

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2009-137949

(P2009-137949A)

(43) 公開日 平成21年6月25日 (2009.6.25)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
C07F 15/00 (2006.01)	C07F 15/00 E	3K107
C09K 11/06 (2006.01)	C09K 11/06 66O	4H050
H01L 51/50 (2006.01)	H05B 33/14 B	5F051
H01L 51/42 (2006.01)	H05B 33/22 B	
	H05B 33/22 D	
審査請求 未請求 請求項の数 9 O L 外国語出願 (全 172 頁) 最終頁に続く		

(21) 出願番号 特願2008-291981 (P2008-291981)
 (22) 出願日 平成20年11月14日 (2008.11.14)
 (31) 優先権主張番号 10-2007-0116792
 (32) 優先日 平成19年11月15日 (2007.11.15)
 (33) 優先権主張国 韓国 (KR)

(71) 出願人 508223435
 グラセル・ディスプレイ・インコーポレー
 テッド
 大韓民国, ソウル・133-833, ソン
 ドン・グウ, ソンスー・2ガ・3ドン・2
 84-25, サムヤン・テクノ・タウン・
 フィフス・フロア
 (74) 代理人 110000589
 特許業務法人センタ国際特許事務所
 (72) 発明者 キム, チン・ホ
 大韓民国, ソウル・133-727, ソン
 ドン・グウ, ソンス・2ガ・3・ドン・
 277-37, スンワン・サンテビュー・
 1404

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 新規有機エレクトロルミネッセンス化合物およびそれを使用した有機エレクトロルミネッセンスデバイス

(57) 【要約】

【課題】 本発明の目的は、従来の赤色リン光材料よりも優れた性質が得られる骨格を有する新規有機エレクトロルミネッセンス化合物を提供することである。

【解決手段】 本発明は、高発光効率を示す、新規有機エレクトロルミネッセンス化合物、およびそれを含む有機エレクトロルミネッセンスデバイスに関する。本発明による有機エレクトロルミネッセンス化合物は化学式(1)によって表される。

【化1】

化学式1

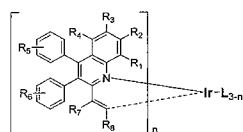
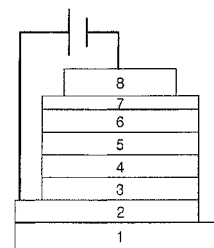


図 1



【選択図】 図 1

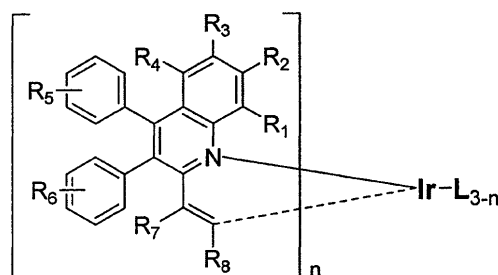
【特許請求の範囲】

【請求項 1】

化学式 (1) によって表される有機エレクトロルミネッセンス化合物：

【化 1】

化学式1



10

上式中、Lは有機配位子であり；

R₁ ~ R₄は独立に、水素、(C 1 ~ C 6 0)アルキル、(C 1 ~ C 6 0)アルコキシ、(C 3 ~ C 6 0)シクロアルキル、ハロゲン、トリ(C 1 ~ C 6 0)アルキルシリルまたはトリ(C 6 ~ C 6 0)アリールシリルを表し；

R₅およびR₆は独立に、水素、(C 1 ~ C 6 0)アルキル、ハロゲンまたは(C 6 ~ C 6 0)アリールを表し；

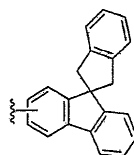
20

R₇およびR₈は独立に、水素；ハロゲン置換基を有するまたは有さない(C 1 ~ C 6 0)アルキル；(C 6 ~ C 6 0)アリール；ハロゲン；シアノ；トリ(C 1 ~ C 6 0)アルキルシリル；トリ(C 6 ~ C 6 0)アリールシリル；(C 1 ~ C 6 0)アルコキシ；(C 1 ~ C 6 0)アルキルカルボニル；(C 6 ~ C 6 0)アリールカルボニル；ジ(C 1 ~ C 6 0)アルキルアミノ；またはジ(C 6 ~ C 6 0)アリールアミノを表し、あるいはR₇およびR₈は、縮合環を有するまたは有さない(C 3 ~ C 1 2)アルキレンまたは(C 3 ~ C 1 2)アルケニレンを介して結合して脂環式環または単環式もしくは多環式の芳香環を形成してもよく；

R₇およびR₈のアルキルまたはアリール、あるいは(C 3 ~ C 1 2)アルキレンもしくは(C 3 ~ C 1 2)アルケニレンを介した結合によってそれらより形成された前記脂環式環または単環式もしくは多環式の芳香環は、(C 1 ~ C 6 0)アルキル、ハロゲン、シアノ、トリ(C 1 ~ C 6 0)アルキルシリル、トリ(C 6 ~ C 6 0)アリールシリル、(C 1 ~ C 6 0)アルコキシ、(C 1 ~ C 6 0)アルキルカルボニル、(C 6 ~ C 6 0)アリールカルボニル、ジ(C 1 ~ C 6 0)アルキルアミノ、ジ(C 6 ~ C 6 0)アリールアミノ、フェニル、ナフチル、アントリル、フルオレニル、スピロビフルオレニルおよび

30

【化 2】



40

から選択される1つ以上の置換基によってさらに置換されていてもよく；並びに、

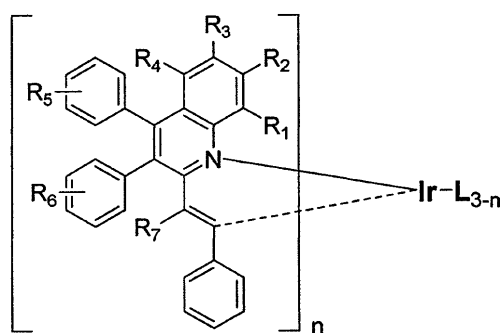
nは1 ~ 3の整数である。)。

【請求項 2】

化学式 (2) ~ (7) の1つによって表される化合物から選択される、請求項 1 記載の有機エレクトロルミネッセンス化合物：

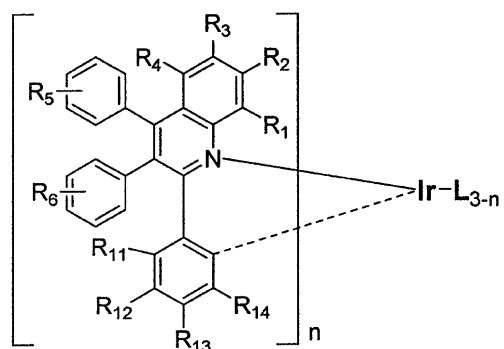
【化 3】

化学式2



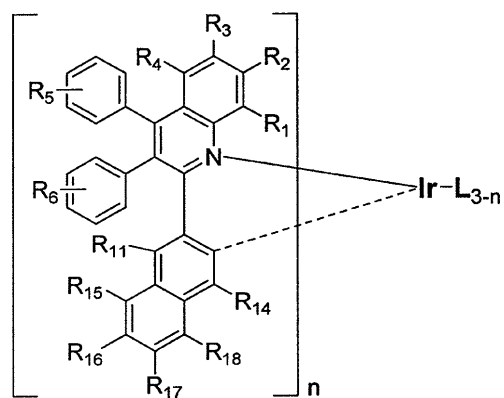
10

化学式3



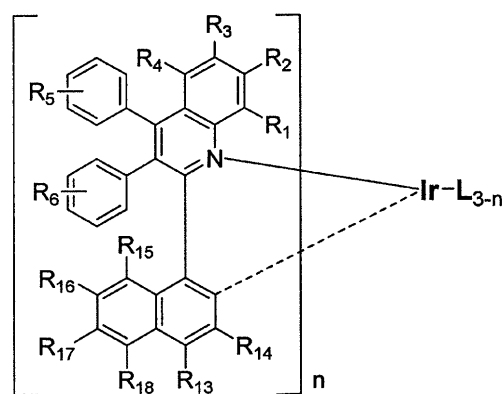
20

化学式4



30

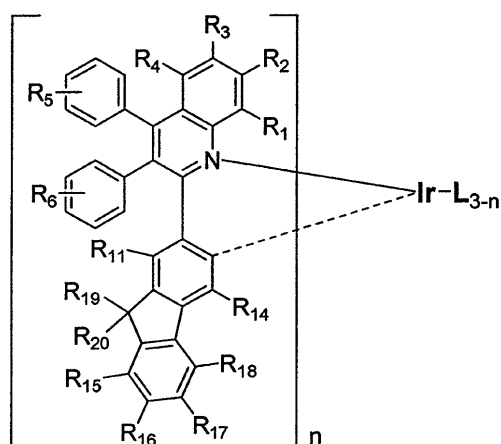
化学式5



40

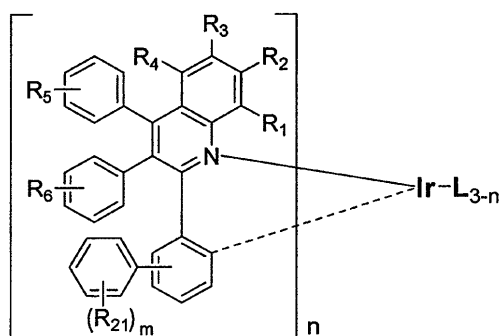
【化 4】

化学式6



10

化学式7



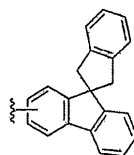
20

(上式中、L、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 、 R_7 、およびnは請求項1記載の定義の通りであり；

$R_{11} \sim R_{18}$ は独立に、水素、(C1～C60)アルキル、ハロゲン、シアノ、トリ(C1～C60)アルキルシリル、トリ(C6～C60)アリールシリル、(C1～C60)アルコキシ、(C1～C60)アルキルカルボニル、(C6～C60)アリールカルボニル、ジ(C1～C60)アルキルアミノ、ジ(C6～C60)アリールアミノ、フェニル、ナフチル、アントリル、フルオレニル、スピロビフルオレニルまたは、

30

【化 5】



を表し；

40

$R_{11} \sim R_{18}$ のアルキル、フェニル、ナフチル、アントリルまたはフルオレニルは、ハロゲン置換基を有するまたは有さない(C1～C60)アルキル、(C1～C60)アルコキシ、ハロゲン、トリ(C1～C60)アルキルシリル、トリ(C6～C60)アリールシリル、(C1～C60)アルキルカルボニル、(C1～C60)アリールカルボニル、ジ(C1～C60)アルキルアミノ、ジ(C6～C60)アリールアミノおよび(C6～C60)アリールから選択される1つ以上の置換基によってさらに置換されていてもよく；

R_{19} および R_{20} は独立に、水素、(C1～C60)アルキルまたは(C6～C60)アリールを表し、あるいは R_{19} および R_{20} は、縮合環を有するまたは有さない(C3～C12)アルキレンまたは(C3～C12)アルケニレンを介して結合して脂環式環

50

または単環式もしくは多環式の芳香環を形成してもよく；

R_{21} は、(C1～C60)アルキル、ハロゲン、シアノ、トリ(C1～C60)アルキルシリル、トリ(C6～C60)アリアルシリル、(C1～C60)アルコキシ、(C1～C60)アルキルカルボニル、(C6～C60)アリアルカルボニル、フェニル、ジ(C1～C60)アルキルアミノ、ジ(C6～C60)アリアルアミノ、ナフチル、9,9-ジ(C1～C60)アルキルフルオレニルまたは9,9-ジ(C6～C60)アリアルフルオレニルを表し；並びに、

