雙苯乙烯基蒽衍生物或二苯乙烯基苯衍生物等雙苯乙烯基衍生物、四苯基丁二烯衍生物、環戊二烯衍生物等。特佳為蒽系化合物、芴系化合物或二苯並芘系化合物。

【0388】 ＜蒽系化合物＞

作為主體的蒽系化合物例如為下述通式(3)所表示的化合物。



(3)

【0389】 式（3）中，

X 及 Ar^4 分別獨立地為氫、可被取代的芳基、可被取代的雜芳基、可被取代的二芳基胺基、可被取代的二雜芳基胺基、可被取代的芳基雜芳基胺基、可被取代的烷基、可被取代的環烷基、

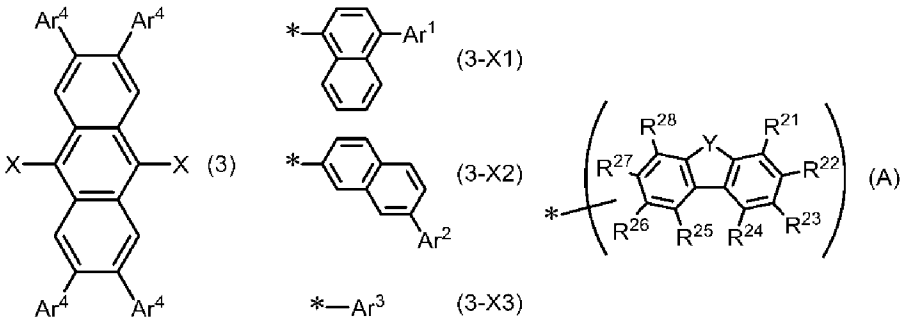
可被取代的烯基、可被取代的烷氧基、可被取代的芳氧基、可被取代的芳硫基或可被取代的矽烷基，全部的 X 及 Ar^4 不會同時成為氫，

式（3）所表示的化合物中的至少一個氫可由鹵素、氰基、氘或可被取代的雜芳基取代。

【0390】 另外，亦可將式（3）所表示的結構作為單元結構來形成多聚體（較佳為二聚體）。該情況下，例如可列舉式（3）所表示的單元結構彼此經由 X 而鍵結的形態，作為該 X，可列舉：單鍵、伸芳基（伸苯基、伸聯苯基及伸萘基等）及伸雜芳基（吡啶環、二苯並呋喃環、二苯並噻吩環、咔唑環、苯並咔唑環及苯基取代咔唑環等具有二價成鍵價的基）等。

【0391】 所述芳基、雜芳基、二芳基胺基、二雜芳基胺基、芳基雜芳基胺基、烷基、環烷基、烯基、烷氧基、芳氧基、芳硫基或矽烷基的詳細情況於以下的較佳形態一欄中進行說明。另外，作為針對該些基的取代基，可列舉：芳基、雜芳基、二芳基胺基、二雜芳基胺基、芳基雜芳基胺基、烷基、環烷基、烯基、烷氧基、芳氧基、芳硫基或矽烷基等，該些基的詳細情況亦於以下的較佳形態一欄中進行說明。

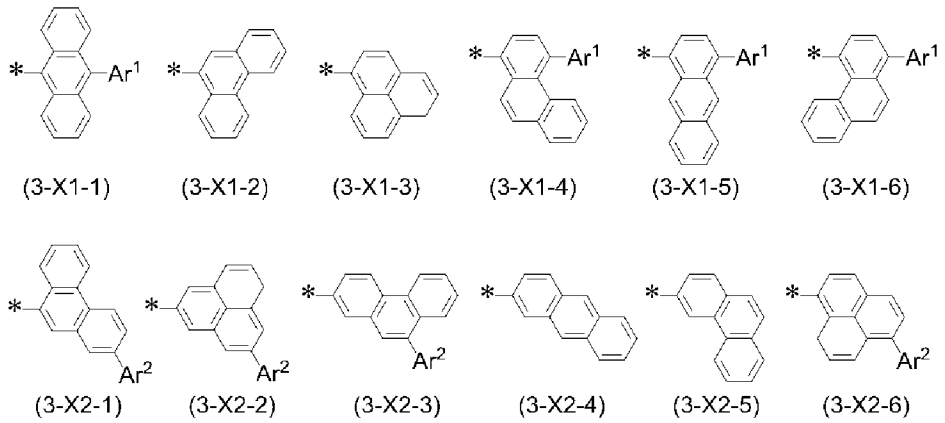
【0392】 以下對所述蒽系化合物的較佳形態進行說明。下述結構中的符號的定義與以上所述的定義相同。



【0393】 通式（3）中，X 分別獨立地為所述式（3-X1）、式（3-X2）或式（3-X3）所表示的基，式（3-X1）、式（3-X2）或式（3-X3）所表示的基於*處與式（3）的蒽環鍵結。較佳為兩個 X 不會同時成為式（3-X3）所表示的基。更佳為兩個 X 亦不會同時成為式（3-X2）所表示的基。

【0394】 另外，亦可將式（3）所表示的結構作為單元結構來形成多聚體（較佳為二聚體）。該情況下，例如可列舉式（3）所表示的單元結構彼此經由 X 而鍵結的形態，作為該 X，可列舉：單鍵、伸芳基（伸苯基、伸聯苯基及伸萘基等）及伸雜芳基（吡啶環、二苯並呋喃環、二苯並噻吩環、咔唑環、苯並咔唑環及苯基取代咔唑環等具有二價成鍵價的基）等。

【0395】 式（3-X1）及式（3-X2）中的伸萘基部位可由一個苯環縮合。以所述方式縮合而成的結構如下所示。



【0396】 Ar^1 及 Ar^2 分別獨立地為氫、苯基、聯苯基、聯三苯基、聯四苯基、萘基、菲基、芴基、苯並芴基、蒄基、三伸苯基、芘基、或所述式（A）所表示的基（亦包含咔唑基、苯並咔唑基及苯基取代咔唑基）。再者，於 Ar^1 或 Ar^2 為式（A）所表示的基的情況下，式（A）所表示的基於其*處與式（3-X1）或式（3-X2）中的萘環鍵結。

【0397】 Ar^3 為苯基、聯苯基、聯三苯基、聯四苯基、萘基、菲基、芴基、苯並芴基、蒄基、三伸苯基、芘基、或所述式（A）所表示的基（亦包含咔唑基、苯並咔唑基及苯基取代咔唑基）。再者，於 Ar^3 為式（A）所表示的基的情況下，式（A）所表示的基於其*處與式（3-X3）中的直線所表示的單鍵鍵結。即，式（3）的蒽環與式（A）所表示的基直接鍵結。

【0398】 另外，Ar^3 亦可具有取代基，Ar^3 中的至少一個氫進而可由碳數 1～4 的烷基、碳數 5～10 的環烷基、苯基、聯苯基、聯三苯基、萘基、菲基、芴基、蒄基、三伸苯基、芘基、或所述式（A）

所表示的基（亦包含咔唑基及苯基取代咔唑基）取代。再者，於 Ar^3 所具有的取代基為式（A）所表示的基的情況下，式（A）所表示的基於其*處與式（3-X3）中的 Ar^3 鍵結。

【0399】 Ar^4 分別獨立地為氫、苯基、聯苯基、聯三苯基、萘基、或由碳數 1～4 的烷基（甲基、乙基、第三丁基等）及/或碳數 5～10 的環烷基取代的矽烷基。

【0400】 於矽烷基中進行取代的碳數 1～4 的烷基可列舉甲基、乙基、丙基、異丙基、丁基、第二丁基、第三丁基、環丁基等，矽烷基中的三個氫分別獨立地由該些烷基取代。

【0401】 作為具體的「由碳數 1～4 的烷基取代的矽烷基」，可列舉：三甲基矽烷基、三乙基矽烷基、三丙基矽烷基、三異丙基矽烷基、三丁基矽烷基、三-第二丁基矽烷基、三-第三丁基矽烷基、乙基二甲基矽烷基、丙基二甲基矽烷基、異丙基二甲基矽烷基、丁基二甲基矽烷基、第二丁基二甲基矽烷基、第三丁基二甲基矽烷基、甲基二乙基矽烷基、丙基二乙基矽烷基、異丙基二乙基矽烷基、丁基二乙基矽烷基、第二丁基二乙基矽烷基、第三丁基二乙基矽烷基、甲基二丙基矽烷基、乙基二丙基矽烷基、丁基二丙基矽烷基、第二丁基二丙基矽烷基、第三丁基二丙基矽烷基、甲基二異丙基矽烷基、乙基二異丙基矽烷基、丁基二異丙基矽烷基、第二丁基二異丙基矽烷基、第三丁基二異丙基矽烷基等。

【0402】 於矽烷基中進行取代的碳數 5～10 的環烷基可列舉：環戊基、環己基、環庚基、環辛基、環壬基、環癸基、降冰片烯基、

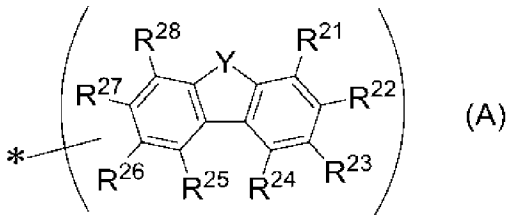
雙環[1.1.1]戊基、雙環[2.0.1]戊基、雙環[1.2.1]己基、雙環[3.0.1]己基、雙環[2.1.2]庚基、雙環[2.2.2]辛基、金剛烷基、十氫萘基、十氫薁基等，矽烷基中的三個氫分別獨立地由該些環烷基取代。

【0403】 作為具體的「由碳數 5～10 的環烷基取代的矽烷基」，可列舉：三環戊基矽烷基、三環己基矽烷基等。

【0404】 作為經取代的矽烷基，亦有兩個烷基與一個環烷基取代而成的二烷基環烷基矽烷基、及一個烷基與兩個環烷基取代而成的烷基二環烷基矽烷基，作為進行取代的烷基及環烷基的具體例，可列舉所述基。

【0405】 另外，通式（3）所表示的蒽系化合物的化學結構中的氫亦可由所述式（A）所表示的基取代。於由式（A）所表示的基取代的情況下，式（A）所表示的基於其*處與式（3）所表示的化合物中的至少一個氫進行取代。

【0406】 式（A）所表示的基為式（3）所表示的蒽系化合物可具有的取代基的一個。



(A)

【0407】 所述式（A）中，Y 為-O-、-S-或＞N-R^{29}，R^{21}～R^{28} 分

別獨立地為氫、可被取代的烷基、可被取代的環烷基、可被取代的芳基、可被取代的雜芳基、可被取代的烷氧基、可被取代的芳氧基、可被取代的芳硫基、三烷基矽烷基、三環烷基矽烷基、二烷基環烷基矽烷基、烷基二環烷基矽烷基、可被取代的胺基、鹵素、羥基或氰基，R^{21}～R^{28}中的鄰接的基可彼此鍵結而形成烴環、芳基環或雜芳基環，R^{29}為氫或可被取代的芳基。

【0408】 作為 R^{21}～R^{28}中的「可被取代的烷基」的「烷基」，可為直鏈及分支鏈的任一種，例如可列舉碳數 1～24 的直鏈烷基或碳數 3～24 的分支鏈烷基。較佳為碳數 1～18 的烷基（碳數 3～18 的分支鏈烷基），更佳為碳數 1～12 的烷基（碳數 3～12 的分支鏈烷基），進而佳為碳數 1～6 的烷基（碳數 3～6 的分支鏈烷基），特佳為碳數 1～4 的烷基（碳數 3～4 的分支鏈烷基）。

【0409】 作為具體的「烷基」，可列舉：甲基、乙基、正丙基、異丙基、正丁基、異丁基、第二丁基、第三丁基、正戊基、異戊基、新戊基、第三戊基（t-amyl）、正己基、1-甲基戊基、3,3-二甲基丁基、2-乙基丁基、正庚基、1-甲基己基、正辛基、第三辛基（1,1,3,3-四甲基丁基）、1-甲基庚基、2-乙基己基、2-丙基戊基、正壬基、2,2-二甲基庚基、2,6-二甲基-4-庚基、3,5,5-三甲基己基、正癸基、正十一基、1-甲基癸基、正十二基、正十三基、1-己基庚基、正十四基、正十五基、正十六基、正十七基、正十八基、正二十基等。

【0410】 作為 R^{21}～R^{28}中的「可被取代的環烷基」的「環烷基」，

可列舉：碳數 3～24 的環烷基、碳數 3～20 的環烷基、碳數 3～16 的環烷基、碳數 3～14 的環烷基、碳數 5～10 的環烷基、碳數 5～8 的環烷基、碳數 5～6 的環烷基、碳數 5 的環烷基等。

【0411】 作為具體的「環烷基」，可列舉：環丙基、環丁基、環戊基、環己基、環庚基、環辛基、環壬基、環癸基、以及該些基的碳數 1～4 的烷基（尤其是甲基）取代物、或降冰片烯基、雙環[1.0.1]丁基、雙環[1.1.1]戊基、雙環[2.0.1]戊基、雙環[1.2.1]己基、雙環[3.0.1]己基、雙環[2.1.2]庚基、雙環[2.2.2]辛基、金剛烷基、二金剛烷基、十氫萘基、十氫薁基等。

【0412】 作為 R^{21}～R^{28} 中的「可被取代的芳基」的「芳基」，例如可列舉碳數 6～30 的芳基，較佳為碳數 6～16 的芳基，更佳為碳數 6～12 的芳基，特佳為碳數 6～10 的芳基。

【0413】 作為具體的「芳基」，可列舉：作為單環系的苯基；作為二環系的聯苯基；作為縮合二環系的萘基；作為三環系的聯三苯基（間聯三苯基、鄰聯三苯基、對聯三苯基）；作為縮合三環系的苊基、芴基、蒽基、菲基；作為縮合四環系的三伸苯基、芘基、稠四苯基；作為縮合五環系的苉基、稠五苯基等。

【0414】 作為 R^{21}～R^{28} 中的「可被取代的雜芳基」的「雜芳基」，例如可列舉碳數 2～30 的雜芳基，較佳為碳數 2～25 的雜芳基，更佳為碳數 2～20 的雜芳基，進而佳為碳數 2～15 的雜芳基，特佳為碳數 2～10 的雜芳基。另外，作為雜芳基，例如可列舉除碳以外含有 1 個～5 個選自氧、硫及氮中的雜原子作為環構成原子的

雜環等。

【0415】 作為具體的「雜芳基」，例如可列舉：吡咯基、噁唑基、異噁唑基、噻唑基、異噻唑基、咪唑基、噁二唑基、噻二唑基、三唑基、四唑基、吡唑基、吡啶基、嘧啶基、噠嗪基、吡嗪基、三嗪基、吲哚基、異吲哚基、1H-吲唑基、苯並咪唑基、苯並噁唑基、苯並噻唑基、1H-苯並三唑基、喹啉基、異喹啉基、噌啉基、喹唑啉基、喹噁啉基、酞嗪基、萘啶基、嘌呤基、喋啶基、咔唑基、吖啶基、啡噁噻基、啡噁嗪基、啡噻嗪基、啡嗪基、環戊基硼酸基（phenazasilinyl）、吲嗪基、呋喃基、苯並呋喃基、異苯並呋喃基、二苯並呋喃基、萘並苯並呋喃基、噻吩基、苯並噻吩基、異苯並噻吩基、二苯並噻吩基、苯並磷醯基、二苯並磷醯基、苯並磷雜環戊二烯氧化物環的一價基、二苯並磷雜環戊二烯氧化物環的一價基、呋呫基、噻蒽基、吲哚並咔唑基、苯並吲唑並咔唑基及苯並苯並吲哚並咔唑基等。

【0416】 作為 R^{21}～R^{28} 中的「可被取代的烷氧基」的「烷氧基」，例如可列舉碳數 1～24 的直鏈的烷氧基或碳數 3～24 的分支鏈的烷氧基。較佳為碳數 1～18 的烷氧基（碳數 3～18 的分支鏈的烷氧基），更佳為碳數 1～12 的烷氧基（碳數 3～12 的分支鏈的烷氧基），進而佳為碳數 1～6 的烷氧基（碳數 3～6 的分支鏈的烷氧基），特佳為碳數 1～4 的烷氧基（碳數 3～4 的分支鏈的烷氧基）。

【0417】 作為具體的「烷氧基」，可列舉：甲氧基、乙氧基、丙氧基、異丙氧基、丁氧基、異丁氧基、第二丁氧基、第三丁氧基、

戊氧基、己氧基、庚氧基、辛氧基等。

【0418】 作為 R^{21}～R^{28} 中的「可被取代的芳氧基」的「芳氧基」，為-OH 基的氫由芳基取代的基，該芳基可引用作為所述 R^{21}～R^{28} 中的「芳基」而說明的基。

【0419】 作為 R^{21}～R^{28} 中的「可被取代的芳硫基」的「芳硫基」，為-SH 基的氫由芳基取代的基，該芳基可引用作為所述 R^{21}～R^{28} 中的「芳基」而說明的基。

【0420】 作為 R^{21}～R^{28} 中的「三烷基矽烷基」，可列舉矽烷基中的三個氫分別獨立地由烷基取代的基，該烷基可引用作為所述 R^{21}～R^{28} 中的「烷基」而說明的基。對於進行取代而言較佳的烷基為碳數 1～4 的烷基，具體而言，可列舉：甲基、乙基、丙基、異丙基、丁基、第二丁基、第三丁基、環丁基等。

【0421】 作為具體的「三烷基矽烷基」，可列舉：三甲基矽烷基、三乙基矽烷基、三丙基矽烷基、三異丙基矽烷基、三丁基矽烷基、三-第二丁基矽烷基、三-第三丁基矽烷基、乙基二甲基矽烷基、丙基二甲基矽烷基、異丙基二甲基矽烷基、丁基二甲基矽烷基、第二丁基二甲基矽烷基、第三丁基二甲基矽烷基、甲基二乙基矽烷基、丙基二乙基矽烷基、異丙基二乙基矽烷基、丁基二乙基矽烷基、第二丁基二乙基矽烷基、第三丁基二乙基矽烷基、甲基二丙基矽烷基、乙基二丙基矽烷基、丁基二丙基矽烷基、第二丁基二丙基矽烷基、第三丁基二丙基矽烷基、甲基二異丙基矽烷基、乙基二異丙基矽烷基、丁基二異丙基矽烷基、第二丁基二異丙基矽

烷基、第三丁基二異丙基矽烷基等。

【0422】 作為 R^{21}～R^{28} 中的「三環烷基矽烷基」，可列舉矽烷基中的三個氫分別獨立地由環烷基取代的基，該環烷基可引用作為所述 R^{21}～R^{28} 中的「環烷基」而說明的基。對於進行取代而言較佳的環烷基為碳數 5～10 的環烷基，具體而言，可列舉：環戊基、環己基、環庚基、環辛基、環壬基、環癸基、雙環[1.1.1]戊基、雙環[2.0.1]戊基、雙環[1.2.1]己基、雙環[3.0.1]己基、雙環[2.1.2]庚基、雙環[2.2.2]辛基、金剛烷基、十氫萘基、十氫薁基等。

【0423】 作為具體的「三環烷基矽烷基」，可列舉：三環戊基矽烷基、三環己基矽烷基等。

【0424】 作為兩個烷基與一個環烷基取代而成的二烷基環烷基矽烷基、及一個烷基與兩個環烷基取代而成的烷基二環烷基矽烷基的具體例，可列舉：選自所述具體的烷基及環烷基中的基取代而成的矽烷基。

【0425】 作為 R^{21}～R^{28} 中的「可被取代的胺基」的「被取代的胺基」，例如可列舉兩個氫由芳基或雜芳基取代的胺基。兩個氫由芳基取代的胺基為二芳基取代胺基，兩個氫由雜芳基取代的胺基為二雜芳基取代胺基，兩個氫由芳基與雜芳基取代的胺基為芳基雜芳基取代胺基。該芳基或雜芳基可引用作為所述 R^{21}～R^{28} 中的「芳基」或「雜芳基」而說明的基。

【0426】 作為具體的「被取代的胺基」，可列舉：二苯基胺基、二萘基胺基、苯基萘基胺基、二吡啶基胺基、苯基吡啶基胺基、

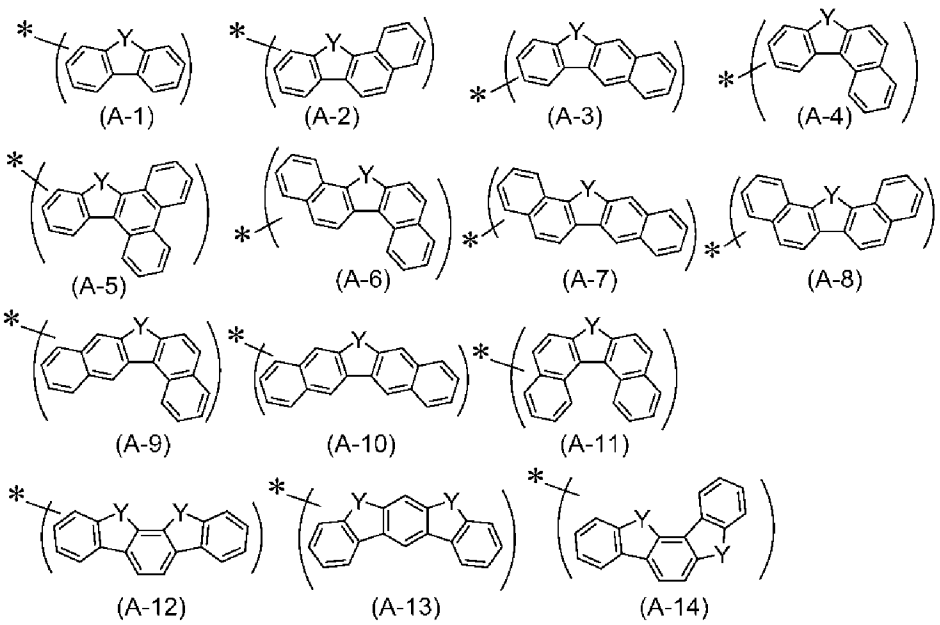
萘基吡啶基胺基等。

【0427】 作為 R^{21}～R^{28} 中的「鹵素」，可列舉：氟、氯、溴、碘。

【0428】 作為 R^{21}～R^{28} 而說明的基中，若干基亦可如所述般被取代，作為該情況下的取代基，可列舉：烷基、環烷基、芳基或雜芳基。該烷基、環烷基、芳基或雜芳基可引用作為所述 R^{21}～R^{28} 中的「烷基」、「環烷基」、「芳基」或「雜芳基」而說明的基。

【0429】 作為 Y 的「＞N-R^{29}」中的 R^{29} 為氫或可被取代的芳基，作為該芳基，可引用作為所述 R^{21}～R^{28} 中的「芳基」而說明的基，另外，作為該取代基，可引用作為針對 R^{21}～R^{28} 的取代基而說明的基。

【0430】 R^{21}～R^{28} 中的鄰接的基可彼此鍵結而形成烴環、芳基環或雜芳基環。未形成環的情況為下述式（A-1）所表示的基，作為形成環的情況，例如可列舉下述式（A-2）～式（A-14）的任一者所表示的基。式中的 Y 及*與所述為相同定義。再者，式（A-1）～式（A-14）的任一者所表示的基中的至少一個氫可由烷基、環烷基、芳基、雜芳基、烷氧基、芳氧基、芳硫基、三烷基矽烷基、三環烷基矽烷基、二烷基環烷基矽烷基、烷基二環烷基矽烷基、二芳基取代胺基、二雜芳基取代胺基、芳基雜芳基取代胺基、鹵素、羥基或氰基取代。各結構式中的*表示鍵結位置。



【0431】 作為鄰接的基彼此鍵結而成的環，若為烴環，則例如可列舉環己烷環，作為芳基環或雜芳基環，可列舉所述 R^{21}～R^{28} 中的「芳基」或「雜芳基」中所說明的環結構，該些環以與所述式（A-1）中的一個或兩個苯環進行縮合的方式形成。

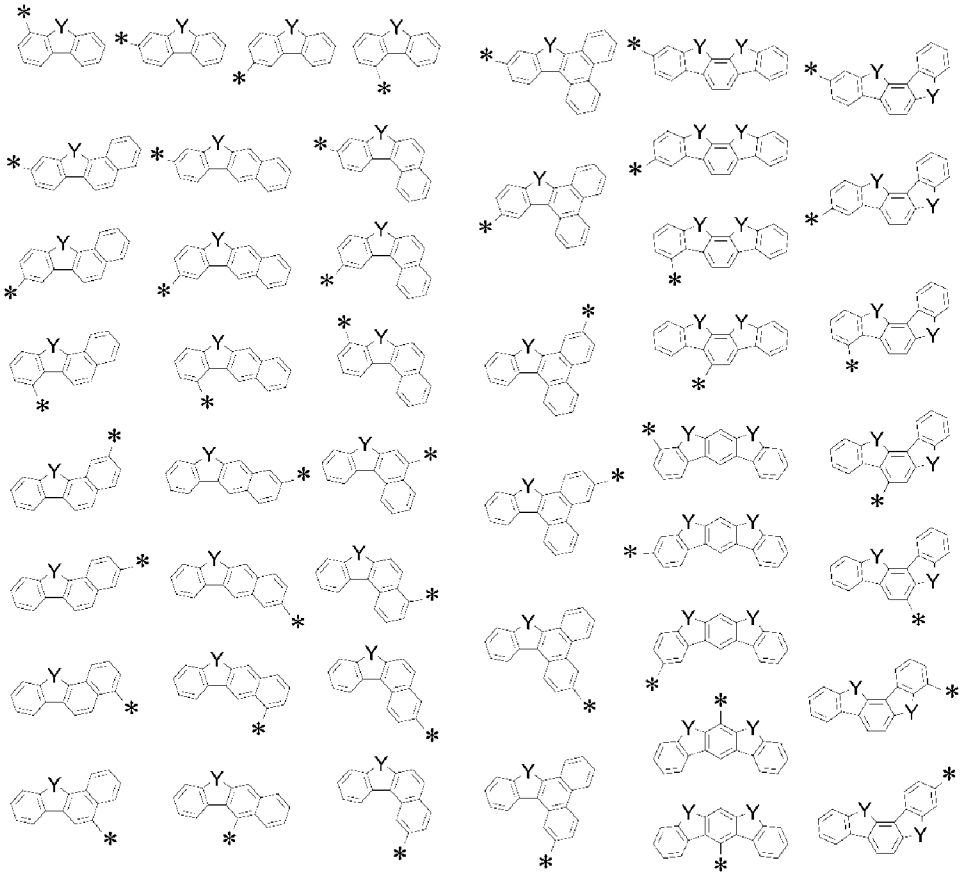
【0432】 作為式（A）所表示的基，例如可列舉所述式（A-1）～式（A-14）的任一者所表示的基，較佳為所述式（A-1）～式（A-5）及式（A-12）～式（A-14）的任一者所表示的基，更佳為所述式（A-1）～式（A-4）的任一者所表示的基，進而佳為所述式（A-1）、式（A-3）及式（A-4）的任一者所表示的基，特佳為所述式（A-1）所表示的基。

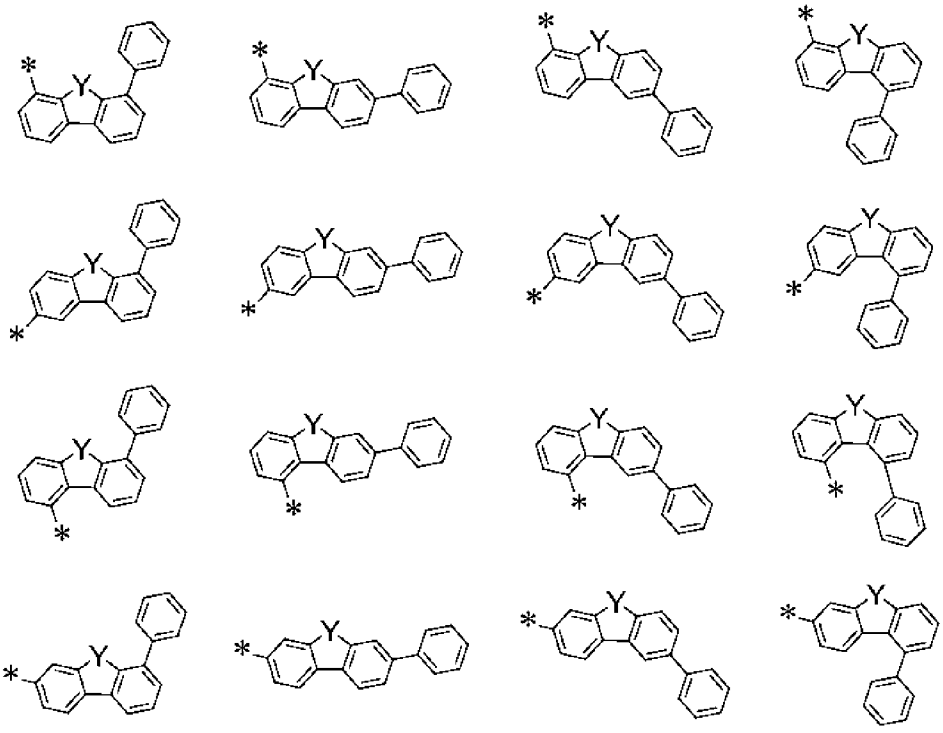
【0433】 式（A）所表示的基於式（A）中的*處與式（3-X1）或式（3-X2）中的萘環、式（3-X3）中的單鍵、式（3-X3）中的 Ar^3 鍵結，另外，與式（3）所表示的化合物中的至少一個氫進行取代

的情況如上所述，但該些鍵結形態中，較佳為與式（3-X1）或式（3-X2）中的萘環、式（3-X3）中的單鍵及式（3-X3）中的 Ar^3 的至少一個鍵結的形態。

【0434】 另外，關於式（A）所表示的基的結構中，式（3-X1）或式（3-X2）中的萘環、式（3-X3）中的單鍵、式（3-X3）中的 Ar^3 進行鍵結的位置，及式（A）所表示的基的結構中，與式（3）所表示的化合物中的至少一個氫進行取代的位置，可為式（A）的結構中的任意位置，例如可於式（A）的結構中的兩個苯環的任一個、或式（A）的結構中的 R^{21}～R^{28} 中的鄰接的基彼此鍵結而形成的任一環、或式（A）的結構中的作為 Y 的「＞N-R^{29}」的 R^{29} 中的任一位置進行鍵結。

【0435】 作為式（A）所表示的基，例如可列舉以下的基。式中的 Y 及*與所述為相同定義。

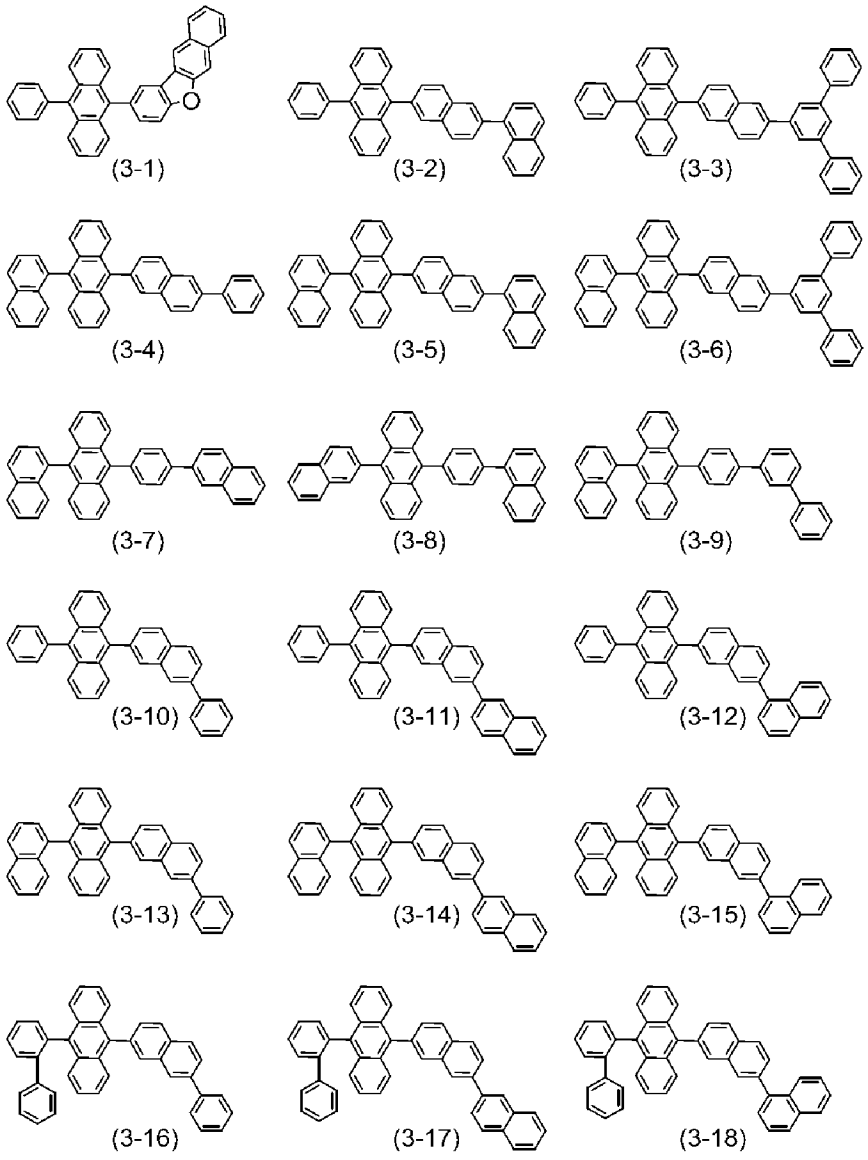




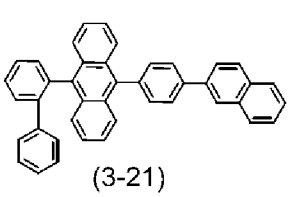
【0436】 另外，通式（3）所表示的蒽系化合物的化學結構中的氫的全部或一部分可為氘。

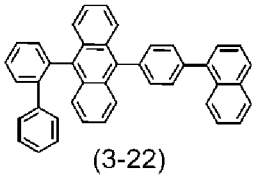
【0437】 作為蒽系化合物的具體例，例如可列舉下述式（3-1）～式（3-142）的任一者所表示的化合物。再者，下述結構式中的「Me」表示甲基，「D」表示氘，「tBu」表示第三丁基。

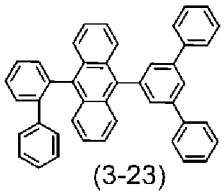
【0438】

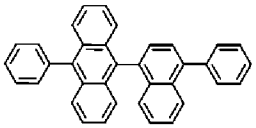


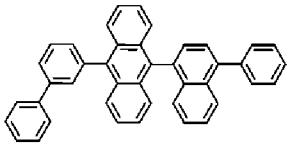
【0439】

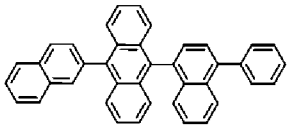

(3-21)

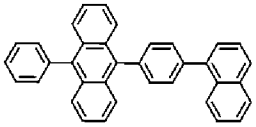

(3-22)

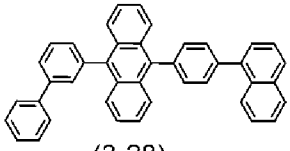

(3-23)

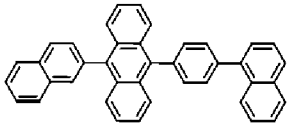

(3-24)

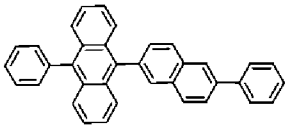

(3-25)

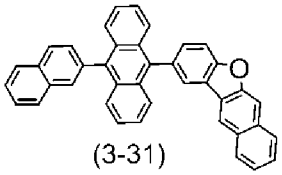

(3-26)

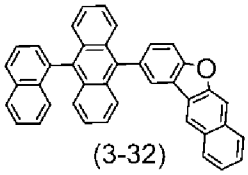

(3-27)

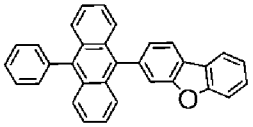

(3-28)

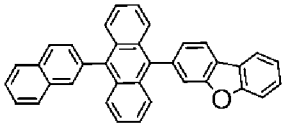

(3-29)

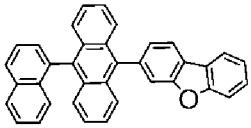

(3-30)

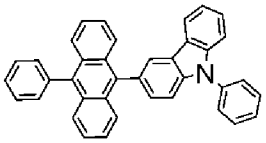

(3-31)

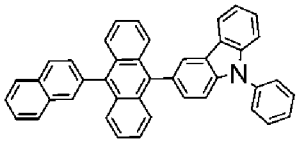

(3-32)

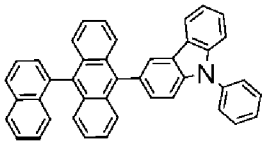

(3-33)


(3-34)

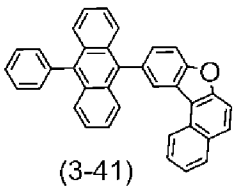

(3-35)

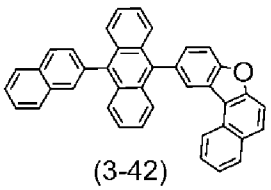

(3-36)

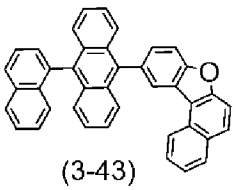

(3-37)

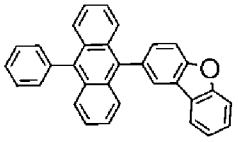

(3-38)

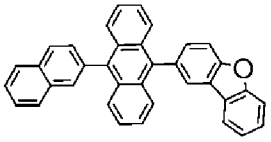
【0440】

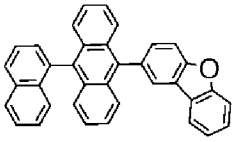

(3-41)

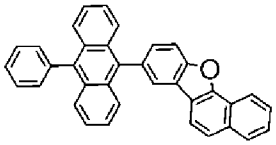

(3-42)

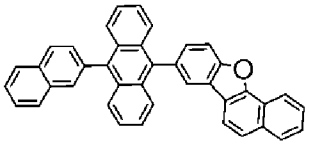

(3-43)

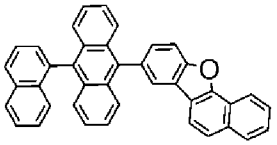

(3-44)

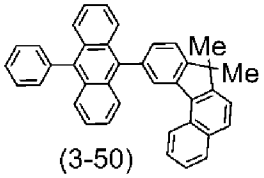

(3-45)

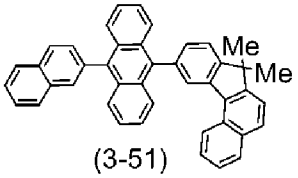

(3-46)

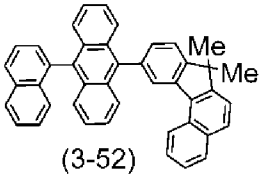

(3-47)

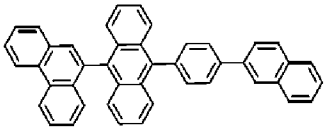

(3-48)

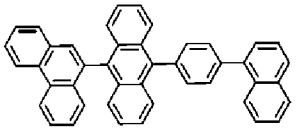

(3-49)

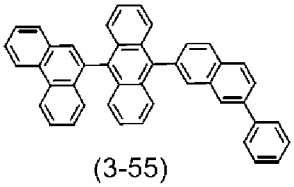

(3-50)

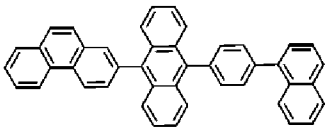

(3-51)

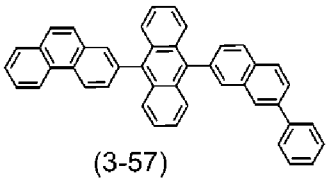

(3-52)

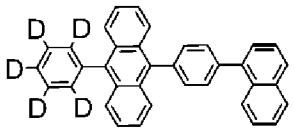

(3-53)


(3-54)

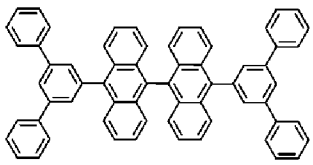

(3-55)


(3-56)

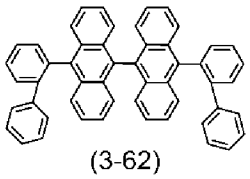

(3-57)


(3-58)

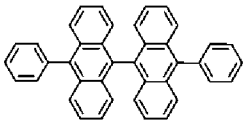
【0441】



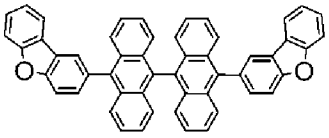
(3-61)



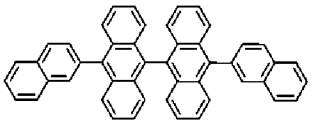
(3-62)



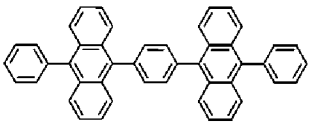
(3-63)



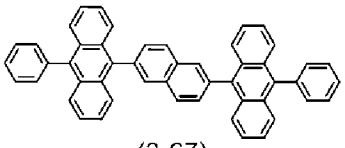
(3-64)



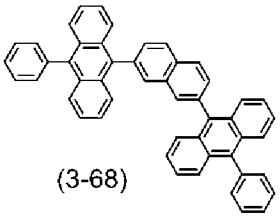
(3-65)



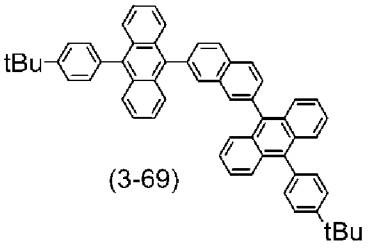
(3-66)



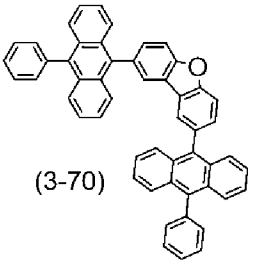
(3-67)



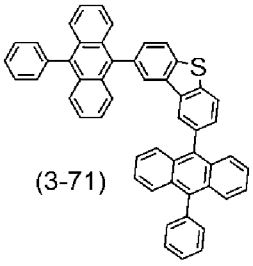
(3-68)



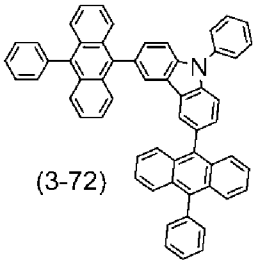
(3-69)



(3-70)

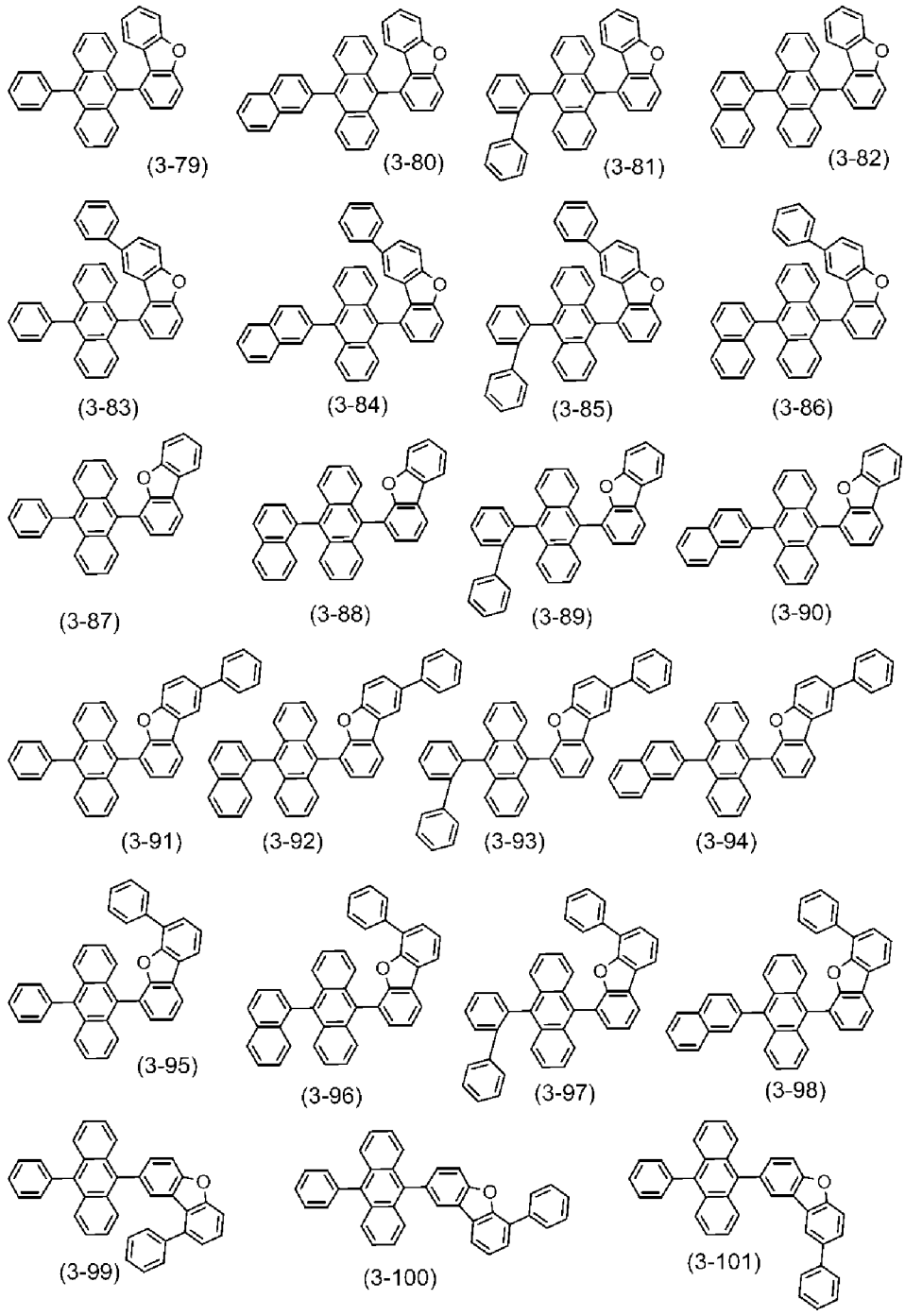


(3-71)

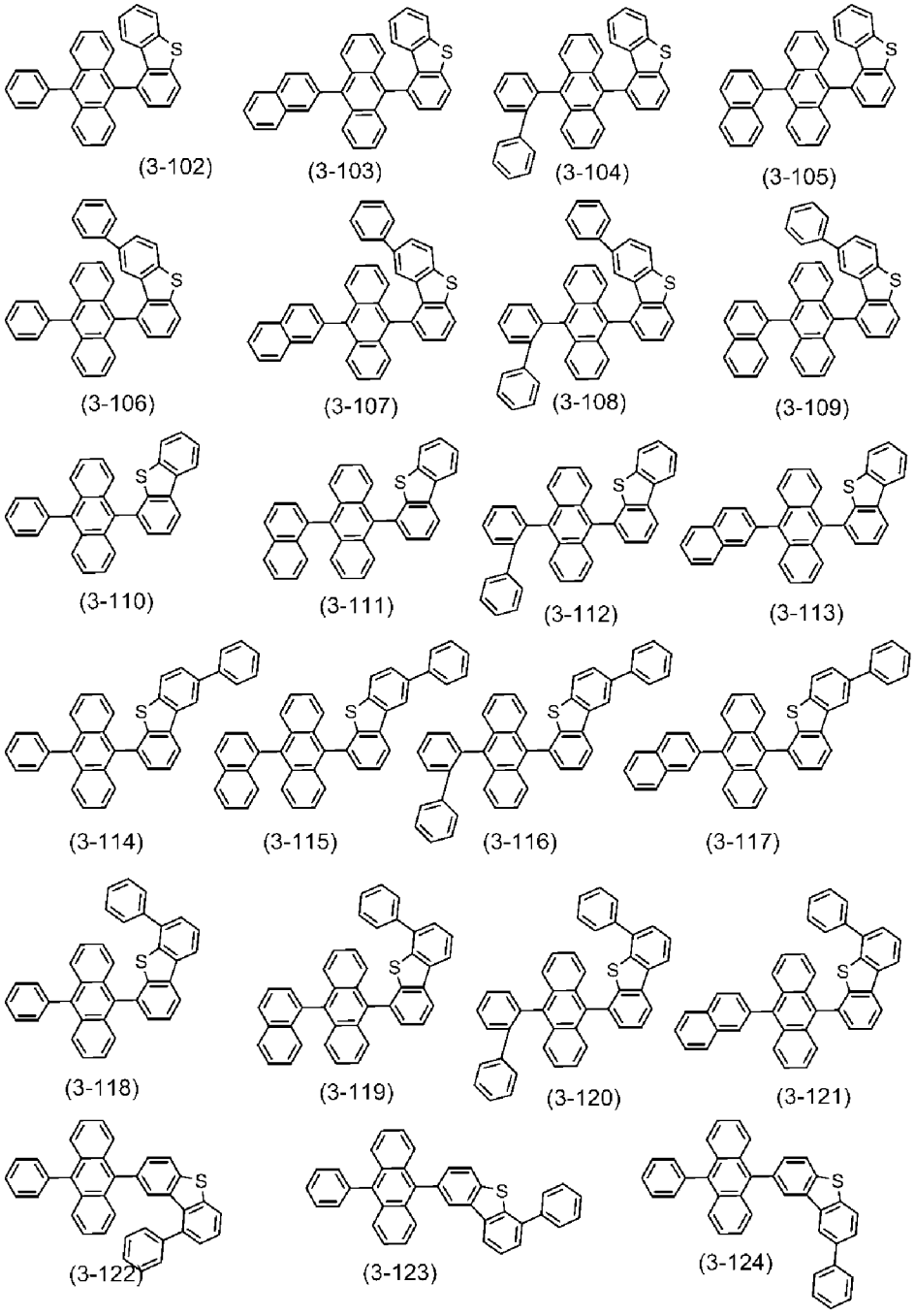


(3-72)

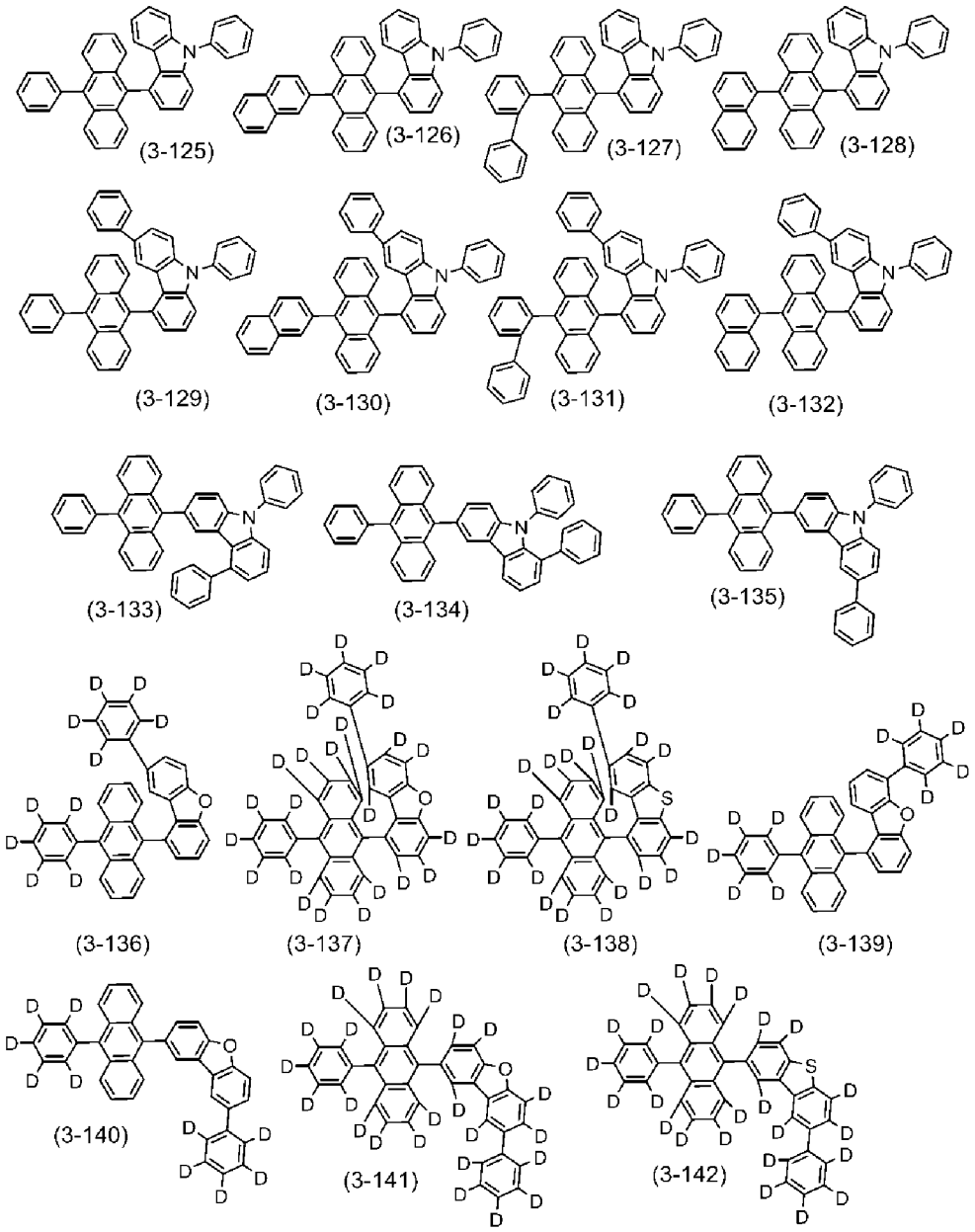
【0442】


(3-79)
(3-80)
(3-81)
(3-82)
(3-83)
(3-84)
(3-85)
(3-86)
(3-87)
(3-88)
(3-89)
(3-90)
(3-91)
(3-92)
(3-93)
(3-94)
(3-95)
(3-96)
(3-97)
(3-98)
(3-99)
(3-100)
(3-101)

【0443】


(3-102)
(3-103)
(3-104)
(3-105)
(3-106)
(3-107)
(3-108)
(3-109)
(3-110)
(3-111)
(3-112)
(3-113)
(3-114)
(3-115)
(3-116)
(3-117)
(3-118)
(3-119)
(3-120)
(3-121)
(3-122)
(3-123)
(3-124)

【0444】

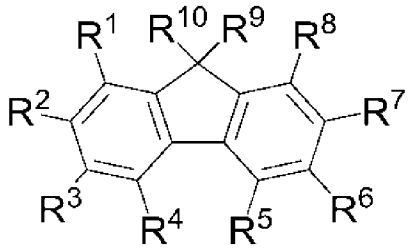


【0445】 式（3）所表示的蒽系化合物可將於蒽骨架的所期望的位置上具有反應性基的化合物、以及於 X、Ar^4 及式（A）的結構等部分結構上具有反應性基的化合物作為起始原料，並應用鈴木偶合、根岸偶合、其他公知的偶合反應來製造。作為該些反應性化合物的反應性基，可列舉鹵素或硼酸等。作為具體的製造方法，例如可參考：國際公開第 2014/141725 號公報的段落[0089]～[0175]

的合成法。

【0446】 ＜芴系化合物＞

通式（4）所表示的化合物基本上作為主體發揮功能。



(4)

【0447】 所述式（4）中，

R^1 至 R^{10} 分別獨立地為氫、芳基、雜芳基（該雜芳基可經由連結基而與所述式（4）中的芴骨架鍵結）、二芳基胺基、二雜芳基胺基、芳基雜芳基胺基、烷基、環烷基、烯基、烷氧基或芳氧基，該些中的至少一個氫可由芳基、雜芳基、烷基或環烷基取代，

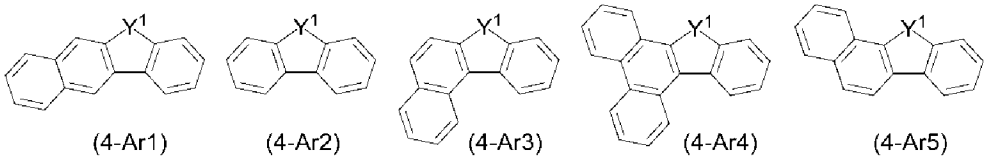
另外，R^1 與 R^2、R^2 與 R^3、R^3 與 R^4、R^5 與 R^6、R^6 與 R^7、R^7 與 R^8 或 R^9 與 R^{10} 可分別獨立地鍵結而形成縮合環或螺環，所形成的環中的至少一個氫可由芳基、雜芳基（該雜芳基可經由連結基而與該所形成的環鍵結）、二芳基胺基、二雜芳基胺基、芳基雜芳基胺基、烷基、環烷基、烯基、烷氧基或芳氧基取代，該些中的至少一個氫可由芳基、雜芳基、烷基或環烷基取代，而且，

式（4）所表示的化合物中的至少一個氫可由鹵素、氰基或氘取代。

【0448】 所述式（4）的定義的各基的詳細情況可引用以上所述的式（1）的多環芳香族化合物的說明。

【0449】 作為 R^1 至 R^{10} 中的烯基，例如可列舉碳數 2～30 的烯基，較佳為碳數 2～20 的烯基，更佳為碳數 2～10 的烯基，進而佳為碳數 2～6 的烯基，特佳為碳數 2～4 的烯基。較佳的烯基為乙烯基、1-丙烯基、2-丙烯基、1-丁烯基、2-丁烯基、3-丁烯基、1-戊烯基、2-戊烯基、3-戊烯基、4-戊烯基、1-己烯基、2-己烯基、3-己烯基、4-己烯基或 5-己烯基。

【0450】 再者，作為雜芳基的具體例，亦可列舉自下述式（4-Ar1）、式（4-Ar2）、式（4-Ar3）、式（4-Ar4）或式（4-Ar5）的化合物中去除任意一個氫原子而表示的一價基。



(4-Ar1) (4-Ar2) (4-Ar3) (4-Ar4) (4-Ar5)

式（4-Ar1）至式（4-Ar5）中，Y^1 分別獨立地為 O、S 或 N-R，R 為苯基、聯苯基、萘基、蒽基或氫，

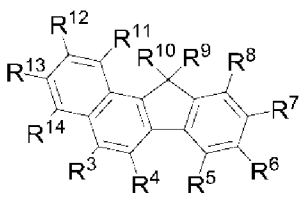
所述式（4-Ar1）至式（4-Ar5）的結構中的至少一個氫可由苯基、聯苯基、萘基、蒽基、菲基、甲基、乙基、丙基或丁基取代。

【0451】 該些雜芳基可經由連結基而與所述式（4）中的芴骨架鍵結。即，式（4）中的芴骨架與所述雜芳基不僅可直接鍵結，而

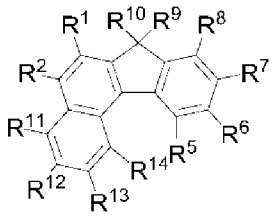
且亦可於該些之間經由連結基而鍵結。作為該連結基，可列舉：伸苯基、伸聯苯基、伸萘基、伸蒽基、亞甲基、伸乙基、$-OCH_2CH_2-$、$-CH_2CH_2O-$或$-OCH_2CH_2O-$等。

【0452】 另外，式（4）中的 R^1 與 R^2、R^2 與 R^3、R^3 與 R^4、R^5 與 R^6、R^6 與 R^7 或 R^7 與 R^8 可分別獨立地鍵結而形成縮合環，R^9 與 R^{10} 可鍵結而形成螺環。由 R^1 至 R^8 所形成的縮合環為與式（4）中的苯環縮合的環且為脂肪族環或芳香族環。較佳為芳香族環，作為包含式（4）中的苯環的結構，可列舉萘環或菲環等。由 R^9 與 R^{10} 所形成的螺環為與式（4）中的 5 員環螺鍵結的環且為脂肪族環或芳香族環。較佳為芳香族環，可列舉芴環等。

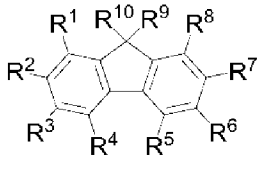
【0453】 通式（4）所表示的化合物較佳為下述式（4-1）、式（4-2）或式（4-3）所表示的化合物，且分別為於通式（4）中 R^1 與 R^2 鍵結而形成的苯環縮合而成的化合物、於通式（4）中 R^3 與 R^4 鍵結而形成的苯環縮合而成的化合物、於通式（4）中 R^1 至 R^8 的任一者均未鍵結的化合物。



(4-1)



(4-2)

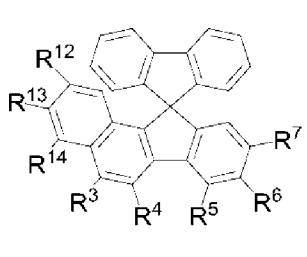


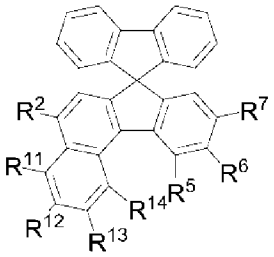
(4-3)

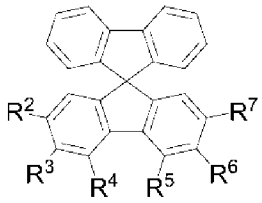
【0454】 式（4-1）、式（4-2）及式（4-3）中的 R^1 至 R^{10} 的定義

與於式（4）中所對應的 R^1 至 R^{10} 相同，且式（4-1）及式（4-2）中的 R^{11} 至 R^{14} 的定義亦與式（4）中的 R^1 至 R^{10} 相同。

【0455】 通式（4）所表示的化合物進而佳為下述式（4-1A）、式（4-2A）或式（4-3A）所表示的化合物，且分別為於式（4-1）、式（4-2）或式（4-3）中 R^9 與 R^{10} 鍵結而形成螺-芴環的化合物。


(4-1A)

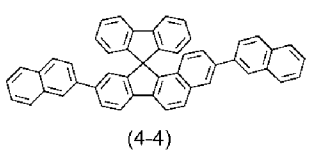

(4-2A)

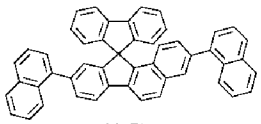

(4-3A)

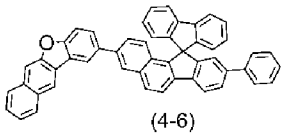
【0456】 式（4-1A）、式（4-2A）及式（4-3A）中的 R^2 至 R^7 的定義與於式（4-1）、式（4-2）及式（4-3）中所對應的 R^2 至 R^7 相同，且式（4-1A）及式（2-2A）中的 R^{11} 至 R^{14} 的定義亦與式（4-1）及式（4-2）中的 R^{11} 至 R^{14} 相同。

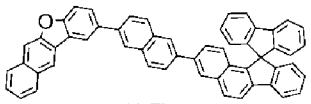
【0457】 另外，式（4）所表示的化合物中的氫的全部或一部分可由鹵素、氰基或氘取代。

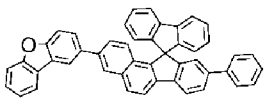
【0458】 作為芴系化合物的具體例，例如可列舉下述式（4-4）～式（4-22）的任一者所表示的化合物。再者，下述結構式中的「Me」表示甲基。

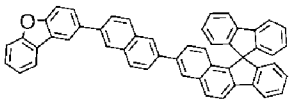

(4-4)

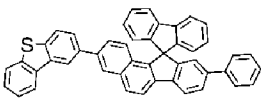

(4-5)

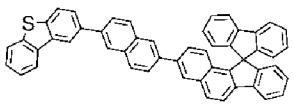

(4-6)

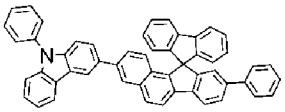

(4-7)

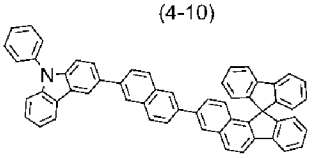

(4-8)

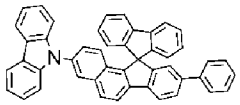

(4-9)

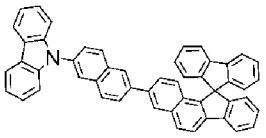

(4-10)

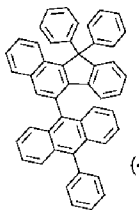

(4-11)

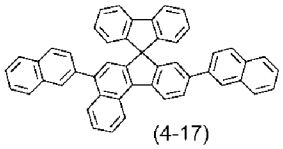

(4-12)

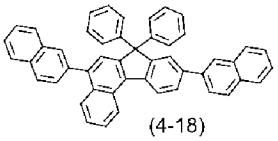

(4-13)

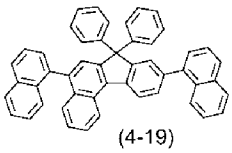

(4-14)

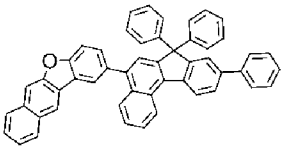

(4-15)

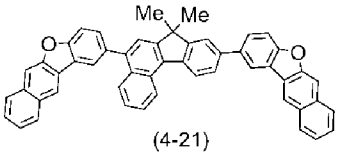

(4-16)

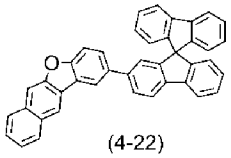

(4-17)


(4-18)


(4-19)

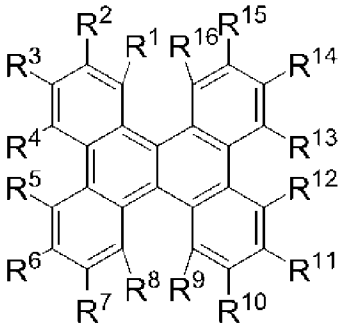

(4-20)


(4-21)


(4-22)

【0459】 ＜二苯並蒀系化合物＞

作為主體的二苯並蒀系化合物例如為下述通式（5）所表示的化合物。



(5)

【0460】 所述式（5）中，

R^1 至 R^{16} 分別獨立地為氫、芳基、雜芳基（該雜芳基可經由連結基而與所述式（5）中的二苯並㗁骨架鍵結）、二芳基胺基、二雜芳基胺基、芳基雜芳基胺基、烷基、環烷基、烯基、烷氧基或芳氧基，該些中的至少一個氫可由芳基、雜芳基、烷基或環烷基取代，

另外，R^1 至 R^{16} 中的鄰接的基彼此可鍵結而形成縮合環，所形成的環中的至少一個氫可由芳基、雜芳基（該雜芳基可經由連結基而與該所形成的環鍵結）、二芳基胺基、二雜芳基胺基、芳基雜芳基胺基、烷基、環烷基、烯基、烷氧基或芳氧基取代，該些中的至少一個氫可由芳基、雜芳基、烷基或環烷基取代，而且，

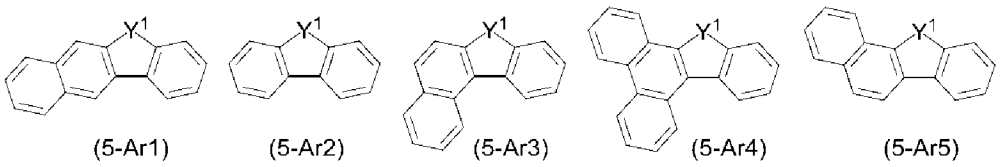
式（5）所表示的化合物中的至少一個氫可由鹵素、氰基或氘取代。

【0461】 所述式（5）的定義的各基的詳細情況可引用以上所述的式（1）的多環芳香族化合物的說明。

【0462】 作為所述式（5）的定義的烯基，例如可列舉碳數 2～30

的烯基，較佳為碳數 2～20 的烯基，更佳為碳數 2～10 的烯基，進而佳為碳數 2～6 的烯基，特佳為碳數 2～4 的烯基。較佳的烯基為乙烯基、1-丙烯基、2-丙烯基、1-丁烯基、2-丁烯基、3-丁烯基、1-戊烯基、2-戊烯基、3-戊烯基、4-戊烯基、1-己烯基、2-己烯基、3-己烯基、4-己烯基或 5-己烯基。

【0463】 再者，作為雜芳基的具體例，亦可列舉自下述式（5-Ar1）、式（5-Ar2）、式（5-Ar3）、式（5-Ar4）或式（5-Ar5）的化合物中去除任意一個氫原子而表示的一價基。



(5-Ar1) (5-Ar2) (5-Ar3) (5-Ar4) (5-Ar5)

式（5-Ar1）至式（5-Ar5）中，Y^1 分別獨立地為 O、S 或 N-R，R 為苯基、聯苯基、萘基、蒽基或氫，

所述式（5-Ar1）至式（5-Ar5）的結構中的至少一個氫可由苯基、聯苯基、萘基、蒽基、菲基、甲基、乙基、丙基或丁基取代。

【0464】 該些雜芳基可經由連結基而與所述式（5）中的二苯並𠳐骨架鍵結。即，式（5）中的二苯並𠳐骨架與所述雜芳基不僅可直接鍵結，而且亦可於該些之間經由連結基而鍵結。作為該連結基，可列舉：伸苯基、伸聯苯基、伸萘基、伸蒽基、亞甲基、伸乙基、$-OCH_2CH_2-$、$-CH_2CH_2O-$或$-OCH_2CH_2O-$等。

【0465】 通式（5）所表示的化合物較佳為 R^1、R^4、R^5、R^8、R^9、R^{12}、R^{13}及 R^{16}為氫。該情況下，式（5）中的 R^2、R^3、R^6、R^7、R^{10}、R^{11}、R^{14}及 R^{15}較佳為分別獨立地為氫、苯基、聯苯基、萘基、蒽基、菲基、具有所述式（5-Ar1）、式（5-Ar2）、式（5-Ar3）、式（5-Ar4）或式（5-Ar5）的結構的一價基（具有該結構的一價基可經由伸苯基、伸聯苯基、伸萘基、伸蒽基、亞甲基、伸乙基、$-OCH_2CH_2-$、$-CH_2CH_2O-$或$-OCH_2CH_2O-$而與所述式（5）中的二苯並呋喃骨架鍵結）、甲基、乙基、丙基或丁基。

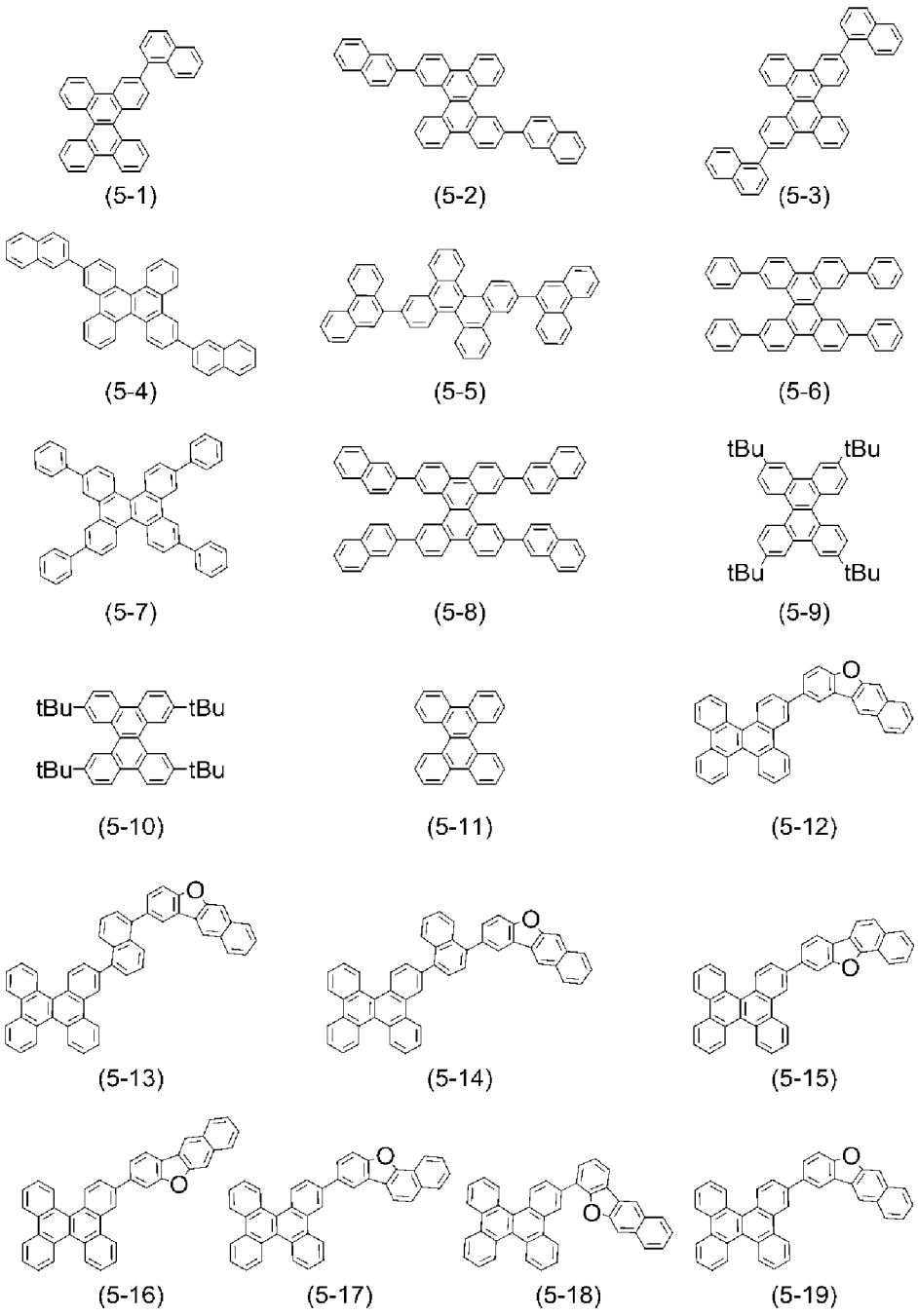
【0466】 通式（5）所表示的化合物更佳為 R^1、R^2、R^4、R^5、R^7、R^8、R^9、R^{10}、R^{12}、R^{13}、R^{15}及 R^{16}為氫。該情況下，式（5）中的 R^3、R^6、R^{11}及 R^{14}的至少一個（較佳為一個或兩個，更佳為一個）為具有經由單鍵、伸苯基、伸聯苯基、伸萘基、伸蒽基、亞甲基、伸乙基、$-OCH_2CH_2-$、$-CH_2CH_2O-$或$-OCH_2CH_2O-$的所述式（5-Ar1）、式（5-Ar2）、式（5-Ar3）、式（5-Ar4）或式（5-Ar5）的結構的一價基，

所述至少一個以外（即，具有所述結構的一價基所取代的位置以外）為氫、苯基、聯苯基、萘基、蒽基、甲基、乙基、丙基或丁基，該些中的至少一個氫可由苯基、聯苯基、萘基、蒽基、甲基、乙基、丙基或丁基取代。

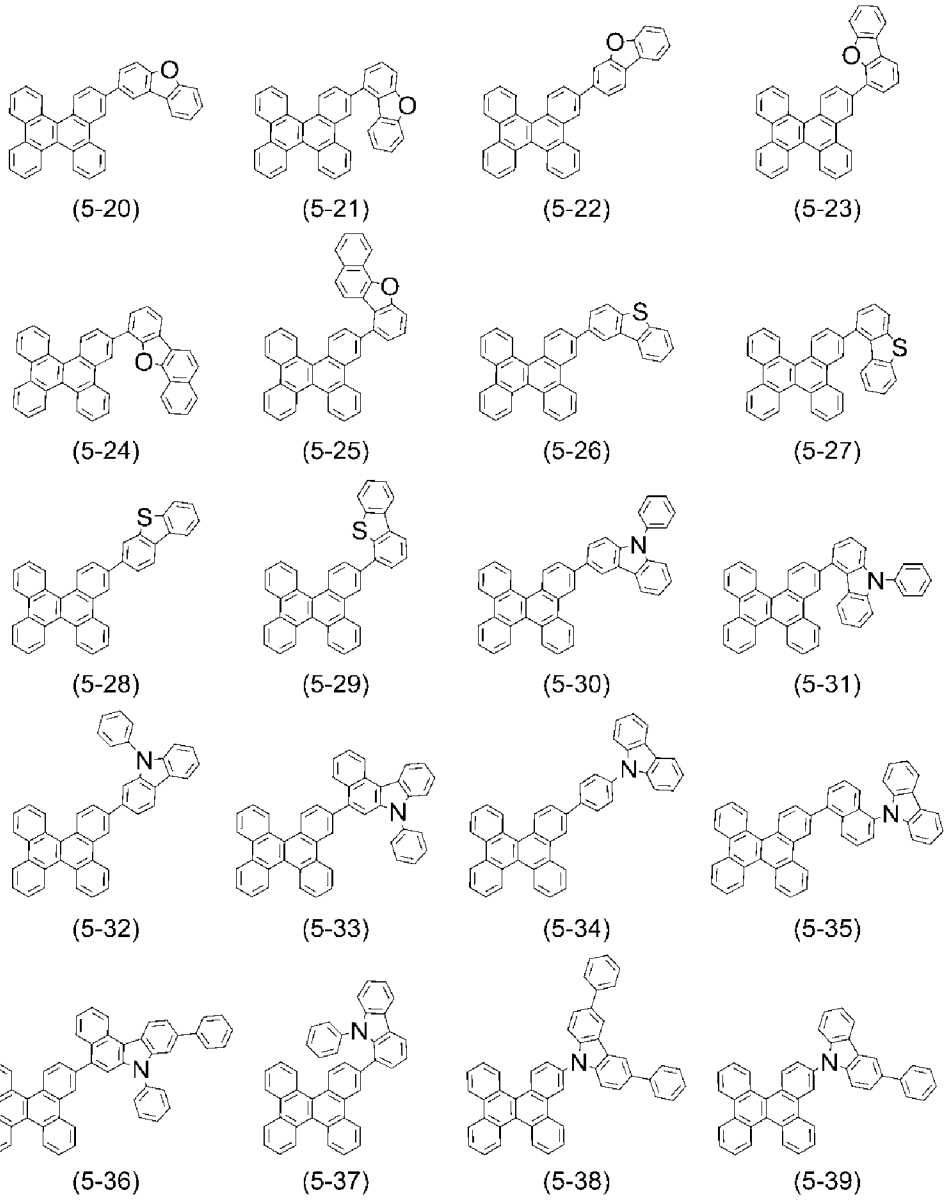
【0467】 另外，於選擇具有所述式（5-Ar1）至式（5-Ar5）所表示的結構的一價基作為式（5）中的 R^2、R^3、R^6、R^7、R^{10}、R^{11}、R^{14}及 R^{15}的情況下，該結構中的至少一個氫可與式（5）中的 R^1

至 R^{16} 的任一者鍵結而形成單鍵。

【0468】 作為二苯並蒀系化合物的具體例，例如可列舉下述式（5-1）～式（5-39）的任一者所表示的化合物。再者，下述結構式中的「tBu」表示第三丁基。



【0469】

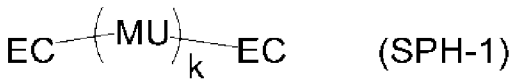


【0470】 所述發光層用材料（主體材料及摻雜劑材料）亦可作為如下的高分子化合物或其高分子交聯體、或者如下的懸掛型高分子化合物或其懸掛型高分子交聯體而用於發光層用材料，其中，所述高分子化合物是使於所述發光層用材料（主體材料及摻雜劑材料）中取代有反應性取代基的反應性化合物作為單體進行高分

子化而成，所述懸掛型高分子化合物是使主鏈型高分子與所述反應性化合物反應而成。作為該情況下的反應性取代基，可引用式（1）所表示的多環芳香族化合物中的說明。

關於此種高分子化合物及高分子交聯體的用途的詳細情況，於後文敘述。

【0471】 ＜高分子主體材料的一例＞



(SPH-1)

【0472】 式（SPH-1）中，

MU 分別獨立地為自芳香族化合物中去除任意兩個氫原子而表示的二價基，EC 分別獨立地為自芳香族化合物中去除任意一個氫原子而表示的一價基，MU 中的兩個氫與 EC 或 MU 進行取代，k 為 2～50000 的整數。

【0473】 更具體而言，

MU 分別獨立地為伸芳基、伸雜芳基、二伸芳基芳基胺基、二伸芳基芳基硼基、氧雜硼烷-二基、氮雜硼烷-二基，

EC 分別獨立地為氫、芳基、雜芳基、二芳基胺基、二雜芳基胺基、芳基雜芳基胺基或芳氧基，

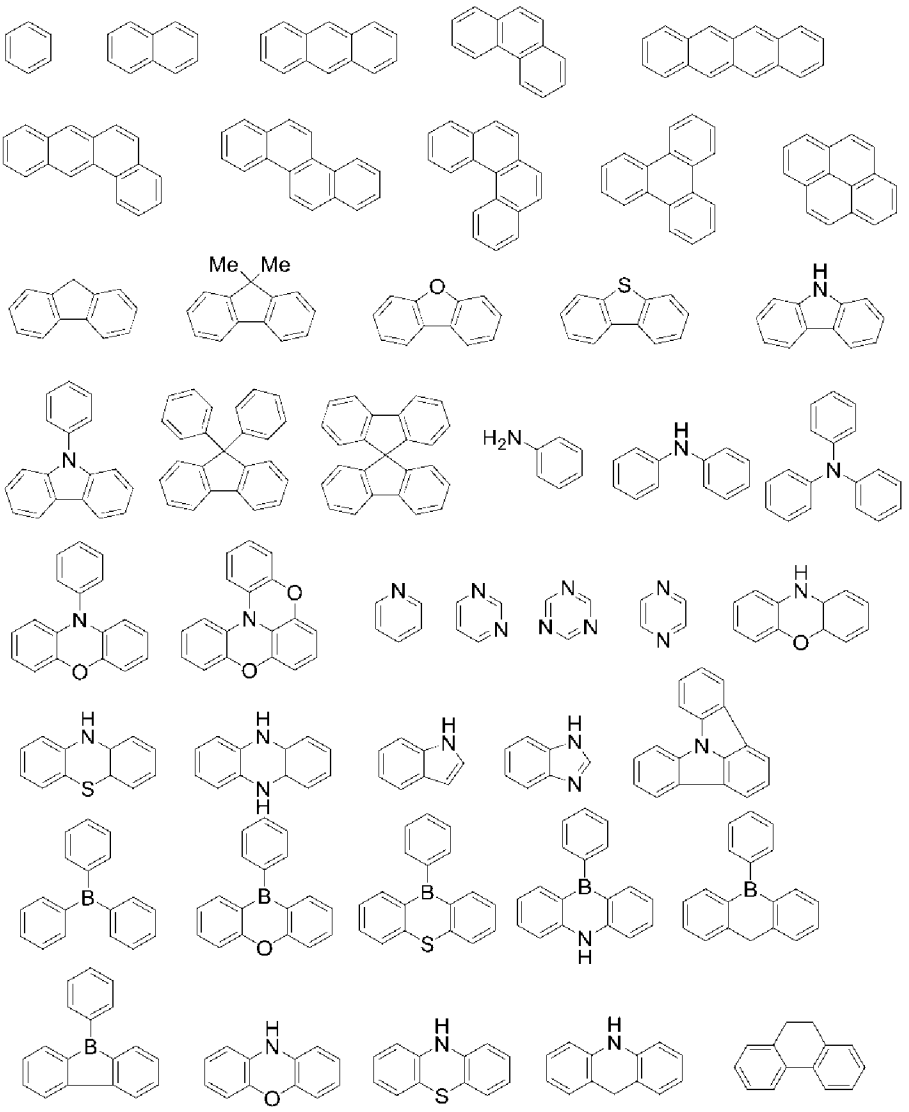
MU 及 EC 中的至少一個氫可進而由芳基、雜芳基、二芳基胺基、烷基及環烷基取代，

k 為 2～50000 的整數。

k 較佳為 20～50000 的整數，更佳為 100～50000 的整數。

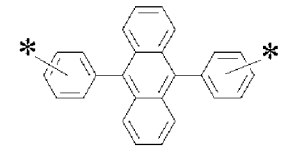
【0474】 式（SPH-1）中的 MU 及 EC 中的至少一個氫可由碳數 1～24 的烷基、碳數 3～24 的環烷基、鹵素或氘取代，進而，所述烷基中的任意的-CH_2-可由-O-或-$Si(CH_3)_2$-取代，所述烷基中的除直接鍵結於式（SPH-1）中的 EC 的-CH_2-以外的任意的-CH_2-可由碳數 6～24 的伸芳基取代，所述烷基中的任意的氫可由氟取代。

【0475】 作為 MU，例如可列舉自以下的任一化合物中去除任意兩個氫原子而表示的二價基。

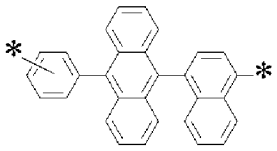


【0476】 更具體而言，可列舉以下的任一結構所表示的二價基。該些中，MU 於*處與其他 MU 或 EC 鍵結。

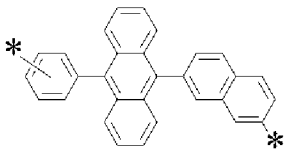
【0477】



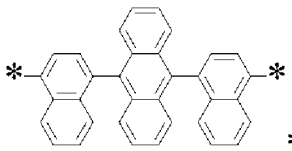
(MU-1-1)



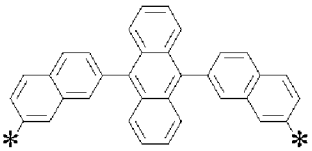
(MU-1-2)



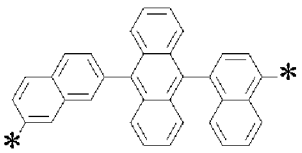
(MU-1-3)



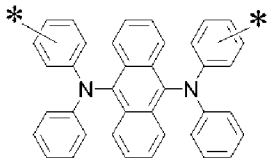
(MU-1-4)



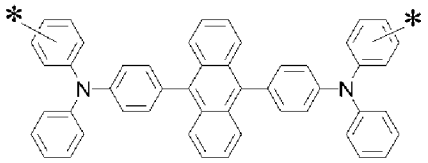
(MU-1-5)



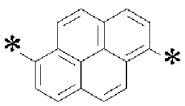
(MU-1-6)



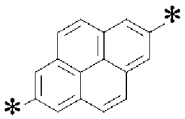
(MU-1-11)



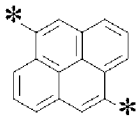
(MU-1-12)



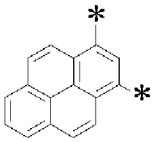
(MU-2-1)



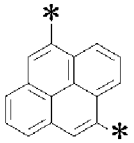
(MU-2-2)



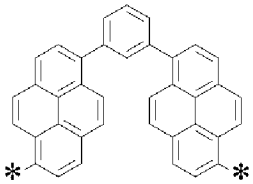
(MU-2-3)



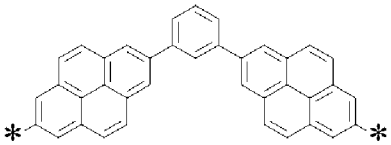
(MU-2-4)



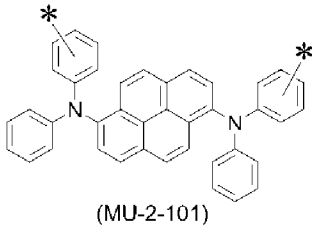
(MU-2-5)



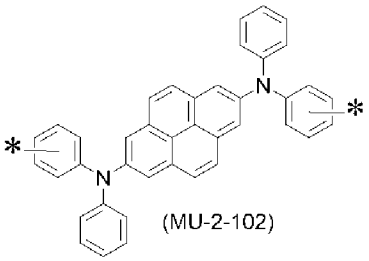
(MU-2-11)



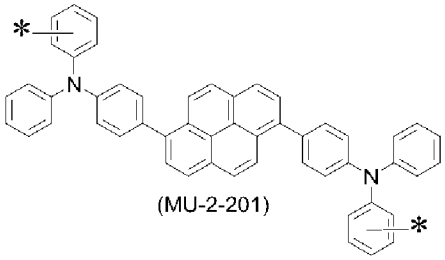
(MU-2-12)



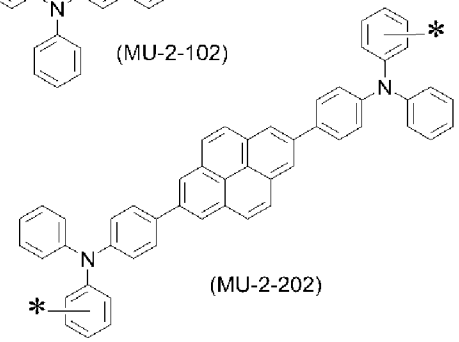
(MU-2-101)



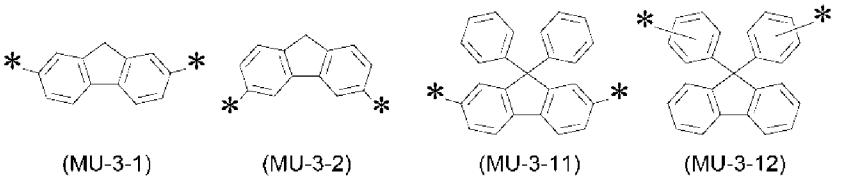
(MU-2-102)



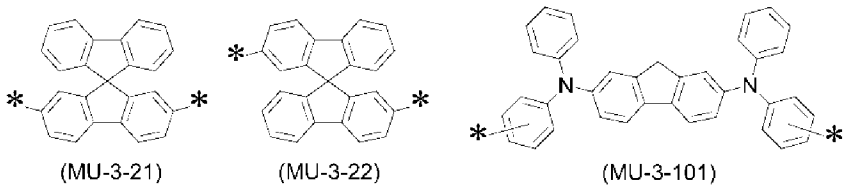
(MU-2-201)



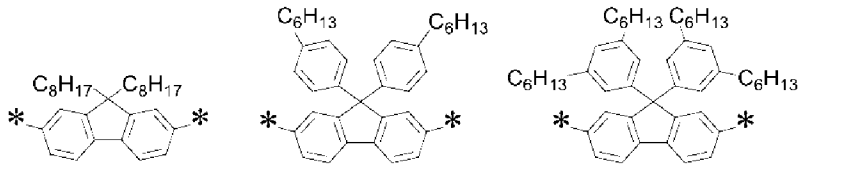
(MU-2-202)



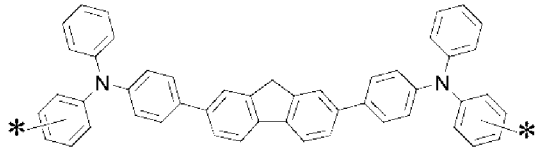
(MU-3-1) (MU-3-2) (MU-3-11) (MU-3-12)



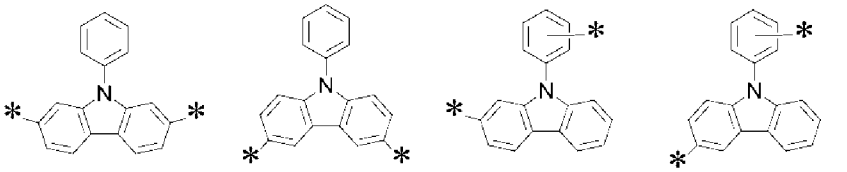
(MU-3-21) (MU-3-22) (MU-3-101)



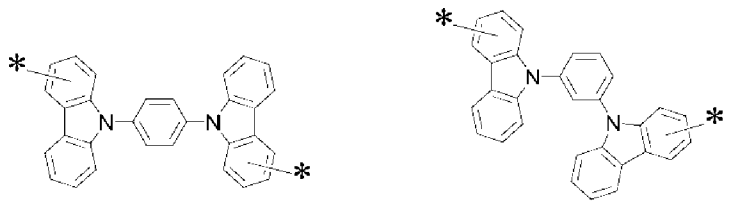
(MU-3-102) (MU-3-111) (MU-3-112)



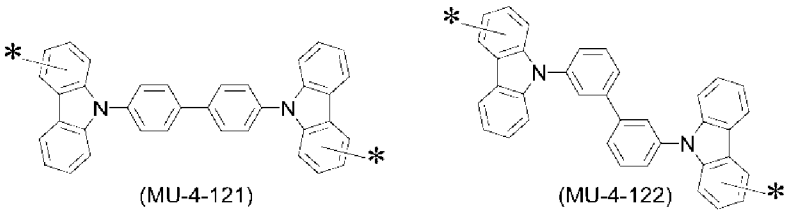
(MU-3-201)



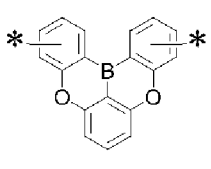
(MU-4-1) (MU-4-2) (MU-4-11) (MU-4-12)



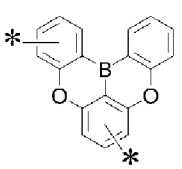
(MU-4-101) (MU-4-102)



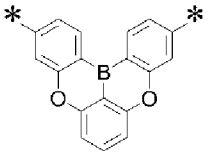
(MU-4-121) (MU-4-122)



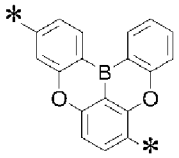
(MU-5-1)



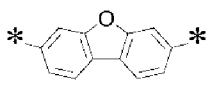
(MU-5-2)



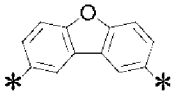
(MU-5-11)



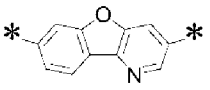
(MU-5-12)



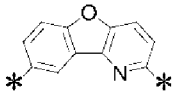
(MU-6-1)



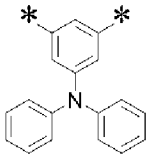
(MU-6-2)



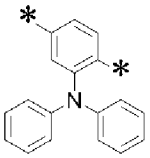
(MU-6-3)



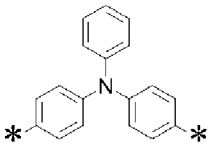
(MU-6-4)



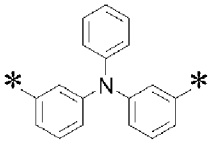
(MU-7-1)



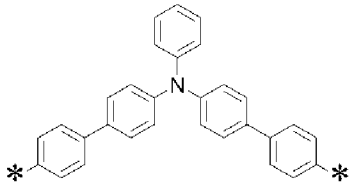
(MU-7-2)



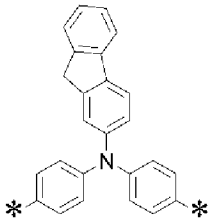
(MU-7-3)



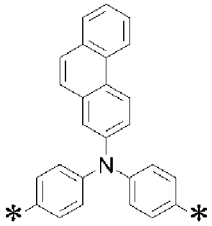
(MU-7-4)



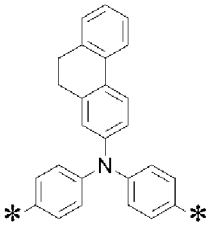
(MU-7-31)



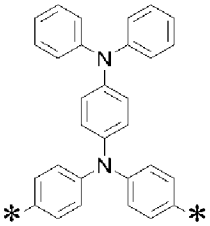
(MU-7-32)



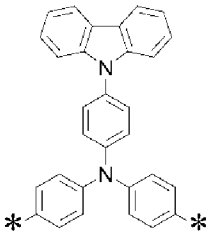
(MU-7-33)



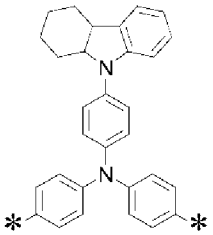
(MU-7-34)



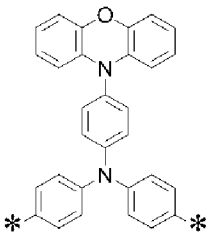
(MU-7-35)



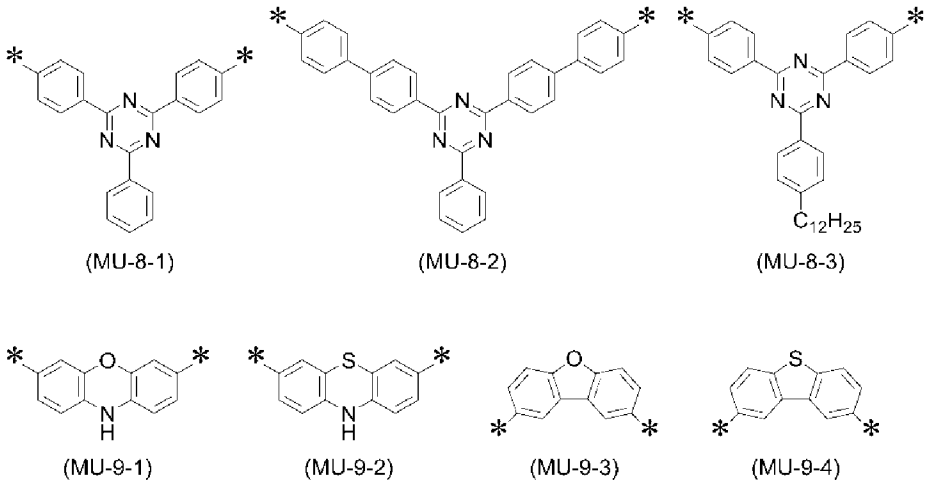
(MU-7-36)



(MU-7-37)

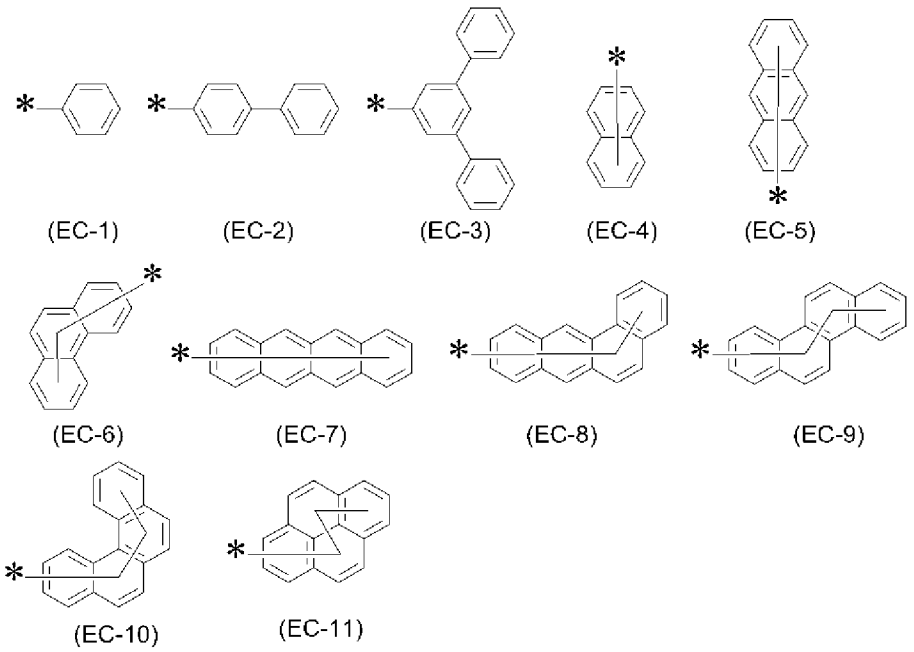


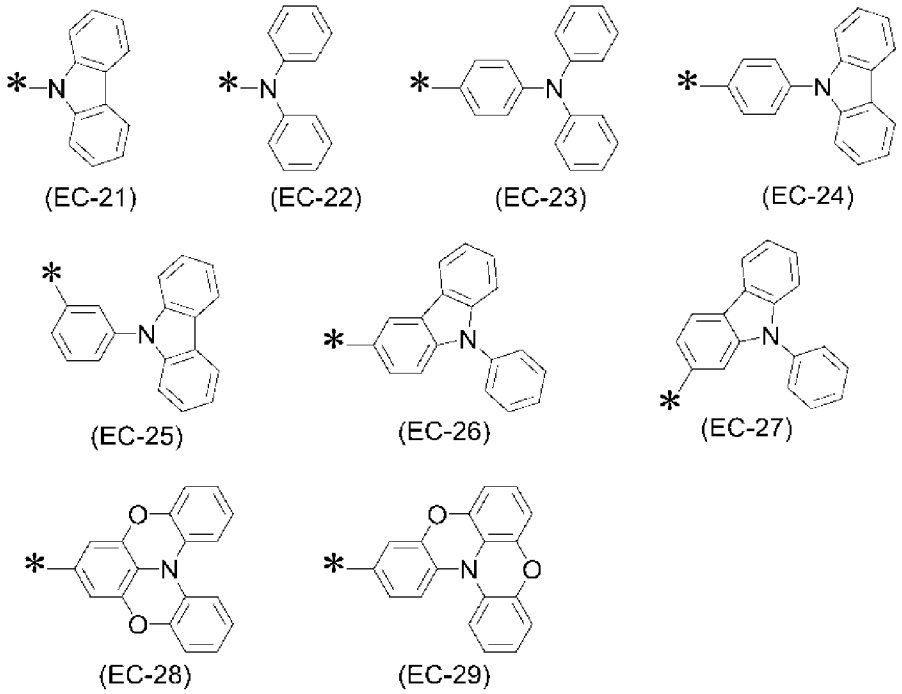
(MU-7-38)



【0478】 另外，作為 EC，例如可列舉以下的任一結構所表示的一價基。該些中，EC 於*處與 MU 鍵結。

【0479】





【0480】 就溶解性及塗佈成膜性的觀點而言，式（SPH-1）所表示的化合物較佳為分子中的 MU 總數（k）的 10%～100%的 MU 具有碳數 1～24 的烷基，更佳為分子中的 MU 總數（k）的 30%～100%的 MU 具有碳數 1～18 的烷基（碳數 3～18 的分支鏈烷基），進而佳為分子中的 MU 總數（k）的 50%～100%的 MU 具有碳數 1～12 的烷基（碳數 3～12 的分支鏈烷基）。另一方面，就面內配向性及電荷傳輸的觀點而言，較佳為分子中的 MU 總數（k）的 10%～100%的 MU 具有碳數 7～24 的烷基，更佳為分子中的 MU 總數（k）的 30%～100%的 MU 具有碳數 7～24 的烷基（碳數 7～24 的分支鏈烷基）。