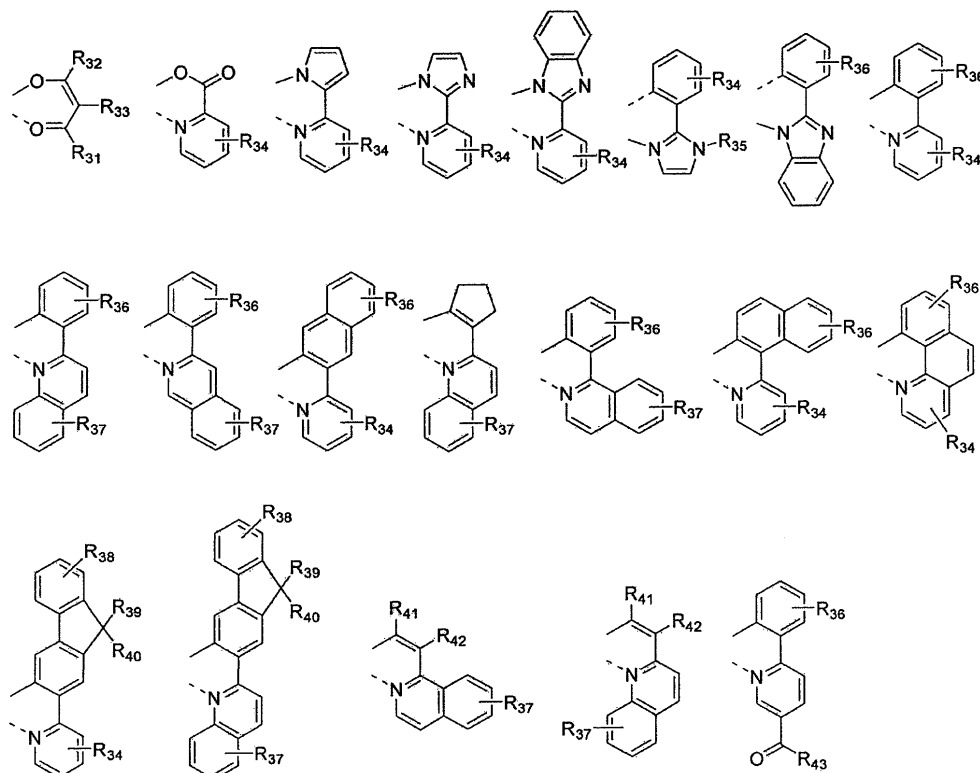
m は1～5の整数である。)。

【請求項3】

前記配位子(L)が下記の化学式の1つによって表される構造を有する、請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス化合物；

10

【化6】



20

30

(上式中、 R_{31} および R_{32} は独立に、水素；ハロゲン置換基を有するまたは有さない(C1～C60)アルキル；(C1～C60)アルキル置換基を有するまたは有さないフェニル；またはハロゲンを表し；

R_{33} ～ R_{39} は独立に、水素；(C1～C60)アルキル；(C1～C60)アルキル置換基を有するまたは有さないフェニル；トリ(C1～C60)アルキルシリル；またはハロゲンを表し；

R_{40} ～ R_{43} は独立に、水素；(C1～C60)アルキル；(C1～C60)アルキル置換基を有するまたは有さないフェニルを表し；並びに、

40

R_{44} は、(C1～C60)アルキル；(C1～C60)アルキル置換基を有するまたは有さないフェニル；またはハロゲンを表す。)。

【請求項4】

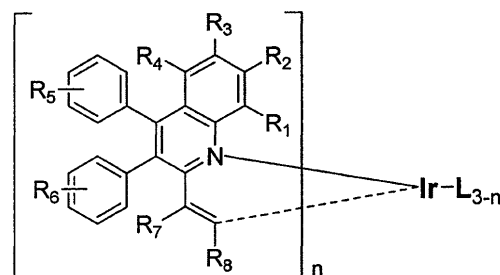
第1の電極；第2の電極；および第1の電極と第2の電極との間に介在する少なくとも1つの有機層からなる有機エレクトロルミネッセンスデバイスであって；

前記有機層が、

(i) 化学式(1)によって表される有機エレクトロルミネッセンス化合物、

【化 7】

化学式1



10

(上式中、Lは有機配位子であり；

R₁～R₄は独立に、水素、(C1～C60)アルキル、(C1～C60)アルコキシ、(C3～C60)シクロアルキル、ハロゲン、トリ(C1～C60)アルキルシリル、またはトリ(C6～C60)アリールシリルを表し；

R₅およびR₆は独立に、水素、(C1～C60)アルキル、ハロゲン、または(C6～C60)アリールを表し；

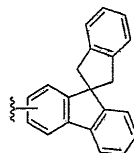
R₇およびR₈は独立に、水素；ハロゲン置換基を有するまたは有さない(C1～C60)アルキル；(C6～C60)アリール；ハロゲン；シアノ；トリ(C1～C60)アルキルシリル；トリ(C6～C60)アリールシリル；(C1～C60)アルコキシ；(C1～C60)アルキルカルボニル；(C6～C60)アリールカルボニル；ジ(C1～C60)アルキルアミノ；またはジ(C6～C60)アリールアミノを表し、あるいはR₇およびR₈は、縮合環を有するまたは有さない(C3～C12)アルキレンまたは(C3～C12)アルケニレンを介して結合して脂環式環または単環式もしくは多環式の芳香環を形成してもよく；

20

R₇およびR₈のアルキルまたはアリール、あるいは(C3～C12)アルキレンまたは(C3～C12)アルケニレンを介した結合によってそれらより形成された脂環式環または単環式もしくは多環式の芳香環は、(C1～C60)アルキル、ハロゲン、シアノ、トリ(C1～C60)アルキルシリル、トリ(C6～C60)アリールシリル、(C1～C60)アルコキシ、(C1～C60)アルキルカルボニル、(C6～C60)アリールカルボニル、ジ(C1～C60)アルキルアミノ、ジ(C6～C60)アリールアミノ、フェニル、ナフチル、アントリル、フルオレニル、スピロビフルオレニル、および

30

【化 8】



から選択される1つ以上の置換基によってさらに置換されていてもよく；並びに、

nは1～3の整数である)；

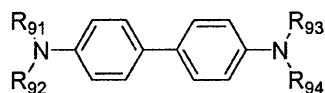
40

並びに、

(ii) 1, 3, 5-トリカルバゾリルベンゼン、ポリビニルカルバゾール、m-ビスカルバゾリルフェニル、4, 4', 4''-トリ(N-カルバゾリル)トリフェニルアミン、1, 3, 5-トリ(2-カルバゾリルフェニル)ベンゼン、1, 3, 5-トリス(2-カルバゾリル-5-メトキシフェニル)ベンゼン、ビス(4-カルバゾリルフェニル)シラン、および化学式(8)～(11)の1つによって表される化合物から選択される1種以上のホスト、

【化 9】

化学式8

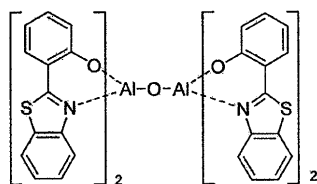


(化学式(8))において、 $R_{91} \sim R_{94}$ は独立に、水素；ハロゲン；(C1～C60)アルキル；(C6～C60)アリール；(C4～C60)ヘテロアリール；N、O、およびSから選択される1つ以上のヘテロ原子を含有する5または6員のヘテロシクロアルキル；(C3～C60)シクロアルキル；トリ(C1～C60)アルキルシリル；ジ(C1～C60)アルキル(C6～C60)アリールシリル；トリ(C6～C60)アリールシリル；アダマンチル；(C7～C60)ビスシクロアルキル；(C2～C60)アルケニル；(C2～C60)アルキニル；シアノ；(C1～C60)アルキルアミノ；(C6～C60)アリールアミノ；(C6～C60)アリール(C1～C60)アルキル；(C1～C60)アルキルオキシ；(C1～C60)アルキルチオ；(C6～C60)アリールオキシ；(C6～C60)アリールチオ；(C1～C60)アルコキシカルボニル；(C1～C60)アルキルカルボニル；(C6～C60)アリールカルボニル；カルボキシル；ニトロ；またはヒドロキシルを表し、あるいは $R_{91} \sim R_{94}$ のそれぞれは、縮合環を有するまたは有さない(C3～C60)アルキレンまたは(C3～C60)アルケニレンを介して隣接する置換基に結合して脂環式環または単環式もしくは多環式の芳香環を形成してもよく；

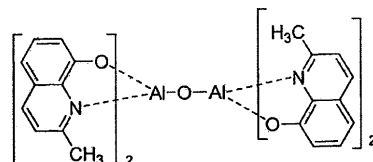
$R_{91} \sim R_{94}$ のアルキル、アルケニル、アルキニル、シクロアルキル、ヘテロシクロアルキル、アリール、ヘテロアリール、アリールシリル、アルキルシリル、アルキルアミノまたはアリールアミノ、あるいは、縮合環を有するまたは有さない(C3～C60)アルキレンまたは(C3～C60)アルケニレンを介して隣接する置換基に結合することによってそれらから形成された脂環式環または単環式もしくは多環式の芳香環は、ハロゲン；(C1～C60)アルキル；(C6～C60)アリール；(C4～C60)ヘテロアリール；N、O、およびSから選択される1つ以上のヘテロ原子を含有する5または6員のヘテロシクロアルキル；(C3～C60)シクロアルキル；トリ(C1～C60)アルキルシリル；ジ(C1～C60)アルキル(C6～C60)アリールシリル；トリ(C6～C60)アリールシリル；アダマンチル；(C7～C60)ビスシクロアルキル；(C2～C60)アルケニル；(C2～C60)アルキニル；シアノ；(C1～C60)アルキルアミノ；(C6～C60)アリールアミノ；(C6～C60)アリール(C1～C60)アルキル；(C1～C60)アルキルオキシ；(C1～C60)アルキルチオ；(C6～C60)アリールオキシ；(C6～C60)アリールチオ；(C1～C60)アルコキシカルボニル；(C1～C60)アルキルカルボニル；(C6～C60)アリールカルボニル；カルボキシル；ニトロ；およびヒドロキシルから選択される1つ以上の置換基によってさらに置換されていてもよい。)

【化 1 0】

化学式9



化学式10

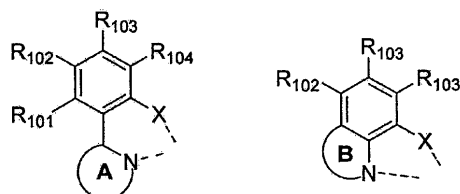


化学式11



(化学式(11)において、配位子 L^1 および L^2 は独立に下記の構造から選択され：

【化 1 1】



M^1 は二価または三価の金属であり；

M^1 が二価の金属の場合、 y は 0 であり、 M^1 が三価の金属の場合、 y は 1 であり；

Q は、(C 6 ~ C 6 0) アリールオキシまたはトリ(C 6 ~ C 6 0) アリールシリルを表し、 Q のアリールオキシおよびトリアリールシリルは、(C 1 ~ C 6 0) アルキルまたは(C 6 ~ C 6 0) アリールによってさらに置換されていてもよく；

X は、O、S、またはSeを表し；

環 A は、オキサゾール、チアゾール、イミダゾール、オキサジアゾール、チアジアゾール、ベンゾオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンズイミダゾール、ピリジンまたはキノリンを表し；

環 B は、ピリジンまたはキノリンを表し、環 B は、(C 1 ~ C 6 0) アルキル；または(C 1 ~ C 6 0) アルキル置換基を有するまたは有さないフェニルまたはナフチルによってさらに置換されていてもよく；

$R_{101} \sim R_{104}$ は独立に、水素；ハロゲン；(C 1 ~ C 6 0) アルキル；(C 6 ~ C 6 0) アリール；(C 4 ~ C 6 0) ヘテロアリール；N、O、およびSから選択される1つ以上のヘテロ原子を含む5または6員のヘテロシクロアルキル；(C 3 ~ C 6 0) シクロアルキル；トリ(C 1 ~ C 6 0) アルキルシリル；ジ(C 1 ~ C 6 0) アルキル(C 6 ~ C 6 0) アリールシリル；トリ(C 6 ~ C 6 0) アリールシリル；アダマンチル；(C 7 ~ C 6 0) ビシクロアルキル；(C 2 ~ C 6 0) アルケニル；(C 2 ~ C 6 0) アルキニル；シアノ；(C 1 ~ C 6 0) アルキルアミノ；(C 6 ~ C 6 0) アリールアミノ；(C 6 ~ C 6 0) アリール(C 1 ~ C 6 0) アルキル；(C 1 ~ C 6 0) アルキルオキシ；(C 1 ~ C 6 0) アルキルチオ；(C 6 ~ C 6 0) アリールオキシ；(C 6 ~ C 6 0) アリールチオ；(C 1 ~ C 6 0) アルコキシカルボニル；(C 1 ~ C 6 0) アルキルカルボニル；(C 6 ~ C 6 0) アリールカルボニル；カルボキシル；ニトロ；またはヒド

10

20

30

40

50

ロキシルを表し、あるいは $R_{101} \sim R_{104}$ のそれぞれは、縮合環を有するまたは有さない ($C3 \sim C60$) アルキレンまたは ($C3 \sim C60$) アルケニレンを介して隣接する置換基に結合して脂環式環または単環式もしくは多環式の芳香環を形成してもよく；前記ピリジンまたはキノリンは、 R_{101} と化学結合を形成して縮合環を形成してもよく；