【0481】 關於此種高分子化合物及高分子交聯體的用途的詳細情況，於後文敘述。

【0482】 ＜有機電致發光元件中的電子注入層、電子傳輸層＞

電子注入層 107 發揮將自陰極 108 遷移而來的電子高效地注入至發光層 105 內或電子傳輸層 106 內的作用。電子傳輸層 106 發揮將自陰極 108 所注入的電子或自陰極 108 經由電子注入層 107 所注入的電子高效地傳輸至發光層 105 的作用。電子傳輸層 106 及電子注入層 107 分別將電子傳輸·注入材料的一種或兩種以上加以積層、混合而形成，或者由電子傳輸·注入材料與高分子黏結劑的混合物形成。

【0483】 所謂電子注入·傳輸層，為擔負自陰極注入電子、進而傳輸電子的層，理想的是電子注入效率高且高效地傳輸所注入的電子。因此，較佳為電子親和力大、且電子遷移率大、進而穩定性優異、於製造時及使用時不易產生成為陷阱的雜質的物質。但是，於考慮了電洞與電子的傳輸平衡的情況下，於主要發揮可高效地阻止來自陽極的電洞未再結合而流向陰極側的作用的情況下，即便電子傳輸能力並不那麼高，亦與電子傳輸能力高的材料同等地具有提高發光效率的效果。因此，本實施形態中的電子注入·傳輸層亦可包含能夠高效地阻止電洞遷移的層的功能。

【0484】 作為形成電子傳輸層 106 或電子注入層 107 的材料（電子傳輸材料），可自於光導電材料中作為電子傳遞化合物一直以來所慣用的化合物、用於有機 EL 元件的電子注入層及電子傳輸層的公知的化合物中任意地選擇來使用。

【0485】 作為電子傳輸層或電子注入層中所使用的材料，較佳為

含有選自如下化合物中的至少一種：含有包含選自碳、氫、氧、硫、矽及磷中的一種以上的原子的芳香族環或雜芳香族環的化合物、吡咯衍生物及其縮合環衍生物以及具有電子接受性氮的金屬錯合物。具體而言，可列舉：萘、蒽等縮合環系芳香族環衍生物，以 4,4'-雙(二苯基乙烯基)聯苯為代表的苯乙烯基系芳香族環衍生物，紫環酮衍生物，香豆素衍生物，萘二甲醯亞胺衍生物，蒽醌或聯苯醌等醌衍生物，氧化磷衍生物，咔唑衍生物及吲哚衍生物等。作為具有電子接受性氮的金屬錯合物，例如可列舉：羥基苯基噁唑錯合物等羥基唑錯合物、甲亞胺錯合物、環庚三烯酚酮金屬錯合物、黃酮醇金屬錯合物及苯並喹啉金屬錯合物等。該些材料可單獨使用，亦可與不同的材料混合使用。

【0486】 另外，作為其他電子傳遞化合物的具體例，可列舉：吡啶衍生物、萘衍生物、蒽衍生物、啡啉衍生物、紫環酮衍生物、香豆素衍生物、萘二甲醯亞胺衍生物、蒽醌衍生物、聯苯醌衍生物、二苯基醌衍生物、芴衍生物、噁二唑衍生物（1,3-雙[(4-第三丁基苯基)1,3,4-噁二唑基]伸苯基等）、噻吩衍生物、三唑衍生物(N-萘基-2,5-二苯基-1,3,4-三唑等）、噻二唑衍生物、8-羥基喹啉（oxine）衍生物的金屬錯合物、羥基喹啉系金屬錯合物、喹噁啉衍生物、喹噁啉衍生物的聚合物、吲哚（benzazole）類化合物、鎵錯合物、吡唑衍生物、全氟化伸苯基衍生物、三嗪衍生物、吡嗪衍生物、苯並喹啉衍生物（2,2'-雙(苯並[h]喹啉-2-基)-9,9'-螺二芴等）、咪唑並吡啶衍生物、硼烷衍生物、苯並咪唑衍生物（三(N-

苯基苯並咪唑-2-基)苯等）、苯並噁唑衍生物、苯並噻唑衍生物、喹啉衍生物、三聯吡啶等寡聚吡啶衍生物、聯吡啶衍生物、三聯吡啶衍生物（1,3-雙(4'-(2,2'：6',2''-三聯吡啶基))苯等）、萘啶衍生物（雙(1-萘基)-4-(1,8-萘啶-2-基)苯基氧化膦等）、醛連氮衍生物、咔唑衍生物、吲哚衍生物、氧化磷衍生物、雙苯乙烯基衍生物等。

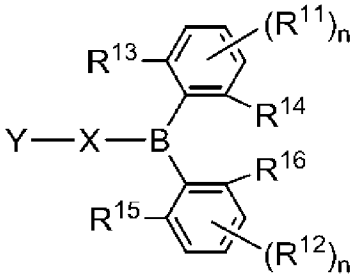
【0487】 另外，亦可使用具有電子接受性氮的金屬錯合物，例如可列舉：羥基喹啉系金屬錯合物或羥基苯基噁唑錯合物等羥基唑錯合物、甲亞胺錯合物、環庚三烯酚酮金屬錯合物、黃酮醇金屬錯合物及苯並喹啉金屬錯合物等。

【0488】 所述材料可單獨使用，亦可與不同的材料混合使用。

【0489】 所述材料中，較佳為硼烷衍生物、吡啶衍生物、螢蒽衍生物、BO 系衍生物、蒽衍生物、苯並芴衍生物、氧化膦衍生物、嘧啶衍生物、咔唑衍生物、三嗪衍生物、苯並咪唑衍生物、啡啉衍生物、及羥基喹啉系金屬錯合物。

【0490】 ＜硼烷衍生物＞

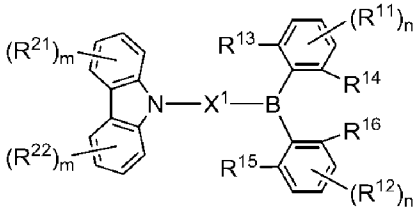
硼烷衍生物例如為下述通式（ETM-1）所表示的化合物，詳細而言於日本專利特開 2007-27587 號公報中有揭示。



(ETM-1)

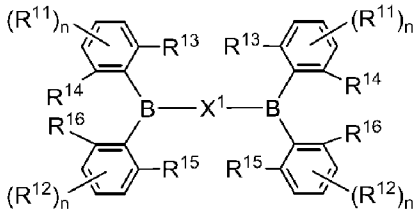
所述式（ETM-1）中，R^{11}及R^{12}分別獨立地為氫、烷基、環烷基、可被取代的芳基、經取代的矽烷基、可被取代的含氮雜環或氰基的至少一者，R^{13}～R^{16}分別獨立地為可被取代的烷基、可被取代的環烷基或可被取代的芳基，X 為可被取代的伸芳基，Y 為可被取代的碳數 16 以下的芳基、經取代的硼基或可被取代的咔唑基，而且，n 分別獨立地為 0～3 的整數。另外，作為「可被取代」或「經取代」的情況下的取代基，可列舉：芳基、雜芳基、烷基或環烷基等。

【0491】 所述通式（ETM-1）所表示的化合物中，較佳為下述通式（ETM-1-1）所表示的化合物或下述通式（ETM-1-2）所表示的化合物。


(ETM-1-1)

式（ETM-1-1）中，R^{11}及R^{12}分別獨立地為氫、烷基、環烷基、可被取代的芳基、經取代的矽烷基、可被取代的含氮雜環或氰基的至少一者，R^{13}～R^{16}分別獨立地為可被取代的烷基、可被取代的環烷基、或可被取代的芳基，R^{21}及R^{22}分別獨立地為氫、烷基、環烷基、可被取代的芳基、經取代的矽烷基、可被取代的含

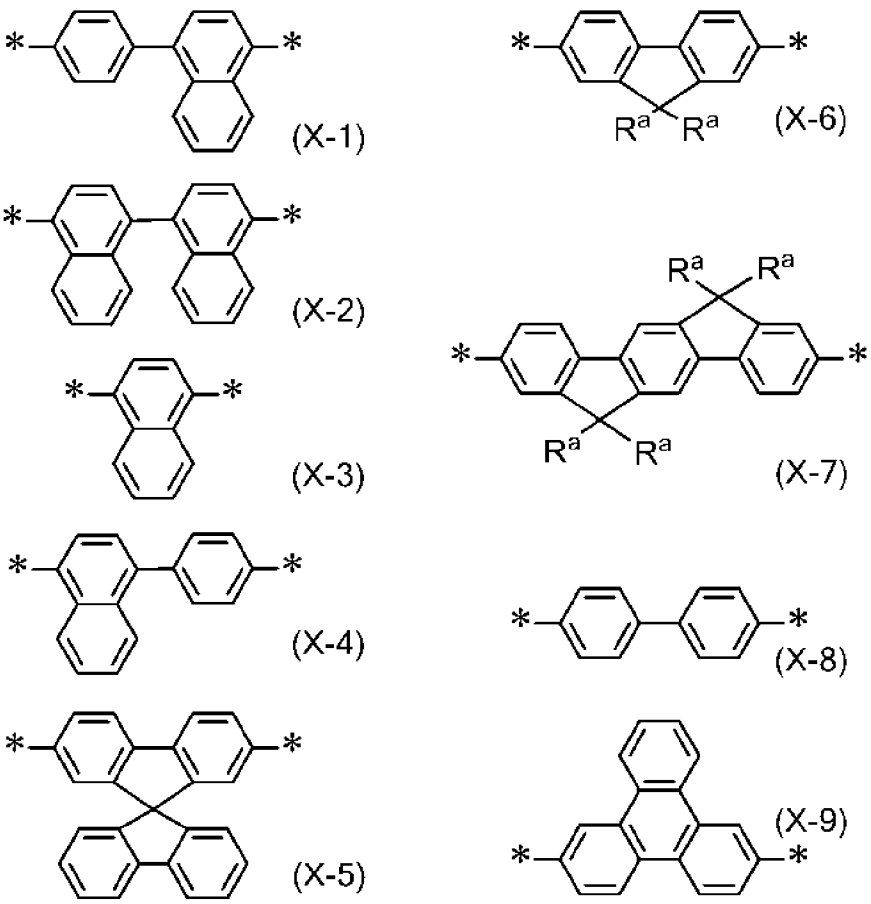
氮雜環、或氰基的至少一者，X^1 為可被取代的碳數 20 以下的伸芳基，n 分別獨立地為 0～3 的整數，而且，m 分別獨立地為 0～4 的整數。另外，作為「可被取代」或「經取代」的情況下的取代基，可列舉：芳基、雜芳基、烷基或環烷基等。



(ETM-1-2)

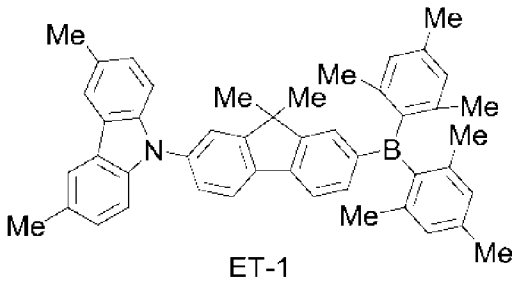
式（ETM-1-2）中，R^{11} 及 R^{12} 分別獨立地為氫、烷基、環烷基、可被取代的芳基、經取代的矽烷基、可被取代的含氮雜環或氰基的至少一者，R^{13}～R^{16} 分別獨立地為可被取代的烷基、可被取代的環烷基或可被取代的芳基，X^1 為可被取代的碳數 20 以下的伸芳基，而且，n 分別獨立地為 0～3 的整數。另外，作為「可被取代」或「經取代」的情況下的取代基，可列舉：芳基、雜芳基、烷基或環烷基等。

【0492】 作為 X^1 的具體例，可列舉下述式（X-1）～式（X-9）的任一者所表示的二價基。各結構式中的*表示鍵結位置。



（各式中，R^a分別獨立地為烷基、環烷基或可被取代的苯基）

【0493】 作為該硼烷衍生物的具體例，例如可列舉以下的化合物。

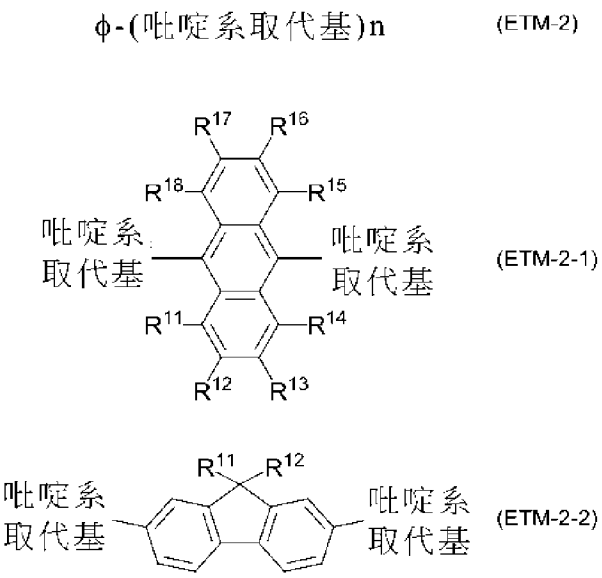


【0494】 該硼烷衍生物可使用公知的原料與公知的合成方法來

製造。

【0495】 ＜吡啶衍生物＞

吡啶衍生物例如為下述式（ETM-2）所表示的化合物，較佳為式（ETM-2-1）或式（ETM-2-2）所表示的化合物。

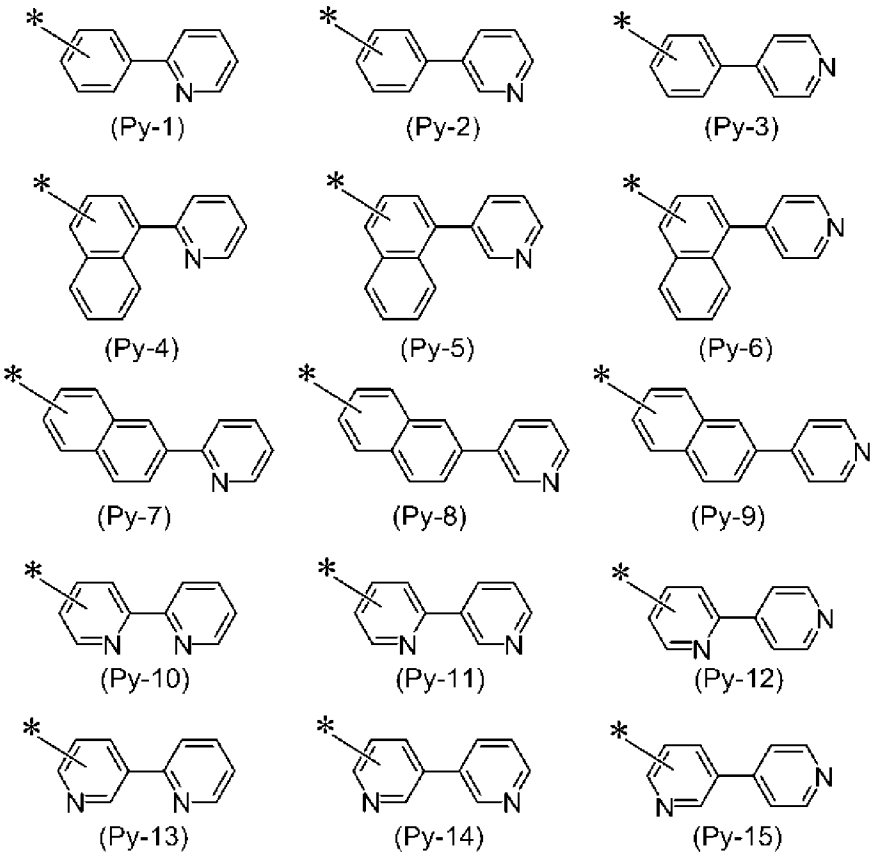


【0496】 ϕ 為 n 價的芳基環（較佳為 n 價的苯環、萘環、蒽環、芴環、苯並芴環、芘環、菲環或三伸苯環），n 為 1～4 的整數。

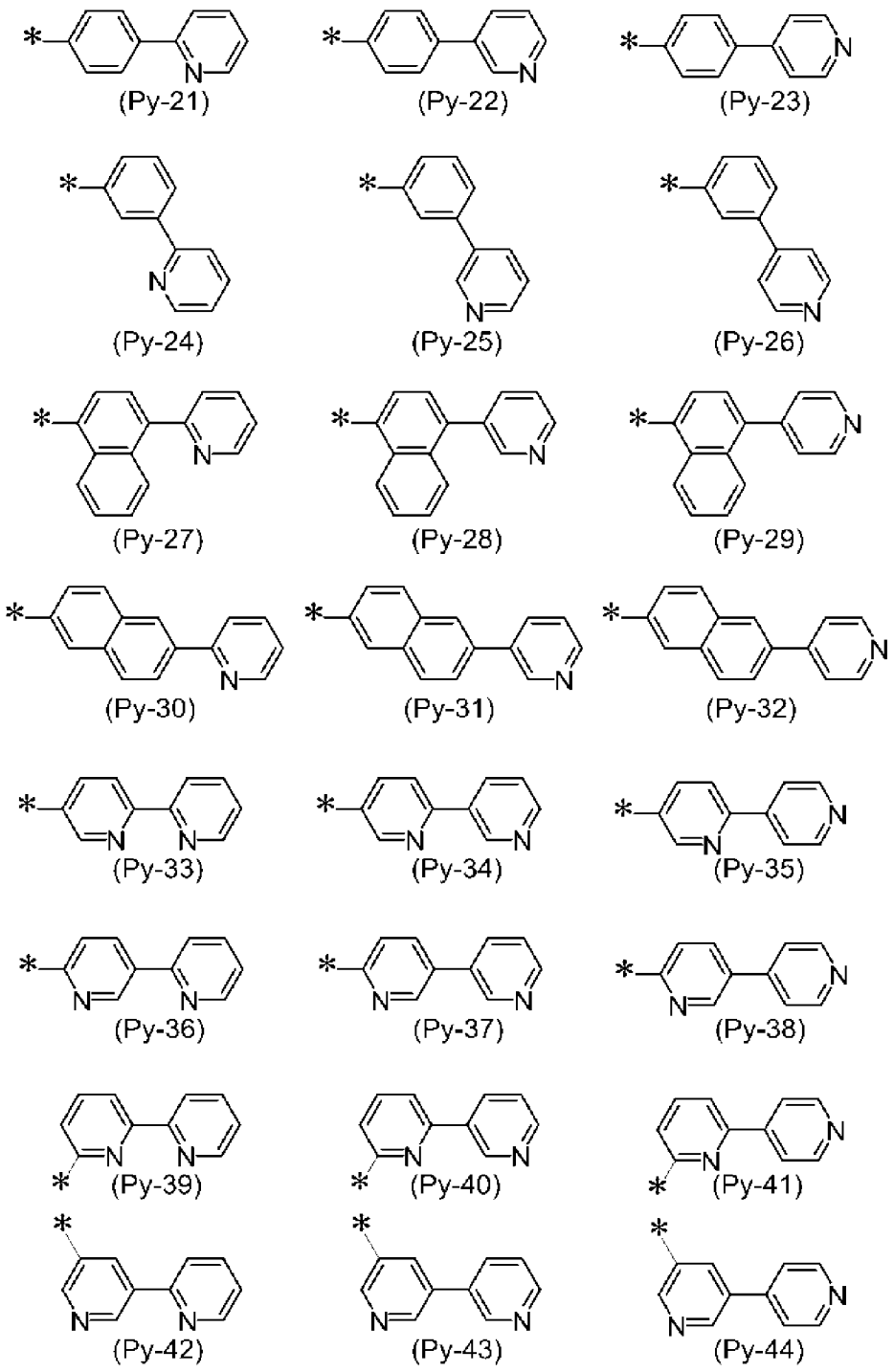
【0497】 所述式（ETM-2-1）中，R^{11}～R^{18} 分別獨立地為氫、烷基（較佳為碳數 1～24 的烷基）、環烷基（較佳為碳數 3～12 的環烷基）或芳基（較佳為碳數 6～30 的芳基）。

【0498】 於所述式（ETM-2-2）中，R^{11} 及 R^{12} 分別獨立地為氫、烷基（較佳為碳數 1～24 的烷基）、環烷基（較佳為碳數 3～12 的環烷基）或芳基（較佳為碳數 6～30 的芳基），R^{11} 及 R^{12} 可鍵結而形成環。

【0499】 於各式中，「吡啶系取代基」為下述式(Py-1)～式(Py-15)的任一者，吡啶系取代基可分別獨立地由碳數1～4的烷基或碳數5～10的環烷基取代。另外，吡啶系取代基可經由伸苯基或伸萘基而與各式中的ϕ、蒽環或芴環鍵結。各結構式中的*表示鍵結位置。



【0500】 吡啶系取代基為所述式(Py-1)～式(Py-15)的任一者，該些中較佳為下述式（Py-21）～式（Py-44）的任一者。各結構式中的*表示鍵結位置。



【0501】 各吡啶衍生物中的至少一個氫可由氘取代，另外，所述式（ETM-2-1）及式（ETM-2-2）中的兩個「吡啶系取代基」中的一者可由芳基取代。

【0502】 作為 R^{11}～R^{18} 中的「烷基」，可為直鏈及分支鏈的任一

種，例如可列舉碳數 1～24 的直鏈烷基或碳數 3～24 的分支鏈烷基。較佳的「烷基」為碳數 1～18 的烷基（碳數 3～18 的分支鏈烷基）。更佳的「烷基」為碳數 1～12 的烷基（碳數 3～12 的分支鏈烷基）。進而佳的「烷基」為碳數 1～6 的烷基（碳數 3～6 的分支鏈烷基）。特佳的「烷基」為碳數 1～4 的烷基（碳數 3～4 的分支鏈烷基）。

【0503】 作為具體的「烷基」，可列舉：甲基、乙基、正丙基、異丙基、正丁基、異丁基、第二丁基、第三丁基、正戊基、異戊基、新戊基、第三戊基（t-amyl）、正己基、1-甲基戊基、3,3-二甲基丁基、2-乙基丁基、正庚基、1-甲基己基、正辛基、第三辛基（1,1,3,3-四甲基丁基）、1-甲基庚基、2-乙基己基、2-丙基戊基、正壬基、2,2-二甲基庚基、2,6-二甲基-4-庚基、3,5,5-三甲基己基、正癸基、正十一基、1-甲基癸基、正十二基、正十三基、1-己基庚基、正十四基、正十五基、正十六基、正十七基、正十八基、正二十基等。

另外，例如亦可列舉：1-乙基-1-甲基丙基、1,1-二乙基丙基、1,1-二甲基丁基、1-乙基-1-甲基丁基、1,1,4-三甲基戊基、1,1,2-三甲基丙基、1,1-二甲基辛基、1,1-二甲基戊基、1,1-二甲基庚基、1,1,5-三甲基己基、1-乙基-1-甲基己基、1-乙基-1,3-二甲基丁基、1,1,2,2-四甲基丙基、1-丁基-1-甲基戊基、1,1-二乙基丁基、1-乙基-1-甲基戊基、1,1,3-三甲基丁基、1-丙基-1-甲基戊基、1,1,2-三甲基丙基、1-乙基-1,2,2-三甲基丙基、1-丙基-1-甲基丁基、1,1-二甲

基己基等。

【0504】 作為於吡啶系取代基中進行取代的碳數 1～4 的烷基，可引用所述烷基的說明。

【0505】 作為 R^{11}～R^{18} 中的「環烷基」，例如可列舉碳數 3～12 的環烷基。較佳的「環烷基」為碳數 3～10 的環烷基。更佳的「環烷基」為碳數 3～8 的環烷基。進而佳的「環烷基」為碳數 3～6 的環烷基。

作為具體的「環烷基」，可列舉：環丙基、環丁基、環戊基、環己基、甲基環戊基、環庚基、甲基環己基、環辛基或二甲基環己基等。

【0506】 作為 R^{11}～R^{18} 中的「芳基」，較佳的芳基為碳數 6～30 的芳基，更佳的芳基為碳數 6～18 的芳基，進而佳為碳數 6～14 的芳基，特佳為碳數 6～12 的芳基。

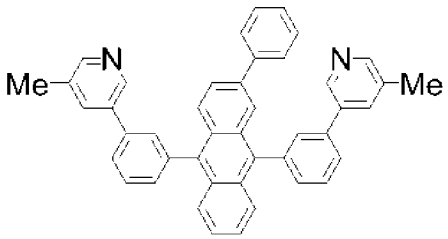
【0507】 作為具體的「碳數 6～30 的芳基」，可列舉：作為單環系芳基的苯基、作為縮合二環系芳基的(1-、2-)萘基、作為縮合三環系芳基的苊-(1-、3-、4-、5-)基、芴-(1-、2-、3-、4-、9-)基、葸-(1-、2-)基、(1-、2-、3-、4-、9-)菲基、作為縮合四環系芳基的三伸苯-(1-、2-)基、苀-(1-、2-、4-)基、稠四苯-(1-、2-、5-)基、作為縮合五環系芳基的苉-(1-、2-、3-)基、稠五苯-(1-、2-、5-、6-)基等。

【0508】 較佳的「碳數 6～30 的芳基」可列舉苯基、萘基、菲基、䓛基或三伸苯基等，進而佳為可列舉苯基、1-萘基、2-萘基或菲基，

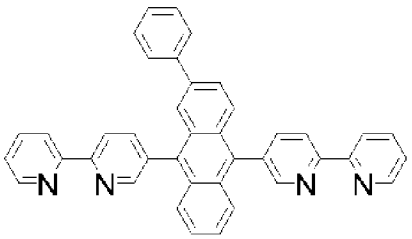
特佳為可列舉苯基、1-萘基或 2-萘基。

【0509】 所述式（ETM-2-2）中的 R^{11} 及 R^{12} 可鍵結而形成環，其結果為，可於芴骨架的 5 員環上螺鍵結環丁烷、環戊烷、環戊烯、環戊二烯、環己烷、芴或茚等。

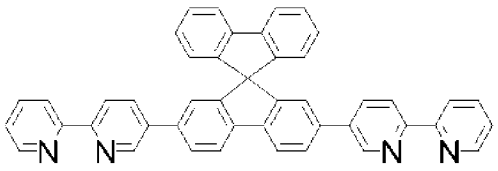
【0510】 作為該吡啶衍生物的具體例，例如可列舉以下的化合物。



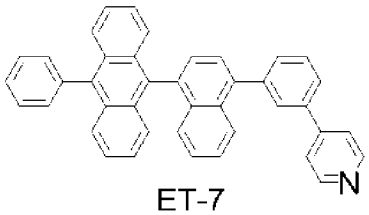
ET-2



ET-3



ET-6

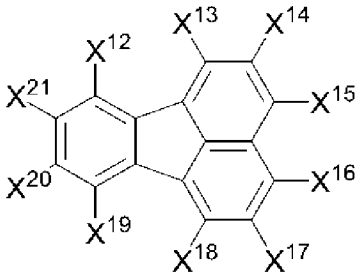


ET-7

【0511】 該吡啶衍生物可使用公知的原料與公知的合成方法來製造。

【0512】 ＜螢蒽衍生物＞

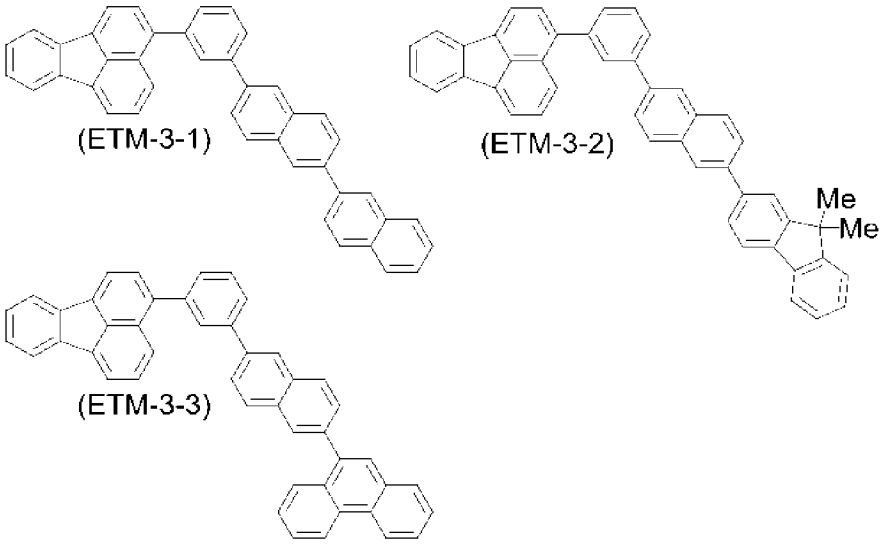
螢蒽衍生物例如為下述通式（ETM-3）所表示的化合物，詳細而言於國際公開第 2010/134352 號公報中有揭示。



(ETM-3)

【0513】 所述式（ETM-3）中，X^{12}～X^{21}表示氫、鹵素、直鏈、分支或環狀的烷基、直鏈、分支或環狀的烷氧基、經取代或未經取代的芳基、或者經取代或未經取代的雜芳基。此處，作為經取代的情況下的取代基，可列舉：芳基、雜芳基、烷基或環烷基等。

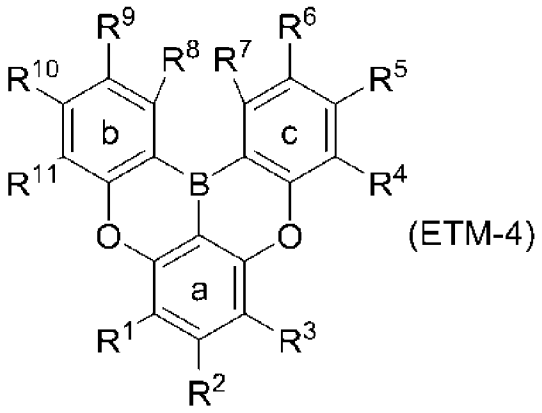
【0514】 作為該螢蒽衍生物的具體例，例如可列舉以下的化合物。



【0515】 ＜BO系衍生物＞

BO系衍生物例如為下述式（ETM-4）所表示的多環芳香族化合物、或具有多個下述式（ETM-4）所表示的結構的多環芳香族

化合物的多聚體。



(ETM-4)

【0516】 R^1～R^{11}分別獨立地為氫、芳基、雜芳基、二芳基胺基、二雜芳基胺基、芳基雜芳基胺基、烷基、環烷基、烷氧基或芳氧基，該些中的至少一個氫可由芳基、雜芳基、烷基或環烷基取代。

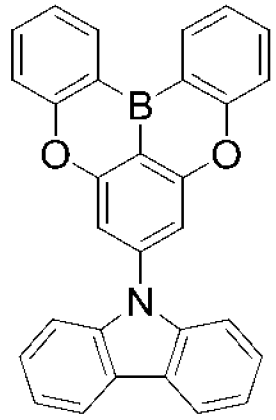
【0517】 另外，R^1～R^{11}中的鄰接的基彼此可鍵結並與 a 環、b 環或 c 環一同形成芳基環或雜芳基環，所形成的環中的至少一個氫可由芳基、雜芳基、二芳基胺基、二雜芳基胺基、芳基雜芳基胺基、烷基、環烷基、烷氧基或芳氧基取代，該些中的至少一個氫可由芳基、雜芳基、烷基或環烷基取代。

【0518】 另外，式（ETM-4）所表示的化合物或結構中的至少一個氫可由鹵素或氘取代。

【0519】 關於式（ETM-4）中的取代基或環形成的形態的說明，可引用所述通式（1）或通式（2）所表示的多環芳香族化合物的說明。

【0520】 作為該 BO 系衍生物的具體例，例如可列舉以下的化合

物。

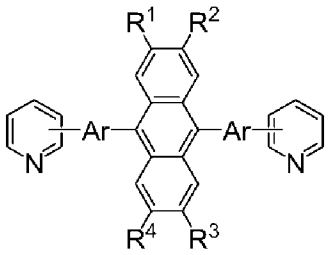


ET-5

【0521】 該 BO 系衍生物可使用公知的原料與公知的合成方法來製造。

【0522】 ＜蒽衍生物＞

蒽衍生物之一例如為下述式（ETM-5-1）所表示的化合物。

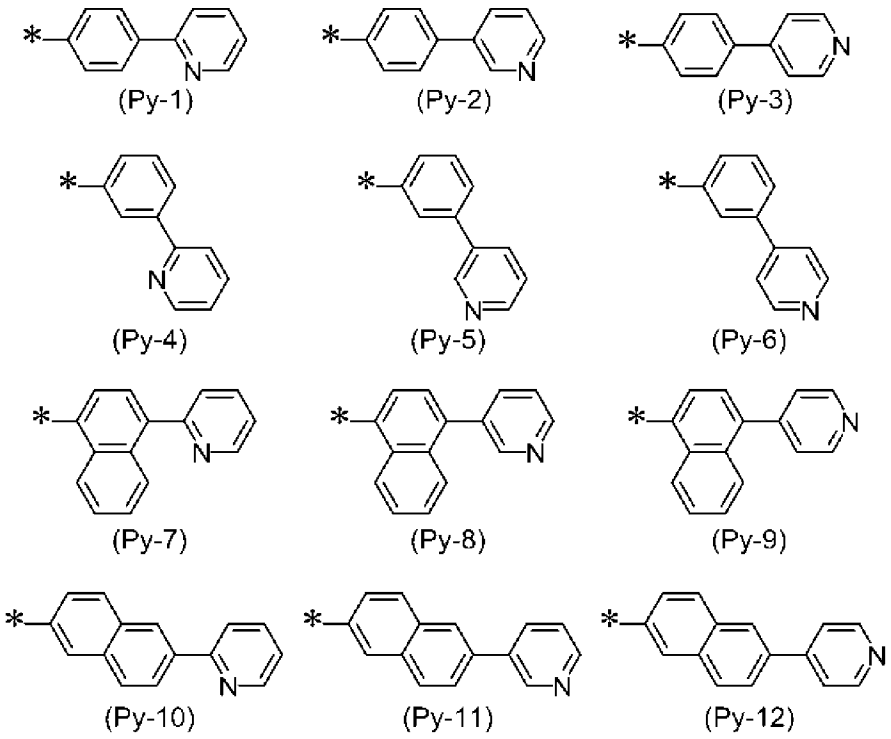


(ETM-5-1)

【0523】 Ar 分別獨立地為二價的苯或萘，R^1～R^4 分別獨立地為氫、碳數 1～6 的烷基、碳數 3～6 的環烷基或碳數 6～20 的芳基。

【0524】 Ar 可分別獨立地自二價的苯或萘中適當選擇，兩個 Ar

可不同亦可相同，就蒽衍生物的合成容易性的觀點而言，較佳為相同。Ar 與吡啶鍵結而形成「包含 Ar 及吡啶的部位」，該部位例如作為下述式（Py-1）～式（Py-12）的任一者所表示的基而與蒽鍵結。各結構式中的*表示鍵結位置。



【0525】 該些基中，較佳為所述式（Py-1）～式（Py-9）的任一者所表示的基，更佳為所述式（Py-1）～式（Py-6）的任一者所表示的基。鍵結於蒽的兩個「包含 Ar 及吡啶的部位」的結構可相同亦可不同，就蒽衍生物的合成容易性的觀點而言，較佳為相同結構。其中，就元件特性的觀點而言，無論兩個「包含 Ar 及吡啶的部位」的結構相同還是不同均較佳。

【0526】 關於 R^1～R^4 中的碳數 1～6 的烷基，可為直鏈及分支鏈

的任一種。即，為碳數 1～6 的直鏈烷基或碳數 3～6 的分支鏈烷基。更佳為碳數 1～4 的烷基（碳數 3～4 的分支鏈烷基）。作為具體例，可列舉甲基、乙基、正丙基、異丙基、正丁基、異丁基、第二丁基、第三丁基、正戊基、異戊基、新戊基、第三戊基（t-amyl）、正己基、1-甲基戊基、3,3-二甲基丁基或 2-乙基丁基等，較佳為甲基、乙基、正丙基、異丙基、正丁基、異丁基、第二丁基或第三丁基，更佳為甲基、乙基或第三丁基。

【0527】 作為 R^1～R^4 中的碳數 3～6 的環烷基的具體例，可列舉：環丙基、環丁基、環戊基、環己基、甲基環戊基、環庚基、甲基環己基、環辛基或二甲基環己基等。

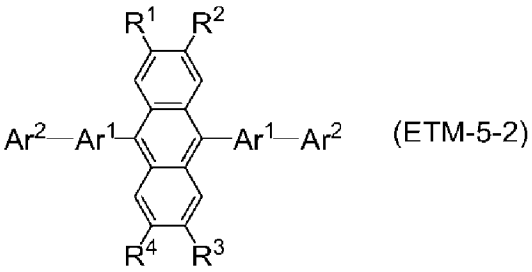
【0528】 關於 R^1～R^4 中的碳數 6～20 的芳基，較佳為碳數 6～16 的芳基，更佳為碳數 6～12 的芳基，特佳為碳數 6～10 的芳基。

【0529】 作為「碳數 6～20 的芳基」的具體例，可列舉：作為單環系芳基的苯基、(鄰、間、對)甲苯基、(2,3-、2,4-、2,5-、2,6-、3,4-、3,5-)二甲苯基、均三甲苯基(2,4,6-三甲基苯基)、(鄰、間、對)枯烯基、作為二環系芳基的(2-、3-、4-)聯苯基、作為縮合二環系芳基的(1-、2-)萘基、作為三環系芳基的聯三苯基（間聯三苯-2'-基、間聯三苯-4'-基、間聯三苯-5'-基、鄰聯三苯-3'-基、鄰聯三苯-4'-基、對聯三苯-2'-基、間聯三苯-2-基、間聯三苯-3-基、間聯三苯-4-基、鄰聯三苯-2-基、鄰聯三苯-3-基、鄰聯三苯-4-基、對聯三苯-2-基、對聯三苯-3-基、對聯三苯-4-基）、作為縮合三環系芳基的蒽-(1-、2-、9-)基、苊-(1-、3-、4-、5-)基、芴-(1-、2-、3-、4-、

9-)基、苊-(1-、2-)基、(1-、2-、3-、4-、9-)菲基、作為縮合四環系芳基的三伸苯-(1-、2-)基、芘-(1-、2-、4-)基、稠四苯-(1-、2-、5-)基、作為縮合五環系芳基的苉-(1-、2-、3-)基等。

【0530】 較佳的「碳數 6～20 的芳基」為苯基、聯苯基、聯三苯基或萘基，更佳為苯基、聯苯基、1-萘基、2-萘基或間聯三苯-5'-基，進而佳為苯基、聯苯基、1-萘基或 2-萘基，最佳為苯基。

【0531】 蒽衍生物之一例如為下述式（ETM-5-2）所表示的化合物。



(ETM-5-2)

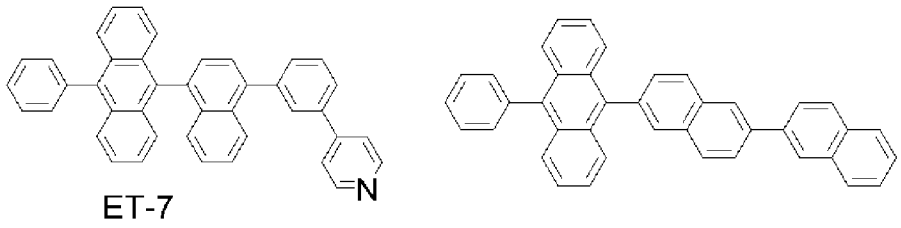
【0532】 Ar^1 分別獨立地為單鍵、二價的苯、萘、蒽、芴、或苊。

【0533】 Ar^2 分別獨立地為碳數 6～20 的芳基，可引用與所述式（ETM-5-1）中的「碳數 6～20 的芳基」相同的說明。較佳為碳數 6～16 的芳基，更佳為碳數 6～12 的芳基，特佳為碳數 6～10 的芳基。作為具體例，可列舉：苯基、聯苯基、萘基、聯三苯基、蒽基、苊基、芴基、苊基、菲基、三伸苯基、芘基、稠四苯基（tetracenyl）、苉基等。

【0534】 R^1～R^4 分別獨立地為氫、碳數 1～6 的烷基、碳數 3 至

6 的環烷基或碳數 6～20 的芳基，可引用所述式（ETM-5-1）中的說明。

【0535】 作為該些蒽衍生物的具體例，例如可列舉以下的化合物。

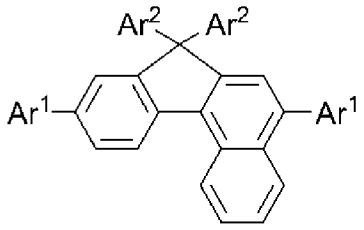


ET-7

【0536】 該些蒽衍生物可使用公知的原料與公知的合成方法來製造。

【0537】 ＜苯並芴衍生物＞

苯並芴衍生物例如為下述式（ETM-6）所表示的化合物。



(ETM-6)

【0538】 Ar^1 分別獨立地為碳數 6～20 的芳基，可引用與所述式（ETM-5-1）中的「碳數 6～20 的芳基」相同的說明。較佳為碳數 6～16 的芳基，更佳為碳數 6～12 的芳基，特佳為碳數 6～10 的芳基。作為具體例，可列舉：苯基、聯苯基、萘基、聯三苯基、蒽

基、苊基、芴基、䓛基、菲基、三伸苯基、苉基、稠四苯基（tetracenyl）、苤基等。

【0539】 Ar^2 分別獨立地為氫、烷基（較佳為碳數 1～24 的烷基）、環烷基（較佳為碳數 3～12 的環烷基）或芳基（較佳為碳數 6～30 的芳基），兩個 Ar^2 可鍵結而形成環。

【0540】 作為 Ar^2 中的「烷基」，可為直鏈及分支鏈的任一種，例如可列舉碳數 1～24 的直鏈烷基或碳數 3～24 的分支鏈烷基。較佳的「烷基」為碳數 1～18 的烷基（碳數 3～18 的分支鏈烷基）。更佳的「烷基」為碳數 1～12 的烷基（碳數 3～12 的分支鏈烷基）。進而佳的「烷基」為碳數 1～6 的烷基（碳數 3～6 的分支鏈烷基）。特佳的「烷基」為碳數 1～4 的烷基（碳數 3～4 的分支鏈烷基）。作為具體的「烷基」，可列舉：甲基、乙基、正丙基、異丙基、正丁基、異丁基、第二丁基、第三丁基、正戊基、異戊基、新戊基、第三戊基（t-amyl）、正己基、1-甲基戊基、3,3-二甲基丁基、2-乙基丁基、正庚基、1-甲基己基等。

【0541】 作為 Ar^2 中的「環烷基」，例如可列舉碳數 3～12 的環烷基。較佳的「環烷基」為碳數 3～10 的環烷基。更佳的「環烷基」為碳數 3～8 的環烷基。進而佳的「環烷基」為碳數 3～6 的環烷基。作為具體的「環烷基」，可列舉：環丙基、環丁基、環戊基、環己基、甲基環戊基、環庚基、甲基環己基、環辛基或二甲基環己基等。

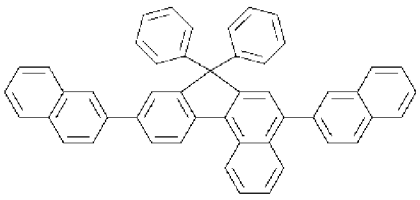
【0542】 作為 Ar^2 中的「芳基」，較佳的芳基為碳數 6～30 的芳

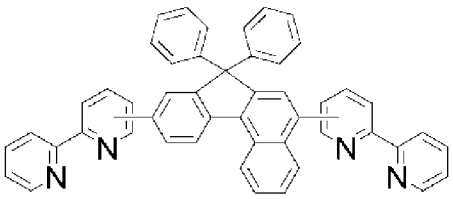
基，更佳的芳基為碳數 6～18 的芳基，進而佳為碳數 6～14 的芳基，特佳為碳數 6～12 的芳基。

【0543】 作為具體的「碳數 6～30 的芳基」，可列舉：苯基、萘基、苊基、芴基、葸基、菲基、三伸苯基、苉基、稠四苯基、苝基、稠五苯基等。

【0544】 兩個 Ar^2 可鍵結而形成環，其結果為，可於芴骨架的 5 員環上螺鍵結環丁烷、環戊烷、環戊烯、環戊二烯、環己烷、芴或茚等。

【0545】 作為該苯並芴衍生物的具體例，例如可列舉以下的化合物。

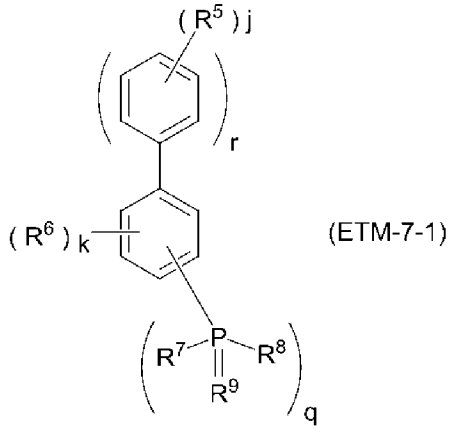




【0546】 該苯並芴衍生物可使用公知的原料與公知的合成方法來製造。

【0547】 ＜氧化膦衍生物＞

氧化膦衍生物例如為下述式（ETM-7-1）所表示的化合物。詳細情況於國際公開第 2013/079217 號公報中亦有記載。



(ETM-7-1)

R^5為經取代或未經取代的碳數1～20的烷基、碳數3～16的環烷基、碳數6～20的芳基或碳數5～20的雜芳基，

R^6為CN、經取代或未經取代的、碳數1～20的烷基、碳數3～16的環烷基、碳數1～20的雜烷基、碳數6～20的芳基、碳數5～20的雜芳基、碳數1～20的烷氧基或碳數6～20的芳氧基，

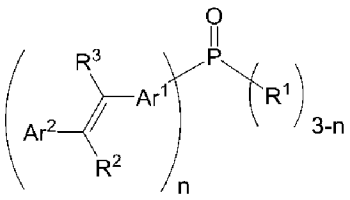
R^7及R^8分別獨立地為經取代或未經取代的碳數6～20的芳基或碳數5～20的雜芳基，

R^9為氧或硫，

j為0或1，k為0或1，r為0～4的整數，q為1～3的整數。

此處，作為經取代的情況下的取代基，可列舉：芳基、雜芳基、烷基或環烷基等。

【0548】 氧化膦衍生物例如可為下述式（ETM-7-2）所表示的化合物。



(ETM-7-2)

【0549】 R^1～R^3可相同亦可不同，選自於與氫、烷基、環烷基、芳烷基、烯基、環烯基、炔基、烷氧基、烷硫基、環烷硫基、芳基醚基、芳硫基醚基、芳基、雜環基、鹵素、氰基、醛基、羰基、羧基、胺基、硝基、矽烷基及鄰接取代基之間所形成的縮合環中。

【0550】 Ar^1可相同亦可不同，為伸芳基或伸雜芳基。Ar^2可相同亦可不同，為芳基或雜芳基。其中，Ar^1及Ar^2中的至少一者具有取代基，或於與鄰接取代基之間形成縮合環。n為0～3的整數，n為0時，並不存在不飽和結構部分，n為3時，並不存在R^1。

【0551】 該些取代基中，所謂烷基，例如表示甲基、乙基、丙基、丁基等飽和脂肪族烴基，其可未經取代亦可經取代。經取代的情況下的取代基並無特別限制，例如可列舉烷基、芳基、雜環基等，該方面於以下的記載中亦共通。另外，烷基的碳數並無特別限定，就獲取的容易性或成本的方面而言，通常為1～20的範圍。

【0552】 另外，所謂環烷基，例如表示環丙基、環己基、降冰片基、金剛烷基等飽和脂環式烴基，其可未經取代亦可經取代。烷基部分的碳數並無特別限定，通常為3～20的範圍。

【0553】 另外，所謂芳烷基，例如表示苄基、苯基乙基等經由脂肪族烴的芳香族烴基，脂肪族烴與芳香族烴均可未經取代亦可經

取代。脂肪族部分的碳數並無特別限定，通常為 1～20 的範圍。

【0554】 另外，所謂烯基，例如表示乙烯基、烯丙基、丁二烯基等包含雙鍵的不飽和脂肪族烴基，其可未經取代亦可經取代。烯基的碳數並無特別限定，通常為 2～20 的範圍。

【0555】 另外，所謂環烯基，例如表示環戊烯基、環戊二烯基、環己烯基等包含雙鍵的不飽和脂環式烴基，其可未經取代亦可經取代。

【0556】 另外，所謂炔基，例如表示乙炔基等包含三鍵的不飽和脂肪族烴基，其可未經取代亦可經取代。炔基的碳數並無特別限定，通常為 2～20 的範圍。

【0557】 另外，所謂烷氧基，例如表示甲氧基等經由醚鍵的脂肪族烴基，脂肪族烴基可未經取代亦可經取代。烷氧基的碳數並無特別限定，通常為 1～20 的範圍。

【0558】 另外，所謂烷硫基，為烷氧基的醚鍵的氧原子被取代為硫原子的基。

【0559】 另外，所謂環烷硫基，為環烷氧基的醚鍵的氧原子被取代為硫原子的基。

【0560】 另外，所謂芳基醚基，例如表示苯氧基等經由醚鍵的芳香族烴基，芳香族烴基可未經取代亦可經取代。芳基醚基的碳數並無特別限定，通常為 6～40 的範圍。

【0561】 另外，所謂芳硫基醚基，為芳基醚基的醚鍵的氧原子被取代為硫原子的基。

【0562】 另外，所謂芳基，例如表示苯基、萘基、聯苯基、菲基、聯三苯基、芘基等芳香族烴基。芳基可未經取代亦可經取代。芳基的碳數並無特別限定，通常為 6～40 的範圍。

【0563】 另外，所謂雜環基，例如表示呋喃基、噻吩基、噁唑基、吡啶基、喹啉基、咔唑基等具有碳以外的原子的環狀結構基，其可未經取代亦可經取代。雜環基的碳數並無特別限定，通常為 2～30 的範圍。

【0564】 所謂鹵素，表示氟、氯、溴、碘。

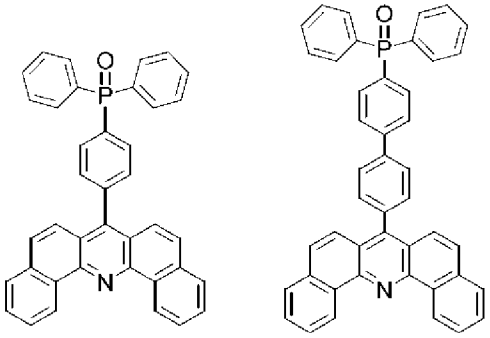
【0565】 醛基、羰基、胺基中亦可包含由脂肪族烴、脂環式烴、芳香族烴、雜環等取代而成的基。