環 A および $R_{101} \sim R_{104}$ のアルキル、アルケニル、アルキニル、シクロアルキル、ヘテロシクロアルキル、アリール、ヘテロアリール、アリールシリル、アルキルシリル、アルキルアミノまたはアリールアミノ、あるいは、縮合環を有するまたは有さない ($C3 \sim C60$) アルキレンまたは ($C3 \sim C60$) アルケニレンを介して隣接する置換基に結合することによってそれらから形成された脂環式環または単環式もしくは多環式の芳香環は、ハロゲン； ($C1 \sim C60$) アルキル； ($C6 \sim C60$) アリール； ($C4 \sim C60$) ヘテロアリール；N、O、およびSから選択される1つ以上のヘテロ原子を含有する5または6員のヘテロシクロアルキル； ($C3 \sim C60$) シクロアルキル；トリ ($C1 \sim C60$) アルキルシリル；ジ ($C1 \sim C60$) アルキル ($C6 \sim C60$) アリールシリル；トリ ($C6 \sim C60$) アリールシリル；アダマンチル； ($C7 \sim C60$) ビシクロアルキル； ($C2 \sim C60$) アルケニル； ($C2 \sim C60$) アルキニル；シアノ； ($C1 \sim C60$) アルキルアミノ； ($C6 \sim C60$) アリールアミノ； ($C6 \sim C60$) アリール ($C1 \sim C60$) アルキル； ($C1 \sim C60$) アルキルオキシ； ($C1 \sim C60$) アルキルチオ； ($C6 \sim C60$) アリールオキシ； ($C6 \sim C60$) アリールチオ； ($C1 \sim C60$) アルコキシカルボニル； ($C1 \sim C60$) アルキルカルボニル； ($C6 \sim C60$) アリールカルボニル；カルボキシル；ニトロ；およびヒドロキシルから選択される1つ以上の置換基によってさらに置換されていてもよい。)；

を含むエレクトロルミネッセンス領域を含む、有機エレクトロルミネッセンスデバイス。

【請求項5】

前記有機層が、アリールアミン化合物およびスチリルアリールアミン化合物からなる群より選択される1種以上の化合物；または、1族、2族、第4周期および第5周期の遷移金属、ランタニド金属、ならびにd遷移元素の有機金属からなる群より選択される1種以上の金属；を含む、請求項4記載の有機エレクトロルミネッセンスデバイス。

【請求項6】

青色および緑色の波長を有するエレクトロルミネッセンスピークを同時に有する、請求項4記載の有機エレクトロルミネッセンスデバイス。

【請求項7】

前記有機層が、エレクトロルミネッセンス層および電荷発生層を含む、請求項4記載の有機エレクトロルミネッセンスデバイス。

【請求項8】

還元性ドーパントと有機物質との混合領域、または酸化性ドーパントと有機物質との混合領域が、電極の対のうちの一方または両方の内面上に配置される、請求項4記載の有機エレクトロルミネッセンスデバイス。

【請求項9】

化学式(1)によって表される有機エレクトロルミネッセンス化合物を含む有機エレクトロルミネッセンス化合物を含む有機太陽電池；

10

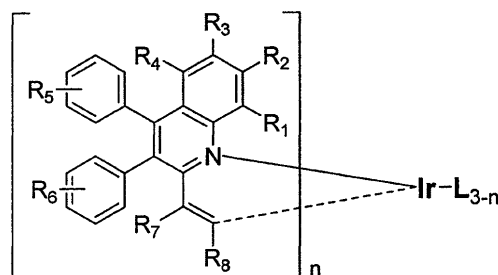
20

30

40

【化 1 2】

化学式1



10

(上式中、Lは有機配位子であり；

R₁～R₄は独立に、水素、(C1～C60)アルキル、(C1～C60)アルコキシ、(C3～C60)シクロアルキル、ハロゲン、トリ(C1～C60)アルキルシリルまたはトリ(C6～C60)アリールシリルを表し；

R₅およびR₆は独立に、水素、(C1～C60)アルキル、ハロゲンまたは(C6～C60)アリールを表し；

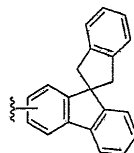
R₇およびR₈は独立に、水素；ハロゲン置換基を有するまたは有さない(C1～C60)アルキル；(C6～C60)アリール；ハロゲン；シアノ；トリ(C1～C60)アルキルシリル；トリ(C6～C60)アリールシリル；(C1～C60)アルコキシ；(C1～C60)アルキルカルボニル；(C6～C60)アリールカルボニル；ジ(C1～C60)アルキルアミノ；またはジ(C6～C60)アリールアミノを表し、あるいはR₇およびR₈は、縮合環を有するまたは有さない(C3～C12)アルキレンまたは(C3～C12)アルケニレンを介して結合して脂環式環または単環式もしくは多環式の芳香環を形成してもよく；

20

R₇およびR₈のアルキルまたはアリール、あるいは(C3～C12)アルキレンまたは(C3～C12)アルケニレンを介した結合によってそれらより形成された脂環式環または単環式もしくは多環式の芳香環は、(C1～C60)アルキル、ハロゲン、シアノ、トリ(C1～C60)アルキルシリル、トリ(C6～C60)アリールシリル、(C1～C60)アルコキシ、(C1～C60)アルキルカルボニル、(C6～C60)アリールカルボニル、ジ(C1～C60)アルキルアミノ、ジ(C6～C60)アリールアミノ、フェニル、ナフチル、アントリル、フルオレニル、スピロビフルオレニルおよび

30

【化 1 3】



から選択される1つ以上の置換基によってさらに置換されていてもよく；並びに、nは1～3の整数である。)。

40

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、高発光効率を示す新規有機エレクトロルミネッセンス化合物、およびそれを含む有機エレクトロルミネッセンスデバイスに関する。

【背景技術】

【0002】

OLED(有機発光ダイオード)における発光効率を決定する最も重要な要因はエレクトロルミネッセンス材料の種類である。蛍光材料がエレクトロルミネッセンス材料として現在まで広く使用されてきたが、リン光材料の開発は、エレクトロルミネッセンス機構を

50

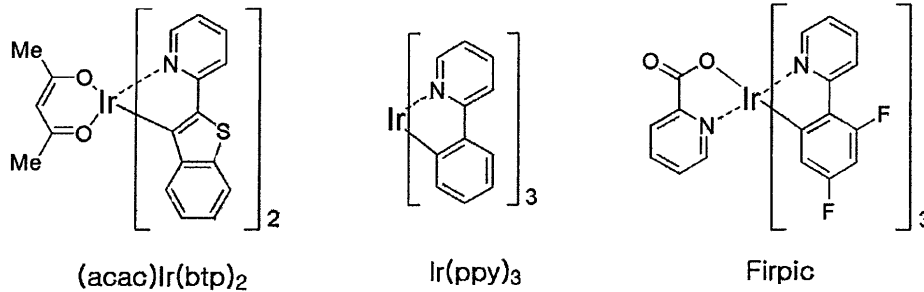
鑑みれば発光効率を理論的には最大4倍まで改善するための最良の方法の1つである。

【0003】

現在まで、それぞれ赤色、緑色、および青色のリン光材料として (acac)Ir(btp)₂、Ir(ppy)₃、および Firpic を含むリン光材料としてのイリジウム (III) 錯体が、広く知られている。特に最近、多数のリン光材料が日本、欧州、および米国において研究されている。

【0004】

【化1】



10

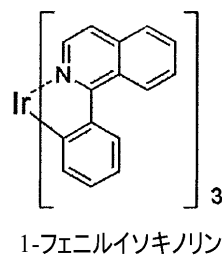
【0005】

従来の赤色リン光材料の中で、数種類の材料が良好なEL (エレクトロルミネッセンス) 特性を有することが報告されている。しかし、それらの材料の中で、商業化レベルに到達するのは非常にまれである。最も好ましい材料として、1-フェニルイソキノリンのイリジウム錯体を挙げることができ、これは優れたEL特性を有し、高い発光効率で暗赤色の色純度を示すことが知られている (A. Tsuboyamaら、J. Am. Chem. Soc. 2003, 125 (42), 12971 - 12979 参照)。

20

【0006】

【化2】



30

【0007】

さらに、寿命に大きな問題がない赤色材料は、良好な色純度または発光効率を有するのであれば容易に商業化できる傾向にある。したがって、上述のイリジウム錯体は、優れた色純度および発光効率のため商業化の可能性が非常に大きい材料である。

【先行技術文献】

【非特許文献】

40

【0008】

【非特許文献1】 A. Tsuboyamaら著、J. Am. Chem. Soc. 2003, 125 (42), 12971 - 12979

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0009】

しかし、このイリジウム錯体は、依然として小型のディスプレイにだけ適用可能な材料と考えられており、周知の材料よりも高いレベルのEL特性が中型から大型のOLEDパネルに対して事実上必要とされている。

【0010】

50

上述の従来技術の問題を克服しようとする集中的な取り組みにより、本発明者らは、優れた発光効率および驚くほど向上された寿命を有する有機ＥＬデバイスを実現する新規有機エレクトロルミネッセンス化合物を開発するための研究を行った。最終的に、本発明者らは、主配位子化合物中のキノリンの３位および４位にフェニル誘導体を導入することによって合成したイリジウム錯体を、エレクトロルミネッセンスデバイスのドーパントとして使用すると発光効率および寿命特性が改善され、本発明が完成することを見出した。したがって、本発明の目的は、従来の赤色リン光材料のモノと比較して、より優れた特性が得られる骨格を有する新規有機エレクトロルミネッセンス化合物を提供することである。本発明の別の目的は、中型から大型のＯＬＥＤパネルに適用可能な新規有機エレクトロルミネッセンス化合物を提供することである。

10

【００１１】

本発明のさらに別の目的は、新規有機エレクトロルミネッセンス化合物を含む有機エレクトロルミネッセンスデバイスおよび有機太陽電池を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【００１２】

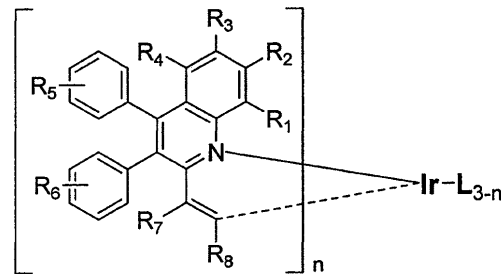
したがって、本発明は、新規有機エレクトロルミネッセンス化合物、およびそれを含む有機エレクトロルミネッセンスデバイスに関する。特に、本発明による有機エレクトロルミネッセンス化合物は、化学式（１）で表されることを特徴とする。

【００１３】

【化３】

20

化学式１



30

【００１４】

上式中、Lは有機配位子であり；

R₁～R₄は独立に、水素、（Ｃ１～Ｃ６０）アルキル、（Ｃ１～Ｃ６０）アルコキシ、（Ｃ３～Ｃ６０）シクロアルキル、ハロゲン、トリ（Ｃ１～Ｃ６０）アルキルシリル、またはトリ（Ｃ６～Ｃ６０）アリールシリルを表し；

R₅およびR₆は独立に、水素、（Ｃ１～Ｃ６０）アルキル、ハロゲン、または（Ｃ６～Ｃ６０）アリールを表し；

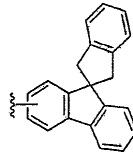
R₇およびR₈は独立に、水素、ハロゲン置換基を有するまたは有さない（Ｃ１～Ｃ６０）アルキル、（Ｃ６～Ｃ６０）アリール、ハロゲン、シアノ、トリ（Ｃ１～Ｃ６０）アルキルシリル、トリ（Ｃ６～Ｃ６０）アリールシリル、（Ｃ１～Ｃ６０）アルコキシ、（Ｃ１～Ｃ６０）アルキルカルボニル、（Ｃ６～Ｃ６０）アリールカルボニル、ジ（Ｃ１～Ｃ６０）アルキルアミノもしくはジ（Ｃ６～Ｃ６０）アリールアミノを表し、またはR₇およびR₈は、縮合環を有するまたは有さない（Ｃ３～Ｃ１２）アルキレンまたは（Ｃ３～Ｃ１２）アルケニレンを介して結合して脂環式環、または単環式もしくは多環式の芳香環を形成してもよく；

40

R₇およびR₈のアルキルまたはアリール、あるいは（Ｃ３～Ｃ１２）アルキレンまたは（Ｃ３～Ｃ１２）アルケニレンを介した結合によってそれらより形成された脂環式環または単環式もしくは多環式の芳香環は、（Ｃ１～Ｃ６０）アルキル、ハロゲン、シアノ、トリ（Ｃ１～Ｃ６０）アルキルシリル、トリ（Ｃ６～Ｃ６０）アリールシリル、（Ｃ１～Ｃ６０）アルコキシ、（Ｃ１～Ｃ６０）アルキルカルボニル、（Ｃ６～Ｃ６０）アリール

50

カルボニル、ジ(C 1 ~ C 6 0)アルキルアミノ、ジ(C 6 ~ C 6 0)アリールアミノ、フェニル、ナフチル、アントリル、フルオレニル、スピロビフルオレニル、および、
【 0 0 1 5 】
【 化 4 】