【0566】 另外，脂肪族烴、脂環式烴、芳香族烴、雜環可未經取代亦可經取代。

【0567】 所謂矽烷基，例如表示三甲基矽烷基等矽化合物基，其可未經取代亦可經取代。矽烷基的碳數並無特別限定，通常為 3～20 的範圍。另外，矽數通常為 1～6。

【0568】 所謂於與鄰接取代基之間所形成的縮合環，例如為於 Ar^1 與 R^2、Ar^1 與 R^3、Ar^2 與 R^2、Ar^2 與 R^3、R^2 與 R^3、Ar^1 與 Ar^2 等之間形成的共軛或非共軛的縮合環。此處，於 n 為 1 的情況下，兩個 R^1 彼此可形成共軛或非共軛的縮合環。該些縮合環可於環內結構中包含氮原子、氧原子、硫原子，進而亦可與其他環縮合。

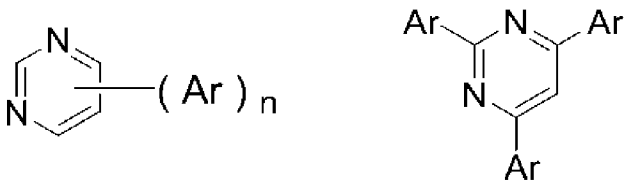
【0569】 作為該氧化膦衍生物的具體例，例如可列舉以下的化合物。



【0570】 該氧化膦衍生物可使用公知的原料與公知的合成方法來製造。

【0571】 ＜嘧啶衍生物＞

嘧啶衍生物例如為下述式（ETM-8）所表示的化合物，較佳為下述式（ETM-8-1）所表示的化合物。詳細情況於國際公開第2011/021689號公報中亦有記載。



(ETM-8)

(ETM-8-1)

【0572】 Ar 分別獨立地為可被取代的芳基、或可被取代的雜芳基。n 為 1～4 的整數，較佳為 1～3 的整數，更佳為 2 或 3。

【0573】 作為「可被取代的芳基」的「芳基」，例如可列舉碳數 6～30 的芳基，較佳為碳數 6～24 的芳基，更佳為碳數 6～20 的芳

基，進而佳為碳數 6～12 的芳基。

【0574】 作為具體的「芳基」，可列舉：作為單環系芳基的苯基、作為二環系芳基的(2-、3-、4-)聯苯基、作為縮合二環系芳基的(1-、2-)萘基、作為三環系芳基的聯三苯基（間聯三苯-2'-基、間聯三苯-4'-基、間聯三苯-5'-基、鄰聯三苯-3'-基、鄰聯三苯-4'-基、對聯三苯-2'-基、間聯三苯-2-基、間聯三苯-3-基、間聯三苯-4-基、鄰聯三苯-2-基、鄰聯三苯-3-基、鄰聯三苯-4-基、對聯三苯-2-基、對聯三苯-3-基、對聯三苯-4-基）、作為縮合三環系芳基的苊-(1-、3-、4-、5-)基、芴-(1-、2-、3-、4-、9-)基、菲-(1-、2-)基、(1-、2-、3-、4-、9-)菲基、作為四環系芳基的聯四苯基（5'-苯基-間聯三苯-2-基、5'-苯基-間聯三苯-3-基、5'-苯基-間聯三苯-4-基、間聯四苯基）、作為縮合四環系芳基的三伸苯-(1-、2-)基、苊-(1-、2-、4-)基、稠四苯-(1-、2-、5-)基、作為縮合五環系芳基的苉-(1-、2-、3-)基、稠五苯-(1-、2-、5-、6-)基等。

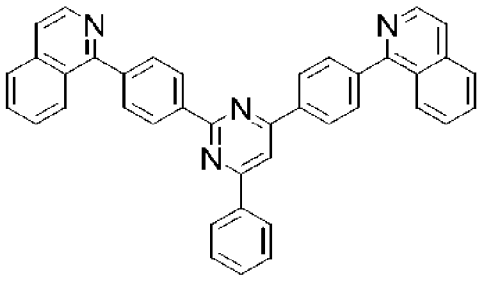
【0575】 作為「可被取代的雜芳基」的「雜芳基」，例如可列舉碳數 2～30 的雜芳基，較佳為碳數 2～25 的雜芳基，更佳為碳數 2～20 的雜芳基，進而佳為碳數 2～15 的雜芳基，特佳為碳數 2～10 的雜芳基。另外，作為雜芳基，例如可列舉除碳以外含有 1 個～5 個選自氧、硫及氮中的雜原子作為環構成原子的雜環等。

【0576】 作為具體的雜芳基，例如可列舉：吡咯基、噁唑基、異噁唑基、噻唑基、異噻唑基、咪唑基、噁二唑基、噻二唑基、三唑基、四唑基、吡唑基、吡啶基、嘧啶基、噠嗪基、吡嗪基、三

嗪基、吲哚基、異吲哚基、1H-吲唑基、苯並咪唑基、苯並噁唑基、苯並噻唑基、1H-苯並三唑基、喹啉基、異喹啉基、噌啉基、喹唑啉基、喹噁啉基、酞嗪基、萘啶基、嘌呤基、喋啶基、咔唑基、吖啶基、啡噁噻基、啡噁嗪基、啡噻嗪基、啡嗪基、環戊基硼酸基（phenazasilinyl）、吲嗪基、呋喃基、苯並呋喃基、異苯並呋喃基、二苯並呋喃基、萘並苯並呋喃基、噻吩基、苯並噻吩基、異苯並噻吩基、二苯並噻吩基、萘並苯並噻吩基、苯並磷醯基、二苯並磷醯基、苯並磷雜環戊二烯氧化物環的一價基、二苯並磷雜環戊二烯氧化物環的一價基、呋呫基、噻蒽基、吲哚並咔唑基、苯並吲唑並咔唑基及苯並苯並吲哚並咔唑基等。

【0577】 另外，所述芳基及雜芳基可被取代，可分別例如由所述芳基或雜芳基取代。

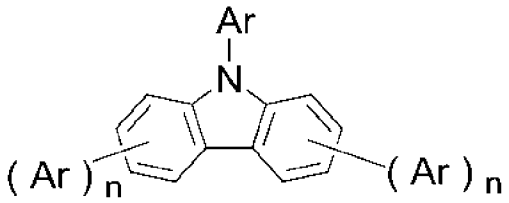
【0578】 作為該嘧啶衍生物的具體例，例如可列舉以下的化合物。



【0579】 該嘧啶衍生物可使用公知的原料與公知的合成方法來製造。

【0580】 ＜咔唑衍生物＞

咔唑衍生物例如為下述式（ETM-9）所表示的化合物或藉由單鍵等將其鍵結多個而成的多聚體。詳細情況於美國公開公報2014/0197386號公報中有記載。



(ETM-9)

【0581】 Ar 分別獨立地為可被取代的芳基、或可被取代的雜芳基。n 分別獨立地為 0～4 的整數，較佳為 0～3 的整數，更佳為 0 或 1。

【0582】 作為「可被取代的芳基」的「芳基」，例如可列舉碳數 6～30 的芳基，較佳為碳數 6～24 的芳基，更佳為碳數 6～20 的芳基，進而佳為碳數 6～12 的芳基。

【0583】 作為具體的「芳基」，可列舉：作為單環系芳基的苯基、作為二環系芳基的(2-、3-、4-)聯苯基、作為縮合二環系芳基的(1-、2-)萘基、作為三環系芳基的聯三苯基（間聯三苯-2'-基、間聯三苯-4'-基、間聯三苯-5'-基、鄰聯三苯-3'-基、鄰聯三苯-4'-基、對聯三苯-2'-基、間聯三苯-2-基、間聯三苯-3-基、間聯三苯-4-基、鄰聯三苯-2-基、鄰聯三苯-3-基、鄰聯三苯-4-基、對聯三苯-2-基、對聯

三苯-3-基、對聯三苯-4-基）、作為縮合三環系芳基的苊-(1-、3-、4-、5-)基、芴-(1-、2-、3-、4-、9-)基、菲-(1-、2-)基、(1-、2-、3-、4-、9-)菲基、作為四環系芳基的聯四苯基（5'-苯基-間聯三苯-2-基、5'-苯基-間聯三苯-3-基、5'-苯基-間聯三苯-4-基、間聯四苯基）、作為縮合四環系芳基的三伸苯-(1-、2-)基、苊-(1-、2-、4-)基、稠四苯-(1-、2-、5-)基、作為縮合五環系芳基的苉-(1-、2-、3-)基、稠五苯-(1-、2-、5-、6-)基等。

【0584】 作為「可被取代的雜芳基」的「雜芳基」，例如可列舉碳數 2～30 的雜芳基，較佳為碳數 2～25 的雜芳基，更佳為碳數 2～20 的雜芳基，進而佳為碳數 2～15 的雜芳基，特佳為碳數 2～10 的雜芳基。另外，作為雜芳基，例如可列舉除碳以外含有 1 個～5 個選自氧、硫及氮中的雜原子作為環構成原子的雜環等。

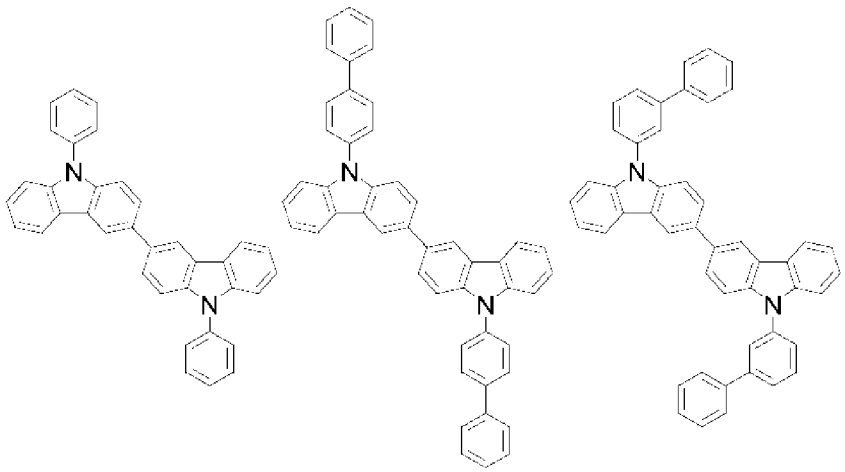
【0585】 作為具體的雜芳基，例如可列舉：吡咯基、噁唑基、異噁唑基、噻唑基、異噻唑基、咪唑基、噁二唑基、噻二唑基、三唑基、四唑基、吡唑基、吡啶基、嘧啶基、噠嗪基、吡嗪基、三嗪基、吲哚基、異吲哚基、1H-吲唑基、苯並咪唑基、苯並噁唑基、苯並噻唑基、1H-苯並三唑基、喹啉基、異喹啉基、噌啉基、喹唑啉基、喹噁啉基、酞嗪基、萘啶基、嘌呤基、喋啶基、咔唑基、吖啶基、啡噁噻基、啡噁嗪基、啡噻嗪基、啡嗪基、環戊基硼酸基（phenazasilinyl）、吲嗪基、呋喃基、苯並呋喃基、異苯並呋喃基、二苯並呋喃基、萘並苯並呋喃基、噻吩基、苯並噻吩基、異苯並噻吩基、二苯並噻吩基、萘並苯並噻吩基、苯並磷醯基、二

苯並磷醯基、苯並磷雜環戊二烯氧化物環的一價基、二苯並磷雜環戊二烯氧化物環的一價基、呋呫基、噻蒽基、吲哚並咔唑基、苯並吲唑並咔唑基及苯並苯並吲哚並咔唑基等。

【0586】 另外，所述芳基及雜芳基可被取代，可分別例如由所述芳基或雜芳基取代。

【0587】 咔唑衍生物可為藉由單鍵等將所述式（ETM-9）所表示的化合物鍵結多個而成的多聚體。該情況下，除單鍵以外，亦可藉由芳基環（較佳為多價的苯環、萘環、蒽環、芴環、苯並芴環、苊環、菲環或三伸苯環）鍵結。

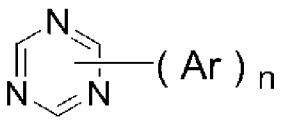
【0588】 作為該咔唑衍生物的具體例，例如可列舉以下的化合物。



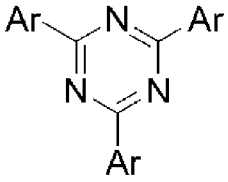
【0589】 該咔唑衍生物可使用公知的原料與公知的合成方法來製造。

【0590】 ＜三嗪衍生物＞

三嗪衍生物例如為下述式（ETM-10）所表示的化合物，較佳為下述式（ETM-10-1）所表示的化合物。詳細情況於美國公開公報 2011/0156013 號公報中有記載。



(ETM-10)



(ETM-10-1)

【0591】 Ar 分別獨立地為可被取代的芳基、或可被取代的雜芳基。n 為 1～3 的整數，較佳為 2 或 3。

【0592】 作為「可被取代的芳基」的「芳基」，例如可列舉碳數 6～30 的芳基，較佳為碳數 6～24 的芳基，更佳為碳數 6～20 的芳基，進而佳為碳數 6～12 的芳基。

【0593】 作為具體的「芳基」，可列舉：作為單環系芳基的苯基、作為二環系芳基的(2-、3-、4-)聯苯基、作為縮合二環系芳基的(1-、2-)萘基、作為三環系芳基的聯三苯基（間聯三苯-2'-基、間聯三苯-4'-基、間聯三苯-5'-基、鄰聯三苯-3'-基、鄰聯三苯-4'-基、對聯三苯-2'-基、間聯三苯-2-基、間聯三苯-3-基、間聯三苯-4-基、鄰聯三苯-2-基、鄰聯三苯-3-基、鄰聯三苯-4-基、對聯三苯-2-基、對聯三苯-3-基、對聯三苯-4-基）、作為縮合三環系芳基的苊-(1-、3-、4-、5-)基、芴-(1-、2-、3-、4-、9-)基、菲-(1-、2-)基、(1-、2-、

3-、4-、9-)菲基、作為四環系芳基的聯四苯基（5'-苯基-間聯三苯-2-基、5'-苯基-間聯三苯-3-基、5'-苯基-間聯三苯-4-基、間聯四苯基）、作為縮合四環系芳基的三伸苯-(1-、2-)基、苊-(1-、2-、4-)基、稠四苯-(1-、2-、5-)基、作為縮合五環系芳基的苊-(1-、2-、3-)基、稠五苯-(1-、2-、5-、6-)基等。

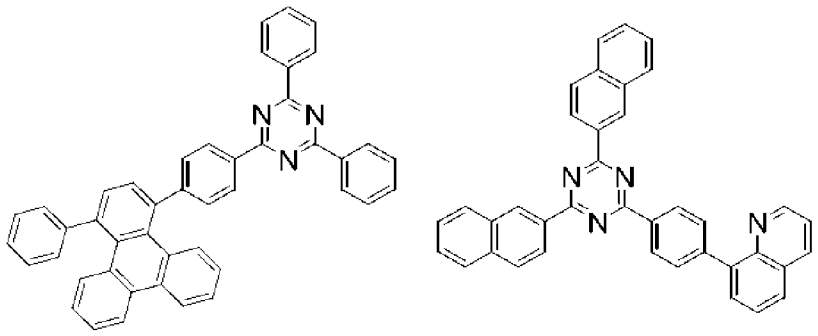
【0594】 作為「可被取代的雜芳基」的「雜芳基」，例如可列舉碳數 2～30 的雜芳基，較佳為碳數 2～25 的雜芳基，更佳為碳數 2～20 的雜芳基，進而佳為碳數 2～15 的雜芳基，特佳為碳數 2～10 的雜芳基。另外，作為雜芳基，例如可列舉除碳以外含有 1 個～5 個選自氧、硫及氮中的雜原子作為環構成原子的雜環等。

【0595】 作為具體的雜芳基，例如可列舉：吡咯基、噁唑基、異噁唑基、噻唑基、異噻唑基、咪唑基、噁二唑基、噻二唑基、三唑基、四唑基、吡唑基、吡啶基、嘧啶基、噠嗪基、吡嗪基、三嗪基、吲哚基、異吲哚基、1H-吲唑基、苯並咪唑基、苯並噁唑基、苯並噻唑基、1H-苯並三唑基、喹啉基、異喹啉基、噌啉基、喹唑啉基、喹噁啉基、酞嗪基、萘啶基、嘌呤基、喋啶基、咔唑基、吖啶基、啡噁噻基、啡噁嗪基、啡噻嗪基、啡嗪基、環戊基硼酸基（phenazasilinyl）、吲嗪基、呋喃基、苯並呋喃基、異苯並呋喃基、二苯並呋喃基、萘並苯並呋喃基、噻吩基、苯並噻吩基、異苯並噻吩基、二苯並噻吩基、萘並苯並噻吩基、苯並磷醯基、二苯並磷醯基、苯並磷雜環戊二烯氧化物環的一價基、二苯並磷雜環戊二烯氧化物環的一價基、呋呫基、噻蒽基、吲哚並咔唑基、

苯並吲唑並咔唑基及苯並苯並吲哚並咔唑基等。

【0596】 另外，所述芳基及雜芳基可被取代，可分別例如由所述芳基或雜芳基取代。

【0597】 作為該三嗪衍生物的具體例，例如可列舉以下的化合物。



【0598】 該三嗪衍生物可使用公知的原料與公知的合成方法來製造。

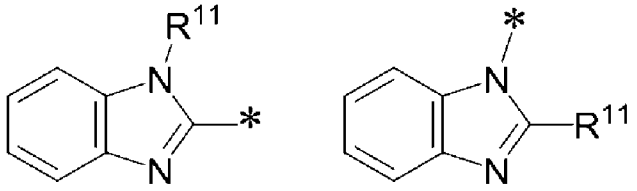
【0599】 ＜苯並咪唑衍生物＞

苯並咪唑衍生物例如為下述式（ETM-11）所表示的化合物。

ϕ-(苯並咪唑系取代基)n (ETM-11)

【0600】 ϕ為n價的芳基環（較佳為n價的苯環、萘環、蒽環、芴環、苯並芴環、苝環、菲環或三伸苯環），n為1～4的整數，「苯並咪唑系取代基」為將所述式（ETM-2）、式（ETM-2-1）及式

（ETM-2-2）的「吡啶系取代基」中的吡啶基取代為苯並咪唑基的取代基，苯並咪唑衍生物中的至少一個氫可由氘取代。下述結構式中的*表示鍵結位置。

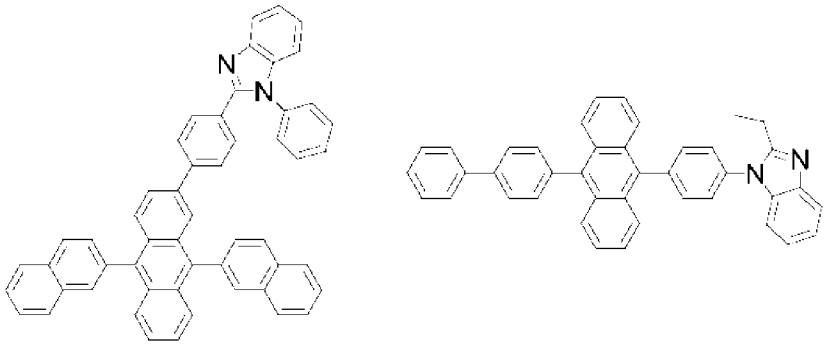


苯並咪唑基

【0601】 所述苯並咪唑基中的 R^{11} 為氫、碳數 1～24 的烷基、碳數 3～12 的環烷基或碳數 6～30 的芳基，可引用所述式（ETM-2-1）及式（ETM-2-2）中的 R^{11} 的說明。

【0602】 ϕ 進而佳為蒽環或芴環，該情況下的結構可引用所述式（ETM-2-1）或式（ETM-2-2）中的說明，各式中的 R^{11}～R^{18} 可引用所述式（ETM-2-1）或式（ETM-2-2）中的說明。另外，所述式（ETM-2-1）或式（ETM-2-2）中以鍵結有兩個吡啶系取代基的形態進行了說明，但將該些取代為苯並咪唑系取代基時，可由苯並咪唑系取代基取代兩個吡啶系取代基（即 n=2），亦可由苯並咪唑系取代基取代任一個吡啶系取代基而由 R^{11}～R^{18} 取代另一個吡啶系取代基（即 n=1）。進而，例如可由苯並咪唑系取代基取代所述式（ETM-2-1）中的 R^{11}～R^{18} 的至少一個而由 R^{11}～R^{18} 取代「吡啶系取代基」。

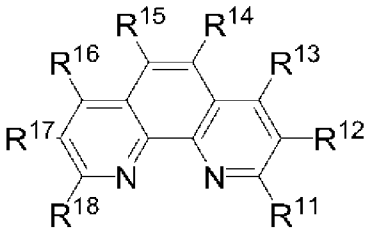
【0603】 作為該苯並咪唑衍生物的具體例，例如可列舉：1-苯基-2-(4-(10-苯基蒽-9-基)苯基)-1H-苯並[d]咪唑、2-(4-(10-(萘-2-基)蒽-9-基)苯基)-1-苯基-1H-苯並[d]咪唑、2-(3-(10-(萘-2-基)蒽-9-基)苯基)-1-苯基-1H-苯並[d]咪唑、5-(10-(萘-2-基)蒽-9-基)-1,2-二苯基-1H-苯並[d]咪唑、1-(4-(10-(萘-2-基)蒽-9-基)苯基)-2-苯基-1H-苯並[d]咪唑、2-(4-(9,10-二(萘-2-基)蒽-2-基)苯基)-1-苯基-1H-苯並[d]咪唑、1-(4-(9,10-二(萘-2-基)蒽-2-基)苯基)-2-苯基-1H-苯並[d]咪唑、5-(9,10-二(萘-2-基)蒽-2-基)-1,2-二苯基-1H-苯並[d]咪唑等。



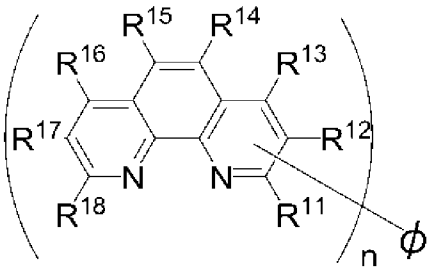
【0604】 該苯並咪唑衍生物可使用公知的原料與公知的合成方法來製造。

【0605】 ＜啡啉衍生物＞

啡啉衍生物例如為下述式（ETM-12）或式（ETM-12-1）所表示的化合物。詳細情況於國際公開 2006/021982 號公報中有記載。



(ETM-12)



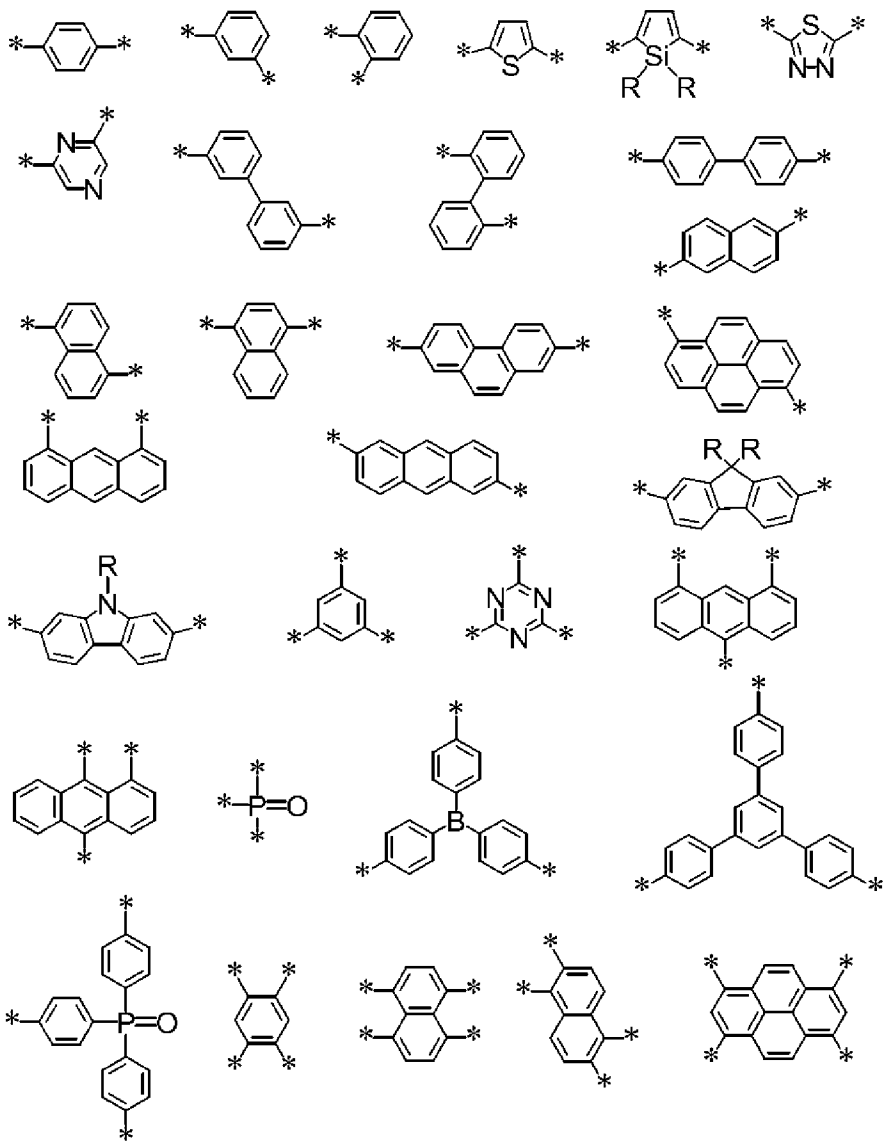
(ETM-12-1)

【0606】 ϕ為n價的芳基環（較佳為n價的苯環、萘環、蒽環、芴環、苯並芴環、菲環或三伸苯環），n為1～4的整數。

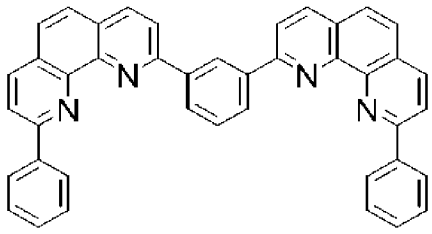
【0607】 各式的R^{11}～R^{18}分別獨立地為氫、烷基（較佳為碳數1～24的烷基）、環烷基（較佳為碳素3～12的環烷基）或芳基（較佳為碳數6～30的芳基）。另外，於所述式（ETM-12-1）中，R^{11}～R^{18}的任一者與作為芳基環的ϕ鍵結。

【0608】 各啡啉衍生物中的至少一個氫可由氘取代。

【0609】 作為R^{11}～R^{18}中的烷基、環烷基及芳基，可引用所述式（ETM-2）中的R^{11}～R^{18}的說明。另外，關於ϕ，除所述例子以外，例如可列舉以下結構式。再者，下述結構式中的R分別獨立地為氫、甲基、乙基、異丙基、環己基、苯基、1-萘基、2-萘基、聯苯基或聯三苯基。另外，各結構式中的*表示鍵結位置。



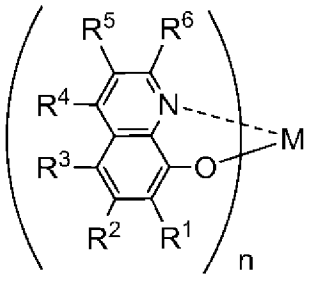
【0610】 作為該啡啉衍生物的具體例，例如可列舉：4,7-二苯基-1,10-啡啉、2,9-二甲基-4,7-二苯基-1,10-啡啉、9,10-二(1,10-啡啉-2-基)蒽、2,6-二(1,10-啡啉-5-基)吡啶、1,3,5-三(1,10-啡啉-5-基)苯、9,9'-二氟-雙(1,10-啡啉-5-基)、2,9-二甲基-4,7-聯苯-1,10-啡啉（bathocuproine）、1,3-雙(2-苯基-1,10-啡啉-9-基)苯或下述結構式所表示的化合物等。



【0611】 該啡啉衍生物可使用公知的原料與公知的合成方法來製造。

【0612】 ＜羥基喹啉系金屬錯合物＞

羥基喹啉系金屬錯合物例如為下述通式（ETM-13）所表示的化合物。



(ETM-13)

式中，R^1～R^6分別獨立地為氫、氟、烷基、環烷基、芳烷基、烯基、氰基、烷氧基或芳基，M為Li、Al、Ga、Be或Zn，n為1～3的整數。

【0613】 作為羥基喹啉系金屬錯合物的具體例，可列舉：8-羥基喹啉鋰、三(8-羥基喹啉)鋁、三(4-甲基-8-羥基喹啉)鋁、三(5-甲基-8-羥基喹啉)鋁、三(3,4-二甲基-8-羥基喹啉)鋁、三(4,5-二甲基-8-羥基喹啉)鋁、三(4,6-二甲基-8-羥基喹啉)鋁、雙(2-甲基-8-羥基喹

啉)(苯酚)鋁、雙(2-甲基-8-羥基喹啉)(2-甲基苯酚)鋁、雙(2-甲基-8-羥基喹啉)(3-甲基苯酚)鋁、雙(2-甲基-8-羥基喹啉)(4-甲基苯酚)鋁、雙(2-甲基-8-羥基喹啉)(2-苯基苯酚)鋁、雙(2-甲基-8-羥基喹啉)(3-苯基苯酚)鋁、雙(2-甲基-8-羥基喹啉)(4-苯基苯酚)鋁、雙(2-甲基-8-羥基喹啉)(2,3-二甲基苯酚)鋁、雙(2-甲基-8-羥基喹啉)(2,6-二甲基苯酚)鋁、雙(2-甲基-8-羥基喹啉)(3,4-二甲基苯酚)鋁、雙(2-甲基-8-羥基喹啉)(3,5-二甲基苯酚)鋁、雙(2-甲基-8-羥基喹啉)(3,5-二-第三丁基苯酚)鋁、雙(2-甲基-8-羥基喹啉)(2,6-二苯基苯酚)鋁、雙(2-甲基-8-羥基喹啉)(2,4,6-三苯基苯酚)鋁、雙(2-甲基-8-羥基喹啉)(2,4,6-三甲基苯酚)鋁、雙(2-甲基-8-羥基喹啉)(2,4,5,6-四甲基苯酚)鋁、雙(2-甲基-8-羥基喹啉)(1-萘酚)鋁、雙(2-甲基-8-羥基喹啉)(2-萘酚)鋁、雙(2,4-二甲基-8-羥基喹啉)(2-苯基苯酚)鋁、雙(2,4-二甲基-8-羥基喹啉)(3-苯基苯酚)鋁、雙(2,4-二甲基-8-羥基喹啉)(4-苯基苯酚)鋁、雙(2,4-二甲基-8-羥基喹啉)(3,5-二甲基苯酚)鋁、雙(2,4-二甲基-8-羥基喹啉)(3,5-二-第三丁基苯酚)鋁、雙(2-甲基-8-羥基喹啉)鋁-μ-氧代-雙(2-甲基-8-羥基喹啉)鋁、雙(2,4-二甲基-8-羥基喹啉)鋁-μ-氧代-雙(2,4-二甲基-8-羥基喹啉)鋁、雙(2-甲基-4-乙基-8-羥基喹啉)鋁-μ-氧代-雙(2-甲基-4-乙基-8-羥基喹啉)鋁、雙(2-甲基-4-甲氧基-8-羥基喹啉)鋁-μ-氧代-雙(2-甲基-4-甲氧基-8-羥基喹啉)鋁、雙(2-甲基-5-氰基-8-羥基喹啉)鋁-μ-氧代-雙(2-甲基-5-氰基-8-羥基喹啉)鋁、雙(2-甲基-5-三氟甲基-8-羥基喹啉)鋁-μ-氧代-雙(2-甲基-5-三氟甲基-8-羥基喹啉)鋁、雙(10-羥基苯並

[h]喹啉)鈸等。

【0614】 該羥基喹啉系金屬錯合物可使用公知的原料與公知的合成方法來製造。

【0615】 ＜噻唑衍生物及苯並噻唑衍生物＞

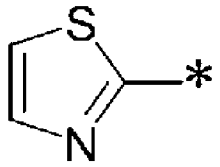
噻唑衍生物例如為下述式（ETM-14-1）所表示的化合物。

ϕ-(噻唑系取代基)n (ETM-14-1)

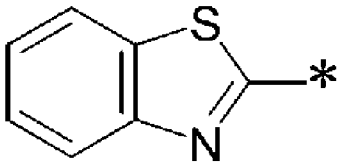
苯並噻唑衍生物例如為下述式(ETM-14-2)所表示的化合物。

ϕ-(苯並噻唑系取代基)n (ETM-14-2)

【0616】 各式的ϕ為n價的芳基環（較佳為n價的苯環、萘環、蒽環、芴環、苯並芴環、苊環、菲環或三伸苯環），n為1～4的整數，「噻唑系取代基」或「苯並噻唑系取代基」為將所述式（ETM-2）、式（ETM-2-1）及式（ETM-2-2）的「吡啶系取代基」中的吡啶基取代為下述噻唑基或苯並噻唑基的取代基，噻唑衍生物及苯並噻唑衍生物中的至少一個氫可由氘取代。下述結構式中的*表示鍵結位置。



噻唑基



苯並噻唑基

【0617】 ϕ進而佳為蒽環或芴環，該情況下的結構可引用所述式（ETM-2-1）或式（ETM-2-2）中的說明，各式中的 R^{11}～R^{18} 可引用所述式（ETM-2-1）或式（ETM-2-2）中的說明。另外，所述式（ETM-2-1）或式（ETM-2-2）中以鍵結有兩個吡啶系取代基的形態進行了說明，但將該些取代為噻唑系取代基（或苯並噻唑系取代基）時，可由噻唑系取代基（或苯並噻唑系取代基）取代兩個吡啶系取代基（即 n=2），亦可由噻唑系取代基（或苯並噻唑系取代基）取代任一個吡啶系取代基而由 R^{11}～R^{18} 取代另一個吡啶系取代基（即 n=1）。進而，例如可由噻唑系取代基（或苯並噻唑系取代基）取代所述式（ETM-2-1）中的 R^{11}～R^{18} 的至少一個而由 R^{11}～R^{18} 取代「吡啶系取代基」。

【0618】 該些噻唑衍生物或苯並噻唑衍生物可使用公知的原料與公知的合成方法來製造。

【0619】 於電子傳輸層或電子注入層中，進而可包含能夠將形成電子傳輸層或電子注入層的材料還原的物質。該還原性物質只要是具有一定的還原性的物質，則可使用各種物質，例如可適當地使用選自由鹼金屬、鹼土金屬、稀土金屬、鹼金屬的氧化物、鹼

金屬的鹵化物、鹼土金屬的氧化物、鹼土金屬的鹵化物、稀土金屬的氧化物、稀土金屬的鹵化物、鹼金屬的有機錯合物、鹼土金屬的有機錯合物及稀土金屬的有機錯合物所組成的群組中的至少一者。

【0620】 作為較佳的還原性物質，可列舉：Na（功函數為 2.36 eV）、K（功函數為 2.28 eV）、Rb（功函數為 2.16 eV）或 Cs（功函數為 1.95 eV）等鹼金屬、或 Ca（功函數為 2.9 eV）、Sr（功函數為 2.0 eV～2.5 eV）、或者 Ba（功函數為 2.52 eV）等鹼土金屬，特佳為功函數為 2.9 eV 以下的物質。該些還原性物質中，更佳的還原性物質是 K、Rb 或 Cs 的鹼金屬，進而佳為 Rb 或 Cs，最佳為 Cs。該些鹼金屬的還原能力特別高，藉由向形成電子傳輸層或電子注入層的材料中添加比較少量的該些鹼金屬，可謀求有機 EL 元件中的發光亮度的提高或長壽命化。另外，作為功函數為 2.9 eV 以下的還原性物質，兩種以上的所述鹼金屬的組合亦較佳，特佳為包含 Cs 的組合，例如 Cs 與 Na、Cs 與 K、Cs 與 Rb、或 Cs 與 Na 及 K 的組合。藉由包含 Cs，可有效率地發揮還原能力，藉由添加至形成電子傳輸層或電子注入層的材料中，可謀求有機 EL 元件中的發光亮度的提高或長壽命化。

【0621】 所述電子注入層用材料及電子傳輸層用材料亦可作為如下的高分子化合物或其高分子交聯體、或者如下的懸掛型高分子化合物或其懸掛型高分子交聯體而用於電子層用材料，其中，所述高分子化合物是使於所述電子注入層用材料及電子傳輸層用

材料中取代有反應性取代基的反應性化合物作為單體進行高分子化而成，所述懸掛型高分子化合物是使主鏈型高分子與所述反應性化合物反應而成。作為該情況下的反應性取代基，可引用式（1）所表示的多環芳香族化合物中的說明。

關於此種高分子化合物及高分子交聯體的用途的詳細情況，於後文敘述。

【0622】 ＜有機電致發光元件中的陰極＞

陰極 108 發揮經由電子注入層 107 及電子傳輸層 106 而將電子注入至發光層 105 的作用。

【0623】 作為形成陰極 108 的材料，若為可將電子高效地注入至有機層的物質，則並無特別限定，可使用與形成陽極 102 的材料相同的材料。其中，較佳為錫、銦、鈣、鋁、銀、銅、鎳、鉻、金、鉑、鐵、鋅、鋰、鈉、鉀、銫及鎂等金屬或該些的合金（鎂-銀合金、鎂-銦合金、氟化鋰/鋁等的鋁-鋰合金等）等。為了提高電子注入效率來提高元件特性，有效的是鋰、鈉、鉀、銫、鈣、鎂或包含該些低功函數金屬的合金。但是，該些低功函數金屬通常於大氣中不穩定的情況多。為了改善這一點，已知有例如向有機層中摻雜微量的鋰、銫或鎂，並使用穩定性高的電極的方法。作為其他摻雜劑，亦可使用氟化鋰、氟化銫、氧化鋰及氧化銫之類的無機鹽。其中，並不限定於該些。

【0624】 進而，可列舉如下的較佳例：為了保護電極而將鉑、金、銀、銅、鐵、錫、鋁及銦等金屬，或使用該些金屬的合金，及二

氧化矽、二氧化鈦及氮化矽等無機物，聚乙烯醇，氯乙烯，烴系高分子化合物等進行積層。該些電極的製作方法只要為電阻加熱、電子束蒸鍍、濺鍍、離子鍍及塗佈等可取得導通的方法，則亦無特別限制。

【0625】 ＜可用於各層的黏結劑＞

用於以上的電洞注入層、電洞傳輸層、發光層、電子傳輸層及電子注入層的材料可單獨地形成各層，亦可分散於作為高分子黏結劑的聚氯乙烯、聚碳酸酯、聚苯乙烯、聚(N-乙烯咔唑)、聚甲基丙烯酸甲酯、聚甲基丙烯酸丁酯、聚酯、聚碸、聚苯醚（polyphenylene oxide）、聚丁二烯、烴樹脂、酮樹脂、苯氧基樹脂、聚醯胺、乙基纖維素、乙酸乙烯酯樹脂、丙烯腈-丁二烯-苯乙烯（Acrylonitrile Butadiene Styrene，ABS）樹脂、聚胺基甲酸酯樹脂等溶劑可溶性樹脂，或者酚樹脂、二甲苯樹脂、石油樹脂、脲樹脂、三聚氰胺樹脂、不飽和聚酯樹脂、醇酸樹脂、環氧樹脂、矽酮樹脂等硬化性樹脂等中來使用。

【0626】 ＜有機電致發光元件的製作方法＞

構成有機 EL 元件的各層可藉由利用蒸鍍法、電阻加熱蒸鍍、電子束蒸鍍、濺鍍、分子積層法、印刷法、旋塗法或澆鑄法、塗佈法等方法將應構成各層的材料製成薄膜來形成。以所述方式形成的各層的膜厚並無特別限定，可對應於材料的性質而適當設定，但通常為 2 nm～5000 nm 的範圍。膜厚通常可利用水晶振盪式膜厚測定裝置等來測定。於使用蒸鍍法進行薄膜化的情況下，

其蒸鍍條件根據材料的種類、膜的目標結晶結構及締合結構等而不同。蒸鍍條件通常較佳為於舟皿加熱溫度+50℃～+400℃、真空度 10^{-6} Pa～10^{-3} Pa、蒸鍍速度 0.01 nm/sec～50 nm/sec、基板溫度-150℃～+300℃、膜厚 2 nm～5 μm 的範圍內適當設定。

【0627】 於對以所述方式獲得的有機 EL 元件施加直流電壓的情況下，只要將陽極作為+的極性，將陰極作為-的極性來施加即可，若施加 2 V～40 V 左右的電壓，則可自透明或半透明的電極側（陽極或陰極、及兩者）觀測到發光。另外，該有機 EL 元件於施加有脈衝電流或交流電流的情況下亦發光。再者，施加的交流的波形可為任意。

【0628】 繼而，作為製作有機 EL 元件的方法的一例，對包括陽極/電洞注入層/電洞傳輸層/包含主體材料與摻雜劑材料的發光層/電子傳輸層/電子注入層/陰極的有機 EL 元件的製作方法進行說明。

【0629】 ＜蒸鍍法＞

於適當的基板上，利用蒸鍍法等形成陽極材料的薄膜來製作陽極後，於該陽極上形成電洞注入層及電洞傳輸層的薄膜。於其上對主體材料與摻雜劑材料進行共蒸鍍而形成薄膜來作為發光層，於該發光層上形成電子傳輸層、電子注入層，進而利用蒸鍍法等形成包含陰極用物質的薄膜來作為陰極，藉此獲得目標有機 EL 元件。再者，於所述有機 EL 元件的製作中，亦能夠使製作順序相反，而以陰極、電子注入層、電子傳輸層、發光層、電洞傳

輸層、電洞注入層、陽極的順序製作。

【0630】 ＜濕式成膜法＞

準備可形成有機 EL 元件的各有機層的低分子化合物作為液狀的有機層形成用組成物，並使用其來實施濕式成膜法。於不存在將該低分子化合物溶解的適當的有機溶媒的情況下，亦可由如下的高分子化合物等來準備有機層形成用組成物，所述高分子化合物是與作為於該低分子化合物中取代有反應性取代基的反應性化合物而具有溶解性功能的其他單體或主鏈型高分子一同進行高分子化而成。

【0631】 濕式成膜法通常藉由經過如下步驟而形成塗膜，所述步驟為於基板上塗佈有機層形成用組成物的塗佈步驟以及自經塗佈的有機層形成用組成物中去除溶媒的乾燥步驟。於所述高分子化合物具有交聯性取代基的情況（亦將其稱為交聯性高分子化合物）下，藉由該乾燥步驟進一步進行交聯而形成高分子交聯體。根據塗佈步驟的不同，將使用旋塗機的方法稱為旋塗法，將使用狹縫塗佈機的方法稱為狹縫塗佈法，將使用版的方法稱為凹版、平版、反向平版、柔版印刷法，將使用噴墨印表機的方法稱為噴墨法，將吹附為霧狀的方法稱為噴霧法。乾燥步驟中有風乾、加熱、減壓乾燥等方法。乾燥步驟可僅進行一次，亦可使用不同的方法或條件而進行多次。另外，例如可如於減壓下的煅燒般併用不同的方法。

【0632】 所謂濕式成膜法，為使用溶液的成膜法，例如為一部分

印刷法（噴墨法）、旋塗法或澆鑄法、塗佈法等。濕式成膜法與真空蒸鍍法不同，無需使用昂貴的真空蒸鍍裝置，可於大氣壓下進行成膜。並且，濕式成膜法可大面積化或連續生產，從而帶來製造成本的降低。

【0633】 另一方面，當與真空蒸鍍法比較時，存在濕式成膜法難以積層化的情況。於使用濕式成膜法製作積層膜的情況下，需要防止由上層的組成物引起的底層的溶解，且運用控制了溶解性的組成物、底層的交聯及正交溶媒（Orthogonal solvent，彼此不溶解的溶媒）等。但是，即便使用該些技術，亦存在難以將濕式成膜法用於所有的膜的塗佈的情況。

【0634】 因此，通常採用如下方法：使用濕式成膜法僅製成若干層，利用真空蒸鍍法製成剩餘層，從而製作有機 EL 元件。

【0635】 例如，以下表示一部分應用濕式成膜法而製作有機 EL 元件的程序。

（程序 1）陽極的利用真空蒸鍍法進行的成膜

（程序 2）包含電洞注入層用材料的電洞注入層形成用組成物的利用濕式成膜法進行的成膜

（程序 3）包含電洞傳輸層用材料的電洞傳輸層形成用組成物的利用濕式成膜法進行的成膜

（程序 4）包含主體材料與摻雜劑材料的發光層形成用組成物的利用濕式成膜法進行的成膜

（程序 5）電子傳輸層的利用真空蒸鍍法進行的成膜

（程序 6）電子注入層的利用真空蒸鍍法進行的成膜

（程序 7）陰極的利用真空蒸鍍法進行的成膜

藉由經過該程序，可獲得包括陽極/電洞注入層/電洞傳輸層/包含主體材料與摻雜劑材料的發光層/電子傳輸層/電子注入層/陰極的有機 EL 元件。

當然，藉由存在防止底層的發光層溶解的手段，並且使用與所述程序相反地自陰極側進行成膜的手段等，作為包含電子傳輸層用材料或電子注入層用材料的層形成用組成物來準備，可藉由濕式成膜法對該些進行成膜。

【0636】 ＜其他成膜法＞

有機層形成用組成物的成膜化中可使用雷射加熱描繪法（雷射感熱成像（Laser Induced Thermal Imaging，LITI））。所謂 LITI，為利用雷射對附著於基材的化合物進行加熱蒸鍍的方法，且可將有機層形成用組成物用於塗佈在基材上的材料中。

【0637】 ＜任意的步驟＞

於成膜的各步驟的前後，亦可適宜加入適當的處理步驟、清洗步驟及乾燥步驟。作為處理步驟，例如可列舉：曝光處理、電漿表面處理、超音波處理、臭氧處理、使用適當的溶媒的清洗處理及加熱處理等。進而亦可列舉製作堤部的一系列的步驟。

【0638】 堤部的製作中可使用光微影技術。作為可利用光微影的堤部材料，可使用正型抗蝕劑材料及負型抗蝕劑材料。另外，亦可使用噴墨法、凹版平版印刷、反向平版印刷、網版印刷等可製

成圖案的印刷法。此時，亦可使用永久抗蝕劑材料。

【0639】 作為用於堤部的材料，可列舉多糖類及其衍生物、具有羥基的乙烯性單體的均聚物及共聚物、生物高分子化合物、聚丙烯醯基化合物、聚酯、聚苯乙烯、聚醯亞胺、聚醯胺醯亞胺、聚醚醯亞胺、聚硫醚、聚碸、聚伸苯（polyphenylene）、聚苯醚（polyphenyl ether）、聚胺基甲酸酯、(甲基)丙烯酸環氧酯、(甲基)丙烯酸三聚氰胺酯、聚烯烴、環狀聚烯烴、丙烯腈-丁二烯-苯乙烯共聚聚合物（ABS）、矽酮樹脂、聚氯乙烯、氯化聚乙烯、氯化聚丙烯、聚乙酸酯、聚降冰片烯、合成橡膠、聚偏二氟乙烯、聚四氟乙烯、聚六氟丙烯等氟化聚合物、氟烯烴-碳氫烯烴的共聚聚合物、氟碳聚合物，但並不僅限定於此。

【0640】 ＜濕式成膜法中所使用的有機層形成用組成物＞

有機層形成用組成物是使可形成有機 EL 元件的各有機層的低分子化合物、或將該低分子化合物加以高分子化而成的高分子化合物溶解於有機溶媒中而獲得。例如，發光層形成用組成物含有至少一種作為摻雜劑材料的多環芳香族化合物（或其高分子化合物）作為第一成分、至少一種主體材料作為第二成分、至少一種有機溶媒作為第三成分。第一成分作為由該組成物所獲得的發光層的摻雜劑成分而發揮功能，第二成分作為發光層的主體成分而發揮功能。第三成分作為使組成物中的第一成分與第二成分溶解的溶媒而發揮功能，並於塗佈時藉由第三成分自身的經控制的蒸發速度而獲得平滑且均勻的表面形狀。

【0641】 ＜有機溶媒＞

有機層形成用組成物包含至少一種有機溶媒。於成膜時控制有機溶媒的蒸發速度，藉此可控制及改善成膜性及塗膜的缺陷的有無、表面粗糙度、平滑性。另外，於使用噴墨法成膜時，可控制噴墨頭的針孔處的彎液面（meniscus）穩定性，並可控制·改善噴出性。並且，藉由控制膜的乾燥速度及衍生物分子的配向，可改善具有由該有機層形成用組成物所獲得的有機層的有機 EL 元件的電特性、發光特性、效率及壽命。

【0642】 （1）有機溶媒的物性

至少一種有機溶媒的沸點為 130℃～300℃，更佳為 140℃～270℃，進而佳為 150℃～250℃。就噴墨的噴出性的觀點而言，較佳為沸點高於 130℃的情況。另外，就塗膜的缺陷、表面粗糙度、殘留溶媒及平滑性的觀點而言，較佳為沸點低於 300℃的情況。就良好的噴墨噴出性、成膜性、平滑性及低殘留溶媒的觀點而言，有機溶媒更佳為包含兩種以上的有機溶媒的構成。另一方面，視情況，考慮到搬運性等，亦可為藉由自有機層形成用組成物中去除溶媒而製成為固體狀態的組成物。

【0643】 進而，有機溶媒包含對於溶質的至少一種而言的良溶媒（good solvent，GS）與不良溶媒（poor solvent，PS），特佳為良溶媒（GS）的沸點（BP_{GS}）低於不良溶媒（PS）的沸點（BP_{PS}）的構成。

藉由加入高沸點的不良溶媒，而於成膜時低沸點的良溶媒先

揮發，組成物中的含有物的濃度與不良溶媒的濃度增加並促進快速成膜。藉此，可獲得缺陷少、表面粗糙度小、平滑性高的塗膜。

【0644】 溶解度的差（S_{GS}-S_{PS}）較佳為 1%以上，更佳為 3%以上，進而佳為 5%以上。沸點的差（BP_{PS}-BP_{GS}）較佳為 10℃以上，更佳為 30℃以上，進而佳為 50℃以上。

【0645】 有機溶媒於成膜後藉由真空、減壓、加熱等乾燥步驟而自塗膜中去除。於進行加熱的情況下，就改善塗佈成膜性的觀點而言，較佳為以溶質的至少一種的玻璃轉移溫度（Tg）+30℃以下進行。另外，就削減殘留溶媒的觀點而言，較佳為以溶質的至少一種的玻璃轉移溫度（Tg）-30℃以上進行加熱。即便加熱溫度低於有機溶媒的沸點，由於膜薄，因此有機溶媒亦充分地被去除。另外，可於不同的溫度下進行多次乾燥，亦可併用多種乾燥方法。

【0646】 （2）有機溶媒的具體例

作為用於有機層形成用組成物中的有機溶媒，可列舉烷基苯系溶媒、苯基醚系溶媒、烷基醚系溶媒、環狀酮系溶媒、脂肪族酮系溶媒、單環性酮系溶媒、具有二酯骨架的溶媒及含氟系溶媒等，作為具體例，可列舉戊醇、己醇、庚醇、辛醇、壬醇、癸醇、十一醇、十二醇、十四醇、己烷-2-醇、庚烷-2-醇、辛烷-2-醇、癸烷-2-醇、十二烷-2-醇、環己醇、α-松脂醇（α-terpineol）、β-松脂醇、γ-松脂醇、δ-松脂醇、松脂醇（混合物）、乙二醇單甲醚乙酸酯、丙二醇單甲醚乙酸酯、二乙二醇二甲醚、二丙二醇二甲醚、二乙二醇乙基甲基醚、二乙二醇異丙基甲基醚、二丙二醇單甲醚、

二乙二醇二乙醚、二乙二醇單甲醚、二乙二醇丁基甲基醚、三丙二醇二甲醚、三乙二醇二甲醚、二乙二醇單丁醚、乙二醇單苯醚、三乙二醇單甲醚、二乙二醇二丁醚、三乙二醇丁基甲基醚、聚乙二醇二甲醚、四乙二醇二甲醚、對二甲苯、間二甲苯、鄰二甲苯、2,6-二甲吡啶、2-氟-間二甲苯、3-氟-鄰二甲苯、2-氯苯並三氟化物、枯烯、甲苯、2-氯-6-氟甲苯、2-氟苯甲醚、苯甲醚、2,3-二甲基吡嗪、溴苯、4-氟苯甲醚、3-氟苯甲醚、3-三氟甲基苯甲醚、均三甲苯、1,2,4-三甲基苯、第三丁基苯、2-甲基苯甲醚、苯乙醚、苯並二噁茂（benzodioxole）、4-甲基苯甲醚、第二丁基苯、3-甲基苯甲醚、4-氟-3-甲基苯甲醚、異丙基甲苯（cymene）、1,2,3-三甲基苯、1,2-二氯苯、2-氟苯甲腈、4-氟鄰二甲氧苯（4-fluoroveratrole）、2,6-二甲基苯甲醚、正丁基苯、3-氟苯甲腈、十氫萘（decahydronaphthalene）、新戊基苯、2,5-二甲基苯甲醚、2,4-二甲基苯甲醚、苯甲腈、3,5-二甲基苯甲醚、二苯醚、1-氟-3,5-二甲氧基苯、苯甲酸甲酯、異戊基苯、3,4-二甲基苯甲醚、鄰甲苯甲腈（o-tolunitrile）、正戊基苯、鄰二甲氧苯（veratrole）、1,2,3,4-四氫萘、苯甲酸乙酯、正己基苯、苯甲酸丙酯、環己基苯、1-甲基萘、苯甲酸丁酯、2-甲基聯苯、3-苯氧基甲苯、2,2'-二甲基聯苯（2,2'-bitolyl）、十二基苯、二戊基苯、四甲基苯、三甲氧基苯、三甲氧基甲苯、2,3-二氫苯並呋喃、1-甲基-4-(丙氧基甲基)苯、1-甲基-4-(丁氧基甲基)苯、1-甲基-4-(戊氧基甲基)苯、1-甲基-4-(己氧基甲基)苯、1-甲基-4-(庚氧基甲基)苯、苄基丁基醚、苄基戊基

醚、苄基己基醚、苄基庚基醚、苄基辛基醚等，但並不僅限定於此。另外，溶媒可單獨使用，亦可進行混合。

【0647】 ＜任意成分＞

有機層形成用組成物亦可於不損及其性質的範圍內含有任意成分。作為任意成分，可列舉黏合劑及界面活性劑等。

【0648】 （1）黏合劑

有機層形成用組成物亦可含有黏合劑。關於黏合劑，於成膜時，在形成膜的同時將所獲得的膜與基板接合。另外，於該有機層形成用組成物中發揮使其他成分溶解及分散以及黏結的作用。

【0649】 作為用於有機層形成用組成物中的黏合劑，例如可列舉丙烯酸樹脂、聚對苯二甲酸乙二酯、乙烯-乙酸乙烯酯共聚物、乙烯-乙烯基醇共聚物、丙烯腈-乙烯-苯乙烯共聚物（Acrylonitrile-ethylene-styrene，AES）樹脂、離聚物（ionomer）、氯化聚醚、鄰苯二甲酸二烯丙酯樹脂、不飽和聚酯樹脂、聚乙烯、聚丙烯、聚氯乙烯、聚偏二氯乙烯（polyvinylidene chloride）、聚苯乙烯、聚乙酸乙烯酯、鐵氟龍（Teflon）、丙烯腈-丁二烯-苯乙烯共聚物（ABS）樹脂、丙烯腈-苯乙烯共聚物（Acrylonitrile-Styrene，AS）樹脂、酚樹脂、環氧樹脂、三聚氰胺樹脂、脲樹脂、醇酸樹脂、聚胺基甲酸酯、以及所述樹脂及聚合物的共聚物，但並不僅限定於此。

【0650】 用於有機層形成用組成物中的黏合劑可僅為一種，亦可混合使用多種。

【0651】 （2）界面活性劑

例如為了控制有機層形成用組成物的膜面均勻性、膜表面的親溶媒性及撥液性，有機層形成用組成物亦可含有界面活性劑。界面活性劑根據親水性基的結構被分類為離子性及非離子性，進而根據疏水性基的結構被分類為烷基系及矽系以及氟系。另外，根據分子的結構，被分類為分子量比較小的具有單純結構的單分子系及分子量大的具有側鏈或分支的高分子系。另外，根據組成被分類為單一系、混合有兩種以上的界面活性劑及基材的混合系。作為可用於該有機層形成用組成物的界面活性劑，可使用所有種類的界面活性劑。

【0652】 作為界面活性劑，例如可列舉：珀利弗洛（Polyflow）No.45、珀利弗洛（Polyflow）KL-245、珀利弗洛（Polyflow）No.75、珀利弗洛（Polyflow）No.90、珀利弗洛（Polyflow）No.95（商品名，共榮社化學工業（股）製造），迪斯帕畢克（Disperbyk）161、迪斯帕畢克（Disperbyk）162、迪斯帕畢克（Disperbyk）163、迪斯帕畢克（Disperbyk）164、迪斯帕畢克（Disperbyk）166、迪斯帕畢克（Disperbyk）170、迪斯帕畢克（Disperbyk）180、迪斯帕畢克（Disperbyk）181、迪斯帕畢克（Disperbyk）182、畢克（BYK）300、畢克（BYK）306、畢克（BYK）310、畢克（BYK）320、畢克（BYK）330、畢克（BYK）342、畢克（BYK）344、畢克（BYK）346（商品名，日本畢克化學（BYK-Chemie Japan）（股）製造），KP-341、KP-358、KP-368、KF-96-50CS、KF-50-100CS（商品名，

信越化學工業（股）製造），沙福隆（Surflon）SC-101、沙福隆（Surflon）KH-40（商品名，清美化學（Seimi Chemical）（股）製造），福傑特（Ftergent）222F、福傑特（Ftergent）251、FTX-218（商品名，尼奧斯（NEOS）（股）製造），艾福拓（EFTOP）EF-351、艾福拓（EFTOP）EF-352、艾福拓（EFTOP）EF-601、艾福拓（EFTOP）EF-801、艾福拓（EFTOP）EF-802（商品名，三菱材料（Mitsubishi Material）（股）製造），美佳法（Megafac）F-470、美佳法（Megafac）F-471、美佳法（Megafac）F-475、美佳法（Megafac）R-08、美佳法（Megafac）F-477、美佳法（Megafac）F-479、美佳法（Megafac）F-553、美佳法（Megafac）F-554（商品名，迪愛生（DIC）（股）製造），氟烷基苯磺酸鹽、氟烷基羧酸鹽、氟烷基聚氧乙烯醚、氟烷基碘化銨、氟烷基甜菜鹼、氟烷基磺酸鹽、二甘油四(氟烷基聚氧乙烯醚)、氟烷基三甲基銨鹽、氟烷基胺基磺酸鹽、聚氧乙烯壬基苯基醚、聚氧乙烯辛基苯基醚、聚氧乙烯烷基醚、聚氧乙烯月桂酸酯、聚氧乙烯油酸酯、聚氧乙烯硬脂酸酯、聚氧乙烯月桂基胺、脫水山梨糖醇月桂酸酯、脫水山梨糖醇棕櫚酸酯、脫水山梨糖醇硬脂酸酯、脫水山梨糖醇油酸酯、脫水山梨糖醇脂肪酸酯、聚氧乙烯脫水山梨糖醇月桂酸酯、聚氧乙烯脫水山梨糖醇棕櫚酸酯、聚氧乙烯脫水山梨糖醇硬脂酸酯、聚氧乙烯脫水山梨糖醇油酸酯、聚氧乙烯萘基醚、烷基苯磺酸鹽及烷基二苯基醚二磺酸鹽。

【0653】 另外，界面活性劑可使用一種，亦可併用兩種以上。

【0654】 ＜有機層形成用組成物的組成及物性＞

考慮到有機層形成用組成物中各成分的良好的溶解性、保存穩定性及成膜性以及由該有機層形成用組成物所獲得的塗膜的優質膜質且使用噴墨法時的良好噴出性、具有使用該組成物而製作的有機層的有機 EL 元件的良好的電特性、發光特性、效率、壽命的觀點來決定有機層形成用組成物中的各成分的含量。例如，於為發光層形成用組成物的情況下，較佳為：第一成分相對於發光層形成用組成物的總重量而為 0.0001 重量%～2.0 重量%，第二成分相對於發光層形成用組成物的總重量而為 0.0999 重量%～8.0 重量%，第三成分相對於發光層形成用組成物的總重量而為 90.0 重量%～99.9 重量%。

【0655】 更佳為：第一成分相對於發光層形成用組成物的總重量而為 0.005 重量%～1.0 重量%，第二成分相對於發光層形成用組成物的總重量而為 0.095 重量%～4.0 重量%，第三成分相對於發光層形成用組成物的總重量而為 95.0 重量%～99.9 重量%。進而更佳為：第一成分相對於發光層形成用組成物的總重量而為 0.05 重量%～0.5 重量%，第二成分相對於發光層形成用組成物的總重量而為 0.25 重量%～2.5 重量%，第三成分相對於發光層形成用組成物的總重量而為 97.0 重量%～99.7 重量%。

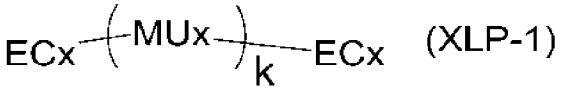
【0656】 有機層形成用組成物可藉由利用公知的方法對所述成分適當選擇進行攪拌、混合、加熱、冷卻、溶解、分散等而製造。另外，亦可於製備後適當選擇進行過濾、脫氣（亦稱為除氣（degas））、離子交換處理及惰性氣體置換·封入處理等。

【0657】 關於有機層形成用組成物的黏度，高黏度者可獲得良好的成膜性與使用噴墨法時的良好的噴出性。另一方面，低黏度者容易製作薄膜。因此，該有機層形成用組成物的黏度較佳為於 25℃下的黏度為 0.3 mPa·s～3 mPa·s，更佳為 1 mPa·s～3 mPa·s。本發明中，黏度是使用圓錐平板型旋轉黏度計（cone-plate type）而測定的值。

【0658】 關於有機層形成用組成物的表面張力，低者可獲得良好的成膜性及無缺陷的塗膜。另一方面，高者可獲得良好的噴墨噴出性。因此，該有機層形成用組成物的黏度較佳為於 25℃下的表面張力為 20 mN/m～40 mN/m，更佳為 20 mN/m～30 mN/m。本發明中，表面張力是使用懸滴法而測定的值。

【0659】 ＜交聯性高分子化合物：通式（XLP-1）所表示的化合物＞

繼而，對所述高分子化合物具有交聯性取代基的情況進行說明。此種交聯性高分子化合物例如為下述通式（XLP-1）所表示的化合物。



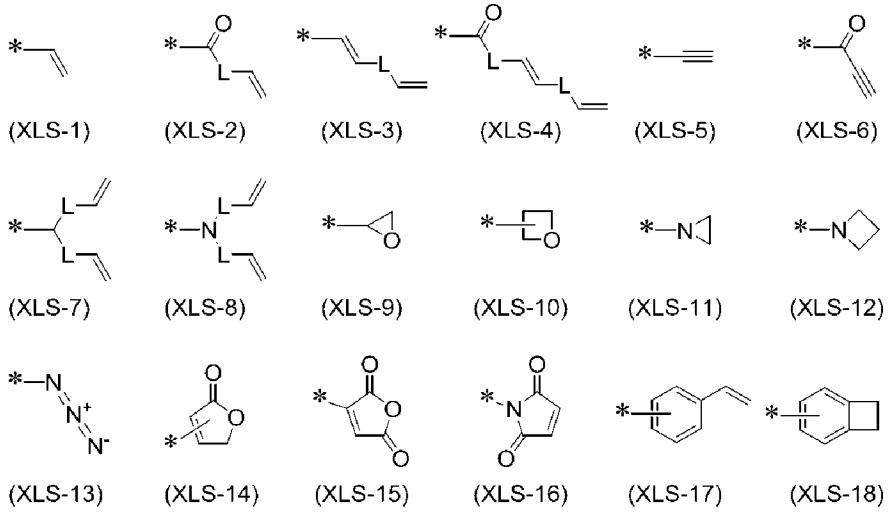
式（XLP-1）中，

MUx、ECx 及 k 與所述式（SPH-1）中的 MU、EC 及 k 為相

同定義，其中，式（XLP-1）所表示的化合物具有至少一個交聯性取代基（XLS），較佳為具有交聯性取代基的一價或二價的芳香族化合物的含量於分子中為 0.1 重量%～80 重量%。

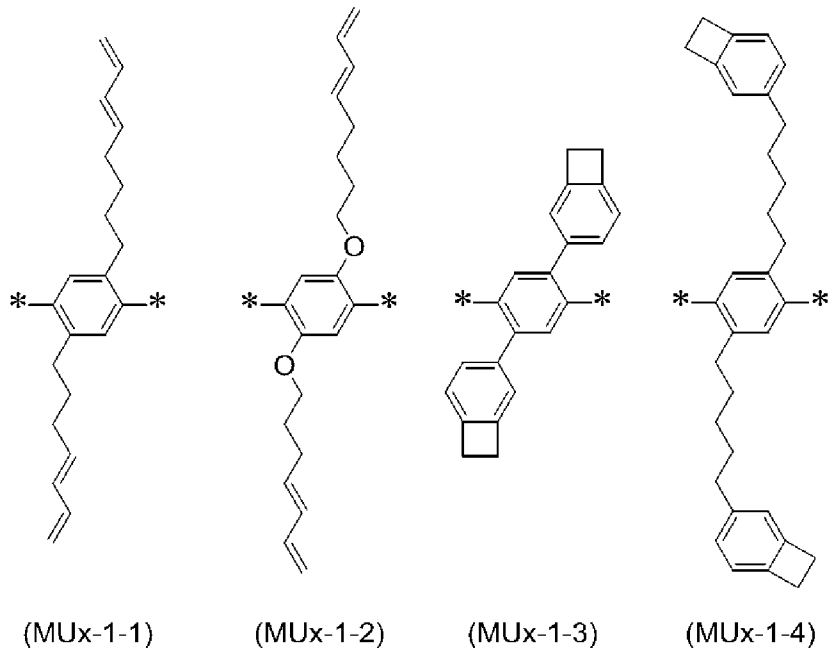
【0660】 具有交聯性取代基的一價或二價的芳香族化合物的含量較佳為 0.5 重量%～50 重量%，更佳為 1 重量%～20 重量%。

【0661】 作為交聯性取代基（XLS），若為可使所述高分子化合物進一步交聯化的基，則無特別限定，較佳為以下結構的取代基。各結構式中的*表示鍵結位置。

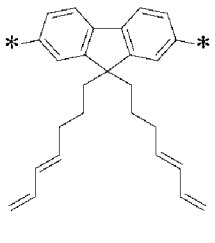


【0662】 L 分別獨立地為單鍵、-O-、-S-、＞C=O、-O-C(=O)-、碳數 1～12 的伸烷基、碳數 1～12 的氧伸烷基及碳數 1～12 的聚氧伸烷基。於所述取代基中，較佳為式（XLS-1）、式（XLS-2）、式（XLS-3）、式（XLS-9）、式（XLS-10）或式（XLS-17）所表示的基，更佳為式（XLS-1）、式（XLS-3）或式（XLS-17）所表示的基。

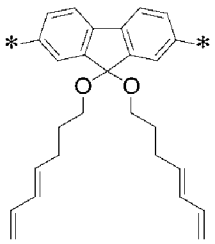
【0663】 作為具有交聯性取代基的二價的芳香族化合物，例如可列舉具有下述部分結構的化合物。下述結構式中的*表示鍵結位置。



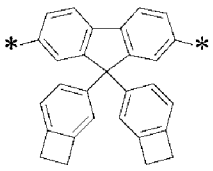
(MUx-1-1)　(MUx-1-2)　(MUx-1-3)　(MUx-1-4)



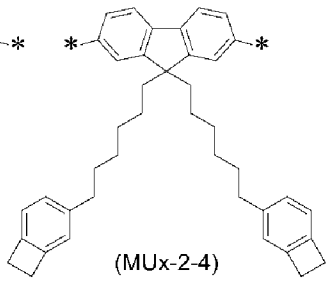
(MUx-2-1)



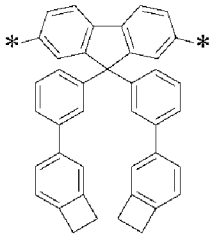
(MUx-2-2)



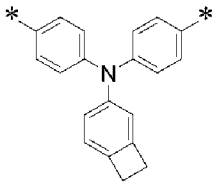
(MUx-2-3)



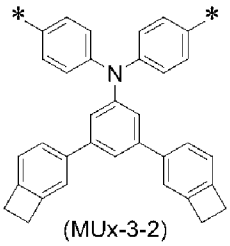
(MUx-2-4)



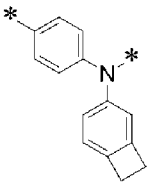
(MUx-2-5)



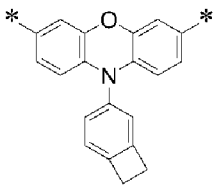
(MUx-3-1)



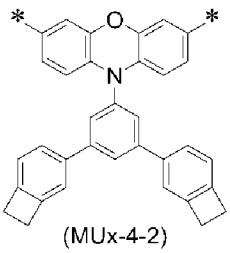
(MUx-3-2)



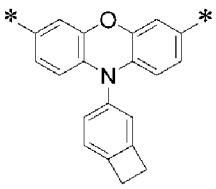
(MUx-3-3)



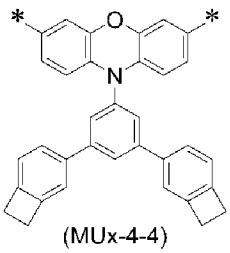
(MUx-4-1)



(MUx-4-2)



(MUx-4-3)



(MUx-4-4)

【0664】 ＜高分子化合物及交聯性高分子化合物的製造方法＞

關於高分子化合物及交聯性高分子化合物的製造方法，以所述式（SPH-1）所表示的化合物及式（XLP-1）所表示的化合物為例進行說明。該些化合物可將公知的製造方法適當組合而合成。

【0665】 作為反應中所使用的溶媒，可列舉芳香族溶媒、飽和/不飽和烴溶媒、醇溶媒、醚系溶媒等，例如可列舉：二甲氧基乙烷、2-(2-甲氧基乙氧基)乙烷、2-(2-乙氧基乙氧基)乙烷等。

【0666】 另外，反應亦可以兩相系統進行。於以兩相系統進行反應的情況下，視需要亦可加入四級銨鹽等相間轉移觸媒。

【0667】 當製造式(SPH-1)的化合物及式(XLP-1)的化合物時，可以一階段來製造，亦可經由多階段來製造。另外，可藉由將原料全部放入至反應容器後開始反應的總括聚合法來進行，亦可藉由將原料滴加至反應容器的滴加聚合法來進行，還可藉由產物隨著反應的進行而沈澱的沈澱聚合法來進行，可適當組合該些來合成。例如，當以一階段來合成式（SPH-1）所表示的化合物時，藉由在將單體單元（MU）及封端單元（EC）加入至反應容器的狀態下進行反應而獲得目標物。另外，當以多階段來合成通式(SPH-1)所表示的化合物時，藉由在使單體單元（MU）聚合至目標分子量後加入封端單元（EC）並加以反應而獲得目標物。若以多階段加入不同種類的單體單元（MU）來進行反應，則可製作對於單體單元的結構而言具有濃度梯度的聚合物。另外，製備前驅物聚合物後，可藉由後續反應而獲得作為目標物的聚合物。

【0668】 另外，若選擇單體單元（MU）的聚合性基，則可控制聚合物的一次結構。例如，如合成流程的 1～3 所示，能夠合成具有無規的一次結構的聚合物（合成流程的 1）、具有規則的一次結構的聚合物（合成流程的 2 及 3）等，且可根據目標物進行適當組合來使用。進而，若使用具有三個以上的聚合性基的單體單元，則可合成超支化聚合物（hyperbranched polymer）或樹枝狀聚合物（dendrimer）。

【0669】

a、b=MU 或 MUx
聚合性基=x、y（分別為 x 與 y 鍵結）

1）使用兩種單體（x-a-y）及單體（x-b-y）合成的聚合物

n x-a-y + n x-b-y ⟶ --a-b-a-a-b-b---

合成使 a 與 b 無規地連結的聚合物。

2）使用兩種單體（x-a-x）及單體（y-b-y）合成的聚合物

n x-a-x + n y-b-y ⟶ --a-b-a-b-a-b---

合成使 a 與 b 交替連結的聚合物。

3）使用兩種單體（x-a-y）及單體（y-b-y）合成的聚合物

n x-a-y + n y-b-y ⟶ --a-a-b-a-b-a---

合成使 b 不相鄰的聚合物。

【0670】 作為本發明中可使用的單體單元，可依據日本專利特開 2010-189630 號公報、國際公報第 2012/086671 號、國際公開第 2013/191088 號、國際公開第 2002/045184 號、國際公開第 2011/049241 號、國際公開第 2013/146806 號、國際公開第 2005/049546 號、國際公開第 2015/145871 號、日本專利特開 2010-215886 號、日本專利特開 2008-106241 號公報、日本專利特開 2010-215886 號公報、國際公開第 2016/031639 號、日本專利特開 2011-174062 號公報、國際公開第 2016/031639 號、國際公開第 2016/031639 號、國際公開第 2002/045184 號中記載的方法來合成。

【0671】 另外，關於具體的聚合物合成程序，可依據日本專利特開 2012-036388 號公報、國際公開第 2015/008851 號、日本專利特

開 2012-36381 號公報、日本專利特開 2012-144722 號公報、國際公開第 2015/194448 號、國際公開第 2013/146806 號、國際公開第 2015/145871 號、國際公開第 2016/031639 號、國際公開第 2016/125560 號、國際公開第 2016/031639 號、國際公開第 2016/031639 號、國際公開第 2016/125560 號、國際公開第 2015/145871 號、國際公開第 2011/049241 號、日本專利特開 2012-144722 號公報中記載的方法來合成。

【0672】 ＜有機電致發光元件的應用例＞

另外，本發明亦可應用於具備有機 EL 元件的顯示裝置或具備有機 EL 元件的照明裝置等。

具備有機 EL 元件的顯示裝置或照明裝置可藉由將本實施形態的有機 EL 元件與公知的驅動裝置連接等公知的方法來製造，且可適當使用直流驅動、脈衝驅動、交流驅動等公知的驅動方法來進行驅動。

【0673】 作為顯示裝置，例如可列舉：彩色平板顯示器等面板顯示器、撓性彩色有機電致發光（EL）顯示器等撓性顯示器等（例如，參照日本專利特開平 10-335066 號公報、日本專利特開 2003-321546 號公報、日本專利特開 2004-281086 號公報等）。另外，作為顯示器的顯示方式，例如可列舉矩陣及分段方式等。再者，矩陣顯示與分段顯示可於相同的面板中共存。

【0674】 矩陣是將用於顯示的畫素二維地配置成格子狀或馬賽克狀等，其藉由畫素的集合來顯示文字或圖像。畫素的形狀或尺

寸是根據用途來決定。例如於個人電腦、監視器、電視機的圖像及文字顯示中，通常使用一邊為 300 μm 以下的四邊形的畫素，另外，於為顯示面板之類的大型顯示器的情況下，使用一邊為 mm 級的畫素。於為單色顯示的情況下，只要排列相同顏色的畫素即可，於為彩色顯示的情況下，使紅、綠、藍的畫素並列來進行顯示。於此情況下，典型的有三角型與條紋型。而且，作為該矩陣的驅動方法，可為線序（line-sequential）驅動方法或主動矩陣的任一者。線序驅動有結構簡單這一優點，但於考慮了動作特性的情況下，有時主動矩陣更優異，因此驅動方法亦需要根據用途而區分使用。

【0675】 於分段方式（類型）中，以顯示事先所決定的資訊的方式形成圖案，並使所決定的區域發光。例如可列舉：數位時鐘或溫度計中的時刻或溫度顯示、音訊機器或電磁爐等的動作狀態顯示及汽車的面板顯示等。

【0676】 作為照明裝置，例如可列舉：室內照明等的照明裝置、液晶顯示裝置的背光源等（例如，參照日本專利特開 2003-257621 號公報、日本專利特開 2003-277741 號公報、日本專利特開 2004-119211 號公報等）。背光源主要為了提高不進行自發光的顯示裝置的視認性而使用，其用於液晶顯示裝置、時鐘、音訊裝置、汽車面板、顯示板及標識等。尤其，作為液晶顯示裝置中薄型化正成為課題的個人電腦用途的背光源，若考慮到先前方式因包含螢光燈或導光板而難以薄型化，則使用了本實施形態的發光元件

的背光源具有薄型、輕量的特徵。

【0677】 3-2.其他有機元件

除所述有機電致發光元件以外，本發明的多環芳香族化合物可用於有機場效電晶體或有機薄膜太陽電池等的製作。

【0678】 有機場效電晶體是利用藉由電壓輸入所產生的電場來控制電流的電晶體，除源電極與汲電極以外，設置有閘電極。為若對閘電極施加電壓，則產生電場，可任意地阻斷於源電極與汲電極間流動的電子（或電洞）的流動來控制電流的電晶體。與單一電晶體（雙極電晶體）相比，場效電晶體容易小型化，而常用作構成積體電路等的元件。

【0679】 有機場效電晶體的結構通常只要使源電極及汲電極接觸使用本發明的多環芳香族化合物所形成的有機半導體活性層來設置，進而隔著接觸有機半導體活性層的絕緣層（介電體層）來設置閘電極即可。作為其元件結構，例如可列舉以下的結構。

（1）基板/閘電極/絕緣體層/源電極·汲電極/有機半導體活性層

（2）基板/閘電極/絕緣體層/有機半導體活性層/源電極·汲電極

（3）基板/有機半導體活性層/源電極·汲電極/絕緣體層/閘電極

（4）基板/源電極·汲電極/有機半導體活性層/絕緣體層/閘電極

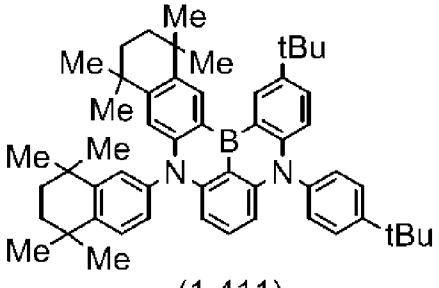
如此構成的有機場效電晶體可用作主動矩陣驅動方式的液晶顯示器、或有機電致發光顯示器的畫素驅動開關元件等。

【0680】 有機薄膜太陽電池具有於玻璃等透明基板上積層有 ITO 等的陽極、電洞傳輸層、光電轉換層、電子傳輸層、陰極的結構。光電轉換層於陽極側具有 p 型半導體層，於陰極側具有 n 型半導體層。本發明的多環芳香族化合物根據其物性，可用作電洞傳輸層、p 型半導體層、n 型半導體層、電子傳輸層的材料。於有機薄膜太陽電池中，本發明的多環芳香族化合物可作為電洞傳輸材料或電子傳輸材料而發揮功能。有機薄膜太陽電池除所述以外，亦可適當具備電洞阻擋層、電子阻擋層、電子注入層、電洞注入層、平滑化層等。於有機薄膜太陽電池中，可適當選擇用於有機薄膜太陽電池的已知的材料來組合使用。

[實施例]

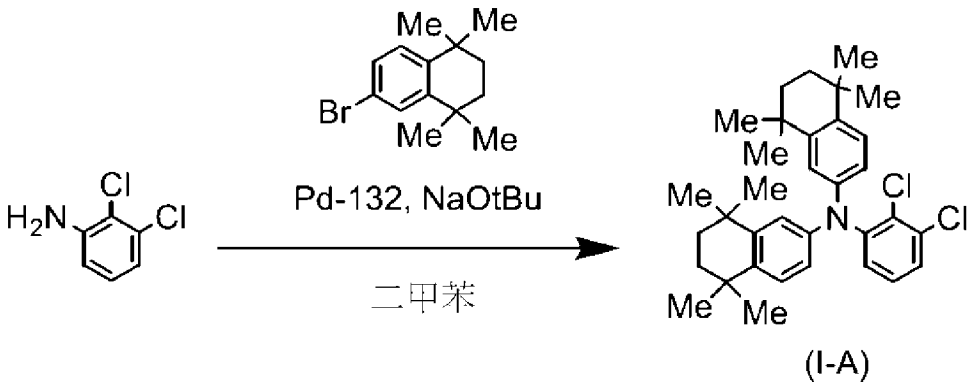
【0681】 以下，藉由實施例對本發明進一步進行具體說明，但本發明並不限定於該些實施例。首先，關於多環芳香族化合物的合成例，於以下進行說明。

【0682】 合成例（1）：化合物（1-411）的合成



(1-411)

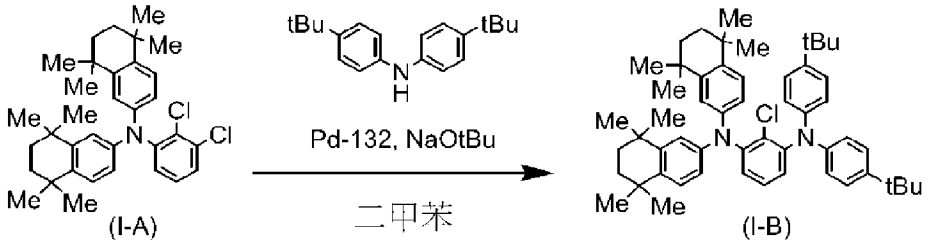
【0683】 於氮氣環境下，將 2,3-二氯苯胺（6.0 g）、6-溴-1,1,4,4-四甲基-2,3-二氫萘（25 g）、二氯雙(二-第三丁基(4-二甲基胺基苯基)膦基)鈀（Pd-132、0.44 g）、第三丁醇鈉（NaOtBu、14.8 g）及二甲苯（120 ml）放入至燒瓶中，於 120℃下加熱 2 小時。反應後，向反應液中加入水與乙酸乙酯並進行攪拌後，將有機層分離並進行水洗。其後，將有機層濃縮而獲得粗產物。利用矽膠短管柱（溶離液：甲苯）對粗產物進行精製後，將溶媒濃縮，向所獲得的粗產物中加入甲醇並進行冰浴冷卻，對所析出的結晶進行過濾並利用甲醇來清洗結晶，藉此獲得化合物（I-A）（17.0 g）。



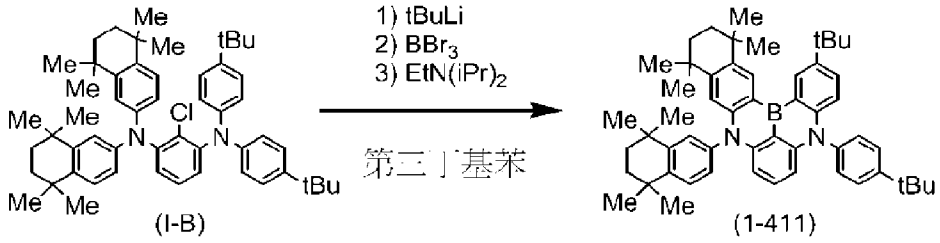
(I-A)

【0684】 於氮氣環境下，將化合物（I-A）（8.0 g）、雙(4-第三丁基苯基)胺（25 g）、Pd-132（0.10 g）、NaOtBu（2.1 g）及二甲苯（40 ml）放入至燒瓶中，於 120℃下加熱 1 小時。反應後，向反應液中加入水與乙酸乙酯並進行攪拌後，將有機層分離並進行水洗。其後，將有機層濃縮而獲得粗產物。利用矽膠短管柱（溶離

液：甲苯）對粗產物進行精製後，將溶媒濃縮，向所獲得的粗產物中加入甲醇並進行冰浴冷卻，對所析出的結晶進行過濾並利用甲醇來清洗結晶，藉此獲得化合物（I-B）（9.7 g）。



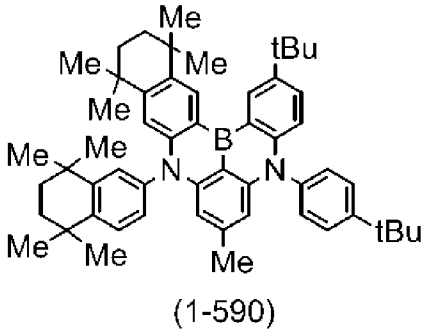
【0685】 於氮氣環境下，且於 0℃下向放入有化合物（I-B）（8.6 g）及第三丁基苯（80 ml）的燒瓶中加入 1.53 M 的第三丁基鋰戊烷溶液（15.2 ml）。滴加結束後，昇溫至 60℃並攪拌 0.5 小時後，將沸點低於第三丁基苯的成分減壓餾去。冷卻至-50℃並加入三溴化硼（5.8 g），昇溫至室溫並攪拌 0.5 小時。其後，再次冷卻至 0℃並加入 N,N-二異丙基乙胺（2.6 g），於室溫下攪拌至發熱結束後，昇溫至 100℃並加熱攪拌 1 小時。將反應液冷卻至室溫，依次加入利用冰浴進行了冷卻的乙酸鈉水溶液、乙酸乙酯並攪拌 1 小時。對黃色懸浮液進行過濾並利用甲醇來清洗其沈澱。將黃色結晶加熱溶解於甲苯中後，利用矽膠短管柱（溶離液：甲苯）進行精製。將所獲得的粗產物加入甲苯中而進行濃縮後，加入索爾米克斯（Solmix）（A-11），對所析出的結晶進行過濾，進而利用甲醇來清洗結晶，藉此獲得化合物（1-411）（3.0 g）。



【0686】 藉由核磁共振（nuclear magnetic resonance，NMR）測定來確認所獲得的化合物的結構。

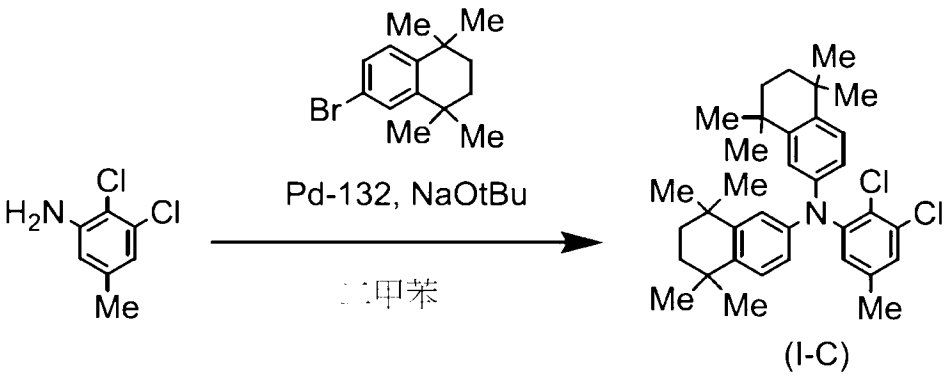
^{1}H-NMR（$CDCl_3$）：δ = 1.09 (s, 6H), 1.27 (s, 6H), 1.42 (s, 6H), 1.46 (s, 9H), 1.48 (s, 9H), 1.49 (s, 6H), 1.71-1.80 (m, 8H), 6.11 (d, 1H), 6.23 (d, 1H), 6.59 (s, 1H), 6.73 (d, 1H), 7.09 (dd, 1H), 7.25-7.30 (m, 5H), 7.51 (dd, 1H), 7.59 (d, 1H), 7.67 (d, 2H), 8.92 (s, 1H), 8.99 (d, 1H).

【0687】 合成例（2）：化合物（1-590）的合成

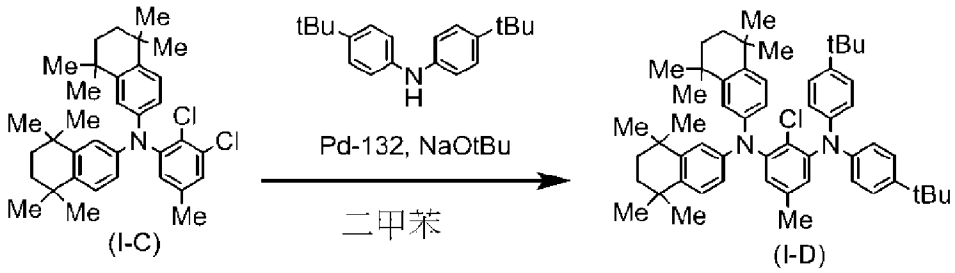


【0688】 於氮氣環境下，將 2,3-二氯-5-甲基苯胺（6.6 g）、6-溴-1,1,4,4-四甲基-2,3-二氫萘（25 g）、Pd-132（0.54 g）、NaOtBu（9.0 g）及二甲苯（90 ml）放入至燒瓶中，於 120℃下加熱 2 小時。反

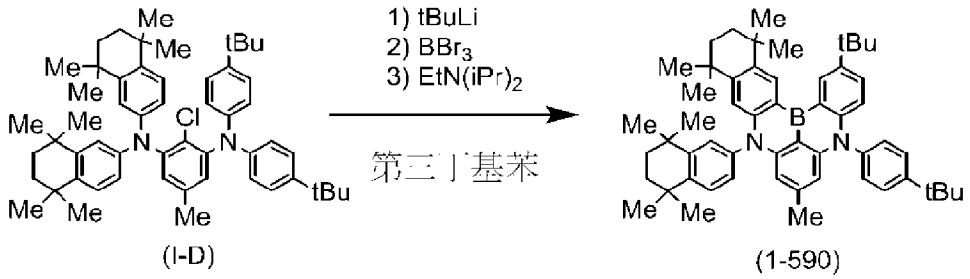
應後，向反應液中加入水與乙酸乙酯並進行攪拌後，將有機層分離並進行水洗。其後，將有機層濃縮而獲得粗產物。利用矽膠短管柱（溶離液：甲苯）對粗產物進行精製後，將溶媒濃縮，向所獲得的粗產物中加入甲醇並進行冰浴冷卻，對所析出的結晶進行過濾並利用甲醇來清洗結晶，藉此獲得化合物（I-C）（13.0 g）。



【0689】 於氮氣環境下，將化合物（I-C）（8.0 g）、雙(4-第三丁基苯基)胺（4 g）、Pd-132（0.10 g）、NaOtBu（2.1 g）及二甲苯（40 ml）放入至燒瓶中，於 120℃下加熱 1 小時。反應後，向反應液中加入水與乙酸乙酯並進行攪拌後，將有機層分離並進行水洗。其後，將有機層濃縮而獲得粗產物。利用矽膠短管柱（溶離液：甲苯）對粗產物進行精製後，將溶媒濃縮，向所獲得的粗產物中依次加入乙酸乙酯、甲醇，對所析出的結晶進行過濾並利用甲醇來清洗該結晶，藉此獲得化合物（I-D）（11.0 g）。



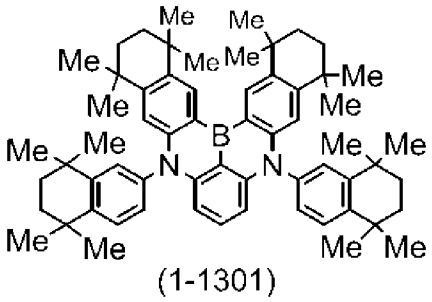
【0690】 於氮氣環境下，且於 0℃下向放入有化合物（I-D）（11.0 g）及第三丁基苯（110 ml）的燒瓶中加入 1.53 M 的第三丁基鋰戊烷溶液（18.9 ml）。滴加結束後，昇溫至 60℃並攪拌 0.5 小時後，將沸點低於第三丁基苯的成分減壓餾去。冷卻至-50℃並加入三溴化硼（7.3 g），昇溫至室溫並攪拌 0.5 小時。其後，再次冷卻至 0℃並加入 N,N-二異丙基乙胺（2.6 g），於室溫下攪拌至發熱結束後，昇溫至 100℃並加熱攪拌 1 小時。將反應液冷卻至室溫，依次加入利用冰浴進行了冷卻的乙酸鈉水溶液、乙酸乙酯並攪拌 1 小時。將有機層分液後，進行水洗（2 次）並將溶媒減壓餾去。向所獲得的殘渣中加入甲醇並進行冰浴冷卻，對其沈澱進行過濾並利用甲醇進行清洗。將黃色結晶加熱溶解於甲苯中後，利用矽膠短管柱（溶離液：甲苯）進行精製。將所獲得的粗產物加入甲苯而進行濃縮後，依次加入乙酸乙酯、索爾米克斯（Solmix）（A-11），然後將乙酸乙酯餾去，對所析出的結晶進行過濾，進而利用甲醇來清洗結晶，藉此獲得化合物（1-590）（4.0 g）。



【0691】 藉由 NMR 測定來確認所獲得的化合物的結構。

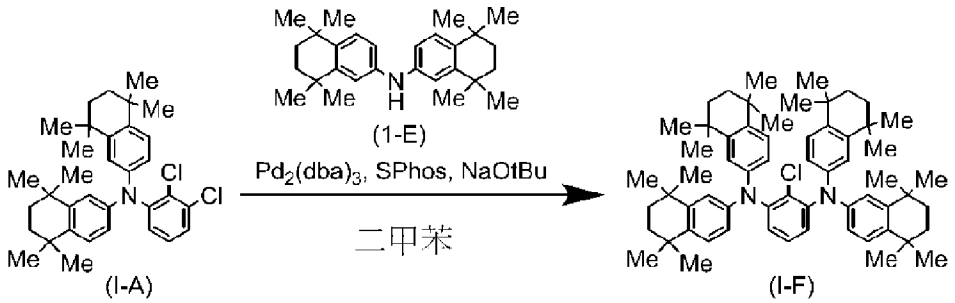
^{1}H-NMR（$CDCl_3$）：δ = 1.08 (s, 6H), 1.27 (s, 6H), 1.42 (s, 6H), 1.46 (s, 9H), 1.47 (s, 9H), 1.48 (s, 6H), 1.69-1.81 (m, 8H), 2.18 (s, 3H), 5.97 (s, 1H), 6.06 (s, 1H), 6.52 (s, 1H), 6.67 (d, 1H), 7.08 (dd, 1H), 7.25-7.29 (m, 3H), 7.48 (dd, 1H), 7.59 (d, 1H), 7.67 (d, 2H), 8.89 (s, 1H), 8.97 (d, 1H).

【0692】 合成例（3）：化合物（1-1301）的合成



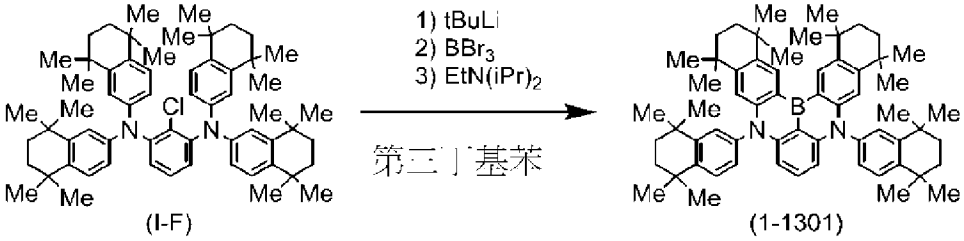
【0693】 於氮氣環境下，將化合物（I-A）（8.0 g）、化合物（I-E）（5.6 g）、三(二亞苄基丙酮)二鈀（0）[$Pd_2(dba)_3$、0.16 g]、二環己基(2',6'-二甲氧基-[1,1'-聯苯]-2-基)膦（SPhos、0.24 g）、NaOtBu（2.1 g）及二甲苯（40 ml）放入至燒瓶中，於 120℃下加熱 1 小

時。反應後，向反應液中加入水與甲苯並進行攪拌後，將有機層分離並進行水洗。其後，將有機層濃縮而獲得粗產物。利用矽膠短管柱（溶離液：甲苯）對粗產物進行精製後，將溶媒濃縮，向所獲得的粗產物中加入庚烷並進行冰浴冷卻，對所析出的結晶進行過濾並利用庚烷進行清洗，藉此獲得化合物（I-F）（10.5 g）。



【0694】 於氮氣環境下，且於 0℃下向放入有化合物（I-F）（10.5 g）及第三丁基苯（200 ml）的燒瓶中加入 1.53 M 的第三丁基鋰戊烷溶液（14.4 ml）。滴加結束後，昇溫至 60℃並攪拌 0.5 小時後，將沸點低於第三丁基苯的成分減壓餾去。冷卻至-50℃並加入三溴化硼（5.9 g），昇溫至室溫並攪拌 0.5 小時。其後，再次冷卻至 0℃並加入 N,N-二異丙基乙胺（3.1 g），於室溫下攪拌至發熱結束後，昇溫至 100℃並加熱攪拌 1 小時。將反應液冷卻至室溫，依次加入利用冰浴進行了冷卻的乙酸鈉水溶液、乙酸乙酯並攪拌 1 小時。將有機層分離並進行 2 次水洗。其後，將有機層濃縮，利用矽膠（NH 二氧化矽）短管柱（溶離液：甲苯/庚烷=1/9（容量比））對所獲得的粗產物進行精製。將所獲得的粗產物濃縮後，加入庚烷

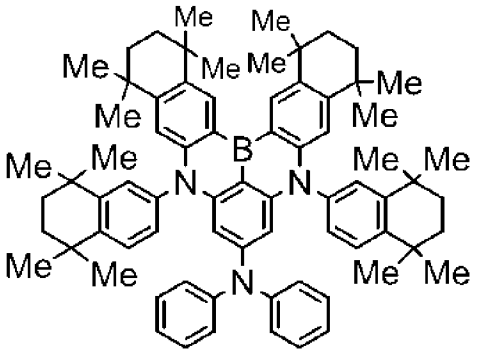
並對所析出的結晶進行過濾，進而利用庚烷進行清洗，藉此獲得化合物（1-1301）（1.9 g）。



【0695】 藉由 NMR 測定來確認所獲得的化合物的結構。

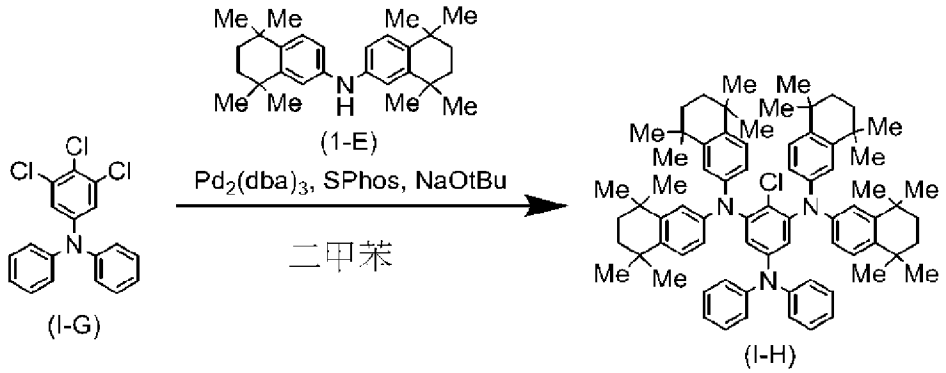
^{1}H-NMR（$CDCl_3$）：δ = 1.09 (s, 12H), 1.27 (s, 12H), 1.42 (s, 12H), 1.49 (s, 12H), 1.70-1.80 (m, 16H), 6.20 (d, 2H), 6.56 (s, 2H), 7.09 (dd, 2H), 7.25-7.30 (m, 3H), 7.58 (d, 2H), 8.91 (s, 2H).