【 0 0 1 6 】

から選択される 1 つ以上の置換基によってさらに置換されていてもよく；並びに、
n は 1 ~ 3 の整数である。

【 図面の簡単な説明 】

【 0 0 1 7 】

【 図 1 】 図 1 は、O L E D の断面図である。

【 発明を実施するための形態 】

【 0 0 1 8 】

ここで図面に言及すると、図 1 は、ガラス 1、透明電極 2、正孔注入層 3、正孔輸送層 4、エレクトロルミネッセンス層 5、電子輸送層 6、電子注入層 7、および A 1 カソード 8 を含む O L E D の断面図を示している。

【 0 0 1 9 】

本明細書に記載される用語「アルキル」および「アリール」部分を含む任意の置換基は、線状および分岐の両方の化学種を含んでいる。

【 0 0 2 0 】

本明細書に記載される用語「アリール」は、1 つの水素原子が脱離することによって芳香族炭化水素から誘導される有機基を意味する。それぞれの環は、4 ~ 7 個、好ましくは 5 ~ 6 個の環原子を含有する単環式または縮合環系を含む。具体例としては、フェニル、ナフチル、ピフェニル、アントリル、テトラヒドロナフチル、インデニル、フルオレニル、フェナントリル、トリフェニレニル、ピレニル、ペリレニル、クリセニル、ナフタセニル、およびフルオランテニルが挙げられるが、これらに限定されるものではない。

【 0 0 2 1 】

本明細書に記載される用語「ヘテロアリール」は、芳香族環状骨格原子として N、O、および S から選択される 1 ~ 4 個のヘテロ原子と、残りの芳香族環状骨格原子としての炭素原子とを含有するアリール基を意味する。ヘテロアリールは、5 または 6 員の単環式ヘテロアリール、あるいは 1 つ以上のベンゼン環と縮合している多環式ヘテロアリールであってよく、及び部分的に飽和していてもよい。ヘテロアリール基は、ヘテロ原子が酸化または第 4 級化して N - オキシドおよび第 4 級塩を形成することができる二価アリール基を含み得る。具体例としては、単環式ヘテロアリール基、たとえばフリル、チオフェニル、ピロリル、イミダゾリル、ピラゾリル、チアゾリル、チアジアゾリル、イソチアゾリル、イソオキサゾリル、オキサゾリル、オキサジアゾリル、トリアジニル、テトラジニル、トリアゾリル、テトラゾリル、フラザニル、ピリジル、ピラジニル、ピリミジニル、ピリダジニル；多環式ヘテロアリール基、たとえばベンゾフラニル、ベンゾチオフェニル、イソベンゾフラニル、ベンズイミダゾリル、ベンゾチアゾリル、ベンズイソチアゾリル、ベンズイソオキサゾリル、ベンゾオキサゾリル、イソインドリル、インドリル、インダゾリル、ベンゾチアジアゾリル、キノリル、イソキノリル、シンノリニル、キナゾリニル、キノキサリニル、カルバゾリル、フェナントリジニル、およびベンゾジオキサリル；ならびに対応する N - オキシド（たとえば、ピリジル N - オキシド、キノリル N - オキシド）、ならびにそれらの第 4 級塩が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

【 0 0 2 2 】

化学式 (1) のナフチルは 1 - ナフチルまたは 2 - ナフチルであってよく、アントリル

10

20

30

40

50

は 1 - アントリル、2 - アントリル、または 9 - アントリルであってよく、フルオレニルは 1 - フルオレニル、2 - フルオレニル、3 - フルオレニル、4 - フルオレニル、または 9 - フルオレニルであってよい。

【0023】

本明細書に記載される「(C1 ~ C60) アルキル」部分を含む置換基は、1 ~ 60 個の炭素原子、1 ~ 20 個の炭素原子、または 1 ~ 10 個の炭素原子を含有することができる。「(C6 ~ C60) アリール」部分を含む置換基は、6 ~ 60 個の炭素原子、6 ~ 20 個の炭素原子、または 6 ~ 12 個の炭素原子を含有することができる。「(C3 ~ C60) ヘテロアリール」部分を含む置換基は、3 ~ 60 個の炭素原子、4 ~ 20 個の炭素原子、または 4 ~ 12 個の炭素原子を含有することができる。「(C3 ~ C60) シクロアルキル」部分を含む置換基は、3 ~ 60 個の炭素原子、3 ~ 20 個の炭素原子、または 3 ~ 7 個の炭素原子を含有することができる。「(C2 ~ C60) アルケニルまたはアルキニル」部分を含む置換基は、2 ~ 60 個の炭素原子、2 ~ 20 個の炭素原子、または 2 ~ 10 個の炭素原子を含有することができる。

10

【0024】

縮合環を有するまたは有さない(C3 ~ C12) アルキレンまたは(C3 ~ C12) アルケニレンを介した結合によって化学式(1)中のR₇およびR₈から形成される脂環式環または単環式もしくは多環式の芳香環は、ベンゼン、ナフタレン、アントラセン、フルオレン、インデン、またはフェナントレンである。角括弧([])内の化合物は、イリジウムの主配位子として機能し、Lは補助配位子として機能する。本発明による有機エレクトロルミネッセンス化合物は、主配位子：補助配位子の比 = 2 : 1 (n = 2) である錯体、主配位子：補助配位子の比 = 1 : 2 (n = 1) である錯体、および補助配位子(L)を有さないトリスキレート型錯体(n = 3)も含んでいる。

20

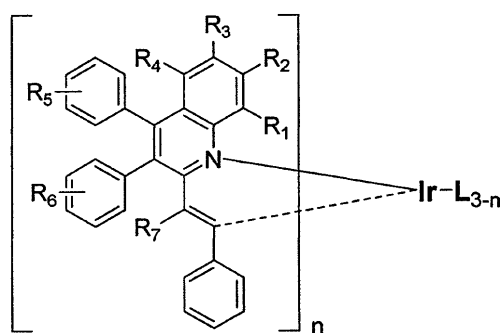
【0025】

本発明による有機エレクトロルミネッセンス化合物は、化学式(2) ~ (7)の中の1つによって表される化合物により例示することができる。

【0026】

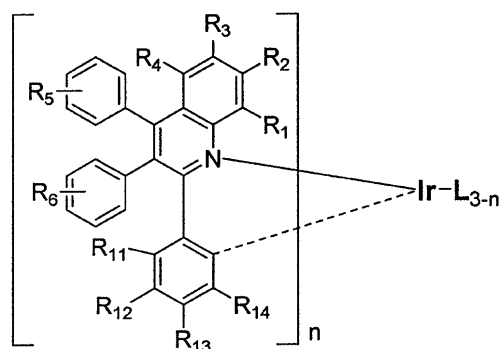
【化 5】

化学式2



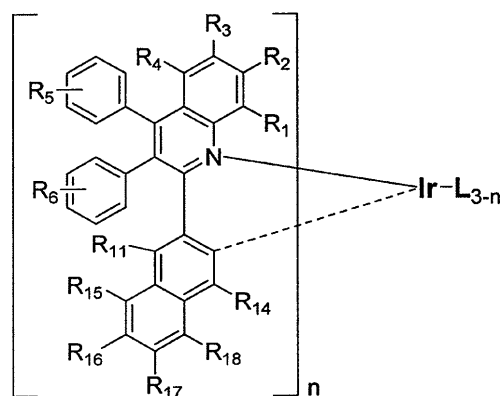
10

化学式3



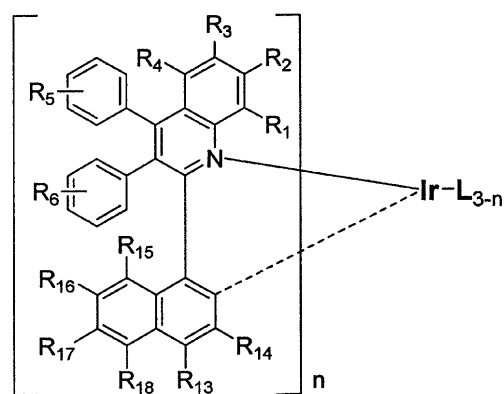
20

化学式4



30

化学式5



40

【 0 0 2 7 】

50

R_{19} および R_{20} は独立に、水素、(C 1 ~ C 6 0) アルキル、または (C 6 ~ C 6 0) アリールを表し、あるいは R_{19} および R_{20} は、縮合環を有するまたは有さない (C 3 ~ C 1 2) アルキレンまたは (C 3 ~ C 1 2) アルケニレンを介して結合して脂環式環または単環式もしくは多環式の芳香環を形成してもよく；

R_{21} は、(C 1 ~ C 6 0) アルキル、ハロゲン、シアノ、トリ (C 1 ~ C 6 0) アルキルシリル、トリ (C 6 ~ C 6 0) アリールシリル、(C 1 ~ C 6 0) アルコキシ、(C 1 ~ C 6 0) アルキルカルボニル、(C 6 ~ C 6 0) アリールカルボニル、フェニル、ジ (C 1 ~ C 6 0) アルキルアミノ、ジ (C 6 ~ C 6 0) アリールアミノ、ナフチル、9, 9 - ジ (C 1 ~ C 6 0) アルキルフルオレニル、または 9, 9 - ジ (C 6 ~ C 6 0) アリールフルオレニルを表し；並びに

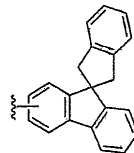
m は 1 ~ 5 の整数である。

【0031】

好ましくは、 $R_{11} \sim R_{18}$ は独立に、メチル、エチル、 n -プロピル、 i -プロピル、 n -ブチル、 i -ブチル、 t -ブチル、 n -ペンチル、 i -ペンチル、 n -ヘキシル、 n -ヘプチル、 n -オクチル、2-エチルヘキシル、 n -ノニル、トリフルオロメチル、フルオロ、シアノ、トリメチルシリル、トリプロピルシリル、トリ (t -ブチル) シリル、 t -ブチルジメチルシリル、トリフェニルシリル、メトキシ、エトキシ、ブトキシ、メチルカルボニル、エチルカルボニル、 t -ブチルカルボニル、フェニルカルボニル、ジメチルアミノ、ジフェニルアミノ、フェニル、ナフチル、アントリル、フルオレニル、または

【0032】

【化8】



【0033】

を表し；

および、フルオレニルは、メチル、エチル、 n -プロピル、 i -プロピル、 n -ブチル、 i -ブチル、 t -ブチル、 n -ペンチル、 i -ペンチル、 n -ヘキシル、 n -ヘプチル、 n -オクチル、2-エチルヘキシル、 n -ノニル、フェニル、ナフチル、アントリル、トリメチルシリル、トリプロピルシリル、トリ (t -ブチル) シリル、 t -ブチルジメチルシリル、またはトリフェニルシリルによってさらに置換されていてもよい。

【0034】

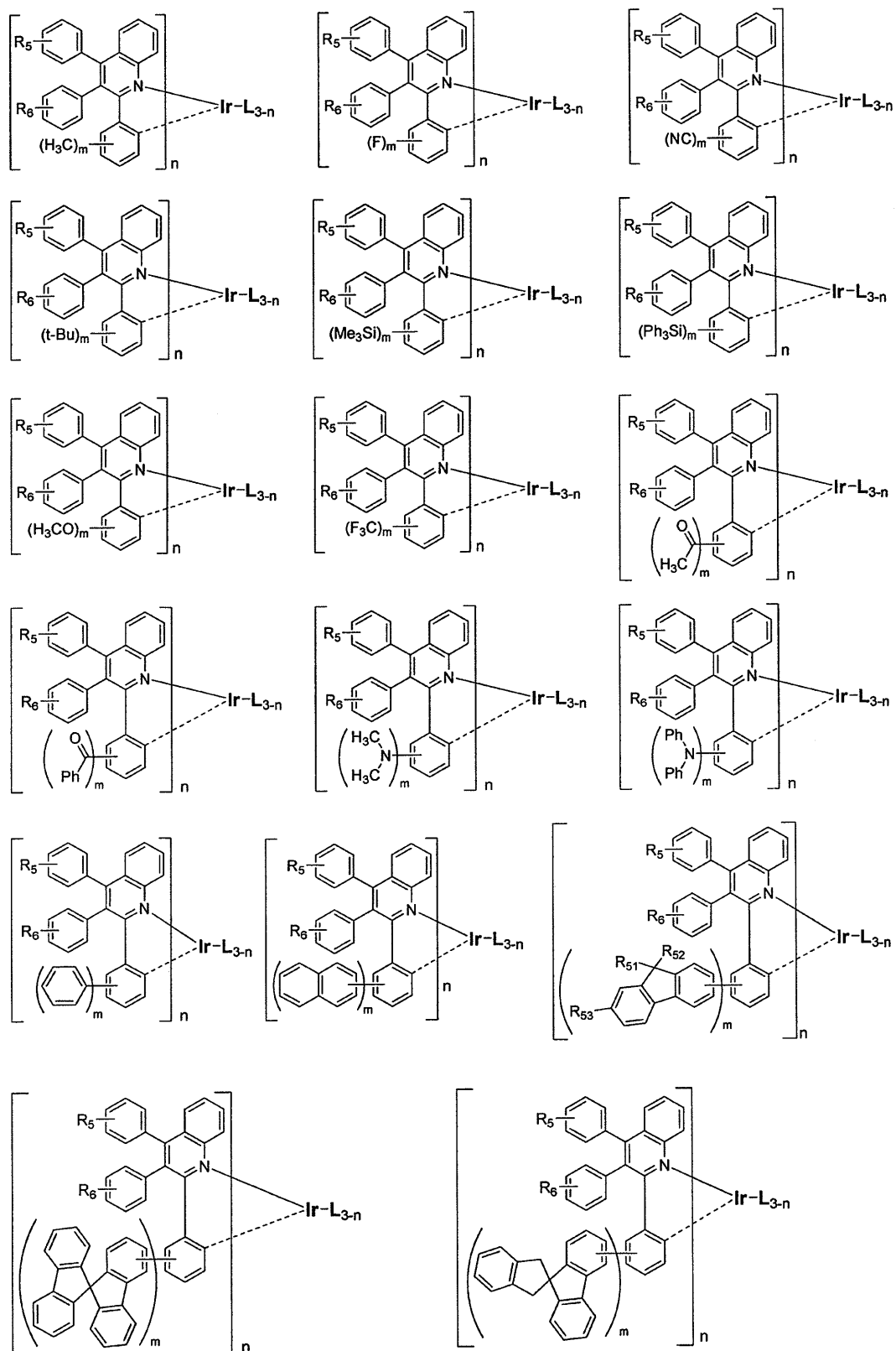
好ましくは化学式 (1) の $R_1 \sim R_4$ は独立に、水素、メチル、エチル、 n -プロピル、 i -プロピル、 n -ブチル、 i -ブチル、 t -ブチル、 n -ペンチル、 i -ペンチル、 n -ヘキシル、 n -ヘプチル、 n -オクチル、エチルヘキシル、メトキシ、エトキシ、ブトキシ、シクロプロピル、シクロヘキシル、シクロヘプチル、フルオロ、トリメチルシリル、トリプロピルシリル、トリ (t -ブチル) シリル、 t -ブチルジメチルシリル、またはトリフェニルシリルを表し； R_6 は、水素、メチル、エチル、 n -プロピル、 i -プロピル、 n -ブチル、 i -ブチル、 t -ブチル、 n -ペンチル、 i -ペンチル、 n -ヘキシル、 n -ヘプチル、 n -オクチル、エチルヘキシル、フルオロ、フェニル、ナフチル、アントリル、フルオレニル、またはスピロビフルオレニルを表す。

【0035】

本発明による有機エレクトロルミネッセンス化合物は、下記の化合物によって具体的に例示することができる、これらに限定されるものではない。

【0036】

【化 9】



10

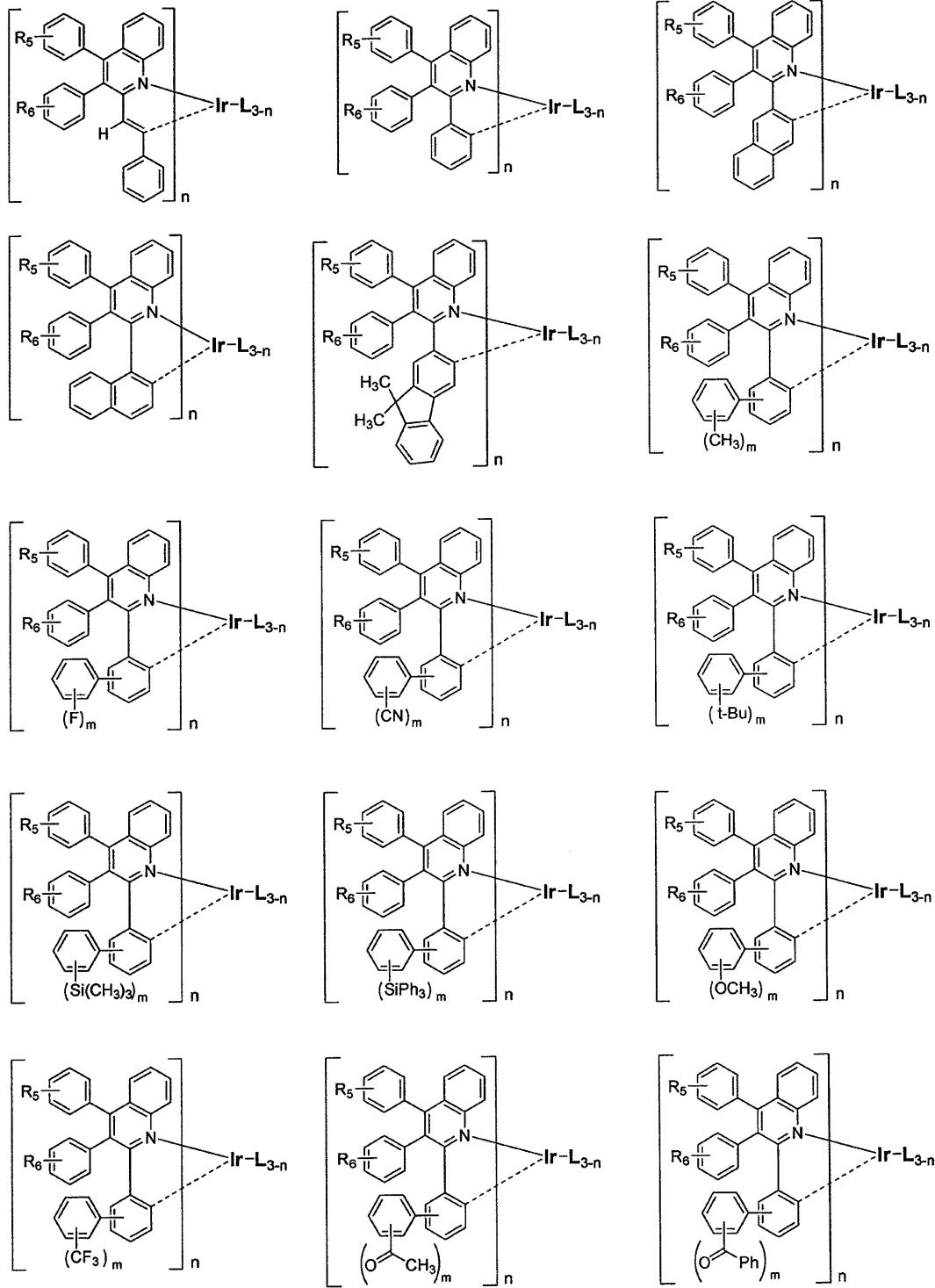
20

30

40

【 0 0 3 7 】

【化 1 0】



【 0 0 3 8】

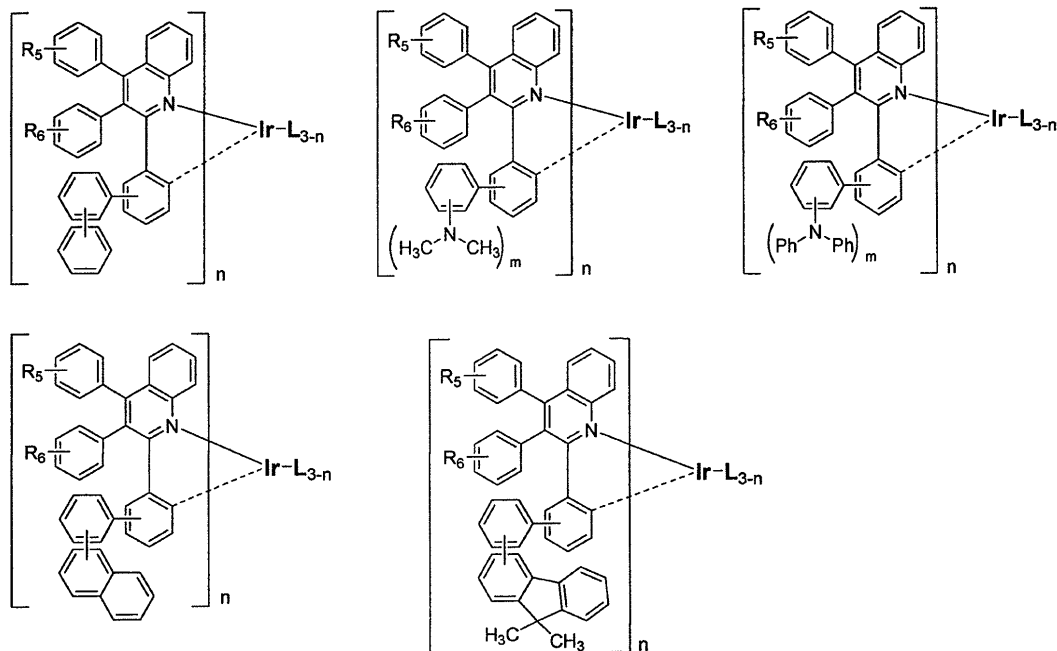
10

20

30

40

【化 1 1】



10

20

【0039】

上式中、Lは有機配位子を表し；

R₅およびR₆は独立に、水素、メチル、エチル、n-プロピル、i-プロピル、n-ブチル、i-ブチル、t-ブチル、n-ペンチル、i-ペンチル、n-ヘキシル、n-ヘプチル、n-オクチル、エチルヘキシル、フルオロ、フェニル、またはナフチルを表し；

R₅₁およびR₅₂は独立に、メチル、エチル、n-プロピル、i-プロピル、n-ブチル、i-ブチル、t-ブチル、n-ペンチル、i-ペンチル、n-ヘキシル、n-ヘプチル、n-オクチル、エチルヘキシル、フェニル、またはナフチルを表し、あるいはR₅₁およびR₅₂は、縮合環を有するまたは有さない(C3~C12)アルキレンまたは(C3~C12)アルケニレンを介して互いに結合して脂環式環または単環式もしくは多環式の芳香環を形成してもよく；

30

R₅₃は、水素、メチル、エチル、n-プロピル、i-プロピル、n-ブチル、i-ブチル、t-ブチル、n-ペンチル、i-ペンチル、n-ヘキシル、n-ヘプチル、n-オクチル、2-エチルヘキシル、トリメチルシリル、トリプロピルシリル、トリ(t-ブチル)シリル、t-ブチルジメチルシリル、トリフェニルシリル、フェニル、またはナフチルを表し；

mは1~5の整数であり；並びに

nは1~3の整数である。

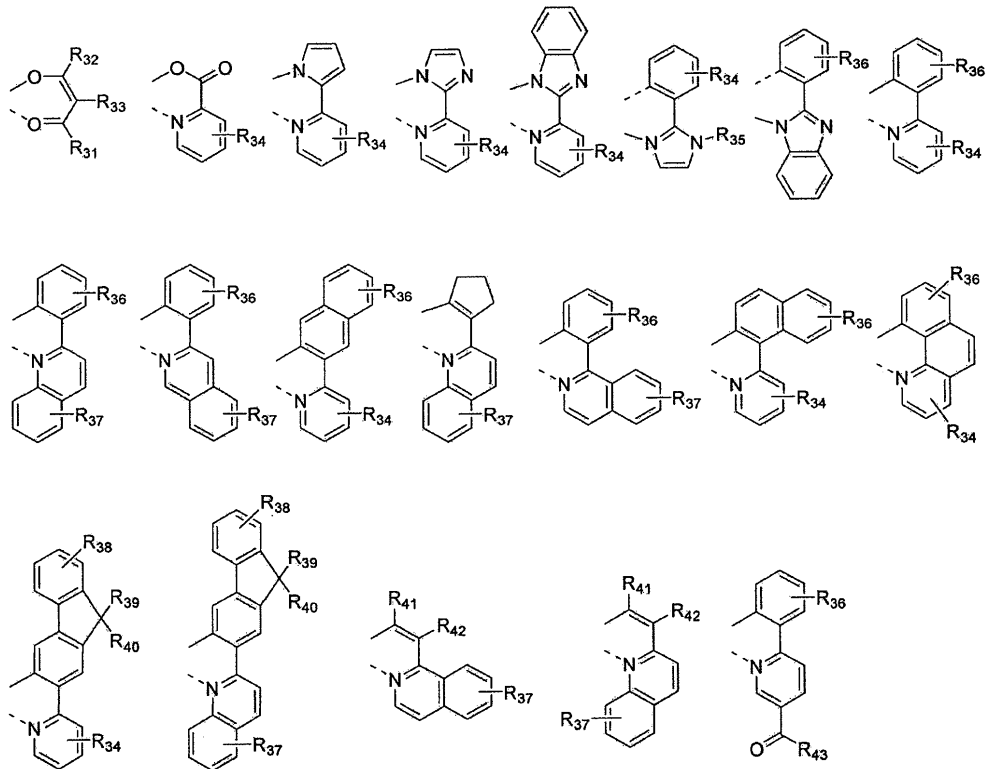
【0040】

本発明による有機エレクトロルミネッセンス化合物の補助配位子(L)には下記の構造が含まれる。

40

【0041】

【化 1 2】



10

20

【0042】

上式中、 R_{31} および R_{32} は独立に、水素；ハロゲン置換基を有するまたは有さない（C1～C60）アルキル；（C1～C60）アルキル置換基を有するまたは有さないフェニル；またはハロゲンを表し；