【0696】 合成例（4）：化合物（1-1302）的合成



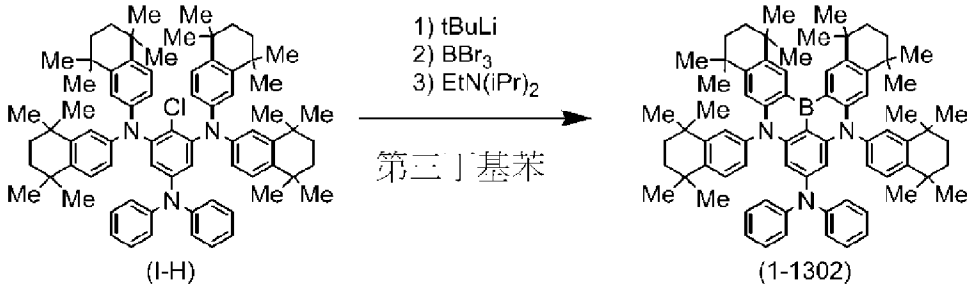
【0697】 於氮氣環境下，將化合物（I-G）（8.0 g）、化合物（I-E）（19.7 g）、$Pd_2(dba)_3$（0.52 g）、SPhos（0.94 g）、NaOtBu（5.5 g）及二甲苯（80 ml）放入至燒瓶中，於 120℃下加熱攪拌 3 小時後，

於 130℃下攪拌 1 小時。反應後，向反應液中加入水與甲苯並進行攪拌後，將有機層分離並進行水洗。其後，將有機層濃縮而獲得粗產物。利用矽膠管柱（溶離液：甲苯/庚烷=10/90（容量比）→15/85（容量比））對粗產物進行精製後，將溶媒濃縮而獲得化合物（I-H）（15.3 g）。



【0698】 於氮氣環境下，且於 0℃下向放入有化合物（I-H）（15.3 g）及第三丁基苯（100 ml）的燒瓶中加入 1.53 M 的第三丁基鋰戊烷溶液（13.2 ml）。滴加結束後，昇溫至 60℃並攪拌 0.5 小時後，將沸點低於第三丁基苯的成分減壓餾去。冷卻至-50℃並加入三溴化硼（5.3 g），昇溫至室溫並攪拌 0.5 小時。其後，再次冷卻至 0℃並加入 N,N-二異丙基乙胺（2.7 g），於室溫下攪拌至發熱結束後，昇溫至 100℃並加熱攪拌 1 小時。將反應液冷卻至室溫，依次加入利用冰浴進行了冷卻的乙酸鈉水溶液、乙酸乙酯並攪拌 1 小時。將有機層分液後，進行水洗（2 次），並對藉由加入庚烷而析出的沈澱進行過濾。利用甲醇及水對其沈澱物進行清洗，將所獲得的

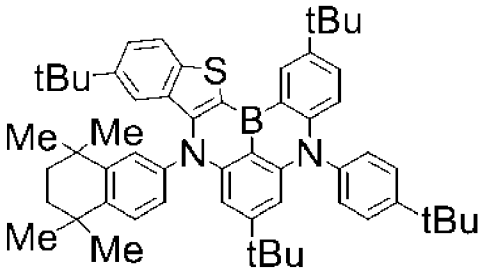
黃色結晶加熱溶解於甲苯中後，利用矽膠短管柱（溶離液：甲苯）進行精製。將溶媒餾去，向所獲得的粗產物中加入庚烷，對所獲得的結晶進行過濾後，進而利用庚烷進行清洗，藉此獲得化合物（1-1302）（7.23 g）。



【0699】 藉由 NMR 測定來確認所獲得的化合物的結構。

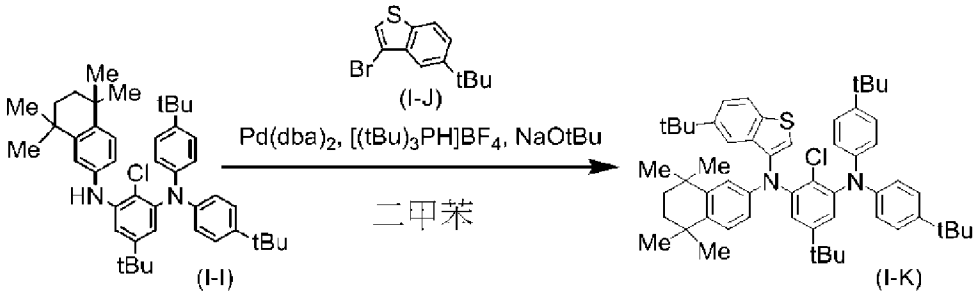
^{1}H-NMR（$CDCl_3$）：δ = 1.07 (s, 12H), 1.11 (s, 6H), 1.19 (s, 6H), 1.24 (s, 6H), 1.35 (s, 6H), 1.48 (s, 12H), 1.68-1.75 (m, 16H), 5.63 (s, 2H), 6.55 (s, 2H), 6.89 (t, 2H), 6.91-6.92 (m, 2H), 6.93-6.95 (m, 4H), 7.04 (t, 4H), 7.13 (dd, 2H), 7.37 (d, 2H), 8.85 (s, 2H).

【0700】 合成例（5）：化合物（1-1823）的合成



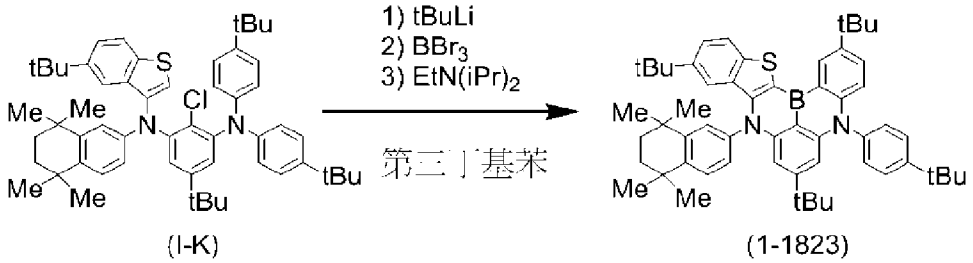
(1-1823)

【0701】 於氮氣環境下，將化合物（I-I）（35.0 g）、3-溴-5-第三丁基-苯並[b]噻吩（化合物 I-J：17.4 g）、$Pd(dba)_2$（1.86 g）、NaOtBu（10.4 g）、三-第三丁基鏻四氟硼酸鹽（$[(tBu)_3PH]BF_4$）：1.87 g及二甲苯（300 ml）放入至燒瓶中，於 120℃下加熱 1 小時。反應後，向反應液中加入水與甲苯並進行攪拌後，將有機層分離並進行水洗。其後，將有機層濃縮而獲得粗產物。利用矽膠管柱（溶離液：甲苯/庚烷=1/4（容量比））對粗產物進行精製後，將溶媒濃縮。利用真空泵對玻璃狀的固體進行乾燥，藉此獲得化合物（I-K）（35 g）。



【0702】 於氮氣環境下，且於 0℃下向放入有化合物（I-K）（16.7 g）及第三丁基苯（400 ml）的燒瓶中加入 1.60 M 的第三丁基鋰戊烷溶液（25.0 ml）。滴加結束後，昇溫至 60℃並攪拌 0.5 小時後，將沸點低於第三丁基苯的成分減壓餾去。冷卻至-50℃並加入三溴化硼（10.0 g），昇溫至室溫並攪拌 0.5 小時。其後，再次冷卻至 0℃並加入 N,N-二異丙基乙胺（5.2 g），於室溫下攪拌至發熱結束後，昇溫至 90℃並加熱攪拌 1 小時。將反應液冷卻至室溫，依次加入

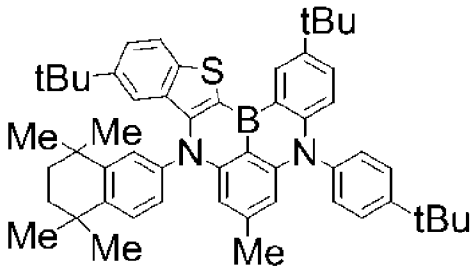
利用冰浴進行了冷卻的乙酸鈉水溶液、甲苯並攪拌 1 小時。將甲苯溶液濃縮後，添加庚烷並利用矽膠管柱（溶離液：甲苯/庚烷=1/4（容量比））進行精製。利用甲苯對所獲得的粗產物反覆進行再結晶，藉此獲得化合物（1-1823）（2.8 g）。



【0703】 藉由 NMR 測定來確認所獲得的化合物的結構。

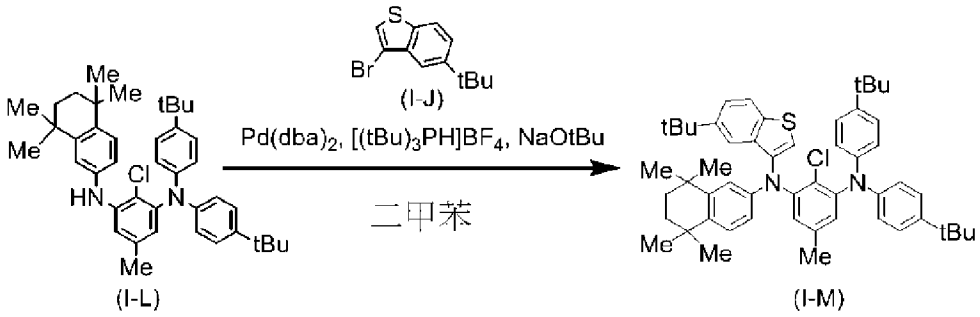
^{1}H-NMR（$CDCl_3$）：δ = 0.99 (s, 9H), 1.11 (s, 9H), 1.30 (s, 6H), 1.43 (s, 3H), 1.46 (m, 12H), 1.51 (s, 9H), 1.78-1.86 (m, 4H), 6.15 (s, 1H), 6.65 (s, 1H), 6.74 (s, 1H), 7.23-7.29 (d, 4H), 7.41 (d, 1H), 7.46 (d, 1H), 7.53 (s, 1H), 7.66-7.68 (m, 3H), 7.90 (d, 1H), 8.78 (s, 1H).

【0704】 合成例（6）：化合物（1-1821）的合成



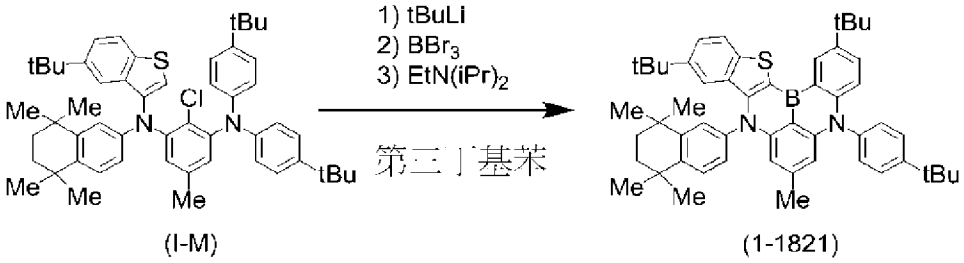
(1-1821)

【0705】 於氮氣環境下，將化合物（I-L）（71.0 g）、化合物（I-J）（37.8 g）、$Pd(dba)_2$（2.14 g）、NaOtBu（16.9 g）、$[(tBu)_3PH]BF_4$（1.36 g）及二甲苯（710 ml）放入至燒瓶中，於130℃下進行1小時加熱回流。將反應液冷卻至室溫後，加入水與甲苯，將有機層分離並進行水洗。於減壓下將該溶液濃縮，利用矽膠管柱（溶離液：甲苯）對殘渣進行精製，進而利用庚烷進行清洗，藉此獲得化合物（I-M）（71.3 g）。

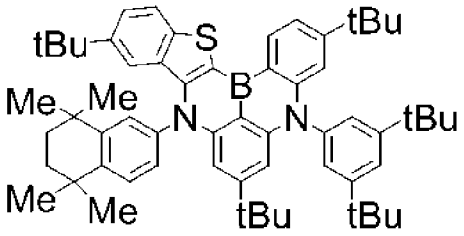


【0706】 於氮氣環境下，且於0℃下向放入有化合物（I-M）（32.0 g）及第三丁基苯（400 ml）的燒瓶中加入1.60 M的第三丁基鋰戊烷溶液（50.0 ml）。滴加結束後，昇溫至60℃並攪拌0.5小時後，將沸點低於第三丁基苯的成分減壓餾去。冷卻至-50℃並加入三溴化硼（20.0 g），昇溫至室溫並攪拌0.5小時。其後，再次冷卻至0℃並加入N,N-二異丙基乙胺（10.4 g），於室溫下攪拌至發熱結束後，昇溫至70℃並加熱攪拌1小時。將反應液冷卻至室溫，依次加入利用冰浴進行了冷卻的乙酸鈉水溶液、乙酸乙酯並攪拌1小時，將有機層分離並進行水洗。於減壓下將該溶液濃縮，利用乙酸乙

酯對殘渣進行清洗後，利用矽膠管柱（溶離液：甲苯/庚烷=1/1（容量比））進行精製。利用庚烷對所獲得的粗產物進行清洗，藉此獲得化合物（1-1821）（7.1 g）。



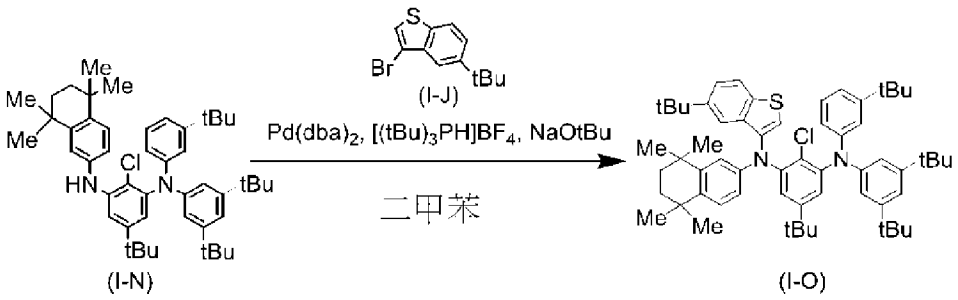
【0707】 合成例（7）：化合物（1-3623）的合成



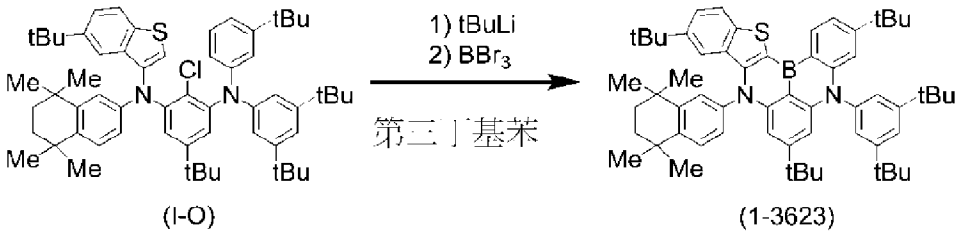
(1-3623)

【0708】 於氮氣環境下，將化合物（I-N）（60.0 g）、化合物（I-J）（28.6 g）、$Pd(dba)_2$（2.93 g）、NaOtBu（12.3 g）、$[(tBu)_3PH]BF_4$（2.96 g）及二甲苯（660 ml）放入至燒瓶中，於120℃下加熱2小時。將反應液冷卻至室溫後，加入水與甲苯，將有機層分離並進行水洗。於減壓下將該溶液濃縮，利用矽膠管柱（溶離液：甲苯/庚烷=1/3（容量比））對殘渣進行精製，進而利用甲醇進行清洗，

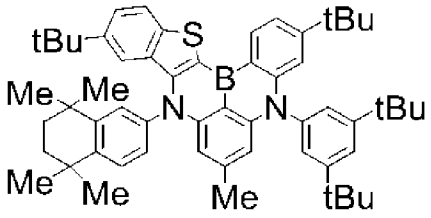
藉此獲得化合物（I-O）（68.0 g）。



【0709】 於氮氣環境下，且於 0℃下向放入有化合物（I-O）（35.8 g）及第三丁基苯（800 ml）的燒瓶中加入 1.61 M 的第三丁基鋰戊烷溶液（50.0 ml）。滴加結束後，昇溫至 60℃並攪拌 0.5 小時後，將沸點低於第三丁基苯的成分減壓餾去。冷卻至-50℃並加入三溴化硼（20.0 g），昇溫至室溫並攪拌 0.5 小時。其後，昇溫至 50℃並加熱攪拌 0.5 小時。將反應液冷卻至室溫，依次加入利用冰浴進行了冷卻的乙酸鈉水溶液、乙酸乙酯並攪拌 1 小時，將有機層分離並進行水洗。於減壓下將該溶液濃縮，利用乙酸乙酯對殘渣進行清洗後，利用矽膠管柱（溶離液：甲苯）進行精製。進而，藉由自甲苯的再結晶而進行精製，藉此獲得化合物（1-3623）（9.3 g）。

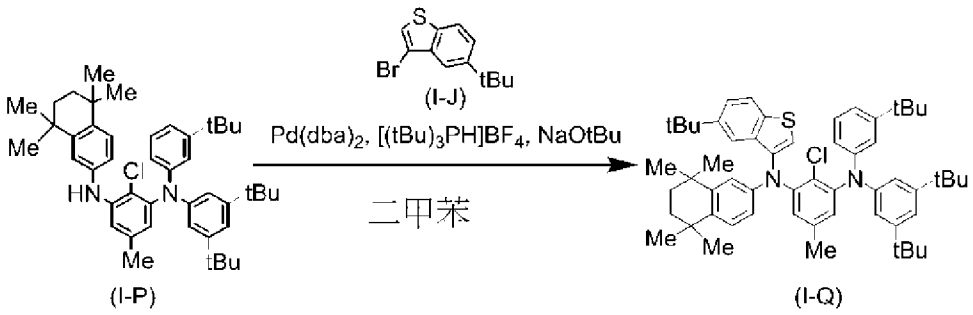


【0710】 合成例（8）：化合物（1-3621）的合成



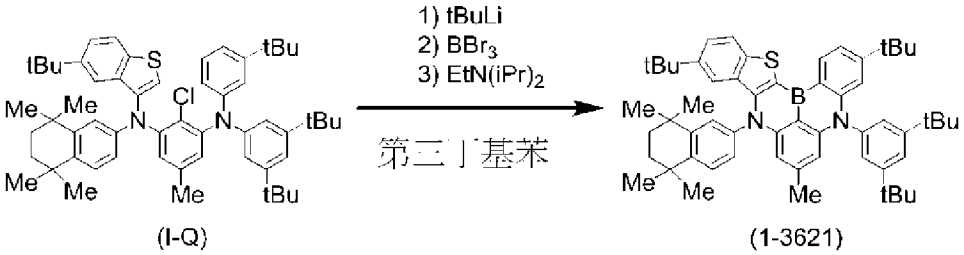
(1-3621)

【0711】 於氮氣環境下，將化合物（I-P）（65.0 g）、化合物（I-J）（31.7 g）、$Pd(dba)_2$（1.79 g）、NaOtBu（14.1 g）、$[(tBu)_3PH]BF_4$（1.14 g）及二甲苯（520 ml）放入至燒瓶中，於130℃下加熱2小時。將反應液冷卻至室溫後，加入水與甲苯，將有機層分離並進行水洗。於減壓下將該溶液濃縮，利用矽膠管柱（溶離液：甲苯/庚烷=1/4（容量比））對殘渣進行精製。利用真空泵對玻璃狀的固體進行乾燥，藉此獲得化合物（I-Q）（52 g）。



【0712】 於氮氣環境下，且於0℃下向放入有化合物（I-Q）（35.0

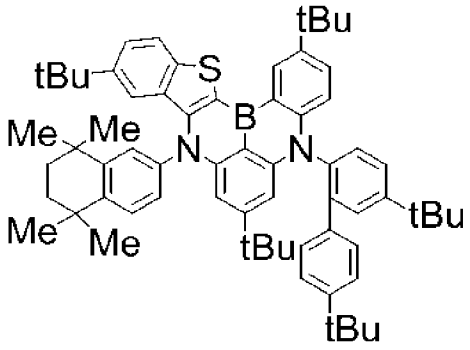
g）及第三丁基苯（280 ml）的燒瓶中加入 1.60 M 的第三丁基鋰戊烷溶液（50.0 ml），昇溫至 60℃並攪拌 0.5 小時。繼而，冷卻至-50℃並加入三溴化硼（20.6 g），昇溫至室溫並攪拌 0.5 小時。其後，再次冷卻至 0℃並加入 N,N-二異丙基乙胺（10.6 g），於室溫下攪拌至發熱結束後，昇溫至 90℃並加熱攪拌 1 小時。將反應液冷卻至室溫，依次加入利用冰浴進行了冷卻的乙酸鈉水溶液、乙酸乙酯並攪拌 1 小時，將有機層分離並進行水洗。於減壓下將該溶液濃縮，利用乙酸乙酯對殘渣進行清洗後，利用矽膠管柱（溶離液：甲苯/庚烷=1/1（容量比））進行精製。進而，藉由自甲苯的再結晶而進行精製，藉此獲得化合物（1-3621）（7.2 g）。



【0713】 藉由 NMR 測定來確認所獲得的化合物的結構。

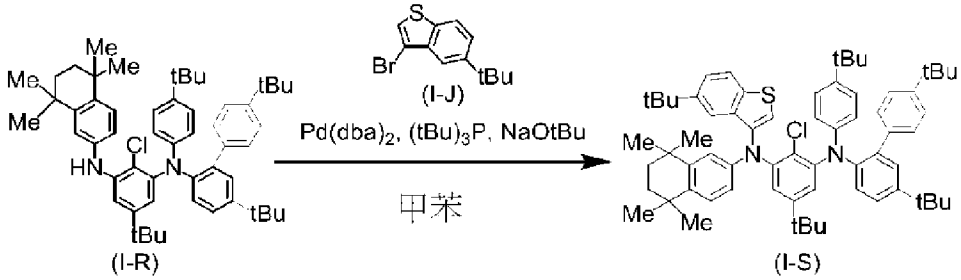
^{1}H-NMR（$CDCl_3$）：δ = 1.11 (s, 9H), 1.19 (s, 9H), 1.26 (s, 3H), 1.28 (s, 3H), 1.37 (s, 18H), 1.44-1.47 (m, 6H), 1.77-1.86 (m, 4H), 2.21 (s, 3H), 6.08 (s, 1H), 6.10 (s, 1H), 6.53 (d, 1H), 6.61 (d, 1H), 7.20 (d, 2H), 7.26 (dd, 1H), 7.31 (dd, 1H), 7.40 (dd, 1H), 7.48 (d, 1H), 7.61 (t, 1H), 7.66 (d, 1H), 7.88 (d, 1H), 8.69 (d, 1H).

【0714】 合成例（9）：化合物（1-1828）的合成



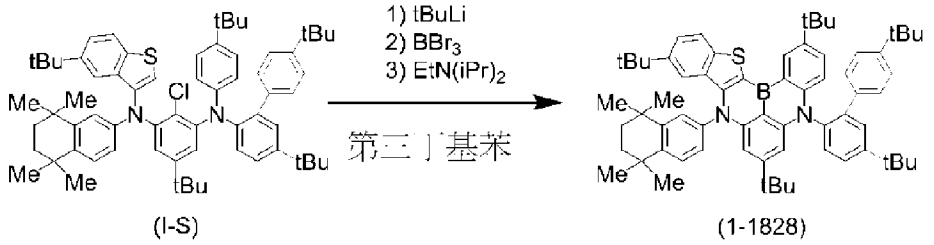
(1-1828)

【0715】 於氮氣環境下，將化合物（I-R）（63.8 g）、化合物（I-J）（24.2 g）、$Pd(dba)_2$（0.939 g）、NaOtBu（11.8 g）、三-第三丁基膦（$(tBu)_3P$：3.27 ml）及甲苯（630 ml）放入至燒瓶中，於 110℃下加熱 4 小時。將反應液冷卻至室溫後，加入水與甲苯，將有機層分離並進行水洗。於減壓下將該溶液濃縮，利用矽膠管柱（溶離液：甲苯/庚烷=1/6（容量比））對殘渣進行精製。利用真空泵對玻璃狀的固體進行乾燥，藉此獲得化合物（I-S）（44 g）。



【0716】 於氮氣環境下，且於 0℃下向放入有化合物（I-S）（44.3 g）及第三丁基苯（400 ml）的燒瓶中加入 1.61 M 的第三丁基鋰戊

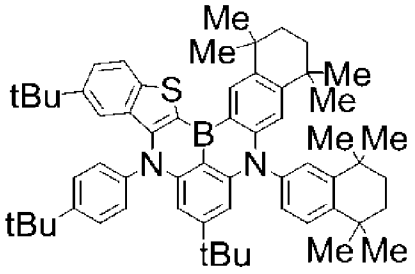
烷溶液（56.7 ml）。滴加結束後，昇溫至 60℃並攪拌 0.5 小時後，將沸點低於第三丁基苯的成分減壓餾去。冷卻至-50℃並加入三溴化硼（22.9 g），昇溫至室溫並攪拌 0.5 小時。其後，再次冷卻至 0℃並加入 N,N-二異丙基乙胺（16.0 g），於室溫下攪拌至發熱結束後，昇溫至 120℃並加熱攪拌 1 小時。將反應液冷卻至室溫，加入利用冰浴進行了冷卻的乙酸鈉水溶液及甲苯並進行攪拌後，將有機層分離並進行水洗。其後，將有機層濃縮，利用矽膠管柱（溶離液：甲苯/庚烷=1/4（容量比））對所獲得的粗產物進行精製，進而，藉由自甲苯及庚烷的混合溶媒（甲苯/庚烷=1/1（容量比））的再結晶而進行精製，藉此獲得化合物（1-1828）（5.0 g）。



【0717】 藉由 NMR 測定來確認所獲得的化合物的結構。

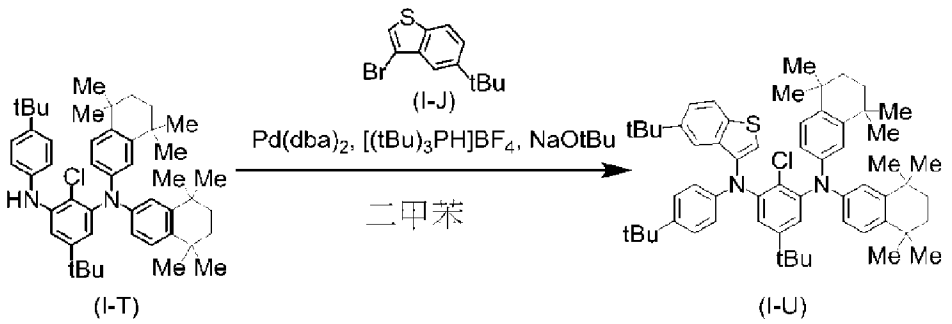
^{1}H-NMR（$CDCl_3$）：δ = 0.96-0.99 (m, 9H), 1.10 (s, 9H), 1.12 (s, 9H), 1.25-1.32 (m, 6H), 1.39-1.51 (m, 24H), 1.76-1.86 (m, 4H), 6.05-6.28 (m, 2H), 6.66-6.80 (m, 2H), 7.01-7.08 (m, 2H), 7.12-7.24 (m, 4H), 7.37-7.47 (m, 2H), 7.48-7.69 (m, 3H), 7.70 (s, 1H), 7.88 (d, 1H), 8.70 (s, 1H).

【0718】 合成例（10）：化合物（1-3604）的合成



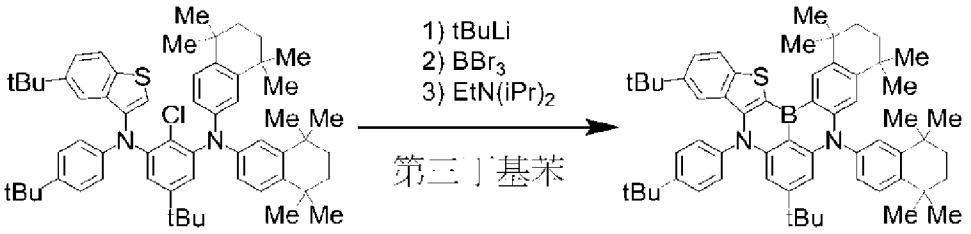
(1-3604)

【0719】 於氮氣環境下，將化合物（I-T）（49.7 g）、化合物（I-J）（22.8 g）、$Pd(dba)_2$（2.44 g）、NaOtBu（13.6 g）、$[(tBu)_3PH]BF_4$（2.46 g）及二甲苯（600 ml）放入至燒瓶中，於120℃下加熱3小時。將反應液冷卻至室溫後，加入水與甲苯，將有機層分離並進行水洗。於減壓下將該溶液濃縮，利用矽膠管柱（溶離液：庚烷）對殘渣進行精製，進而，藉由自庚烷的再結晶而進行精製，藉此獲得化合物（I-U）（45 g）。



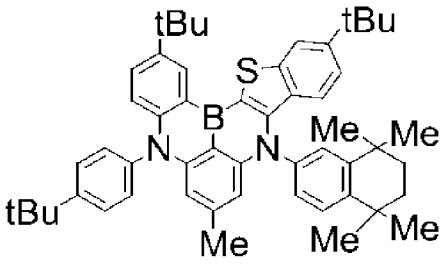
【0720】 於氮氣環境下，且於0℃下向放入有化合物（I-U）（40.4 g）及第三丁基苯（270 ml）的燒瓶中加入1.60 M的第三丁基鋰戊烷溶液（50.0 ml）。滴加結束後，昇溫至60℃並攪拌0.5小時後，

將沸點低於第三丁基苯的成分減壓餾去。冷卻至-50℃並加入三溴化硼（20.0 g），昇溫至 50℃並攪拌 0.5 小時。其後，再次冷卻至 0℃並加入 N,N-二異丙基乙胺（10.4 g），於室溫下攪拌至發熱結束後，昇溫至 80℃並加熱攪拌 0.5 小時。將反應液冷卻至室溫，依次加入利用冰浴進行了冷卻的乙酸鈉水溶液、乙酸乙酯並攪拌 1 小時，將有機層分離並進行水洗。於減壓下將該溶液濃縮，利用乙酸乙酯對殘渣進行清洗後，利用矽膠管柱（溶離液：甲苯）進行精製。進而，藉由自甲苯的再結晶而進行精製，藉此獲得化合物（1-3604）（3.8 g）。



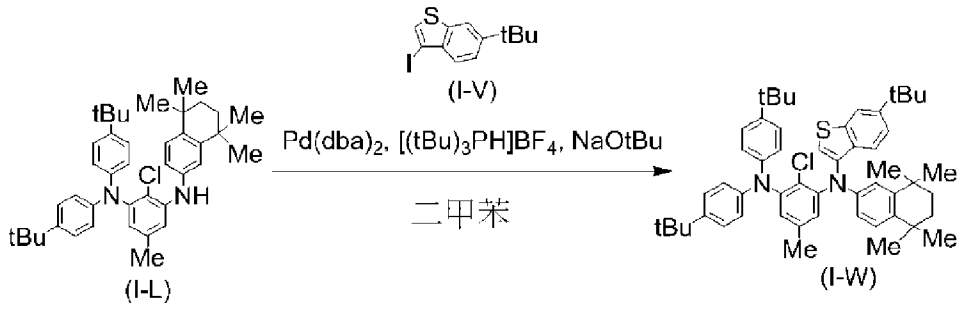
(I-U)　　(1-3604)

【0721】 合成例（11）：化合物（1-1851）的合成



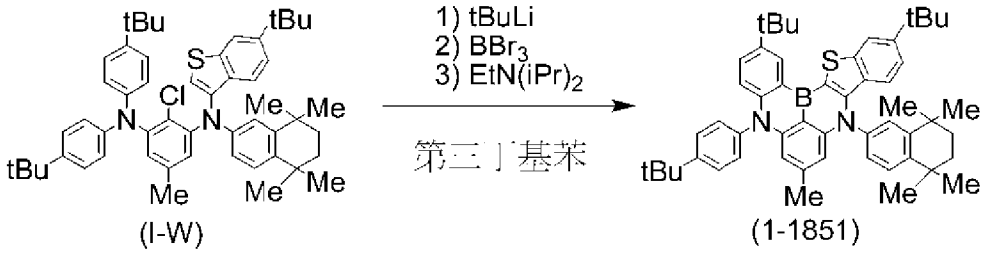
(1-1851)

【0722】 於氮氣環境下，將化合物（I-L）（29.0 g）、化合物（I-V）（18.9 g）、$Pd(dba)_2$（0.55 g）、NaOtBu（6.9 g）、$[(tBu)_3PH]BF_4$（0.55 g）及二甲苯（100 ml）放入至燒瓶中，於120℃下進行1小時加熱回流。將反應液冷卻至室溫後，加入水與乙酸乙酯，將有機層分離並進行水洗。於減壓下將該溶液濃縮，利用矽膠管柱（溶離液：甲苯/庚烷=1/1（容量比））對殘渣進行精製，於濃縮後加入乙酸乙酯，對所獲得的結晶進行過濾後，利用甲醇進行清洗，藉此獲得化合物（I-W）（25.0 g）。



【0723】 於氮氣環境下，且於0℃下向放入有化合物（I-W）（25.0 g）及第三丁基苯（160 ml）的燒瓶中加入1.60 M的第三丁基鋰戊烷溶液（39.3 ml）。滴加結束後，昇溫至60℃並攪拌0.5小時後，將沸點低於第三丁基苯的成分減壓餾去。冷卻至-50℃並加入三溴化硼（15.7 g），昇溫至室溫並攪拌0.5小時。其後，再次冷卻至0℃並加入N,N-二異丙基乙胺（8.1 g），於室溫下攪拌至發熱結束後，昇溫至80℃並加熱攪拌1小時。將反應液冷卻至室溫，依次加入利用冰浴進行了冷卻的乙酸鈉水溶液、乙酸乙酯並攪拌1小時，

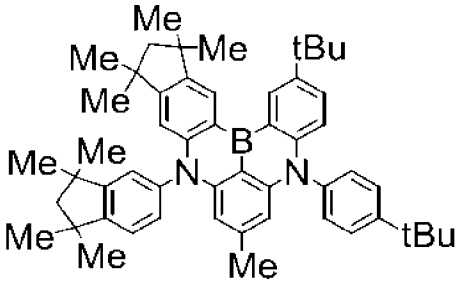
將有機層分離並進行水洗。於減壓下將該溶液濃縮，利用乙酸乙酯對殘渣進行清洗後，利用矽膠管柱（溶離液：甲苯/庚烷=2/8（容量比））進行精製。利用庚烷對所獲得的粗產物進行清洗，藉此獲得化合物（1-1851）（7.5 g）。



【0724】 藉由 NMR 測定來確認所獲得的化合物的結構。

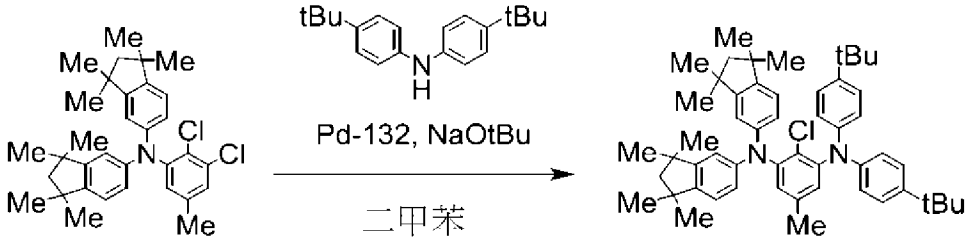
^{1}H-NMR（$CDCl_3$）：δ = 1.23 (s, 3H), 1.29 (s, 3H), 1.36 (s, 9H), 1.46 (s, 9H), 1.49 (s, 6H), 1.51 (s, 9H), 1.82-1.89 (m, 4H), 2.22 (s, 3H), 5.80 (d, 1H), 5.99 (s, 1H), 6.24 (s, 1H), 6.56 (d, 1H), 6.92 (d, 1H), 7.20 (dd, 1H), 7.22-7.28 (m, 2H), 7.44-7.47 (m, 2H), 7.63 (d, 1H), 7.68 (d, 2H), 7.96 (s, 1H), 8.78 (d, 1H).

【0725】 合成例（12）：化合物（1-5121）的合成



(1-5121)

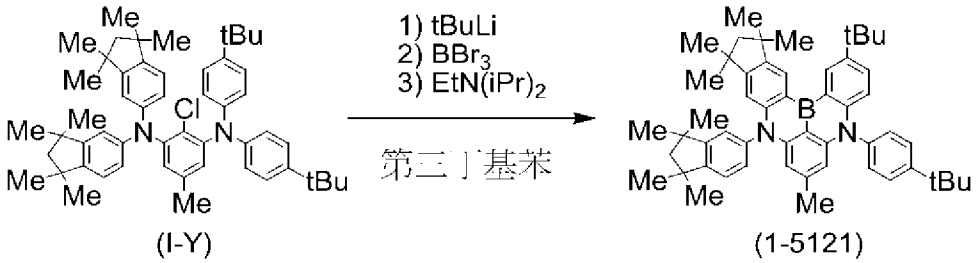
【0726】 於氮氣環境下，將化合物（I-X）（10.0 g）、雙(4-第三丁基苯基)胺（5.15 g）、Pd-132（0.13 g）、NaOtBu（2.6 g）及二甲苯（40 ml）放入至燒瓶中，於120℃下加熱1小時。反應後，向反應液中加入水與乙酸乙酯並進行攪拌後，將有機層分離並進行水洗。其後，將有機層濃縮而獲得粗產物。向粗產物中加入索爾米克斯（Solmix），對所析出的固體進行過濾分離，並利用甲醇對固體進行清洗。其後，利用矽膠短管柱（溶離液：甲苯/庚烷=1/1（容積比））進行精製後，將溶媒濃縮，向所獲得的粗產物中加入乙酸乙酯，對所析出的結晶進行過濾並利用甲醇來清洗結晶，藉此獲得化合物（I-Y）（8.5 g）。



(I-X) (I-Y)

【0727】 於氮氣環境下，且於0℃下向放入有化合物（I-Y）（8.5 g）及第三丁基苯（85 ml）的燒瓶中加入1.60 M的第三丁基鋰戊烷溶液（13.9 ml）。滴加結束後，昇溫至60℃並攪拌0.5小時後，將沸點低於第三丁基苯的成分減壓餾去。冷卻至-50℃並加入三溴化硼（5.6 g），昇溫至室溫並攪拌0.5小時。其後，再次冷卻至0℃

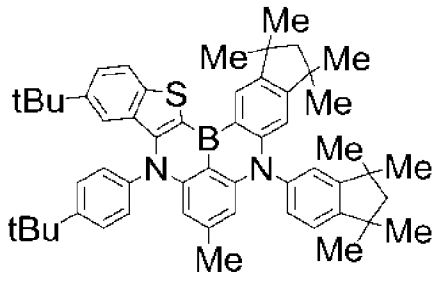
並加入 N,N-二異丙基乙胺（2.9 g），於室溫下攪拌至發熱結束後，昇溫至 80℃並加熱攪拌 1 小時。將反應液冷卻至室溫，依次加入利用冰浴進行了冷卻的乙酸鈉水溶液、乙酸乙酯並攪拌 1 小時。將有機層水洗 2 次後，將有機層濃縮而獲得粗產物。於濃縮後添加索爾米克斯（Solmix），對所析出的固體進行過濾。其後，利用矽膠管柱（溶離液：甲苯/庚烷=1/1（容量比））對粗體進行精製。反覆進行向所獲得的粗產物中加入索爾米克斯（Solmix），並對所獲得的結晶進行過濾的步驟，藉此獲得化合物（1-5121）（3.0 g）。



【0728】 藉由 NMR 測定來確認所獲得的化合物的結構。

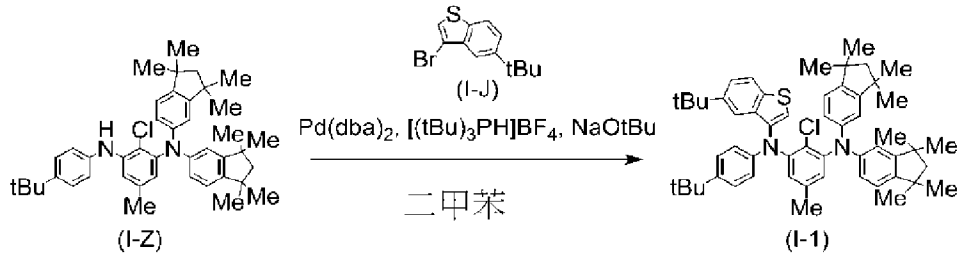
^{1}H-NMR（$CDCl_3$）：δ = 1.19 (s, 6H), 1.32 (s, 6H), 1.46 (s, 30H), 1.97 (s, 2H), 2.06 (s, 2H), 2.18 (s, 3H), 5.95 (s, 1H), 6.05 (s, 1H), 6.36 (s, 1H), 6.66 (d, 1H), 7.10 (d, 1H), 7.18 (dd, 1H), 7.27 (d, 2H), 7.39 (d, 1H), 7.48 (d, 1H), 7.67 (d, 2H), 8.67 (s, 1H), 8.96 (d, 1H).

【0729】 合成例（13）：化合物（1-2663）的合成



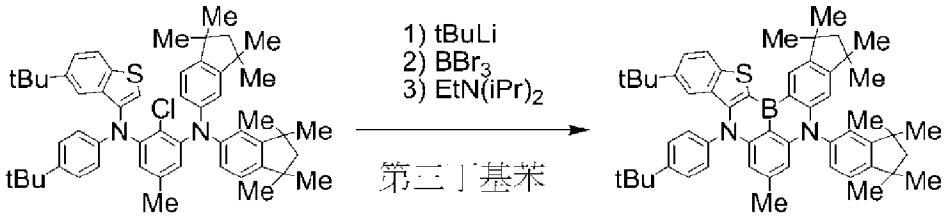
(1-2663)

【0730】 於氮氣環境下，將化合物（I-Z）（20.0 g）、化合物（I-J）（10.2 g）、$Pd(dba)_2$（0.54 g）、NaOtBu（4.6 g）、$[(tBu)_3PH]BF_4$（0.55 g）及二甲苯（60 ml）放入至燒瓶中，於120℃下進行1小時加熱回流。將反應液冷卻至室溫後，加入水與乙酸乙酯，將有機層分離並進行水洗。於減壓下將該溶液濃縮，利用矽膠管柱（溶離液：甲苯/庚烷=1/1（容量比））對殘渣進行精製，於濃縮後加入索爾米克斯（Solmix），對所獲得的結晶進行過濾後，利用甲醇進行清洗，藉此獲得化合物（I-1）（24.0 g）。



【0731】 於氮氣環境下，且於0℃下向放入有化合物（I-1）（24.0 g）及第三丁基苯（200 ml）的燒瓶中加入1.60 M的第三丁基鋰戊烷溶液（36.5 ml）。滴加結束後，昇溫至60℃並攪拌0.5小時後，將沸點低於第三丁基苯的成分減壓餾去。冷卻至-50℃並加入三溴

化硼（14.6 g），昇溫至室溫並攪拌 0.5 小時。其後，再次冷卻至 0℃並加入 N,N-二異丙基乙胺（7.6 g），於室溫下攪拌至發熱結束後，昇溫至 80℃並加熱攪拌 1 小時。將反應液冷卻至室溫，依次加入利用冰浴進行了冷卻的乙酸鈉水溶液、乙酸乙酯並攪拌 1 小時，將有機層分離並進行水洗。於減壓下將該溶液濃縮，向殘渣中加入庚烷，利用庚烷對所析出的固體進行清洗後，利用矽膠管柱（溶離液：甲苯/庚烷=1/1（容量比））進行精製。向所獲得的粗產物中加入庚烷，利用庚烷對所析出的固體進行清洗，反覆進行所述操作而獲得化合物（1-2663）（5.7 g）。

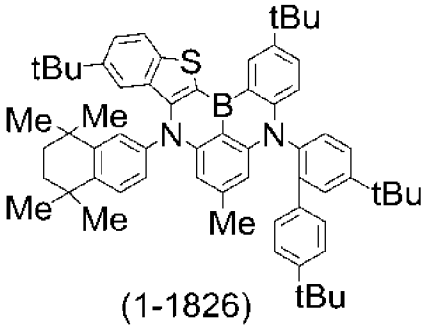


(I-1)　　(1-2663)

【0732】 藉由 NMR 測定來確認所獲得的化合物的結構。

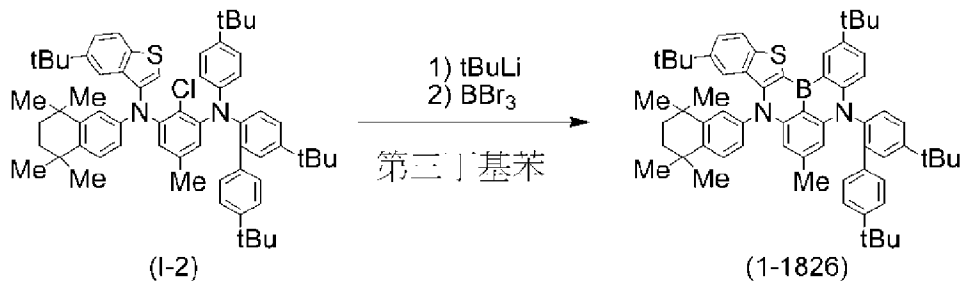
^{1}H-NMR（$CDCl_3$）：δ = 1.09 (s, 9H), 1.18 (d, 6H), 1.32 (d, 6H), 1.46 (d, 6H), 1.50 (s, 9H), 1.52 (s, 6H), 1.96 (s, 2H), 2.06 (s, 2H), 2.21 (s, 3H), 6.07 (s, 2H), 6.25 (s, 1H), 6.51 (s, 1H), 7.08 (d, 1H), 7.17 (dd, 1H), 7.38-7.41 (m, 2H), 7.47 (d, 2H), 7.65 (d, 2H), 7.88 (d, 1H), 8.51 (s, 1H).

【0733】 合成例（14）：化合物（1-1826）的合成



(1-1826)

【0734】 於氮氣環境下，且於 0℃下向放入有化合物（I-2）（55.5 g）及第三丁基苯（450 ml）的燒瓶中加入 1.60 M 的第三丁基鋰戊烷溶液（75.0 ml）。滴加結束後，昇溫至 60℃並攪拌 0.5 小時後，將沸點低於第三丁基苯的成分減壓餾去。冷卻至-50℃並加入三溴化硼（30.0 g），昇溫至室溫並攪拌 0.5 小時後，昇溫至 80℃並加熱攪拌 1 小時。將反應液冷卻至室溫，加入利用冰浴進行了冷卻的乙酸鈉水溶液及甲苯並進行攪拌後，將有機層分離並進行水洗。其後，將有機層濃縮，利用矽膠管柱（溶離液：甲苯/庚烷=1/1（容量比））對殘渣進行精製。依次利用丙酮及庚烷對所獲得的粗產物進行清洗，藉此獲得化合物（1-1826）（6.60 g）。

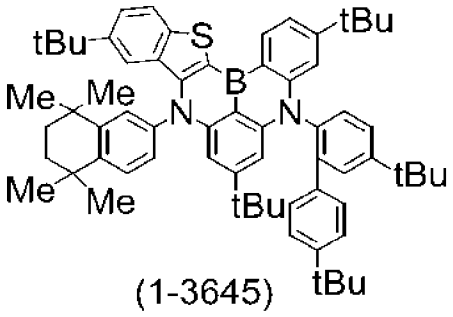


(I-2) (1-1826)

【0735】 藉由 NMR 測定來確認所獲得的化合物的結構。

^{1}H-NMR（$CDCl_3$）：δ = 1.09-1.16 (m, 18H), 1.25-1.34 (m, 6H), 1.42-1.50 (m, 24H), 1.76-1.86 (m, 4H), 2.19 (s, 3H), 6.03-6.12 (m, 2H), 6.57-6.66 (m, 2H), 7.01-7.08 (m, 2H), 7.12-7.25 (m, 4H), 7.37-7.44 (m, 2H), 7.48-7.54 (m, 1H), 7.58 (dd, 1H), 7.60-7.67 (m, 1H), 7.67-7.71 (m, 1H), 7.88 (d, 1H), 8.68-8.72 (m, 1H).

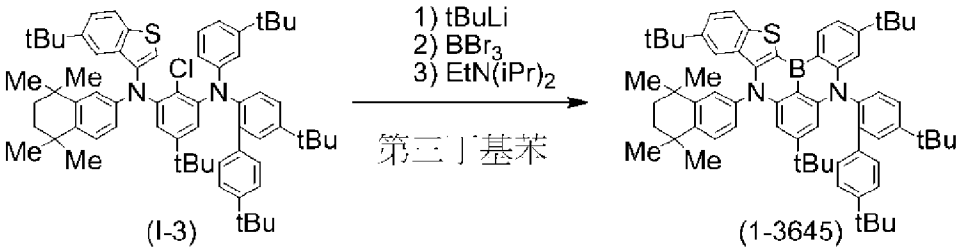
【0736】 合成例（15）：化合物（1-3645）的合成



(1-3645)

【0737】 於氮氣環境下，且於0℃下向放入有化合物（I-3）（58.5 g）及第三丁基苯（300 ml）的燒瓶中加入1.60 M的第三丁基鋰戊烷溶液（75.0 ml）。滴加結束後，昇溫至60℃並攪拌0.5小時後，將沸點低於第三丁基苯的成分減壓餾去。冷卻至-50℃並加入三溴化硼（30.0 g），昇溫至室溫並攪拌0.5小時。其後，再次冷卻至0℃並加入N,N-二異丙基乙胺（15.6 g），於室溫下攪拌至發熱結束後，昇溫至80℃並加熱攪拌1小時。將反應液冷卻至室溫，加入利用冰浴進行了冷卻的乙酸鈉水溶液及甲苯並進行攪拌後，將有機層分離並進行水洗。其後，將有機層濃縮，利用矽膠管柱（溶離液：甲苯/庚烷=1/1（容量比））對殘渣進行精製。利用庚烷對所獲得的

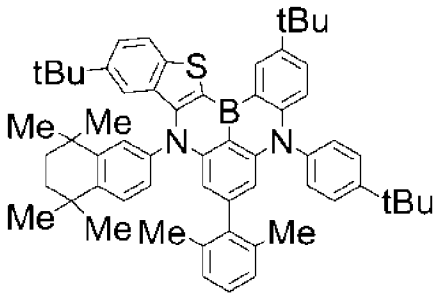
粗產物進行清洗，藉此獲得化合物（1-3645）（10.2 g）。



【0738】 藉由 NMR 測定來確認所獲得的化合物的結構。

^{1}H-NMR（$CDCl_3$）：δ = 0.98-1.02 (m, 9H), 1.09-1.14 (m, 18H), 1.20 (s, 9H), 1.26-1.34 (m, 6H), 1.39-1.50 (m, 15H), 1.75-1.88 (m, 4H), 6.13-6.35 (m, 2H), 6.66-6.73 (m, 2H), 7.00-7.07 (m, 2H), 7.12-7.26 (m, 5H), 7.39 (dd, 1H), 7.48-7.79 (m, 3H), 7.71 (s, 1H), 7.86 (d, 1H), 8.58 (d, 1H).

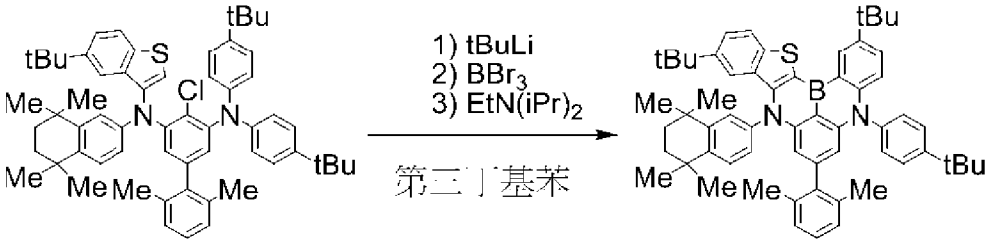
【0739】 合成例（16）：化合物（1-5142）的合成



(1-5142)

【0740】 於氮氣環境下，且於 0℃下向放入有化合物（I-4）（51.0 g）及第三丁基苯（610 ml）的燒瓶中加入 1.61 M 的第三丁基鋰戊

烷溶液（75.0 ml）。滴加結束後，昇溫至 60℃並攪拌 0.5 小時後，將沸點低於第三丁基苯的成分減壓餾去。冷卻至-50℃並加入三溴化硼（30.0 g），昇溫至室溫並攪拌 0.5 小時。其後，再次冷卻至 0℃並加入 N,N-二異丙基乙胺（14.9 g），於室溫下攪拌至發熱結束後，昇溫至 80℃並加熱攪拌 1 小時。將反應液冷卻至室溫，加入利用冰浴進行了冷卻的乙酸鈉水溶液及甲苯並進行攪拌後，將有機層分離並進行水洗。其後，將有機層濃縮，利用矽膠管柱（溶離液：甲苯/庚烷=7/1（容量比））對殘渣進行精製。利用庚烷對所獲得的粗產物進行清洗，進而，藉由自甲苯的再結晶而進行精製，藉此獲得化合物（1-5142）（6.51 g）。

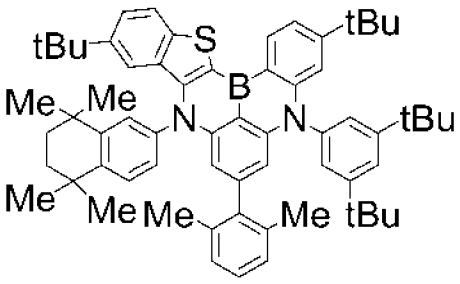


(I-4) (1-5142)

【0741】 藉由 NMR 測定來確認所獲得的化合物的結構。

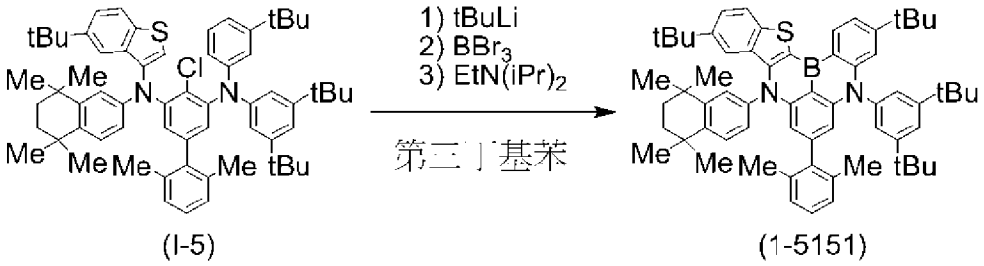
^{1}H-NMR（$CDCl_3$）：δ = 1.11 (s, 9H), 1.18-1.24 (m, 6H), 1.37-1.45 (m, 15H), 1.51 (s, 9H), 1.71-1.80 (m, 4H), 1.94 (s, 6H), 6.07 (s, 1H), 6.11 (s, 1H), 6.48-6.55 (m, 2H), 6.97-7.09 (m, 3H), 7.23 (d, 2H), 7.30 (dd, 1H), 7.39-7.43 (m, 2H), 7.46 (dd, 1H), 7.57-7.64 (m, 3H), 7.91 (d, 1H), 8.82 (d, 1H).

【0742】 合成例（17）：化合物（1-5151）的合成



(1-5151)

【0743】 於氮氣環境下，且於 0℃下向放入有化合物（I-5）（56.5 g）及第三丁基苯（670 ml）的燒瓶中加入 1.61 M 的第三丁基鋰戊烷溶液（75.0 ml）。滴加結束後，昇溫至 60℃並攪拌 0.5 小時後，將沸點低於第三丁基苯的成分減壓餾去。冷卻至-50℃並加入三溴化硼（30.0 g），昇溫至室溫並攪拌 0.5 小時。其後，再次冷卻至 0℃並加入 N,N-二異丙基乙胺（15.5 g），於室溫下攪拌至發熱結束後，昇溫至 80℃並加熱攪拌 1 小時。將反應液冷卻至室溫，加入利用冰浴進行了冷卻的乙酸鈉水溶液及甲苯並進行攪拌後，將有機層分離並進行水洗。其後，將有機層濃縮，利用矽膠管柱（溶離液：甲苯/庚烷=7/1（容量比））對殘渣進行精製。依次利用丙酮及庚烷對所獲得的粗產物進行清洗，藉此獲得化合物（1-5151）（6.34 g）。

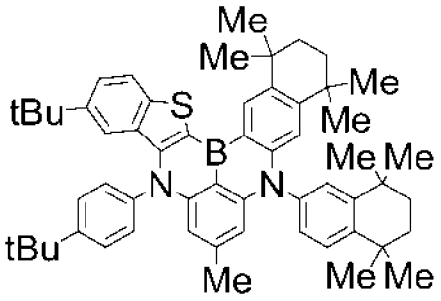


(I-5) (1-5151)

【0744】 藉由 NMR 測定來確認所獲得的化合物的結構。

^{1}H-NMR($CDCl_3$):δ = 1.11 (s, 9H), 1.17-1.24 (m, 15H), 1.32 (s, 18H), 1.37-1.45 (m, 6H), 1.71-1.80 (m, 4H), 1.97 (s, 6H), 6.11 (s, 1H), 6.14 (s, 1H), 6.52 (dd, 2H), 6.97-7.09 (m, 3H), 7.18 (d, 2H), 7.28-7.34 (m, 2H), 7.38-7.43 (m, 2H), 7.52 (t, 1H), 7.60 (d, 1H), 7.89 (d, 1H), 8.72 (d, 1H).

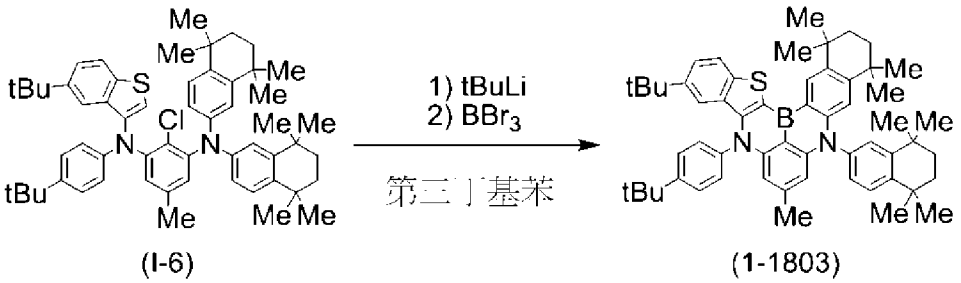
【0745】 合成例（18）：化合物（1-1803）的合成



(1-1803)

【0746】 於氮氣環境下，且於 0℃下向放入有化合物（I-6）（86.6 g）及第三丁基苯（520 ml）的燒瓶中加入 1.61 M 的第三丁基鋰戊烷溶液（125 ml）。滴加結束後，昇溫至 60℃並攪拌 0.5 小時後，

將沸點低於第三丁基苯的成分減壓餾去。冷卻至-50℃並加入三溴化硼（51.1 g），昇溫至室溫並攪拌 2.5 小時。加入利用冰浴進行了冷卻的乙酸鈉水溶液及甲苯並進行攪拌後，將有機層分離並進行水洗。其後，將有機層濃縮，利用矽膠管柱（溶離液：甲苯/庚烷=1/1（容量比））對殘渣進行精製。依次利用乙腈及庚烷對所獲得的粗產物進行清洗，進而，藉由自甲苯的再結晶而進行精製，藉此獲得化合物（1-1803）（10.2 g）。

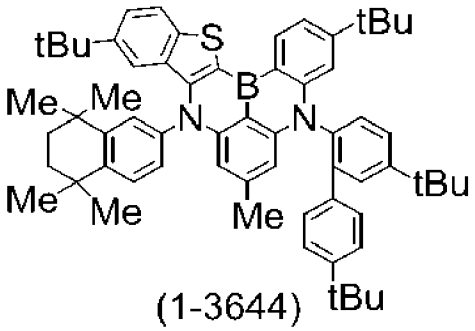


(I-6)　　(1-1803)

【0747】 藉由 NMR 測定來確認所獲得的化合物的結構。

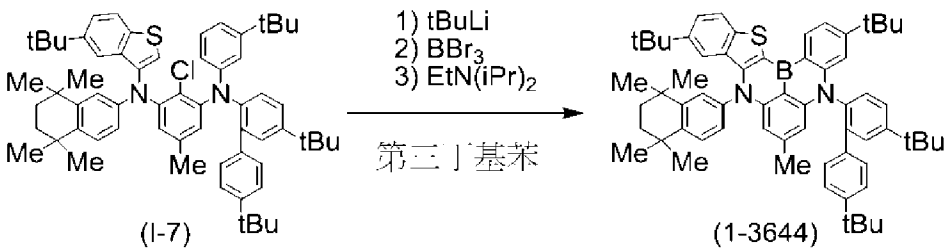
^{1}H-NMR（$CDCl_3$）：δ = 1.04-1.10 (m, 15H), 1.25 (s, 6H), 1.38-1.45 (m, 6H), 1.49 (s, 9H), 1.53 (s, 6H), 1.66-1.83 (m, 8H), 2.20 (s, 3H), 6.06 (d, 2H), 6.41 (s, 1H), 6.50 (d, 1H), 7.07 (dd, 1H), 7.26 (d, 1H), 7.38 (dd, 1H), 7.46 (d, 2H), 7.59 (d, 1H), 7.74 (d, 2H), 7.88 (d, 1H), 8.70 (d, 1H).

【0748】 合成例（19）：化合物（1-3644）的合成



(1-3644)

【0749】 於氮氣環境下，且於 0℃下向放入有化合物（I-7）（110 g）及第三丁基苯（1000 ml）的燒瓶中加入 1.61 M 的第三丁基鋰戊烷溶液（150 ml）。滴加結束後，昇溫至 60℃並攪拌 0.5 小時後，將沸點低於第三丁基苯的成分減壓餾去。冷卻至-50℃並加入三溴化硼（60.0 g），昇溫至室溫並攪拌 0.5 小時。其後，再次冷卻至 0℃並加入 N,N-二異丙基乙胺（30.6 g），於室溫下攪拌至發熱結束後，昇溫至 80℃並加熱攪拌 1 小時。將反應液冷卻至室溫，加入利用冰浴進行了冷卻的乙酸鈉水溶液及甲苯並進行攪拌後，將有機層分離並進行水洗。其後，將有機層濃縮，利用矽膠管柱（溶離液：甲苯/庚烷=1/5（容量比））對殘渣進行精製。依次利用乙腈、丙酮及庚烷對所獲得的粗產物進行清洗，藉此獲得化合物（1-3644）（11.1 g）。

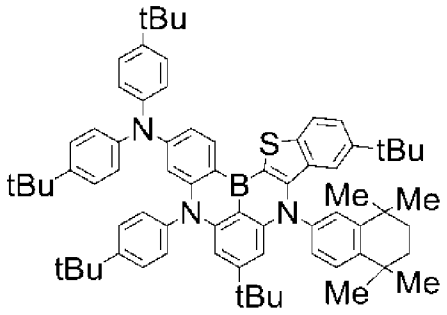


(I-7) (1-3644)

【0750】 藉由 NMR 測定來確認所獲得的化合物的結構。

^{1}H-NMR（$CDCl_3$）：δ = 1.10 (s, 9H), 1.11-1.13 (m, 9H), 1.16-1.18 (m, 9H), 1.25-1.36 (m, 6H), 1.43-1.47 (m, 6H), 1.48 (s, 9H), 1.77-1.87 (m, 4H), 2.22 (s, 3H), 6.07-6.11 (m, 1H), 6.20 (s, 1H), 6.54-6.62 (m, 2H), 6.99-7.08 (m, 2H), 7.15-7.30 (m, 5H), 7.37 (dd, 1H), 7.46-7.56 (m, 1H), 7.58-7.68 (m, 2H), 7.69-7.73 (m, 1H), 7.85 (d, 1H), 8.59-8.55 (m, 1H).

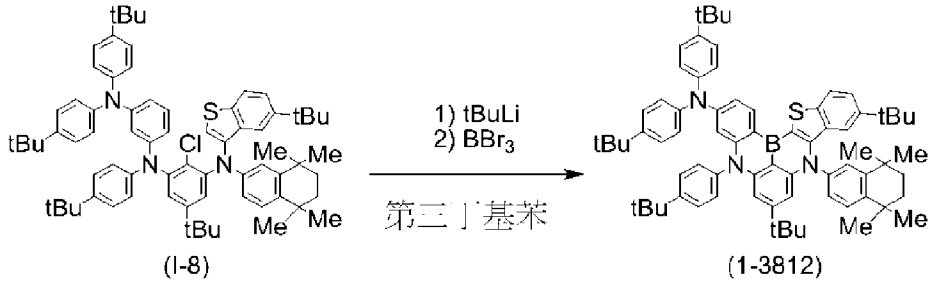
【0751】 合成例（20）：化合物（1-3812）的合成



(1-3812)

【0752】 於氮氣環境下，且於 0℃下向放入有化合物（I-8）（21.2 g）及第三丁基苯（170 ml）的燒瓶中加入 1.61 M 的第三丁基鋰戊烷溶液（25.0 ml）。滴加結束後，昇溫至 60℃並攪拌 0.5 小時後，將沸點低於第三丁基苯的成分減壓餾去。冷卻至-50℃並加入三溴化硼（10.0 g），昇溫至室溫並攪拌 0.5 小時。其後，昇溫至 80℃並加熱攪拌 1 小時。將反應液冷卻至室溫，加入利用冰浴進行了

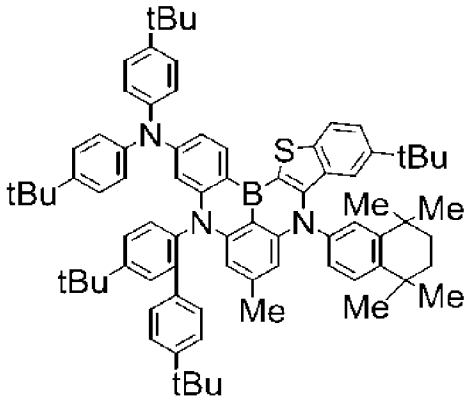
冷卻的乙酸鈉水溶液及甲苯並進行攪拌後，將有機層分離並進行水洗。其後，將有機層濃縮，利用矽膠管柱（溶離液：甲苯）對所獲得的粗產物進行精製，進而利用丙酮進行清洗，藉此獲得化合物（1-3812）（5.0 g）。



【0753】 藉由 NMR 測定來確認所獲得的化合物的結構。

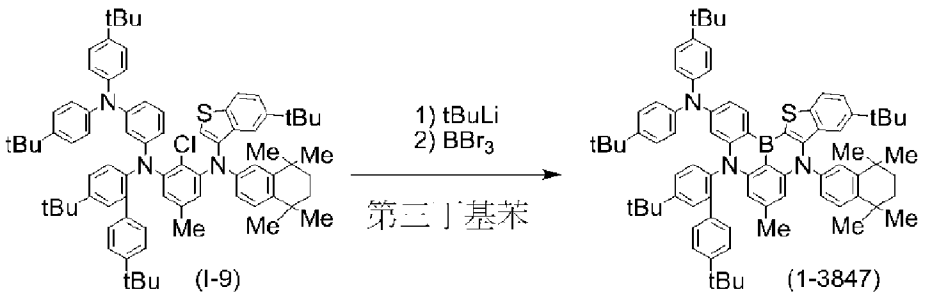
^{1}H-NMR（$CDCl_3$）：δ = 0.97 (s, 9H), 1.10 (s, 9H), 1.27-1.34 (m, 33H), 1.40-1.47 (m, 6H), 1.75-1.90 (m, 4H), 6.00-6.28 (m, 2H), 6.36 (s, 1H), 6.65-6.80 (m, 1H), 6.80-6.96 (m, 1H), 7.00 (d, 4H), 7.14 (d, 2H), 7.18-7.26 (m, 5H), 7.38 (d, 1H), 7.43-7.58 (m, 3H), 7.65 (d, 1H), 7.85 (d, 1H), 8.53 (s, 1H).

【0754】 合成例（21）：化合物（1-3847）的合成



(1-3847)

【0755】 於氮氣環境下，且於 0℃下向放入有化合物（I-9）（23.0 g）及第三丁基苯（140 ml）的燒瓶中加入 1.61 M 的第三丁基鋰戊烷溶液（25.0 ml）。滴加結束後，昇溫至 60℃並攪拌 0.5 小時後，將沸點低於第三丁基苯的成分減壓餾去。冷卻至-50℃並加入三溴化硼（10.0 g），昇溫至室溫並攪拌 0.5 小時。其後，昇溫至 80℃並加熱攪拌 1 小時。將反應液冷卻至室溫，加入利用冰浴進行了冷卻的乙酸鈉水溶液及甲苯並進行攪拌後，將有機層分離並進行水洗。其後，將有機層濃縮，利用矽膠管柱（溶離液：甲苯/庚烷=1/3（容量比））對所獲得的粗產物進行精製，進而利用丙酮進行清洗，藉此獲得化合物（1-3847）（2.5 g）。

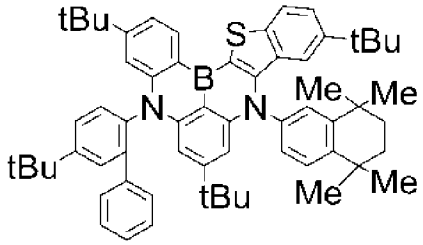


(I-9) (1-3847)

【0756】 藉由 NMR 測定來確認所獲得的化合物的結構。

^{1}H-NMR（$CDCl_3$）：δ = 1.10 (s, 9H), 1.17-1.20 (m, 9H), 1.25-1.38 (m, 33H), 1.42-1.48 (m, 6H), 1.76-1.88 (m, 4H), 2.19 (s, 3H), 6.02-6.16 (m, 3H), 6.57-6.62 (m, 2H), 6.86-6.96 (m, 7H), 7.01-7.14 (m, 3H), 7.20 (d, 4H), 7.36 (dd, 1H), 7.39-7.50 (m, 3H), 7.60-7.67 (m, 1H), 7.83 (d, 1H), 8.47 (d, 1H).

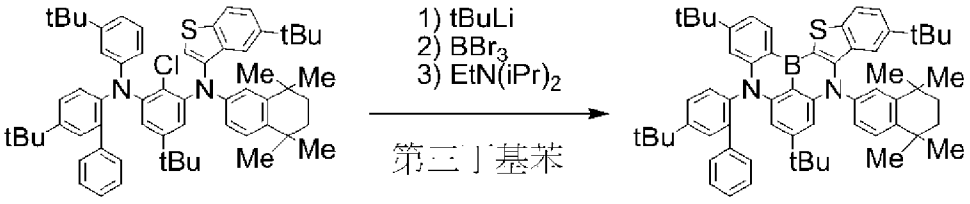
【0757】 合成例（22）：化合物（1-3842）的合成



(1-3842)

【0758】 於氮氣環境下，且於 0℃下向放入有化合物（I-10）（36.6 g）及第三丁基苯（290 ml）的燒瓶中加入 1.61 M 的第三丁基鋰戊烷溶液（50.0 ml）。滴加結束後，昇溫至 60℃並攪拌 0.5 小時後，將沸點低於第三丁基苯的成分減壓餾去。冷卻至-50℃並加入三溴化硼（20.0 g），昇溫至室溫並攪拌 0.5 小時。其後，再次冷卻至 0℃並加入 N,N-二異丙基乙胺（30.6 g），於室溫下攪拌至發熱結束後，昇溫至 60℃並加熱攪拌 1 小時。將反應液冷卻至室溫，加入利用冰浴進行了冷卻的乙酸鈉水溶液及甲苯並進行攪拌後，將有機層

分離並進行水洗。其後，將有機層濃縮，利用庚烷對殘渣進行清洗。利用矽膠管柱（溶離液：甲苯）對所獲得的粗產物進行精製，進而利用庚烷進行清洗，藉此獲得化合物（1-3842）（9.80 g）。

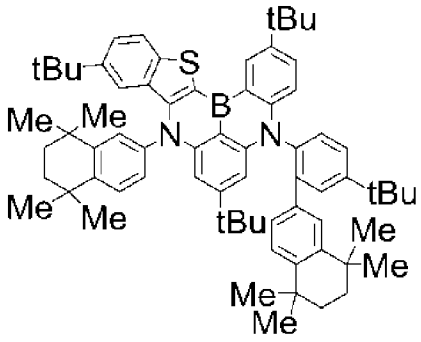


(I-10)　　(1-3842)

【0759】 藉由 NMR 測定來確認所獲得的化合物的結構。

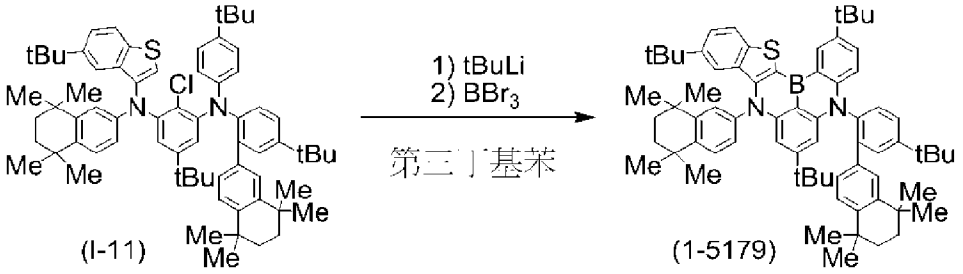
^{1}H-NMR（$CDCl_3$）：δ = 0.99-1.02 (m, 9H), 1.10 (s, 9H), 1.21 (s, 9H), 1.25-1.34 (m, 6H), 1.38-1.47 (m, 6H), 1.49 (s, 9H), 1.75-1.88 (m, 4H), 6.02-6.45 (m, 2H), 6.62-6.78 (m, 2H), 6.96-7.50 (m, 3H), 7.14-7.29 (m, 5H), 7.38 (dd, 1H), 7.47-7.73 (m, 4H), 7.85 (d, 1H), 8.58 (d, 1H).

【0760】 合成例（23）：化合物（1-5179）的合成



(1-5179)

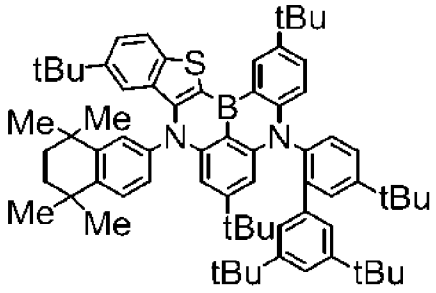
【0761】 於氮氣環境下，且於 0℃下向放入有化合物（I-11）（63.0 g）及第三丁基苯（440 ml）的燒瓶中加入 1.61 M 的第三丁基鋰戊烷溶液（75.0 ml）。滴加結束後，昇溫至 60℃並攪拌 0.5 小時後，將沸點低於第三丁基苯的成分減壓餾去。冷卻至-50℃並加入三溴化硼（30.0 g），昇溫至室溫並攪拌 1.5 小時。加入利用冰浴進行了冷卻的乙酸鈉水溶液及甲苯並進行攪拌後，將有機層分離並進行水洗。其後，將有機層濃縮，利用矽膠管柱（溶離液：甲苯/庚烷=1/2（容量比））對所獲得的粗產物進行精製，進而藉由自庚烷的再結晶而進行精製，藉此獲得化合物（1-5179）（16.0 g）。



【0762】 藉由 NMR 測定來確認所獲得的化合物的結構。

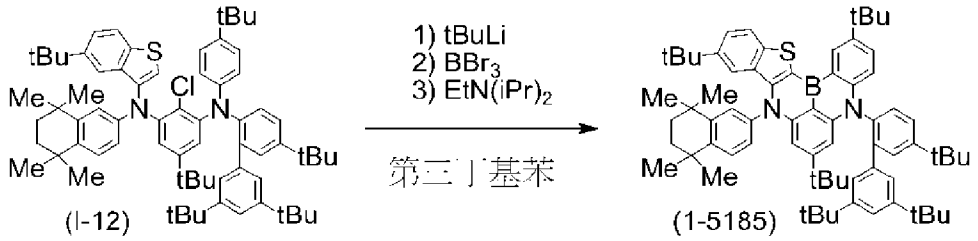
^{1}H-NMR（$CDCl_3$）：δ = 0.53-0.60 (m, 6H), 0.99 (s, 9H), 1.04-1.09 (m, 6H), 1.10 (s, 9H), 1.29 (s, 6H), 1.40-1.58 (m, 28H), 1.86-1.76 (m, 4H), 6.05-6.38 (m, 2H), 6.72 (d, 2H), 6.96-7.04 (m, 2H), 7.06 (d, 1H), 7.14-7.31 (m, 2H), 7.36-7.55 (m, 3H), 7.56-7.74 (m, 3H), 7.88 (d, 1H), 8.66 (s, 1H).

【0763】 合成例（24）：化合物（1-5185）的合成



(1-5185)

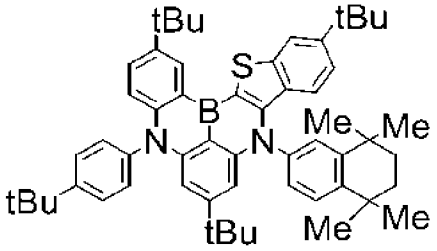
【0764】 於氮氣環境下，且於 0℃下向放入有化合物（I-12）（78.0 g）及第三丁基苯（780 ml）的燒瓶中加入 1.61 M 的第三丁基鋰戊烷溶液（100 ml）。滴加結束後，昇溫至 60℃並攪拌 0.5 小時後，將沸點低於第三丁基苯的成分減壓餾去。冷卻至-50℃並加入三溴化硼（40.0 g），昇溫至室溫並攪拌 0.5 小時。其後，再次冷卻至 0℃並加入 N,N-二異丙基乙胺（19.7 g），於室溫下攪拌至發熱結束後，昇溫至 80℃並加熱攪拌 1 小時。將反應液冷卻至室溫，加入利用冰浴進行了冷卻的乙酸鈉水溶液及甲苯並進行攪拌後，將有機層分離並進行水洗。其後，將有機層濃縮，依次利用乙酸乙酯及庚烷對殘渣進行清洗。利用矽膠管柱（溶離液：甲苯）對所獲得的粗產物進行精製，進而藉由自甲苯的再結晶而進行清洗，藉此獲得化合物（1-5185）（13.8 g）。



【0765】 藉由 NMR 測定來確認所獲得的化合物的結構。

^{1}H-NMR($CDCl_3$): δ = 0.86-0.90 (m, 18H), 1.02 (s, 9H), 1.10 (s, 9H), 1.27-1.30 (m, 6H), 1.40-1.50 (m, 24H), 1.76-1.86 (m, 4H), 6.02-6.38 (m, 2H), 6.55-6.80 (m, 2H), 6.84-90 (m, 2H), 6.93-6.96 (m, 2H), 7.08-7.24 (m, 1H), 7.30-7.54 (m, 4H), 7.58-7.73 (m, 2H), 7.86 (d, 1H), 8.61 (s, 1H).

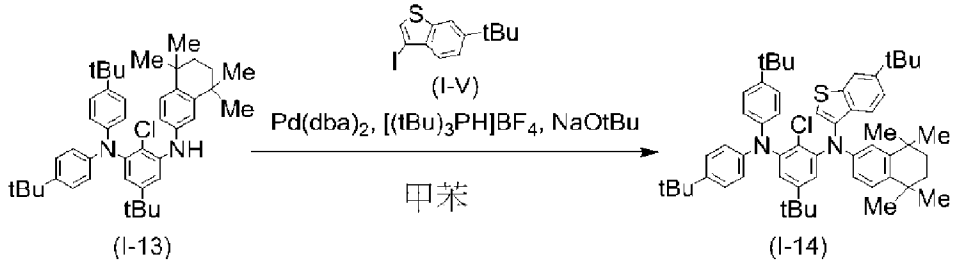
【0766】 合成例（25）：化合物（1-1853）的合成



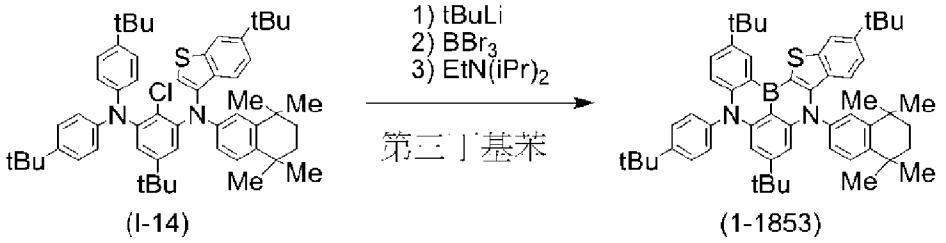
(1-1853)

【0767】 於氮氣環境下，將化合物（I-13）（20.0 g）、化合物（I-V）（12.0 g）、$Pd(dba)_2$（0.53 g）、NaOtBu（4.4 g）、$[(tBu)_3PH]BF_4$（0.54 g）及二甲苯（60 ml）放入至燒瓶中，於 120℃下進行 0.5 小時加熱回流。將反應液冷卻至室溫後，加入水與乙酸乙酯，將

有機層分離並進行水洗。於減壓下將該溶液濃縮，利用矽膠管柱（溶離液：甲苯/庚烷=1/1（容量比））對殘渣進行精製，於濃縮後加入庚烷，對所獲得的結晶進行過濾後，利用庚烷進行清洗，藉此獲得化合物（I-14）（30.0 g）。



【0768】 於氮氣環境下，且於 0℃下向放入有化合物（I-14）（30.0 g）及第三丁基苯（180 ml）的燒瓶中加入 1.60 M 的第三丁基鋰戊烷溶液（44.8 ml）。滴加結束後，昇溫至 60℃並攪拌 0.5 小時後，將沸點低於第三丁基苯的成分減壓餾去。冷卻至-50℃並加入三溴化硼（17.9 g），昇溫至室溫並攪拌 0.5 小時。其後，再次冷卻至 0℃並加入 N,N-二異丙基乙胺（9.3 g），於室溫下攪拌至發熱結束後，昇溫至 80℃並加熱攪拌 1 小時。將反應液冷卻至室溫，依次加入利用冰浴進行了冷卻的乙酸鈉水溶液、乙酸乙酯並攪拌 1 小時，將有機層分離並進行水洗。於減壓下將該溶液濃縮，利用庚烷對殘渣進行清洗後，利用矽膠管柱（溶離液：甲苯/庚烷=1/1（容量比））進行精製。利用庚烷對所獲得的粗產物進行清洗，藉此獲得化合物（1-1853）（4.7 g）。

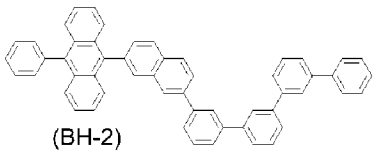


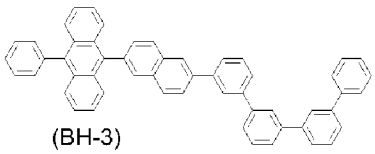
【0769】 藉由 NMR 測定來確認所獲得的化合物的結構。

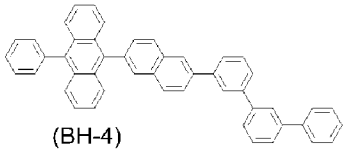
^{1}H-NMR（$CDCl_3$）：δ = 1.01 (s, 9H), 1.27 (s, 3H), 1.29 (s, 3H), 1.36 (s, 9H), 1.45 (s, 3H), 1.46 (s, 9H), 1.49 (s, 3H), 1.51 (s, 9H), 1.81-1.89 (m, 4H), 6.05 (d, 1H), 6.14 (br, 1H), 6.36 (br, 1H), 6.64 (br, 1H), 6.96 (dd, 1H), 7.19 (dd, 1H), 7.28 (d, 2H), 7.46 (dd, 1H), 7.49 (d, 1H), 7.63 (d, 1H), 7.68 (d, 2H), 7.97 (d, 1H), 8.76 (s, 1H).

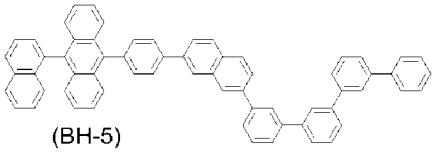
【0770】 藉由適當變更原料的化合物，可利用依據所述合成例的方法來合成本發明的其他多環芳香族化合物。

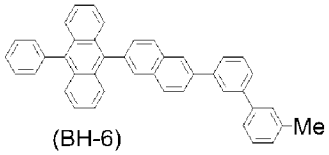
【0771】 化合物（BH-2）是依據日本專利特開 2016-88927 號公報的合成例 1 中所記載的方法來合成。另外，使用相同的方法來合成下述式（BH-3）至式（BH-7）所表示的化合物。

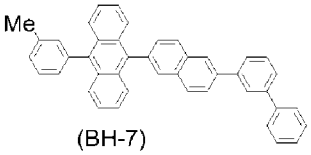

(BH-2)


(BH-3)


(BH-4)


(BH-5)


(BH-6)


(BH-7)

【0772】 繼而，為了更詳細地說明本發明而示出使用了本發明的化合物的有機 EL 元件的實施例，但本發明並不限定於該些實施例。

【0773】 ＜蒸鍍型有機 EL 元件的評價＞

製作實施例 1-1～實施例 1-13 的有機 EL 元件，測定作為 1000 cd/m^2 發光時的特性的電壓（V）、發光波長（nm）、外部量子效率（%），繼而測定以下時間：以 10 mA/cm^2 的電流密度進行恆定電流驅動時保持初期亮度的 90%以上的亮度的時間。

【0774】 發光元件的量子效率有內部量子效率與外部量子效率，內部量子效率表示作為電子（或電洞）注入至發光元件的發光層的外部能量純粹地轉換為光子的比例。另一方面，外部量子效率是基於該光子釋放至發光元件的外部的量而算出，發光層中所產生的光子的一部分由發光元件的內部吸收或者持續反射而不釋放至發光元件的外部，因此外部量子效率低於內部量子效率。

【0775】 外部量子效率的測定方法如下所述。使用愛德萬測試

（Advantest）公司製造的電壓/電流產生器 R6144，施加元件的亮度達到 1000 cd/m^2 的電壓而使元件發光。使用拓普康（TOPCON）公司製造的分光放射亮度計 SR-3AR，自相對於發光面垂直的方向測定可見光區域的分光放射亮度。假定發光面為完全擴散面，將所測定的各波長成分的分光放射亮度的值除以波長能量並乘以 π 所獲得的數值為各波長下的光子數。繼而，於所觀測的全波長區域累計光子數，並設為自元件釋放的總光子數。將施加電流值除以元電荷（elementary charge）所獲得的數值設為注入至元件的載子（carrier）數，並且將自元件釋放的總光子數除以注入至元件的載子數所獲得的數值為外部量子效率。

【0776】 ＜實施例 1-1～實施例 1-13＞

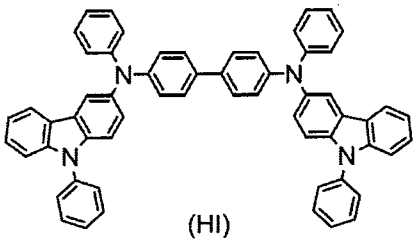
將實施例 1-1～實施例 1-13 的有機 EL 元件的各層的材料構成示於下述表 1A 中。

[表 1A]

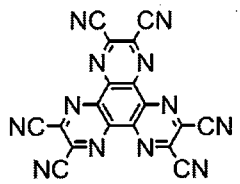
	電洞注入層 1 40 nm	電洞注入層 2 5 nm	電洞傳輸層 1 45 nm	電洞傳輸層 2 10 nm	發光層 25 nm		電子傳輸層 1 5 nm	電子傳輸層 2 25 nm	陰極 1 nm/100 nm
					主體	摻雜劑			
實施例 1-1	HI	HAT-CN	HT-1	HT-2	BH-1	化合物（1-411）	ET-1	ET-2+Liq	LiF/Al
實施例 1-2	HI	HAT-CN	HT-1	HT-2	BH-1	化合物（1-590）	ET-1	ET-2+Liq	LiF/Al
實施例 1-3	HI	HAT-CN	HT-1	HT-2	BH-1	化合物（1-1301）	ET-1	ET-2+Liq	LiF/Al
實施例 1-4	HI	HAT-CN	HT-1	HT-2	BH-1	化合物（1-1823）	ET-1	ET-2+Liq	LiF/Al
實施例 1-5	HI	HAT-CN	HT-1	HT-2	化合物（3-44）	化合物（1-1821）	ET-1	ET-2+Liq	LiF/Al
實施例 1-6	HI	HAT-CN	HT-1	HT-2	化合物（3-44）	化合物（1-1826）	ET-1	ET-2+Liq	LiF/Al
實施例 1-7	HI	HAT-CN	HT-1	HT-2	化合物（3-44）	化合物（1-3645）	ET-1	ET-2+Liq	LiF/Al
實施例 1-8	HI	HAT-CN	HT-1	HT-2	化合物（3-44）	化合物（1-1851）	ET-1	ET-2+Liq	LiF/Al
實施例 1-9	HI	HAT-CN	HT-1	HT-2	BH-1	化合物（1-1853）	ET-1	ET-2+Liq	LiF/Al
實施例 1-10	HI	HAT-CN	HT-1	HT-2	BH-1	化合物（1-3644）	ET-1	ET-2+Liq	LiF/Al
實施例 1-11	HI	HAT-CN	HT-1	HT-2	BH-1	化合物（1-3812）	ET-1	ET-2+Liq	LiF/Al
實施例 1-12	HI	HAT-CN	HT-1	HT-2	化合物（3-44）	化合物（1-3604）	ET-1	ET-2+Liq	LiF/Al
實施例 1-13	HI	HAT-CN	HT-1	HT-2	BH-1	化合物（1-3842）	ET-1	ET-2+Liq	LiF/Al

【0777】 表 1A 中，「HI」為 $N^4,N^{4'}$-二苯基-$N^4,N^{4'}$-雙(9-苯基-9H-咔唑-3-基)-[1,1'-聯苯基]-4,4'-二胺，「HAT-CN」為 1,4,5,8,9,12-六氮雜三伸苯六碳腈，「HT-1」為 N-([1,1'-聯苯]-4-基-9,9-二甲基-N-4-(9-苯基-9H-咔唑-3-基)苯基)-9H-芴-2-胺[1,1'-聯苯基]-4-胺，「HT-2」為 N,N-雙(4-(二苯並[b,d]呋喃-4-基)苯基)-[1,1'：4',1''-聯三苯基]-4-胺，「BH-1」為 2-(10-苯基蒽-9-基)萘並[2,3-b]苯並呋喃，「ET-1」為 4,6,8,10-四苯基[1,4]苯並氧雜硼雜環己烯並[2,3,4-k1]苯氧硼雜環己烯，「ET-2」為 3,3'-((2-苯基蒽-9,10-二基)雙(4,1-伸苯基))雙(4-甲基吡啶)。以下與「Liq」一同示出化學結構。

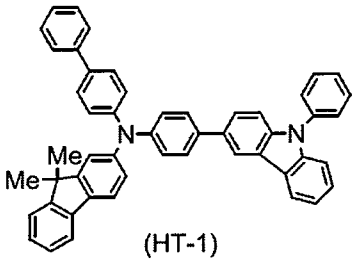
【0778】



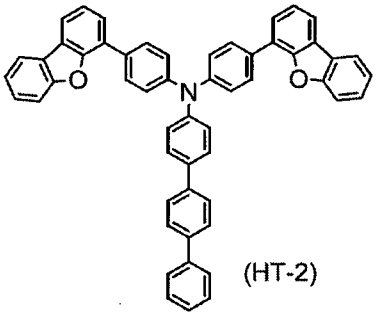
(HI)



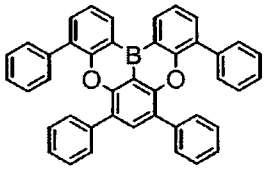
(HAT-CN)



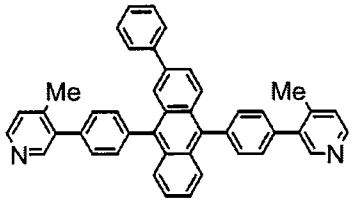
(HT-1)



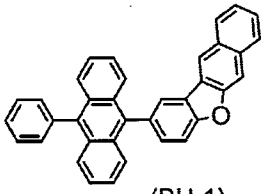
(HT-2)



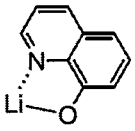
(ET-1)



(ET-2)



(BH-1)



(Liq)

【0779】 ＜實施例 1-1＞

以將藉由濺鍍來成膜為 180 nm 厚度的 ITO 研磨至 150 nm 的 26 mm×28 mm×0.7 mm 的玻璃基板（光科學（Opto Science）（股）製造）作為透明支撐基板。將該透明支撐基板固定於市售的蒸鍍裝置（昭和真空（股）製造）的基板固定器上，並安裝分別放入有 HI、HAT-CN、HT-1、HT-2、BH-1、化合物（1-411）、ET-1 及 ET-2 的鉬製蒸鍍用舟皿、分別放入有 Liq、LiF 及鋁的氮化鋁製蒸鍍用舟皿。

【0780】 於透明支撐基板的 ITO 膜上依次形成下述各層。將真空槽減壓至 5×10^{-4} Pa 為止，首先，對 HI 進行加熱且以使膜厚成為 40 nm 的方式進行蒸鍍，繼而，對 HAT-CN 進行加熱且以使膜厚成為 5 nm 的方式進行蒸鍍，繼而，對 HT-1 進行加熱且以使膜厚成為 45 nm 的方式進行蒸鍍，繼而，對 HT-2 進行加熱且以使膜厚成為 10 nm 的方式進行蒸鍍，從而形成包含四層的電洞層。繼而，對 BH-1 與化合物（1-411）同時進行加熱且以使膜厚成為 25 nm 的方式進行蒸鍍來形成發光層。以使 BH-1 與化合物（1-411）的重量比大致成為 98 對 2 的方式調節蒸鍍速度。進而，對 ET-1 進行加熱且以使膜厚成為 5 nm 的方式進行蒸鍍，繼而，對 ET-2 與 Liq 同時進行加熱且以使膜厚成為 25 nm 的方式進行蒸鍍，從而形成包含兩層的電子層。以使 ET-2 與 Liq 的重量比大致成為 50 對 50 的方式調節蒸鍍速度。各層的蒸鍍速度為 0.01 nm/sec～1 nm/sec。其後，對 LiF 進行加熱且以使膜厚成為 1 nm 的方式以 0.01 nm/sec～0.1 nm/sec 的蒸鍍速度進行蒸鍍，繼而，對鋁進行加熱且以使膜厚成為 100 nm 的方式進行蒸鍍來形成陰極，從而獲得有機 EL 元件。

【0781】 將 ITO 電極作為陽極、LiF/鋁電極作為陰極來施加直流電壓，測定 1000 cd/m^2 發光時的特性（發光波長、驅動電壓及外部量子效率），另外，測定保持初期亮度的 90%以上的亮度的時間。

【0782】 ＜實施例 1-2～實施例 1-4＞

與實施例 1-1 同樣地製作有機 EL 元件，並評價 EL 特性。

【0783】 ＜實施例 1-5～實施例 1-13＞

與實施例 1-1 同樣地製作有機 EL 元件，並評價 EL 特性。

【0784】 將實施例 1-1～實施例 1-13 中所確認到的 EL 特性示於下述表 1B 中。

[表 1B]

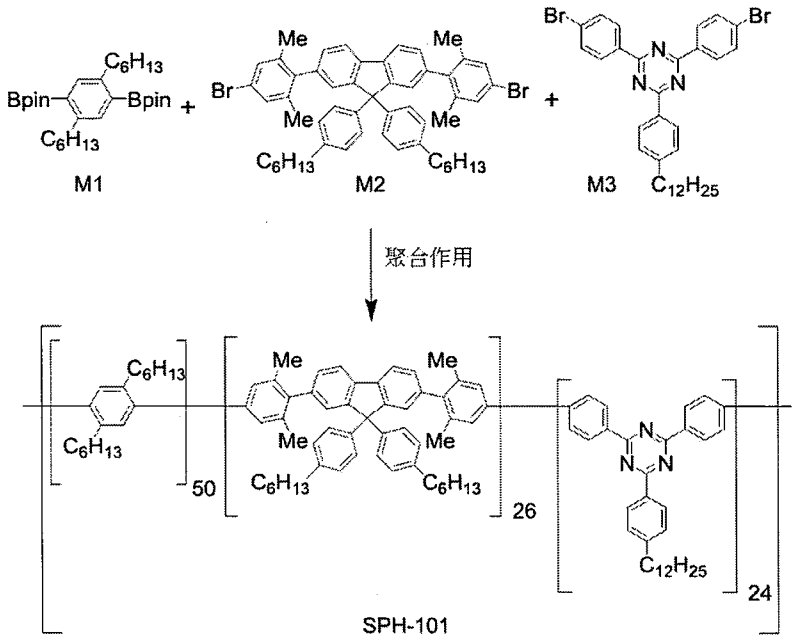
	波長（nm）	驅動電壓（V）	外部量子效率（%）
實施例 1-1	466（藍色發光）	3.77	8.57
實施例 1-2	463（藍色發光）	3.72	7.93
實施例 1-3	465（藍色發光）	3.71	8.09
實施例 1-4	463（藍色發光）	3.57	8.05
實施例 1-5	459（藍色發光）	3.93	7.33
實施例 1-6	459（藍色發光）	3.94	7.61
實施例 1-7	457（藍色發光）	3.88	7.36
實施例 1-8	456（藍色發光）	3.99	7.44
實施例 1-9	460（藍色發光）	3.89	7.23
實施例 1-10	456（藍色發光）	3.71	8.07
實施例 1-11	458（藍色發光）	3.60	8.59
實施例 1-12	464（藍色發光）	3.55	8.26
實施例 1-13	456（藍色發光）	3.92	7.60

【0785】 ＜塗佈型有機 EL 元件的評價＞

繼而，對塗佈形成有機層而獲得的有機 EL 元件進行說明。

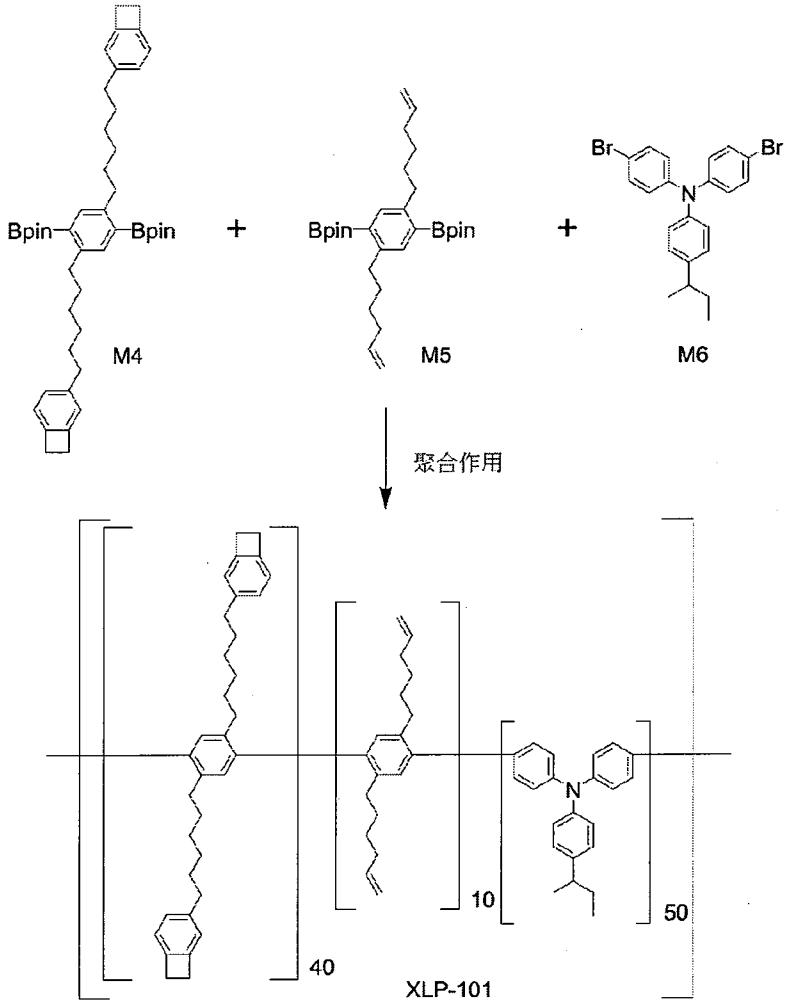
【0786】 ＜高分子主體化合物：SPH-101 的合成＞

依據國際公開第 2015/008851 號中記載的方法來合成 SPH-101。獲得於 M1 的相鄰處鍵結有 M2 或 M3 的共聚物，根據投入比推測各單元為 50：26：24（莫耳比）。



【0787】 ＜高分子電洞傳輸化合物：XLP-101 的合成＞

依據日本專利特開 2018-61028 號公報中記載的方法來合成 XLP-101。獲得於 M4 的相鄰處鍵結有 M5 或 M6 的共聚物，根據投入比推測各單元為 40：10：50（莫耳比）。



【0788】 ＜實施例 2～實施例 10＞

對形成各層的材料的塗佈用溶液進行製備，並製作塗佈型有機 EL 元件。

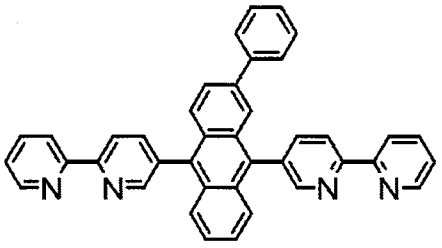
【0789】 ＜實施例 2～實施例 4 的有機 EL 元件的製作＞

將有機 EL 元件中的各層的材料構成示於表 2 中。

[表 2]

	電洞注入層（40 nm）	電洞傳輸層（30 nm）	發光層（20 nm）		電子傳輸層（30 nm）	陰極（1 nm/100 nm）
			主體	摻雜劑		
實施例 2	PEDOT：PSS	OTPD	SPH-101	（A）	ET1	LiF/Al
實施例 3	PEDOT：PSS	XLP-101	SPH-101	（A）	ET1	LiF/Al
實施例 4	PEDOT：PSS	PCz	SPH-101	（A）	ET1	LiF/Al

【0790】 以下示出表 2 中的「ET1」的結構。



ET1

【0791】 ＜發光層形成用組成物（1）的製備＞

藉由將下述成分攪拌至成為均勻的溶液為止，從而製備發光層形成用組成物（1）。將所製備的發光層形成用組成物旋塗於玻璃基板，且於減壓下進行加熱乾燥，藉此獲得不存在膜缺陷、平滑性優異的塗佈膜。

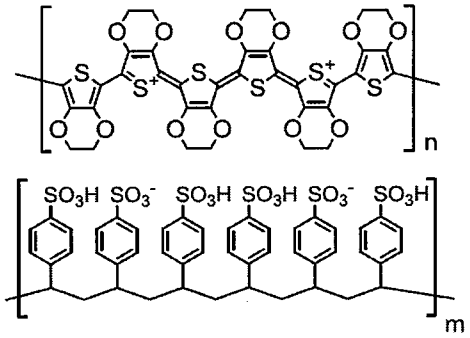
化合物（A）	0.04 重量%
SPH-101	1.96 重量%
二甲苯	69.00 重量%
十氫萘	29.00 重量%

【0792】 再者，化合物（A）為使通式（1）所表示的多環芳香族

化合物、其多聚體、所述多環芳香族化合物或其多聚體作為單體（即，該單體具有反應性取代基）加以高分子化而成的高分子化合物、或者使該高分子化合物進一步交聯而成的高分子交聯體。用以獲得高分子交聯體的高分子化合物具有交聯性取代基。

【0793】 ＜PEDOT：PSS 溶液＞

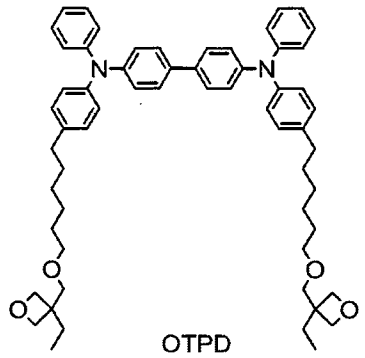
使用市售的 PEDOT：PSS 溶液（克萊沃斯（Clevios）(TM) P VP AI4083、PEDOT：PSS 的水分散液、賀利氏控股（Heraeus Holdings）公司製造）。