$R_{33} \sim R_{39}$ は独立に、水素；（C1～C60）アルキル；（C1～C60）アルキル置換基を有するまたは有さないフェニル；トリ（C1～C60）アルキルシリル；またはハロゲンを表し；

$R_{40} \sim R_{43}$ は独立に、水素；（C1～C60）アルキル；（C1～C60）アルキル置換基を有するまたは有さないフェニルを表し；

R_{44} は、（C1～C60）アルキル；（C1～C60）アルキル置換基を有するまたは有さないフェニル；またはハロゲンを表す。

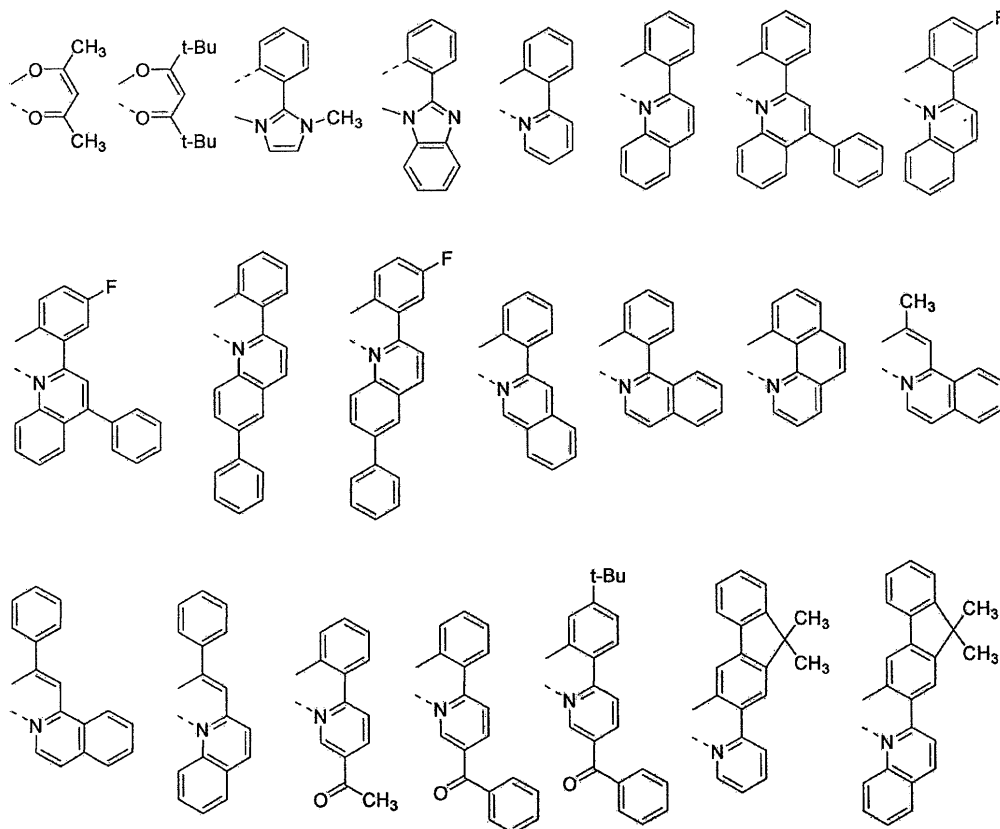
30

【0043】

本発明の有機エレクトロルミネッセンス化合物の補助配位子（L）は、下記の構造によって例示することができるが、これらに限定されるものではない。

【0044】

【化 1 3】



10

20

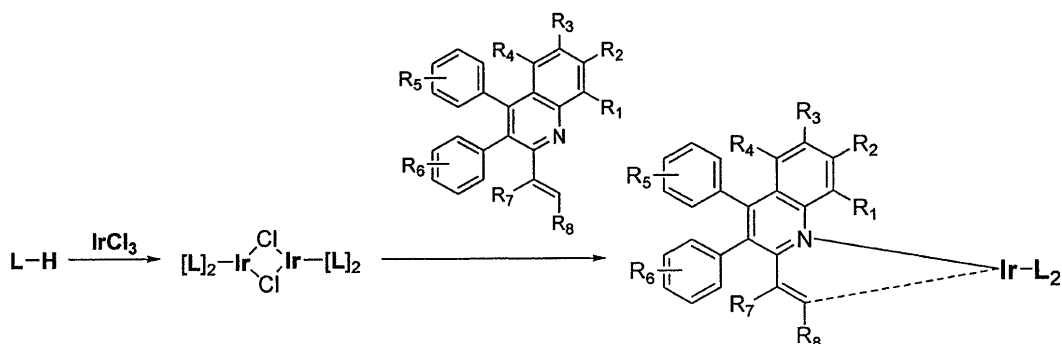
【0045】

本発明による有機エレクトロルミネッセンス化合物の調製方法は、以下に示される反応図式(1)～(3)を参照することにより説明される。

【0046】

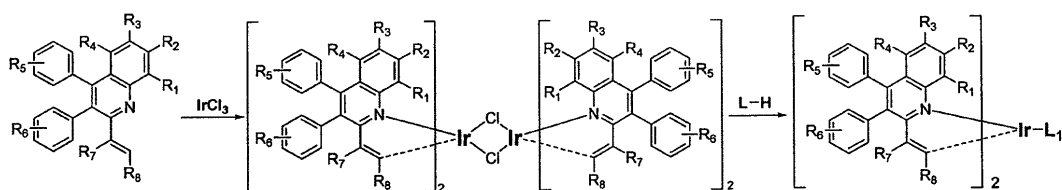
【化 1 4】

反応図式1



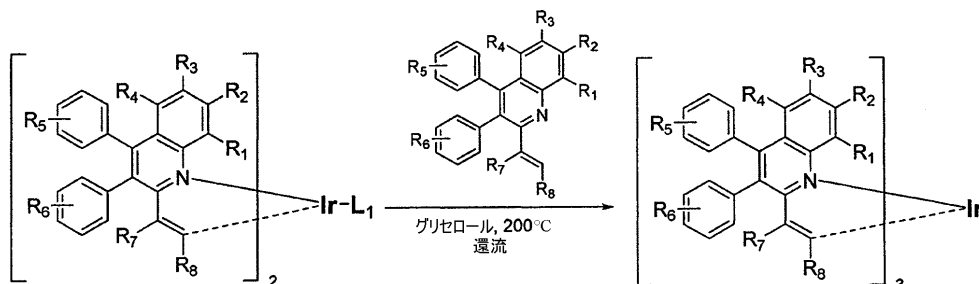
10

反応図式2



20

反応図式3



30

【0047】

上式中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 、 R_7 、 R_8 、および L は、化学式(1)における定義の通りである。

【0048】

反応図式(1)により、 $n = 1$ の化学式(1)の化合物が得られ、この場合、三塩化イリジウム($IrCl_3$)と補助配位子化合物($L-H$)が1:2~3のモル比で溶媒中で混合され、その混合物は還流下で加熱され、その後二イリジウム二量体が単離される。この反応段階において、好ましい溶媒は、アルコール、またはアルコール/水の混合溶媒、たとえば2-エトキシエタノール、および2-エトキシエタノール/水混合物である。次に、単離した二イリジウム二量体を主配位子化合物とともに有機溶媒中で加熱すると、主配位子:補助配位子の比が1:2である有機リン光性イリジウム化合物が最終生成物として得られる。この反応は、例えば2-エトキシエタノールおよび2-メトキシエチルエーテルなどの有機溶媒と混合された $AgCF_3SO_3$ 、 Na_2CO_3 、または $NaOH$ を用いて行われる。

40

【0049】

反応図式(2)により、 $n = 2$ の化学式(1)の化合物が得られ、この場合、三塩化イリジウム($IrCl_3$)と主配位子化合物が1:2~3のモル比で溶媒中で混合され、その混合物は還流下で加熱され、その後二イリジウム二量体が単離される。この反応段階に

50

において、好ましい溶媒は、アルコール、またはアルコール／水の混合溶媒、たとえば 2 - エトキシエタノール、および 2 - エトキシエタノール／水混合物である。次に単離した二イリジウム二量体を補助配位子化合物 (L - H) とともに有機溶媒中で加熱すると、主配位子：補助配位子の比が 2 : 1 である有機リン光性イリジウム化合物が最終生成物として得られる。最終生成物中の主配位子化合物と補助配位子 (L) とのモル比は、組成物に依存した反応物質のモル比を適切にすることによって決定される。この反応は、例えば 2 - エトキシエタノール、2 - メトキシエチルエーテル、および 1 , 2 - ジクロロエタンなどの有機溶媒と混合された AgCF_3SO_3 、 Na_2CO_3 、または NaOH を用いて行うことができる。

【 0 0 5 0 】

10

反応図式 (3) により、 $n = 3$ の化学式 (1) の化合物が得られ、この場合、反応図式 (2) により調製したイリジウム錯体と主配位子化合物が、1 : 2 ~ 3 のモル比でグリセリン中で混合され、その混合物は還流下で加熱され、3 つの主配位子が配位した有機リン光性イリジウム錯体を得られる。

【 0 0 5 1 】

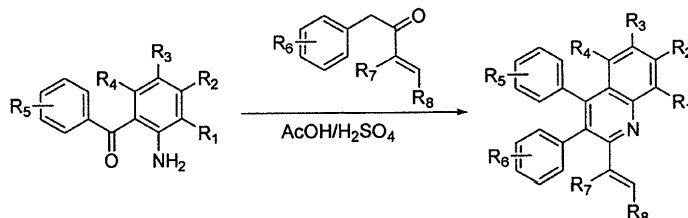
本発明において主配位子として使用される化合物は、従来方法に基づく反応図式 (4) により調製することができるが、これに限定されるものではない。

【 0 0 5 2 】

【 化 1 5 】

20

反応図式4



【 0 0 5 3 】

上式中、 $R_1 \sim R_8$ は、化学式 (1) における定義の通りである。

30

【 0 0 5 4 】

本発明は、化学式 (1) で表される 1 種以上の有機エレクトロルミネッセンス化合物を含む有機太陽電池も提供する。

【 0 0 5 5 】

本発明は、第 1 の電極；第 2 の電極；および第 1 の電極と第 2 の電極との間に介在する少なくとも 1 つの有機層を含む有機エレクトロルミネッセンスデバイスであって、前記有機層が、化学式 (1) で表される 1 種以上の化合物を含む、有機エレクトロルミネッセンスデバイスも提供する。

【 0 0 5 6 】

40

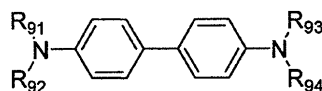
本発明による有機エレクトロルミネッセンスデバイスは、有機層が、エレクトロルミネッセンスのドーパントとして化学式 (1) で表される 1 種以上の有機エレクトロルミネッセンス化合物を 0 . 0 1 ~ 1 0 重量 % と、1 種以上のホストとを含むエレクトロルミネッセンス領域を含むことを特徴とする。本発明による有機エレクトロルミネッセンスデバイスに適用されるホストは、特に限定されないが、1 , 3 , 5 - トリカルバゾリルベンゼン、ポリビニルカルバゾール、*m* - ビスカルバゾリルフェニル、4 , 4 ' , 4 " - トリ (*N* - カルバゾリル) トリフェニルアミン、1 , 3 , 5 - トリ (2 - カルバゾリルフェニル) ベンゼン、1 , 3 , 5 - トリス (2 - カルバゾリル - 5 - メトキシフェニル) ベンゼン、ビス (4 - カルバゾリルフェニル) シラン、または化学式 (8) ~ (1 1) の中の 1 つによって表される化合物によって例示することができる。

【 0 0 5 7 】

50

【化 16】

化学式8



【0058】

化学式(8)において、 $R_{91} \sim R_{94}$ は独立に、水素；ハロゲン；(C1～C60)アルキル；(C6～C60)アリール；(C4～C60)ヘテロアリール；N、O、およびSから選択される1つ以上のヘテロ原子を含有する5または6員のヘテロシクロアルキル；(C3～C60)シクロアルキル；トリ(C1～C60)アルキルシリル；ジ(C1～C60)アルキル(C6～C60)アリールシリル；トリ(C6～C60)アリールシリル；アダマンチル；(C7～C60)ビスシクロアルキル；(C2～C60)アルケニル；(C2～C60)アルキニル；シアノ；(C1～C60)アルキルアミノ；(C6～C60)アリールアミノ；(C6～C60)アリール(C1～C60)アルキル；(C1～C60)アルキルオキシ；(C1～C60)アルキルチオ；(C6～C60)アリールオキシ；(C6～C60)アリールチオ；(C1～C60)アルコキシカルボニル；(C1～C60)アルキルカルボニル；(C6～C60)アリールカルボニル；カルボキシル；ニトロまたはヒドロキシルを表し、あるいは $R_{91} \sim R_{94}$ のそれぞれは、縮合環を有するまたは有さない(C3～C60)アルキレンまたは(C3～C60)アルケニレンを介して隣接する置換基に結合して脂環式環または単環式もしくは多環式の芳香環を形成してもよく；