PEDOT:PSS

【0794】 ＜OTPD 溶液的製備＞

使 OTPD(LT-N159、發光技術公司(Luminescence Technology Corp）製造）及 IK-2（光陽離子聚合起始劑、桑亞普羅（Sanapro）公司製造)溶解於甲苯中，從而製備 OTPD 濃度為 0.7 重量%、IK-2 濃度為 0.007 重量%的 OTPD 溶液。



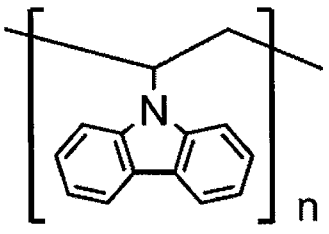
OTPD

【0795】 ＜XLP-101 溶液的製備＞

使 XLP-101 以 0.6 重量%的濃度溶解於二甲苯中，從而製備 0.7 重量%的 XLP-101 溶液。

【0796】 ＜PCz 溶液的製備＞

使 PCz（聚乙烯咔唑）溶解於二氯苯中，從而製備 0.7 重量%的 PCz 溶液。



PCz

【0797】 ＜實施例 2＞

於蒸鍍有厚度為 150 nm 的 ITO 的玻璃基板上旋塗 PEDOT：PSS 溶液，於 200℃的加熱板上煅燒 1 小時，藉此製成膜厚 40 nm 的 PEDOT：PSS 膜（電洞注入層）。繼而，旋塗 OTPD 溶液，於

80℃的加熱板上乾燥 10 分鐘後，利用曝光機以曝光強度 100 mJ/cm^2 進行曝光，於 100℃的加熱板上煅燒 1 小時，藉此製成不溶於溶液的膜厚 30 nm 的 OTPD 膜（電洞傳輸層）。繼而，旋塗發光層形成用組成物（1），於 120℃的加熱板上煅燒 1 小時，藉此製成膜厚 20 nm 的發光層。

【0798】 將所製作的多層膜固定於市售的蒸鍍裝置（昭和真空（股）製造）的基板固定器上，安裝放入有 ET1 的鉬製蒸鍍用舟皿、放入有 LiF 的鉬製蒸鍍用舟皿、放入有鋁的鎢製蒸鍍用舟皿。將真空槽減壓至 5×10^{-4} Pa 為止，然後，對 ET1 進行加熱且以使膜厚成為 30 nm 的方式進行蒸鍍，從而形成電子傳輸層。將形成電子傳輸層時的蒸鍍速度設為 1 nm/sec。其後，對 LiF 進行加熱且以使膜厚成為 1 nm 的方式以 0.01 nm/sec～0.1 nm/sec 的蒸鍍速度進行蒸鍍。繼而，對鋁進行加熱且以使膜厚成為 100 nm 的方式進行蒸鍍而形成陰極。以所述方式獲得有機 EL 元件。

【0799】 ＜實施例 3＞

利用與實施例 2 相同的方法來獲得有機 EL 元件。再者，關於電洞傳輸層，旋塗 XLP-101 溶液，於 200℃的加熱板上煅燒 1 小時，藉此製成膜厚 30 nm 的膜。

【0800】 ＜實施例 4＞

利用與實施例 2 相同的方法來獲得有機 EL 元件。再者，關於電洞傳輸層，旋塗 PCz 溶液，於 120℃的加熱板上煅燒 1 小時，藉此製成膜厚 30 nm 的膜。

【0801】 ＜實施例 5～實施例 7 的有機 EL 元件的製作＞

將有機 EL 元件中的各層的材料構成示於表 3 中。

[表 3]

	電洞注入層（50 nm）	電洞傳輸層（20 nm）	發光層（20 nm）		電子傳輸層（30 nm）	陰極（1 nm/100 nm）
			主體	摻雜劑		
實施例 5	ND-3202	XLP-101	mCBP	（A）	TSPO1	LiF/Al
實施例 6	ND-3202	XLP-101	SPH-101	（A）	TSPO1	LiF/Al
實施例 7	ND-3202	XLP-101	DOBNA	（A）	TSPO1	LiF/Al

【0802】 ＜發光層形成用組成物（2）～發光層形成用組成物（4）的製備＞

藉由將下述成分攪拌至成為均勻的溶液為止，從而製備發光層形成用組成物（2）。

化合物（A） 0.02 重量%

mCBP 1.98 重量%

甲苯 98.00 重量%

【0803】 藉由將下述成分攪拌至成為均勻的溶液為止，從而製備發光層形成用組成物（3）。

化合物（A） 0.02 重量%

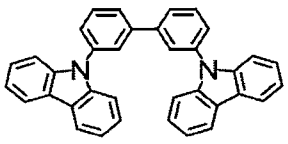
SPH-101 1.98 重量%

二甲苯 98.00 重量%

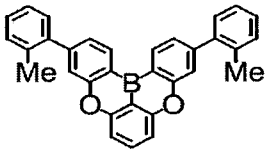
【0804】 藉由將下述成分攪拌至成為均勻的溶液為止，從而製備發光層形成用組成物（4）。

化合物（A）	0.02 重量%
DOBNA	1.98 重量%
甲苯	98.00 重量%

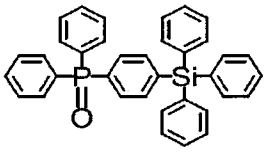
【0805】 表 3 中，「mCBP」為 3,3'-雙(N-咔唑基)-1,1'-聯苯，「DOBNA」為 3,11-二鄰甲苯基-5,9-二氧雜-13b-硼雜萘並[3,2,1-de]蒽，「TSPO1」為二苯基[4-(三苯基矽烷基)苯基]氧化膦。以下示出化學結構。



mCBP



DOBNA



TSPO1

【0806】 ＜實施例 5＞

於成膜有厚度為 45 nm 的 ITO 的玻璃基板上旋塗 ND-3202(日產化學工業製造）溶液後，於大氣環境下以 50℃加熱 3 分鐘，進而以 230℃加熱 15 分鐘，藉此製成膜厚 50 nm 的 ND-3202 膜（電洞注入層）。繼而，旋塗 XLP-101 溶液，於氮氣環境下，於加熱板上以 200℃加熱 30 分鐘，藉此製成膜厚 20 nm 的 XLP-101 膜（電洞傳輸層）。繼而，旋塗發光層形成用組成物（2），於氮氣環境下，以 130℃加熱 10 分鐘，藉此製成 20 nm 的發光層。

【0807】 將所製作的多層膜固定於市售的蒸鍍裝置（昭和真空（股）製造）的基板固定器上，安裝放入有 TSPO1 的鉬製蒸鍍用

舟皿、放入有 LiF 的鉬製蒸鍍用舟皿、放入有鋁的鎢製蒸鍍用舟皿。將真空槽減壓至 5×10^{-4} Pa 為止，然後，對 TSPO1 進行加熱且以使膜厚成為 30 nm 的方式進行蒸鍍，從而形成電子傳輸層。將形成電子傳輸層時的蒸鍍速度設為 1 nm/sec。其後，對 LiF 進行加熱且以使膜厚成為 1 nm 的方式以 0.01 nm/sec～0.1 nm/sec 的蒸鍍速度進行蒸鍍。繼而，對鋁進行加熱且以使膜厚成為 100 nm 的方式進行蒸鍍而形成陰極。以所述方式獲得有機 EL 元件。

【0808】 ＜實施例 6 及實施例 7＞

使用發光層形成用組成物（3）或發光層形成用組成物（4）並利用與實施例 5 相同的方法來獲得有機 EL 元件。

【0809】 ＜實施例 8～實施例 10 的有機 EL 元件的製作＞

將有機 EL 元件中的各層的材料構成示於表 4 中。

[表 4]

	電洞注入層 50 nm	電洞傳輸層 20 nm	發光層 20 nm			電子傳輸層 30 nm	陰極 1 nm/100 nm
			主體	輔助摻雜劑	摻雜劑		
實施例 8	ND-3202	XLP-101	mCBP	2PXZ-TAZ	（A）	TSPO1	LiF/Al
實施例 9	ND-3202	XLP-101	SPH-101	2PXZ-TAZ	（A）	TSPO1	LiF/Al
實施例 10	ND-3202	XLP-101	DOBNA	2PXZ-TAZ	（A）	TSPO1	LiF/Al

【0810】 ＜發光層形成用組成物（5）～發光層形成用組成物（7）的製備＞

藉由將下述成分攪拌至成為均勻的溶液為止，從而製備發光層形成用組成物（5）。

化合物（A）	0.02 重量%
2PXZ-TAZ	0.18 重量%
mCBP	1.80 重量%
甲苯	98.00 重量%

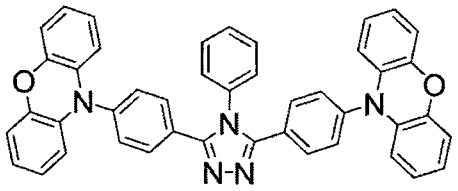
【0811】 藉由將下述成分攪拌至成為均勻的溶液為止，從而製備發光層形成用組成物（6）。

化合物（A）	0.02 重量%
2PXZ-TAZ	0.18 重量%
SPH-101	1.80 重量%
二甲苯	98.00 重量%

【0812】 藉由將下述成分攪拌至成為均勻的溶液為止，從而製備發光層形成用組成物（7）。

化合物（A）	0.02 重量%
2PXZ-TAZ	0.18 重量%
DOBNA	1.80 重量%
甲苯	98.00 重量%

【0813】 表 4 中，「2PXZ-TAZ」為 10,10'-((4-苯基-4H-1,2,4-三唑-3,5-二基)雙(4,1-苯基的))雙(10H-啡噁嗪)。以下示出化學結構。



(2PXZ-TAZ)

【0814】 ＜實施例 8＞

於成膜有厚度為 45 nm 的 ITO 的玻璃基板上旋塗 ND-3202（日產化學工業製造）溶液後，於大氣環境下以 50℃加熱 3 分鐘，進而以 230℃加熱 15 分鐘，藉此製成膜厚 50 nm 的 ND-3202 膜（電洞注入層）。繼而，旋塗 XLP-101 溶液，於氮氣環境下，於加熱板上以 200℃加熱 30 分鐘，藉此製成膜厚 20 nm 的 XLP-101 膜（電洞傳輸層）。繼而，旋塗發光層形成用組成物（5），於氮氣環境下，以 130℃加熱 10 分鐘，藉此製成 20 nm 的發光層。

【0815】 將所製作的多層膜固定於市售的蒸鍍裝置（昭和真空（股）製造）的基板固定器上，安裝放入有 TSPO1 的鉬製蒸鍍用舟皿、放入有 LiF 的鉬製蒸鍍用舟皿、放入有鋁的鎢製蒸鍍用舟皿。將真空槽減壓至 5×10^{-4} Pa 為止，然後，對 TSPO1 進行加熱且以使膜厚成為 30 nm 的方式進行蒸鍍，從而形成電子傳輸層。將形成電子傳輸層時的蒸鍍速度設為 1 nm/sec。其後，對 LiF 進行加熱且以使膜厚成為 1 nm 的方式以 0.01 nm/sec～0.1 nm/sec 的蒸鍍速度進行蒸鍍。繼而，對鋁進行加熱且以使膜厚成為 100 nm 的方式進行蒸鍍而形成陰極。以所述方式獲得有機 EL 元件。

【0816】 ＜實施例 9 及實施例 10＞

使用發光層形成用組成物（6）或發光層形成用組成物（7）並利用與實施例 8 相同的方法來獲得有機 EL 元件。

【0817】 ＜實施例 11～實施例 29＞

＜發光層形成用組成物的製備＞

對實施例 11～實施例 29 的發光層形成用組成物進行製備。分別將表 5A 及表 5B 中記載的化合物混合並加以攪拌，藉此製備發光層形成用組成物。

【0818】 [表 5A]

	濃度				第一成分	第二成分	第三成分
	固體成分濃度	第一成分	第二成分	第三成分			
實施例 11	1	0.01	0.99	99.0	化合物（1-411）	化合物（3-44）	環己基苯/3-苯氧基甲苯 7/3
實施例 12	1	0.01	0.99	99.0	化合物（1-590）	化合物（3-44）	環己基苯/3-苯氧基甲苯 7/3
實施例 13	2	0.02	1.98	98.0	化合物（1-590）	化合物（3-44）	環己基苯/3-苯氧基甲苯 7/3
實施例 14	1	0.01	0.99	99.0	化合物（1-590）	化合物（3-44）	甲苯/十氫萘 9/1
實施例 15	1	0.01	0.99	99.0	化合物（1-590）	化合物（3-44）	3-苯氧基甲苯/環己基苯 9/1
實施例 16	1	0.01	0.99	99.0	化合物（1-590）	化合物（3-44）	苯甲醚/十氫萘 7/3
實施例 17	1	0.01	0.99	99.0	化合物（1-590）	化合物（3-44）	二甲苯/1-甲基萘 7/3
實施例 18	1	0.01	0.99	99.0	化合物（1-590）	化合物（3-44）	3-苯氧基甲苯/環己基苯 7/3
實施例 19	1	0.01	0.99	99.0	化合物（1-590）	化合物（3-44）	正辛基苯/二苯基醚 7/3
實施例 20	1	0.01	0.99	99.0	化合物（1-590）	化合物（3-44）	環己基苯/二苯基醚 7/3
實施例 21	1	0.01	0.99	99.0	化合物（1-590）	化合物（3-44）	環己基苯/3-苯氧基甲苯/4-氟苯甲醚 6/3/1
實施例 22	1	0.01	0.99	99.0	化合物（1-590）	化合物（3-44）	苯甲酸乙酯/3-苯氧基甲苯 5/5

【0819】 [表 5B]

	濃度				第一成分	第二成分	第三成分
	固體成分濃度	第一成分	第二成分	第三成分			
實施例23	1	0.01	0.99	99.0	化合物（1-411）	化合物（BH-2）	環己基苯/3-苯氧基甲苯 7/3
實施例24	1	0.01	0.99	99.0	化合物（1-590）	化合物（BH-2）	環己基苯/3-苯氧基甲苯 7/3
實施例25	1	0.01	0.99	99	化合物（1-590）	化合物（BH-3）	環己基苯/3-苯氧基甲苯 7/3
實施例26	1	0.01	0.99	99	化合物（1-590）	化合物（BH-4）	環己基苯/3-苯氧基甲苯 7/3
實施例27	1	0.01	0.99	99	化合物（1-590）	化合物（BH-5）	環己基苯/3-苯氧基甲苯 7/3
實施例28	1	0.01	0.99	99	化合物（1-590）	化合物（BH-6）	環己基苯/3-苯氧基甲苯 7/3
實施例29	1	0.01	0.99	99	化合物（1-590）	化合物（BH-7）	環己基苯/3-苯氧基甲苯 7/3

【0820】 ＜評價＞

針對所獲得的實施例 11～實施例 29 的發光層形成用組成物，對溶解性及塗佈性進行評價。

【0821】 （溶解性的評價）

將化合物全部溶解而獲得均勻的溶液的例子設為「溶解」，將殘留有不溶物的例子設為「不溶」。

【0822】 （塗佈性的評價）

針對於所製備的油墨組成物的溶解性的評價中為「溶解」者，

對旋塗成膜後或噴墨印刷後所獲得的膜的製膜性進行評價。將於製膜後，膜中有針孔、化合物的析出或不均者示為「不良」，將無針孔、化合物的析出或不均者示為「良好」。

【0823】 ＜利用旋塗的塗佈方法＞

藉由對厚度 0.5 mm、尺寸 28 mm×26 mm 的潔淨的玻璃基板照射照射能量 1000 mJ/cm^2(低壓水銀燈(254 奈米))來進行 UV-O3 處理。繼而，將 0.3 mL～0.6 mL 的油墨組成物滴加至玻璃上，並進行旋塗（傾斜（slope）、5 秒→500 rpm～5000 rpm、10 秒→傾斜、5 秒）。進而，於 120℃的加熱板上乾燥 10 分鐘。

【0824】 ＜利用噴墨的塗佈方法＞

針對塗佈性，使用噴墨向 100 ppi 的畫素內噴出，對在 100℃下乾燥而成的塗膜的成膜性進行評價。

【0825】 ＜黏度的測定方法＞

黏度是使用圓錐平板型旋轉黏度計(cone-plate type)來測定。

【0826】 ＜表面張力的測定方法＞

表面張力是使用懸滴法來測定。

【0827】 [表 6A]

	溶解	塗佈性		噴墨噴出穩定性		黏度	表面張力
		旋塗	噴墨	初期	24 小時後	mPa·s	mN/m
實施例 11	溶解	良好	良好	良好	良好	-	-
實施例 12	溶解	良好	良好	良好	良好	-	-
實施例 13	溶解	良好	良好	良好	良好	-	-
實施例 14	溶解	良好	良好	良好	良好	-	-
實施例 15	溶解	良好	良好	良好	良好	-	-
實施例 16	溶解	良好	良好	良好	良好	-	-
實施例 17	溶解	良好	良好	良好	良好	-	-
實施例 18	溶解	良好	良好	良好	良好	3.9	35.4
實施例 19	溶解	良好	良好	良好	良好		
實施例 20	溶解	良好	良好	良好	良好	-	-
實施例 21	溶解	良好	良好	良好	良好	-	-
實施例 22	溶解	良好	良好	良好	良好	-	-

【0828】 [表 6B]

	溶解	塗佈性		噴墨噴出穩定性		黏度	表面張力
		旋塗	噴墨	初期	24 小時後	mPa·s	mN/m
實施例 23	溶解	良好	良好	良好	良好	-	-
實施例 24	溶解	良好	良好	良好	良好	-	-
實施例 25	溶解	良好	良好	良好	良好	-	-
實施例 26	溶解	良好	良好	良好	良好	-	-
實施例 27	溶解	良好	良好	良好	良好	-	-
實施例 28	溶解	良好	良好	良好	良好	-	-
實施例 29	溶解	良好	良好	良好	良好	-	-

【0829】 本申請案實施例均顯示出良好的溶解性、塗佈性。

【0830】 ＜實施例 30、實施例 31＞

＜塗佈型有機 EL 元件的評價＞

繼而，對塗佈形成有機層而獲得的有機 EL 元件進行說明。將所製作的有機 EL 元件中的各層的材料構成示於表 7 中。

【0831】 [表 7]

	電洞注入層（40 nm）	電洞傳輸層（30 nm）	發光層（20 nm）			電子傳輸層（30 nm）	陰極 1 nm/100 nm	發光波長 [nm]	效率 [%]
			第二成分	第一成分	組成物				
實施例30	PEDOT：PSS	XLP-101	化合物（3-44）	化合物（1-411）	實施例11	ET1	LiF/Al	464	6.3
實施例31	PEDOT：PSS	XLP-101	化合物（BH-2）	化合物（1-590）	實施例24	ET1	LiF/Al	464	6.3

【0832】 ＜實施例 30＞

於蒸鍍有厚度為 150 nm 的 ITO 的玻璃基板上旋塗 PEDOT：PSS 溶液，於 200℃的加熱板上煅燒 1 小時，藉此製成膜厚 40 nm 的 PEDOT：PSS 膜（電洞注入層）。繼而，旋塗 XLP-101 溶液，於 200℃的加熱板上煅燒 1 小時，藉此製成膜厚 30 nm 的膜（電洞傳輸層）。繼而，旋塗實施例 11 中所製備的發光層形成用組成物，於 120℃的加熱板上煅燒 1 小時，藉此製成膜厚 20 nm 的發光層。

【0833】 將所製作的多層膜固定於市售的蒸鍍裝置（昭和真空（股）製造）的基板固定器上，安裝放入有 ET1 的鉬製蒸鍍用舟皿、放入有 LiF 的鉬製蒸鍍用舟皿、放入有鋁的鎢製蒸鍍用舟皿。將真空槽減壓至 5×10^{-4} Pa 為止，然後，對 ET1 進行加熱且以使膜厚成為 30 nm 的方式進行蒸鍍，從而形成電子傳輸層。將形成電子傳輸層時的蒸鍍速度設為 1 nm/sec。其後，對 LiF 進行加熱且以使膜厚成為 1 nm 的方式以 0.01 nm/sec～0.1 nm/sec 的蒸鍍速度進行蒸鍍。繼而，對鋁進行加熱且以使膜厚成為 100 nm 的方式進行蒸鍍而形成陰極。以所述方式獲得有機 EL 元件。

【0834】 ＜實施例 31＞

除使用實施例 24 中所製備的發光層形成用組成物來代替實施例 11 中所製備的發光層形成用組成物以外，利用與實施例 30 相同的程序來製作有機 EL 元件。

【0835】 如上所述，認為：通常使用濕式成膜法所形成的有機 EL 元件可獲得與使用真空蒸鍍法所形成的相同的元件構成的有機 EL 元件同等的特性。該些元件只要進行塗佈步驟、乾燥步驟的最佳化，則可獲得與具有相同的發光層的材料構成的蒸鍍型有機 EL 元件同等的特性。

【0836】 以上，對本發明的化合物的一部分進行作為有機 EL 元件用材料的評價，且顯示出為優異的材料，但未進行評價的其他化合物亦為具有相同的基本骨架且整體而言亦具有類似結構的化合物，對於本領域技術人員而言，可同樣地理解為是優異的有機 EL 元件用材料。

[產業上之可利用性]

【0837】 本發明中，藉由提供新穎的環烷烴縮合多環芳香族化合物，而可增加例如有機 EL 元件用材料等有機元件用材料的選擇項。另外，藉由將新穎的環烷烴縮合多環芳香族化合物用作有機 EL 元件用材料，而可提供例如發光效率或元件壽命優異的有機 EL 元件、具備其的顯示裝置及具備其的照明裝置等。

【符號說明】

【0838】

100:有機電致發光元件（有機 EL 元件）

101:基板

102:陽極

103:電洞注入層

104:電洞傳輸層

105:發光層

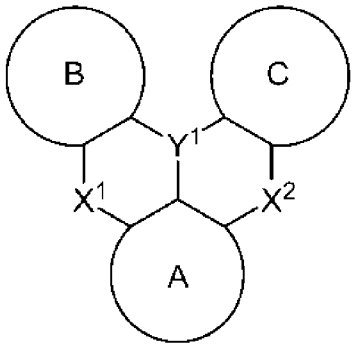
106:電子傳輸層

107:電子注入層

108:陰極

【發明申請專利範圍】

【請求項1】 一種多環芳香族化合物，其為單量體或多聚體，所述單量體由下述通式（1）表示，所述多聚體具有多個下述通式（1）所表示的結構；



(1)

（所述式（1）中，

A 環、B 環及 C 環分別獨立地為芳基環或雜芳基環，該些環中的至少一個氫可被取代，

Y^1 為 B、P、P=O、P=S、Al、Ga、As、Si-R 或 Ge-R，所述 Si-R 及 Ge-R 的 R 為芳基、烷基或環烷基，

X^1 及 X^2 分別獨立地為＞O、＞N-R、＞$C(-R)_2$、＞S 或＞Se，所述＞N-R 的 R 為可被取代的芳基、可被取代的雜芳基、可被取代的烷基或可被取代的環烷基，所述＞$C(-R)_2$ 的 R 為氫、可被取代的芳基、可被取代的烷基或可被取代的環烷基，另外，所述＞N-R 的 R 及所述＞$C(-R)_2$ 的 R 的至少一個可藉由連結基或單鍵而與所述 A 環、B 環及 C 環的至少一個鍵結，

式（1）所表示的化合物中的至少一個氫可由氘、氰基或鹵素取代，而且，

式（1）所表示的化合物中的 A 環、B 環、C 環、芳基及雜芳基的至少一個由至少一個環烷烴縮合，所述環烷烴中的兩個 α 位的碳上的至少一個氫被取代，所述環烷烴中的至少一個-CH_2-可由-O-取代）。

【請求項2】 如請求項 1 所述的多環芳香族化合物，其中，

所述式（1）中，

A 環、B 環及 C 環分別獨立地為芳基環或雜芳基環，該些環中的至少一個氫可由經取代或未經取代的芳基、經取代或未經取代的雜芳基、經取代或未經取代的二芳基胺基、經取代或未經取代的二雜芳基胺基、經取代或未經取代的芳基雜芳基胺基、經取代或未經取代的二芳基硼基（兩個芳基可經由單鍵或連結基而鍵結）、經取代或未經取代的烷基、經取代或未經取代的環烷基、經取代或未經取代的烷氧基、經取代或未經取代的芳氧基、或者經取代的矽烷基取代，另外，該些環具有與包含 Y^1、X^1 及 X^2 的式（1）中央的縮合二環結構共有鍵結的 5 員環或 6 員環，

Y^1 為 B、P、P=O、P=S、Al、Ga、As、Si-R 或 Ge-R，所述 Si-R 及 Ge-R 的 R 為芳基、烷基或環烷基，

X^1 及 X^2 分別獨立地為＞O、＞N-R、＞C(-R)$_2$、＞S 或＞Se，所述＞N-R 的 R 為可由烷基或環烷基取代的芳基、可由烷基或環烷基取代的雜芳基、烷基或環烷基，所述＞C(-R)$_2$ 的 R 為氫、可

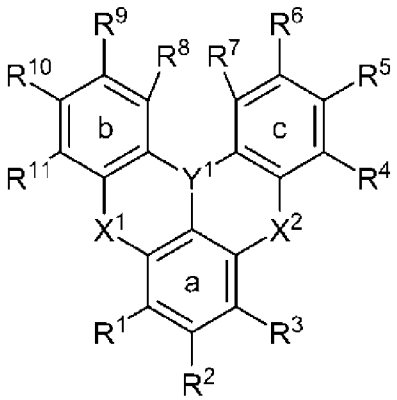
由烷基或環烷基取代的芳基、烷基或環烷基，另外，所述＞N-R的 R 及所述＞$C(-R)_2$的 R 的至少一個可藉由-O-、-S-、$-C(-R)_2-$或單鍵而與所述 A 環、B 環及 C 環的至少一個鍵結，所述$-C(-R)_2-$的 R 為氫、烷基或環烷基，

式（1）所表示的化合物中的至少一個氫可由氘、氰基或鹵素取代，

於為多聚體的情況下，為具有 2 個或 3 個通式（1）所表示的結構的二聚體或三聚體，而且，

式（1）所表示的化合物中的 A 環、B 環、C 環、芳基及雜芳基的至少一個由至少一個環烷烴縮合，所述環烷烴中的兩個 α 位的碳上的至少一個氫被取代，所述環烷烴中的至少一個$-CH_2-$可由-O-取代。

【請求項3】 如請求項 1 所述的多環芳香族化合物，其由下述通式（2）表示；



(2)

（所述式（2）中，

a環、b環及c環中的任意的「-C(-R)=」（此處，R為式（2）中的 R^1～R^{11}）可被取代為「-N=」，任意的「-C(-R)=C(-R)-」（此處，R為式（2）中的 R^1～R^{11}）可被取代為「-N(-R)-」、「-O-」或「-S-」，所述「-N(-R)-」的R為芳基、烷基或環烷基，

R^1～R^{11}分別獨立地為氫、芳基、雜芳基、二芳基胺基、二雜芳基胺基、芳基雜芳基胺基、二芳基硼基（兩個芳基可經由單鍵或連結基而鍵結）、烷基、環烷基、烷氧基、芳氧基、三芳基矽烷基、三烷基矽烷基、三環烷基矽烷基、二烷基環烷基矽烷基或烷基二環烷基矽烷基，該些中的至少一個氫可由芳基、雜芳基、烷基或環烷基取代，另外，R^1～R^{11}中的鄰接的基彼此可鍵結並與a環、b環或c環一同形成芳基環或雜芳基環，所形成的環中的至少一個氫可由芳基、雜芳基、二芳基胺基、二雜芳基胺基、芳基雜芳基胺基、二芳基硼基（兩個芳基可經由單鍵或連結基而鍵結）、烷基、環烷基、烷氧基、芳氧基、三芳基矽烷基、三烷基矽烷基、三環烷基矽烷基、二烷基環烷基矽烷基或烷基二環烷基矽烷基取代，該些中的至少一個氫可由芳基、雜芳基、烷基或環烷基取代，

Y^1為B、P、P=O、P=S、Al、Ga、As、Si-R或Ge-R，所述Si-R及Ge-R的R為碳數6～12的芳基、碳數1～6的烷基或碳數3～14的環烷基，

X^1及X^2分別獨立地為＞O、＞N-R、＞$C(-R)_2$、＞S或＞Se，所述＞N-R的R為碳數6～12的芳基、碳數2～15的雜芳基、碳數1～6的烷基或碳數3～14的環烷基，所述＞$C(-R)_2$的R為氫、

碳數 6～12 的芳基、碳數 1～6 的烷基或碳數 3～14 的環烷基，另外，所述＞N-R 的 R 及所述＞$C(-R)_2$ 的 R 的至少一個可藉由-O-、-S-、$-C(-R)_2-$或單鍵而與所述 a 環、b 環及 c 環的至少一個鍵結，所述$-C(-R)_2-$的 R 為碳數 1～6 的烷基或碳數 3～14 的環烷基，

式（2）所表示的化合物中的至少一個氫可由氘、氰基或鹵素取代，而且，

式（2）所表示的化合物中的所述 a 環、所述 b 環、所述 c 環、所述所形成的環、所述芳基及所述雜芳基的至少一個由碳數 3～24 的至少一個環烷烴縮合，所述環烷烴中的兩個 α 位的碳上的至少一個氫由碳數 6～30 的芳基、碳數 2～30 的雜芳基、碳數 1～24 的烷基或碳數 3～24 的環烷基取代，所述環烷烴中的至少一個$-CH_2-$可由-O-取代）。

【請求項4】 如請求項 3 所述的多環芳香族化合物，其中，

所述式（2）中，

a 環、b 環及 c 環中的任意的「-C(-R)=」（此處，R 為式（2）中的 R^1～R^{11}）可被取代為「-N=」，任意的「-C(-R)=C(-R)-」（此處，R 為式（2）中的 R^1～R^{11}）可被取代為「-N(-R)-」、「-O-」或「-S-」，所述「-N(-R)-」的 R 為碳數 6～12 的芳基、碳數 1～6 的烷基或碳數 3～14 的環烷基，

R^1～R^{11} 分別獨立地為氫、碳數 6～30 的芳基、碳數 2～30 的雜芳基、二芳基胺基（其中，芳基為碳數 6～12 的芳基）、二芳基硼基（其中，芳基為碳數 6～12 的芳基，且兩個芳基可經由單

鍵或連結基而鍵結）、碳數 1～24 的烷基、碳數 3～24 的環烷基、三芳基矽烷基（其中，芳基為碳數 6～12 的芳基）或三烷基矽烷基（其中，烷基為碳數 1～6 的烷基），另外，R^1～R^{11} 中的鄰接的基彼此可鍵結並與 a 環、b 環或 c 環一同形成碳數 9～16 的芳基環或碳數 6～15 的雜芳基環，所形成的環中的至少一個氫可由碳數 6～10 的芳基、碳數 1～12 的烷基、碳數 3～16 的環烷基、三芳基矽烷基（其中，芳基為碳數 6～12 的芳基）或三烷基矽烷基（其中，烷基為碳數 1～5 的烷基）取代，

Y^1 為 B、P、P=O、P=S 或 Si-R，所述 Si-R 的 R 為碳數 6～10 的芳基、碳數 1～5 的烷基或碳數 5～10 的環烷基，

X^1 及 X^2 分別獨立地為＞O、＞N-R、＞$C(-R)_2$ 或＞S，所述＞N-R 的 R 為碳數 6～10 的芳基、碳數 1～5 的烷基或碳數 5～10 的環烷基，所述＞$C(-R)_2$ 的 R 為氫、碳數 6～10 的芳基、碳數 1～5 的烷基或碳數 5～10 的環烷基，

式（2）所表示的化合物中的至少一個氫可由氘、氰基或鹵素取代，而且，

式（2）所表示的化合物中的所述 a 環、所述 b 環、所述 c 環、所述所形成的環、所述芳基及所述雜芳基的至少一個由碳數 3～20 的至少一個環烷烴縮合，所述環烷烴中的兩個 α 位的碳上的至少一個氫由碳數 6～16 的芳基、碳數 2～22 的雜芳基、碳數 1～12 的烷基或碳數 3～16 的環烷基取代。

【請求項5】 如請求項 3 所述的多環芳香族化合物，其中，

所述式（2）中，

a環、b環及c環中的任意的「-C(-R)=」（此處，R為式（2）中的 R^1～R^{11}）可被取代為「-N=」，任意的「-C(-R)=C(-R)-」（此處，R為式（2）中的 R^1～R^{11}）可被取代為「-N(-R)-」、「-O-」或「-S-」，所述「-N(-R)-」的R為碳數6～10的芳基、碳數1～5的烷基或碳數5～10的環烷基，

R^1～R^{11}分別獨立地為氫、碳數6～16的芳基、碳數2～20的雜芳基、二芳基胺基（其中，芳基為碳數6～10的芳基）、碳數1～12的烷基或碳數3～16的環烷基，

Y^1為B、P、P=O或P=S，

X^1及X^2分別獨立地為＞O、＞N-R或＞$C(-R)_2$，所述＞N-R的R為碳數6～10的芳基、碳數1～5的烷基或碳數5～10的環烷基，所述＞$C(-R)_2$的R為氫、碳數6～10的芳基、碳數1～5的烷基或碳數5～10的環烷基，

式（2）所表示的化合物中的至少一個氫可由氘、氰基或鹵素取代，而且，

式（2）所表示的化合物中的所述a環、所述b環、所述c環及作為所述＞N-R的R的碳數6～10的芳基的至少一個由碳數3～16的至少一個環烷烴縮合，所述環烷烴中的兩個α位的碳上的至少一個氫由碳數1～6的烷基或碳數3～14的環烷基取代。

【請求項6】 如請求項3所述的多環芳香族化合物，其中，

R^1～R^{11}分別獨立地為氫、碳數6～16的芳基、二芳基胺基（其

中，芳基為碳數 6～10 的芳基）、碳數 1～12 的烷基或碳數 3～16 的環烷基，

Y^1 為 B，

X^1 及 X^2 均為＞N-R，或者 X^1 為＞N-R 且 X^2 為＞O，所述＞N-R 的 R 為碳數 6～10 的芳基、碳數 1～5 的烷基或碳數 5～10 的環烷基，

式（2）所表示的化合物中的至少一個氫可由氘或鹵素取代，而且，

式（2）所表示的化合物中的所述 a 環、所述 b 環、所述 c 環及作為所述＞N-R 的 R 的碳數 6～10 的芳基的至少一個由碳數 3～14 的環烷烴縮合，所述環烷烴中的兩個 α 位的碳上的至少一個氫由碳數 1～5 的烷基取代。

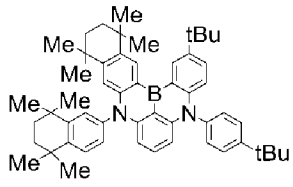
【請求項 7】 如請求項 1 至請求項 6 中任一項所述的多環芳香族化合物，其中有氫被由環烷烴縮合的二芳基胺基、由環烷烴縮合的咔唑基或由環烷烴縮合的苯並咔唑基取代。

【請求項 8】 如請求項 3 至請求項 6 中任一項所述的多環芳香族化合物，其中，R^2 為由環烷烴縮合的二芳基胺基或由環烷烴縮合的咔唑基。

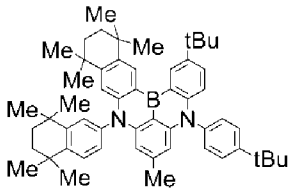
【請求項 9】 如請求項 7 所述的多環芳香族化合物，其中，所述環烷烴為碳數 3～20 的環烷烴。

【請求項 10】 如請求項 1 至請求項 6 中任一項所述的多環芳香族化合物，其中，所述鹵素為氟。

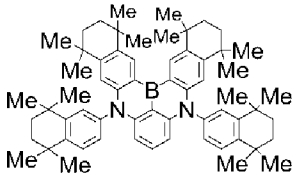
【請求項 11】 如請求項 1 所述的多環芳香族化合物，其由下述結構式的任一者表示；



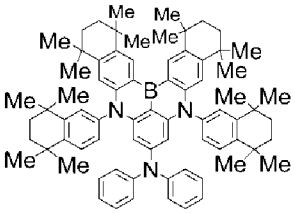
(1-411)



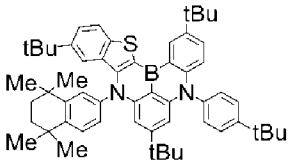
(1-590)



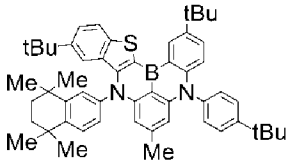
(1-1301)



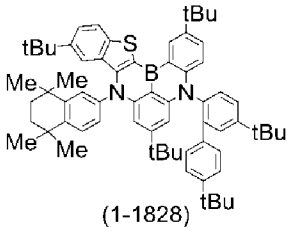
(1-1302)



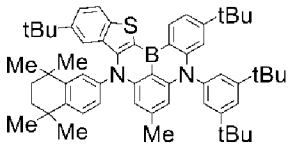
(1-1823)



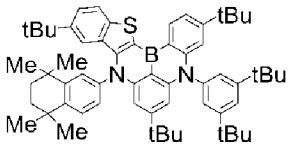
(1-1821)



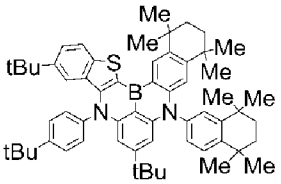
(1-1828)



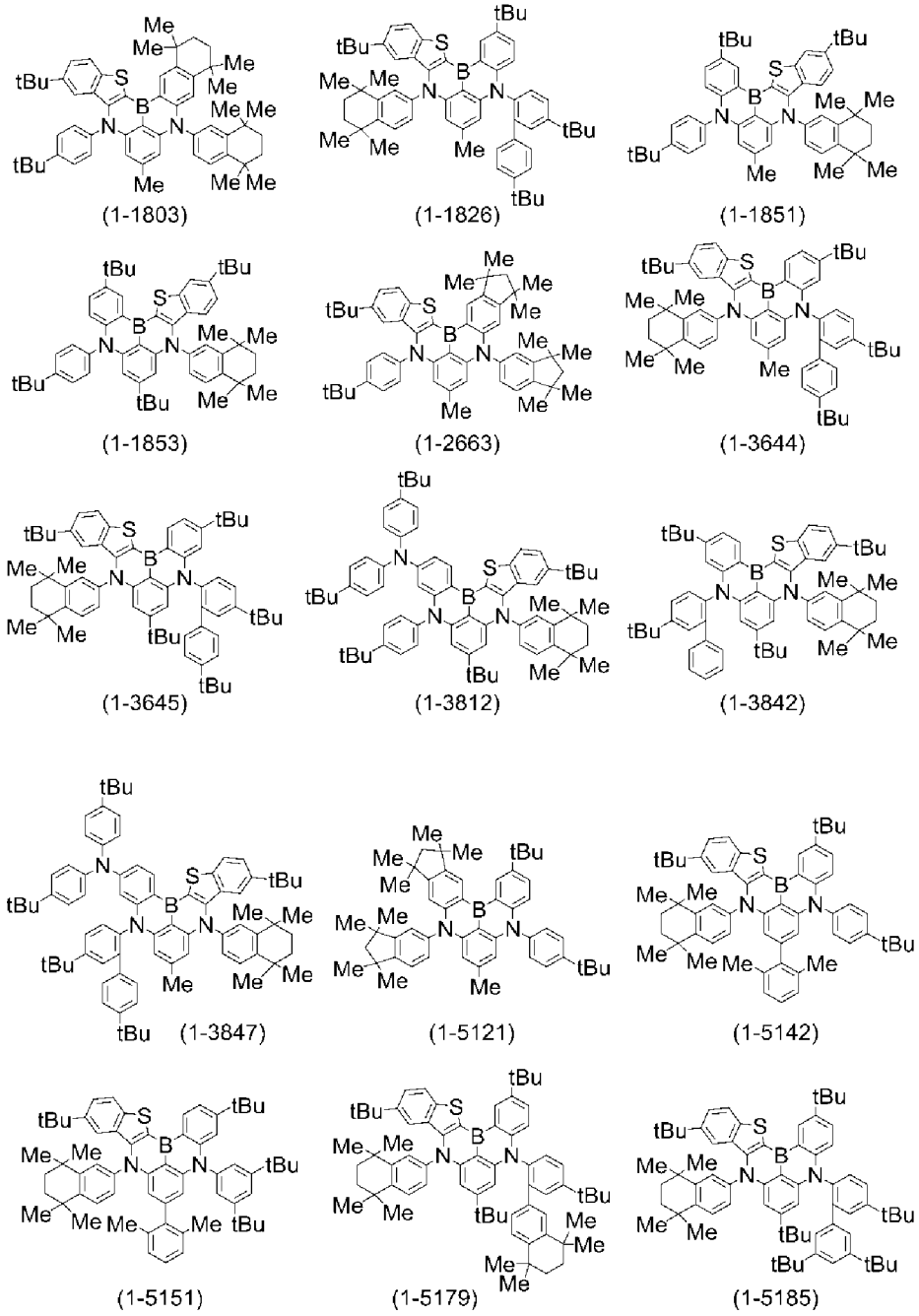
(1-3621)



(1-3623)

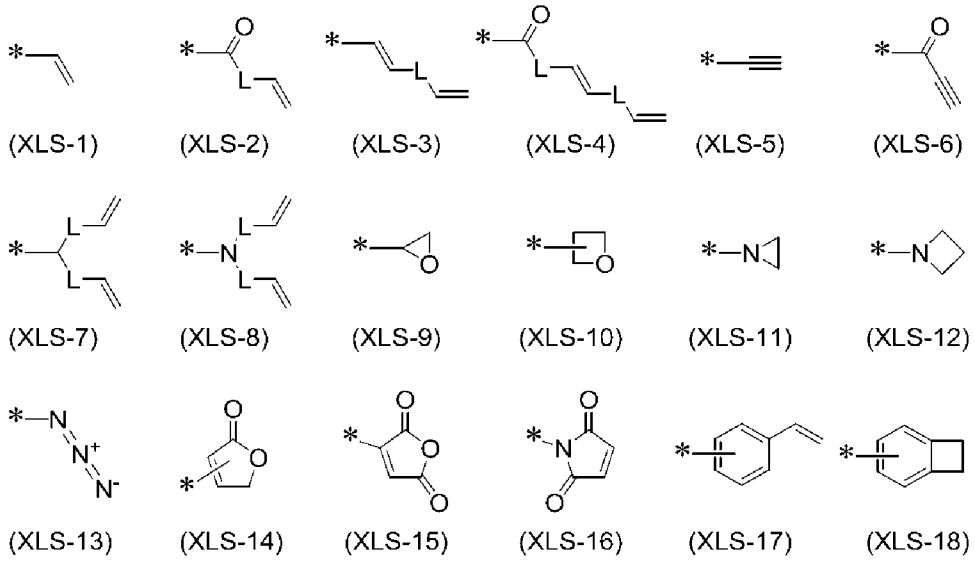


(1-3604)



（各結構式中的「Me」表示甲基，「tBu」表示第三丁基）。

【請求項 12】 一種反應性化合物，其是將如請求項 1 至請求項 11 中任一項所述的多環芳香族化合物中的氫取代為反應性取代基而成，所述反應性取代基選自式(XLS-1)至式(XLS-18)所表示的基：



所述式(XLS-1)至式(XLS-18)中，*表示鍵結位置，L 分別獨立地為單鍵、-O-、-S-、＞C=O、-O-C(=O)-、碳數 1～12 的伸烷基、碳數 1～12 的氧伸烷基或碳數 1～12 的聚氧伸烷基。

【請求項 13】 一種高分子化合物，其是使如請求項 12 所述的反應性化合物作為單體進行高分子化而成的高分子化合物，或是使所述高分子化合物進一步交聯而成的高分子交聯體。

【請求項 14】 一種懸掛型高分子化合物，其是於主鏈型高分子中使如請求項 12 所述的反應性化合物取代而成的懸掛型高分子化合物，或是使所述懸掛型高分子化合物進一步交聯而成的懸掛型高分子交聯體。

【請求項 15】 一種有機元件用材料，含有如請求項 1 至請求項 11 中任一項所述的多環芳香族化合物。

【請求項 16】 一種有機元件用材料，含有如請求項 12 所述的反應性化合物。

【請求項 17】 一種有機元件用材料，含有如請求項 13 所述的高分

子化合物。

【請求項18】 一種有機元件用材料，含有如請求項14所述的懸掛型高分子化合物。

【請求項19】 如請求項15至請求項18中任一項所述的有機元件用材料，其中，所述有機元件用材料為有機電致發光元件用材料、有機場效電晶體用材料或有機薄膜太陽電池用材料。

【請求項20】 如請求項19所述的有機元件用材料，其中，所述有機電致發光元件用材料為發光層用材料。

【請求項21】 一種油墨組成物，包含：如請求項1至請求項11中任一項所述的多環芳香族化合物；以及有機溶媒。

【請求項22】 一種油墨組成物，包含：如請求項12所述的反應性化合物；以及有機溶媒。

【請求項 23】 一種油墨組成物，包含：主鏈型高分子；如請求項12所述的反應性化合物；以及有機溶媒。

【請求項24】 一種油墨組成物，包含：如請求項13所述的高分子化合物或高分子交聯體；以及有機溶媒。

【請求項25】 一種油墨組成物，包含：如請求項14所述的懸掛型高分子化合物或懸掛型高分子交聯體；以及有機溶媒。

【請求項 26】 一種有機電致發光元件，具有：一對電極，包含陽極及陰極；以及有機層，配置於所述一對電極間，且含有如請求項1至請求項11中任一項所述的多環芳香族化合物、如請求項12所述的反應性化合物、如請求項13所述的高分子化合物、或者如

請求項 14 所述的懸掛型高分子化合物。

【請求項 27】 如請求項 26 所述的有機電致發光元件，其中，所述有機層為發光層。

【請求項 28】 如請求項 27 所述的有機電致發光元件，其中，所述發光層包括：主體；以及作為摻雜劑的所述多環芳香族化合物、反應性化合物、高分子化合物或懸掛型高分子化合物。

【請求項 29】 如請求項 28 所述的有機電致發光元件，其中，所述主體為蒽系化合物、芴系化合物或二苯並茀系化合物。

【請求項 30】 如請求項 27 至請求項 29 中任一項所述的有機電致發光元件，其具有配置於所述陰極與所述發光層之間的電子傳輸層及電子注入層的至少一個層，且所述電子傳輸層及電子注入層的至少一者含有選自由硼烷衍生物、吡啶衍生物、螢蒽衍生物、BO 系衍生物、蒽衍生物、苯並芴衍生物、氧化膦衍生物、嘧啶衍生物、咔唑衍生物、三嗪衍生物、苯並咪唑衍生物、啡啉衍生物及羥基喹啉系金屬錯合物所組成的群組中的至少一者。

【請求項 31】 如請求項 30 所述的有機電致發光元件，其中，所述電子傳輸層及電子注入層的至少一個層更含有選自由鹼金屬、鹼土金屬、稀土金屬、鹼金屬的氧化物、鹼金屬的鹵化物、鹼土金屬的氧化物、鹼土金屬的鹵化物、稀土金屬的氧化物、稀土金屬的鹵化物、鹼金屬的有機錯合物、鹼土金屬的有機錯合物及稀土金屬的有機錯合物所組成的群組中的至少一者。

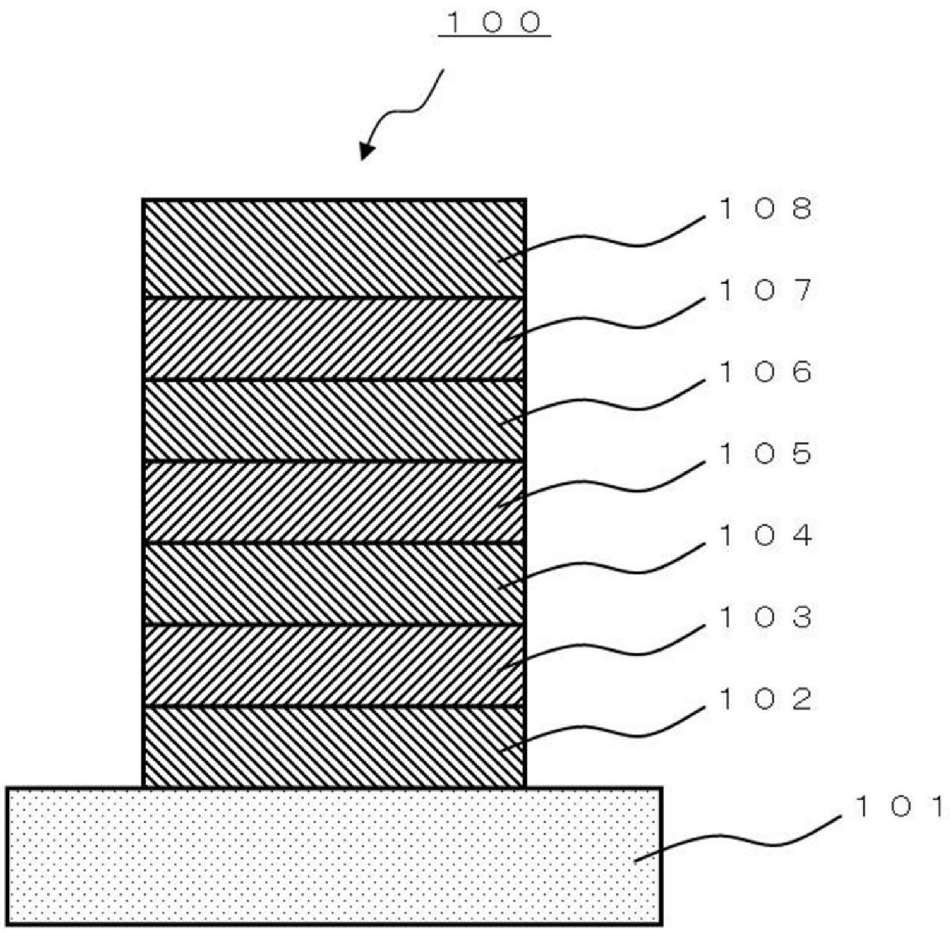
【請求項 32】 如請求項 26 至請求項 29 中任一項所述的有機電致

發光元件，其中，電洞注入層、電洞傳輸層、發光層、電子傳輸層及電子注入層中的至少一個層包含：高分子化合物或高分子交聯體、或者懸掛型高分子化合物或懸掛型高分子交聯體，所述高分子化合物是使可形成各層的低分子化合物作為單體進行高分子化而成，所述高分子交聯體是使所述高分子化合物進一步交聯而成，所述懸掛型高分子化合物是使可形成各層的低分子化合物與主鏈型高分子反應而成，所述懸掛型高分子交聯體是使所述懸掛型高分子化合物進一步交聯而成。

【請求項 33】 一種顯示裝置，包括如請求項 26 至請求項 32 中任一項所述的有機電致發光元件。

【請求項 34】 一種照明裝置，包括如請求項 26 至請求項 32 中任一項所述的有機電致發光元件。

【發明圖式】



【圖1】