$R_{91} \sim R_{94}$ のアルキル、アルケニル、アルキニル、シクロアルキル、ヘテロシクロアルキル、アリール、ヘテロアリール、アリールシリル、アルキルシリル、アルキルアミノもしくはアリールアミノ、または、縮合環を有するまたは有さない(C3～C60)アルキレンまたは(C3～C60)アルケニレンを介して隣接する置換基に結合することによってそれらから形成された脂環式環または単環式もしくは多環式の芳香環は、ハロゲン；(C1～C60)アルキル；(C6～C60)アリール；(C4～C60)ヘテロアリール；N、O、およびSから選択される1つ以上のヘテロ原子を含有する5または6員のヘテロシクロアルキル；(C3～C60)シクロアルキル；トリ(C1～C60)アルキルシリル；ジ(C1～C60)アルキル(C6～C60)アリールシリル；トリ(C6～C60)アリールシリル；アダマンチル、(C7～C60)ビスシクロアルキル；(C2～C60)アルケニル；(C2～C60)アルキニル；シアノ；(C1～C60)アルキルアミノ；(C6～C60)アリールアミノ；(C6～C60)アリール(C1～C60)アルキル；(C1～C60)アルキルオキシ；(C1～C60)アルキルチオ；(C6～C60)アリールオキシ；(C6～C60)アリールチオ；(C1～C60)アルコキシカルボニル；(C1～C60)アルキルカルボニル；(C6～C60)アリールカルボニル；カルボキシル；ニトロ；及びヒドロキシルから選択される1つ以上の置換基によってさらに置換されていてもよい。

【0059】

10

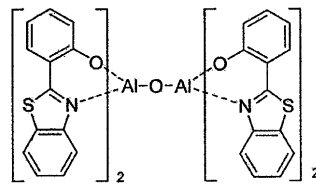
20

30

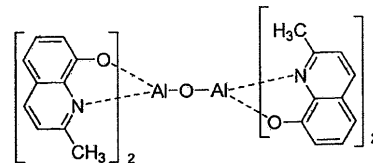
40

【化 17】

化学式9



化学式10



化学式11

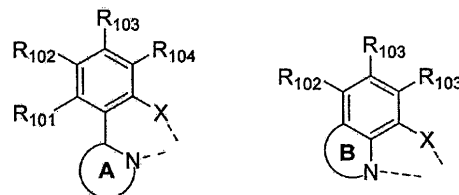


【0060】

化学式(11)において、配位子 L^1 および L^2 は独立に下記の構造から選択され；

【0061】

【化 18】



【0062】

M^1 は二価または三価の金属であり；

M^1 が二価の金属の場合、 y は0であり、 M^1 が三価の金属の場合、 y は1であり；

Q は、(C6～C60)アリールオキシまたはトリ(C6～C60)アリールシリルを表し、 Q のアリールオキシおよびトリアリールシリルは、(C1～C60)アルキルまたは(C6～C60)アリールによってさらに置換されていてもよく；

X は、O、S、またはSeを表し；

環Aは、オキサゾール、チアゾール、イミダゾール、オキサジアゾール、チアジアゾール、ベンゾオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンズイミダゾール、ピリジン、またはキノリンを表し；

環Bは、ピリジンまたはキノリンを表し、環Bは、(C1～C60)アルキル；あるいは(C1～C60)アルキル置換基を有するまたは有さないフェニルまたはナフチル；によってさらに置換されていてもよく；

$R_{101} \sim R_{104}$ は独立に、水素；ハロゲン；(C1～C60)アルキル；(C6～C60)アリール；(C4～C60)ヘテロアリール；N、O、およびSから選択される1つ以上のヘテロ原子を含有する5または6員のヘテロシクロアルキル；(C3～C60)シクロアルキル；トリ(C1～C60)アルキルシリル；ジ(C1～C60)アルキル(C6～C60)アリールシリル；トリ(C6～C60)アリールシリル；アダマンチル；(C7～C60)ビスシクロアルキル；(C2～C60)アルケニル；(C2～C60)アルキニル；シアノ；(C1～C60)アルキルアミノ；(C6～C60)アリールアミノ；(C6～C60)アリール(C1～C60)アルキル；(C1～C60)アルキルオ

10

20

30

40

50

キシ；(C 1 ~ C 6 0) アルキルチオ；(C 6 ~ C 6 0) アリールオキシ；(C 6 ~ C 6 0) アリールチオ；(C 1 ~ C 6 0) アルコキシカルボニル；(C 1 ~ C 6 0) アルキルカルボニル；(C 6 ~ C 6 0) アリールカルボニル；カルボキシル；ニトロ；またはヒドロキシルを表し、あるいは R₁₀₁ ~ R₁₀₄ のそれぞれは、縮合環を有するまたは有さない (C 3 ~ C 6 0) アルキレンまたは (C 3 ~ C 6 0) アルケニレンを介して隣接する置換基に結合して脂環式環または単環式もしくは多環式の芳香環を形成してもよく；前記ピリジンまたはキノリンは、R₁₀₁ と化学結合を形成して縮合環を形成してもよく；

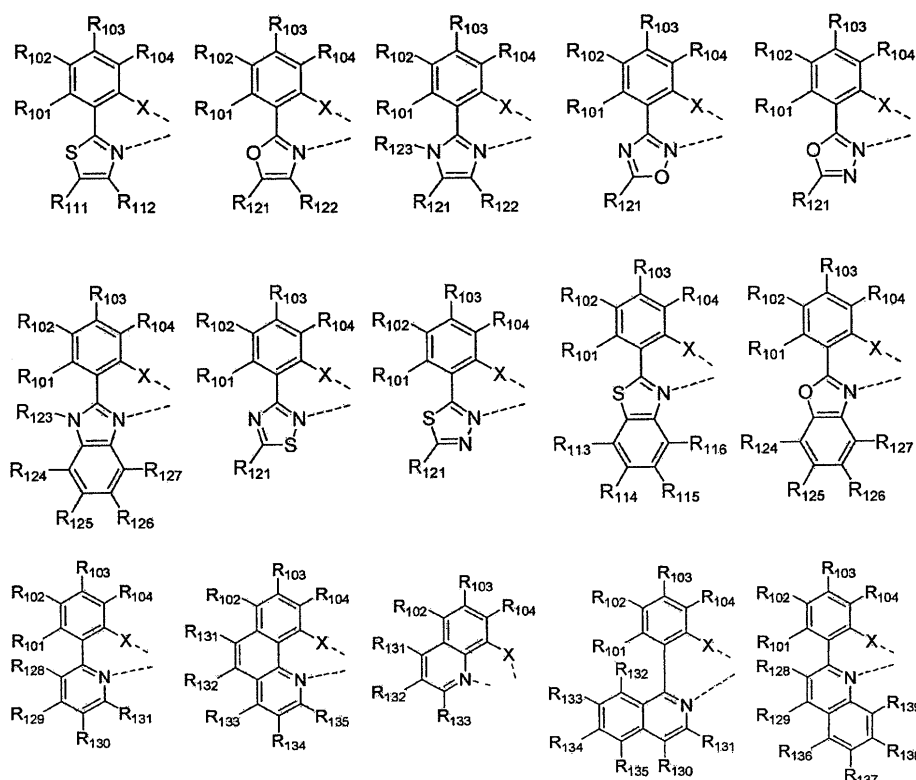
環 A および R₁₀₁ ~ R₁₀₄ のアルキル、アルケニル、アルキニル、シクロアルキル、ヘテロシクロアルキル、アリール、ヘテロアリール、アリールシリル、アルキルシリル、アルキルアミノまたはアリールアミノ、あるいは、縮合環を有するまたは有さない (C 3 ~ C 6 0) アルキレンまたは (C 3 ~ C 6 0) アルケニレンを介して隣接する置換基に結合することによってそれらから形成された脂環式環または単環式もしくは多環式の芳香環は、ハロゲン；(C 1 ~ C 6 0) アルキル；(C 6 ~ C 6 0) アリール；(C 4 ~ C 6 0) ヘテロアリール；N、O、および S から選択される 1 つ以上のヘテロ原子を含有する 5 または 6 員のヘテロシクロアルキル；(C 3 ~ C 6 0) シクロアルキル；トリ (C 1 ~ C 6 0) アルキルシリル；ジ (C 1 ~ C 6 0) アルキル (C 6 ~ C 6 0) アリールシリル；トリ (C 6 ~ C 6 0) アリールシリル；アダマンチル、(C 7 ~ C 6 0) ビシクロアルキル；(C 2 ~ C 6 0) アルケニル；(C 2 ~ C 6 0) アルキニル；シアノ；(C 1 ~ C 6 0) アルキルアミノ；(C 6 ~ C 6 0) アリールアミノ；(C 6 ~ C 6 0) アリール (C 1 ~ C 6 0) アルキル；(C 1 ~ C 6 0) アルキルオキシ；(C 1 ~ C 6 0) アルキルチオ；(C 6 ~ C 6 0) アリールオキシ；(C 6 ~ C 6 0) アリールチオ；(C 1 ~ C 6 0) アルコキシカルボニル；(C 1 ~ C 6 0) アルキルカルボニル；(C 6 ~ C 6 0) アリールカルボニル；カルボキシル；ニトロ；及びヒドロキシルから選択される 1 つ以上の置換基によってさらに置換されていてもよい。

【0063】

配位子 L¹ および L² は独立に下記の構造から選択され：

【0064】

【化19】



【0065】

上式中、Xは、O、S、またはSeを表し；

R₁₀₁ ~ R₁₀₄は独立に、水素；ハロゲン；(C1 ~ C60)アルキル；(C6 ~ C60)アリール；(C4 ~ C60)ヘテロアリール；N、O、およびSから選択される1つ以上のヘテロ原子を含有する5または6員のヘテロシクロアルキル；(C3 ~ C60)シクロアルキル；トリ(C1 ~ C60)アルキルシリル；ジ(C1 ~ C60)アルキル(C6 ~ C60)アリールシリル；トリ(C6 ~ C60)アリールシリル；アダマンチル；(C7 ~ C60)ビスシクロアルキル；(C2 ~ C60)アルケニル；(C2 ~ C60)アルキニル；シアノ；(C1 ~ C60)アルキルアミノ；(C6 ~ C60)アリールアミノ；(C6 ~ C60)アリール(C1 ~ C60)アルキル；(C1 ~ C60)アルキルオキシ；(C1 ~ C60)アルキルチオ；(C6 ~ C60)アリールオキシ；(C6 ~ C60)アリールチオ；(C1 ~ C60)アルコキシカルボニル；(C1 ~ C60)アルキルカルボニル；(C6 ~ C60)アリールカルボニル；カルボキシル；ニトロ；またはヒドロキシルを表し、あるいはR₁₀₁ ~ R₁₀₄のそれぞれは、縮合環を有するまたは有さない(C3 ~ C60)アルキレンまたは(C3 ~ C60)アルケニレンを介して隣接する置換基に結合して脂環式環または単環式もしくは多環式の芳香環を形成してもよく；

R₁₁₁ ~ R₁₁₆およびR₁₂₁ ~ R₁₃₉は独立に、水素；ハロゲン；(C1 ~ C60)アルキル；(C6 ~ C60)アリール；(C4 ~ C60)ヘテロアリール；N、O、およびSから選択される1つ以上のヘテロ原子を含有する5または6員のヘテロシクロアルキル；(C3 ~ C60)シクロアルキル；トリ(C1 ~ C60)アルキルシリル；ジ(C1 ~ C60)アルキル(C6 ~ C60)アリールシリル；トリ(C6 ~ C60)アリールシリル；アダマンチル；(C7 ~ C60)ビスシクロアルキル；(C2 ~ C60)アルケニル；(C2 ~ C60)アルキニル；シアノ；(C1 ~ C60)アルキルアミノ；(C6 ~ C60)アリールアミノ；(C6 ~ C60)アリール(C1 ~ C60)アルキル；(C1 ~ C60)アルキルオキシ；(C1 ~ C60)アルキルチオ；(C6 ~ C60)アリールオキシ；(C6 ~ C60)アリールチオ；(C1 ~ C60)アルコキシカルボニル；(C1 ~ C60)アルキルカルボニル；(C6 ~ C60)アリールカルボニル；カルボキシル；ニトロ；またはヒドロキシルを表し、あるいはR₁₁₁ ~ R₁₁₆およびR₁₂₁ ~ R₁₃₉のそれぞれは、縮合環を有するまたは有さない(C3 ~ C60)アルキレンまたは(C3 ~ C60)アルケニレンを介して隣接する置換基に結合して脂環式環または単環式もしくは多環式の芳香環を形成してもよく；

R₁₀₁ ~ R₁₀₄、R₁₁₁ ~ R₁₁₆およびR₁₂₁ ~ R₁₃₉のアルキル、アルケニル、アルキニル、シクロアルキル、ヘテロシクロアルキル、アリール、ヘテロアリール、アリールシリル、アルキルシリル、アルキルアミノもしくはアリールアミノ、または、縮合環を有するまたは有さない(C3 ~ C60)アルキレンまたは(C3 ~ C60)アルケニレンを介して隣接する置換基に結合することによってそれらから形成された脂環式環または単環式もしくは多環式の芳香環は、ハロゲン；(C1 ~ C60)アルキル；(C6 ~ C60)アリール；(C4 ~ C60)ヘテロアリール；N、O、およびSから選択される1つ以上のヘテロ原子を含有する5または6員のヘテロシクロアルキル；(C3 ~ C60)シクロアルキル；トリ(C1 ~ C60)アルキルシリル；ジ(C1 ~ C60)アルキル(C6 ~ C60)アリールシリル；トリ(C6 ~ C60)アリールシリル；アダマンチル；(C7 ~ C60)ビスシクロアルキル；(C2 ~ C60)アルケニル；(C2 ~ C60)アルキニル；シアノ；(C1 ~ C60)アルキルアミノ；(C6 ~ C60)アリールアミノ；(C6 ~ C60)アリール(C1 ~ C60)アルキル；(C1 ~ C60)アルキルオキシ；(C1 ~ C60)アルキルチオ；(C6 ~ C60)アリールオキシ；(C6 ~ C60)アリールチオ；(C1 ~ C60)アルコキシカルボニル；(C1 ~ C60)アルキルカルボニル；(C6 ~ C60)アリールカルボニル；カルボキシル；ニトロ；およびヒドロキシルから選択される1つ以上の置換基によってさらに置換されていてもよい。

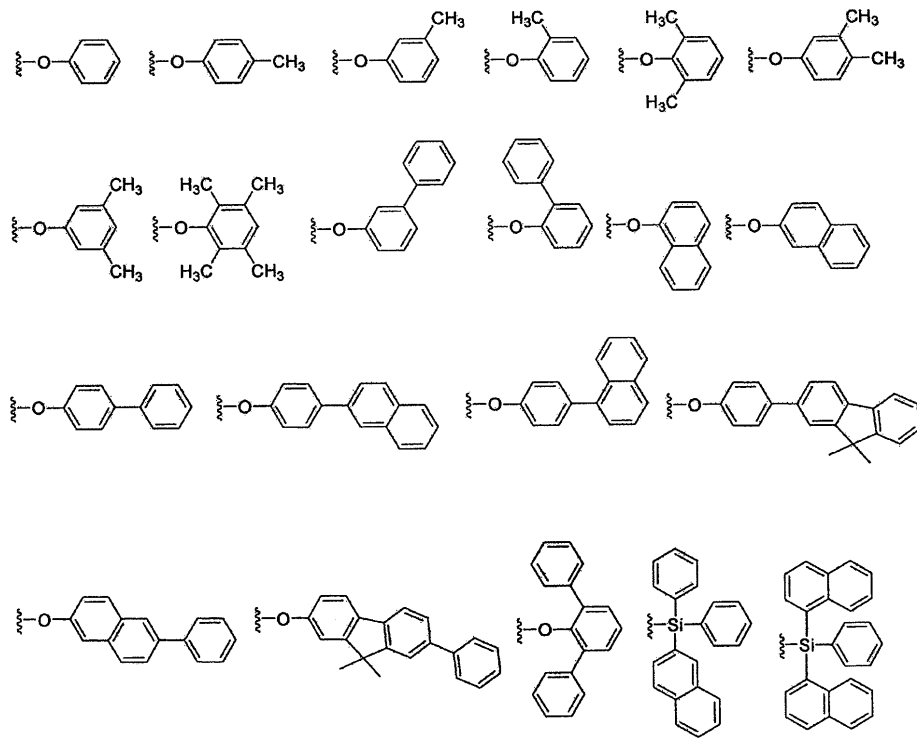
【0066】

化学式(11)において、M¹は、Be、Zn、Mg、Cu、およびNiから選択され

る二価の金属、または A l、G a、I n、および B から選択される三価の金属であり、および Q は下記の構造から選択される。

【 0 0 6 7 】

【 化 2 0 】



10

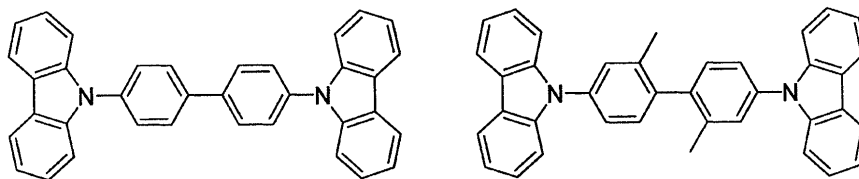
20

【 0 0 6 8 】

化学式 (8) の化合物は、下記の構造によって表される化合物により具体的に例示することができるが、これらに限定されるものではない。

【 0 0 6 9 】

【 化 2 1 】



30

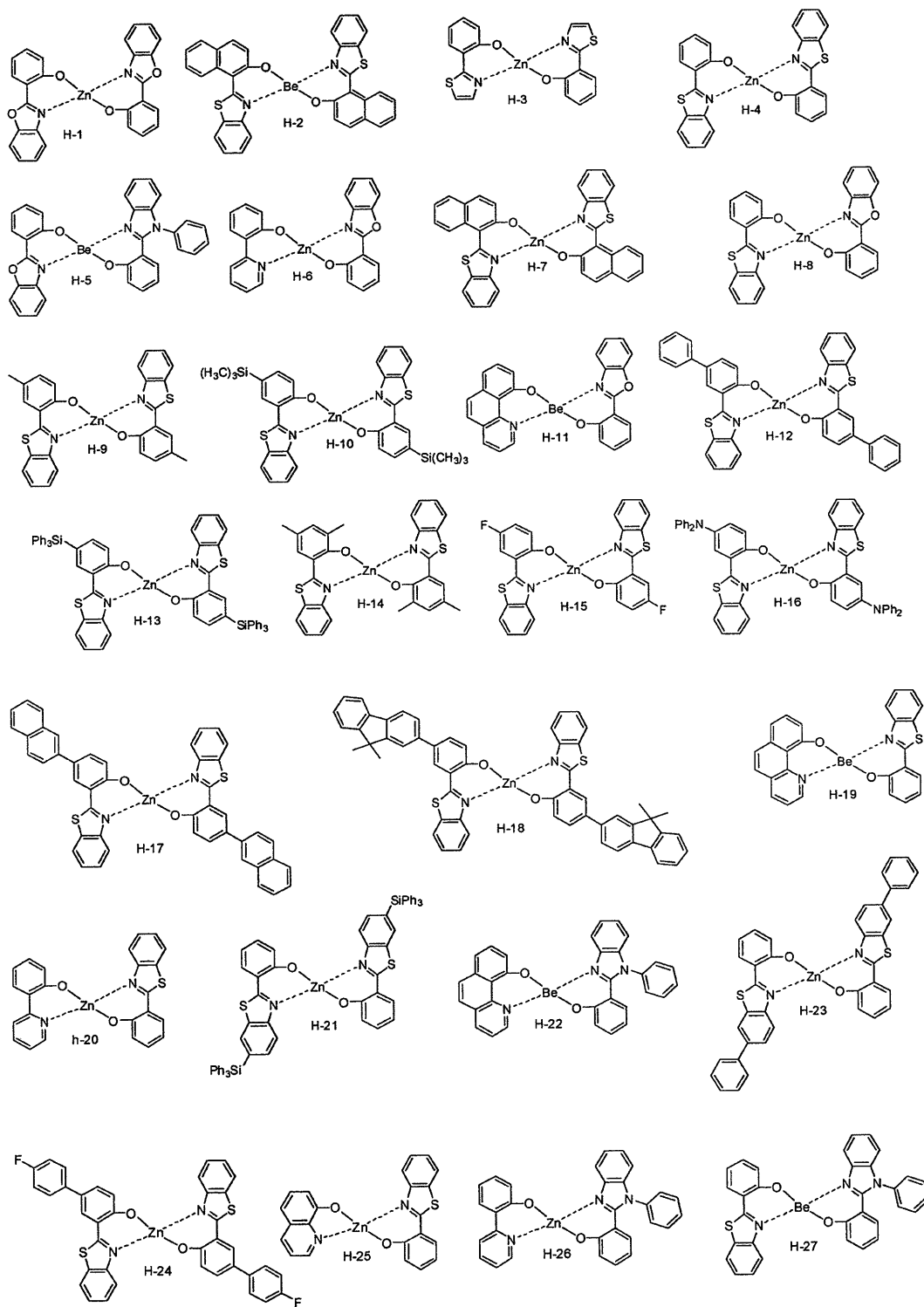
【 0 0 7 0 】

化学式 (9) ~ (1 1) の 1 つによって表される化合物は、下記の構造の中の 1 つを有する化合物により具体的に例示することができるが、これらに限定されるものではない。

【 0 0 7 1 】

40

【化 2 2】



10

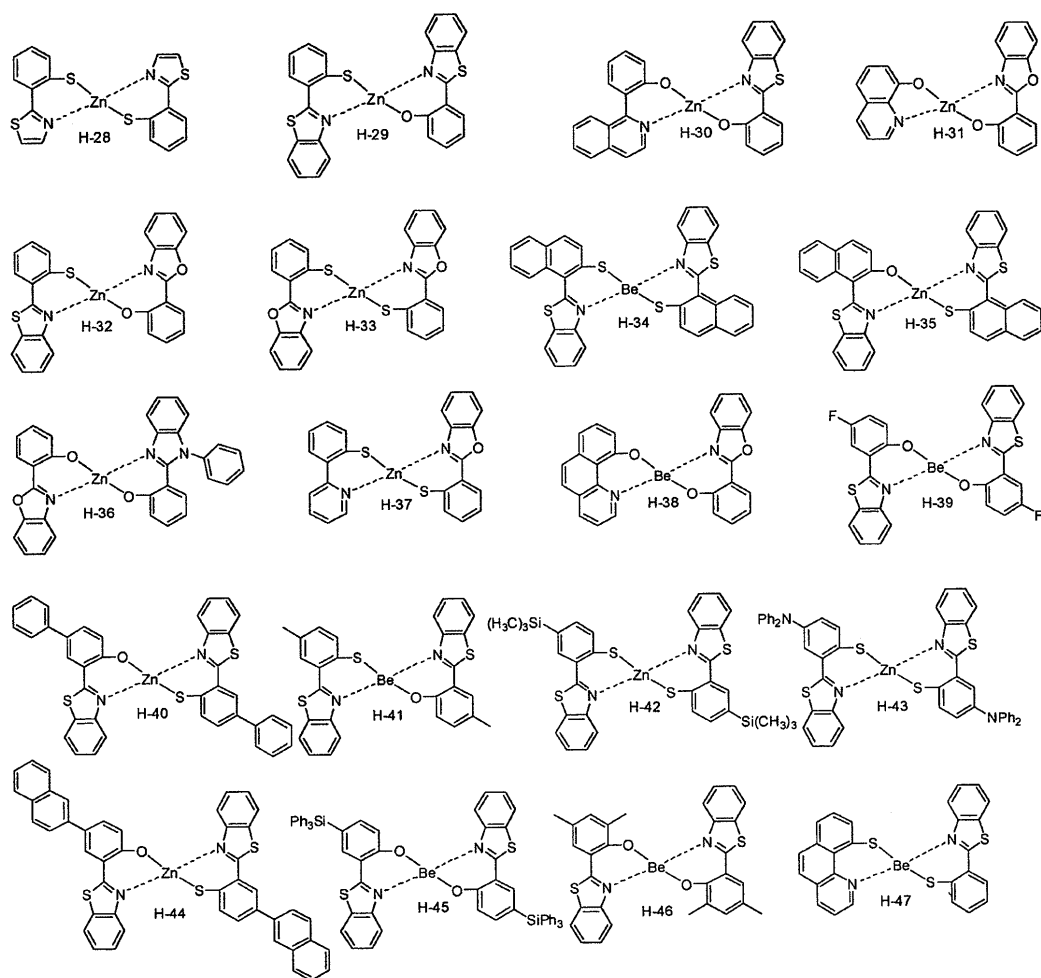
20

30

40

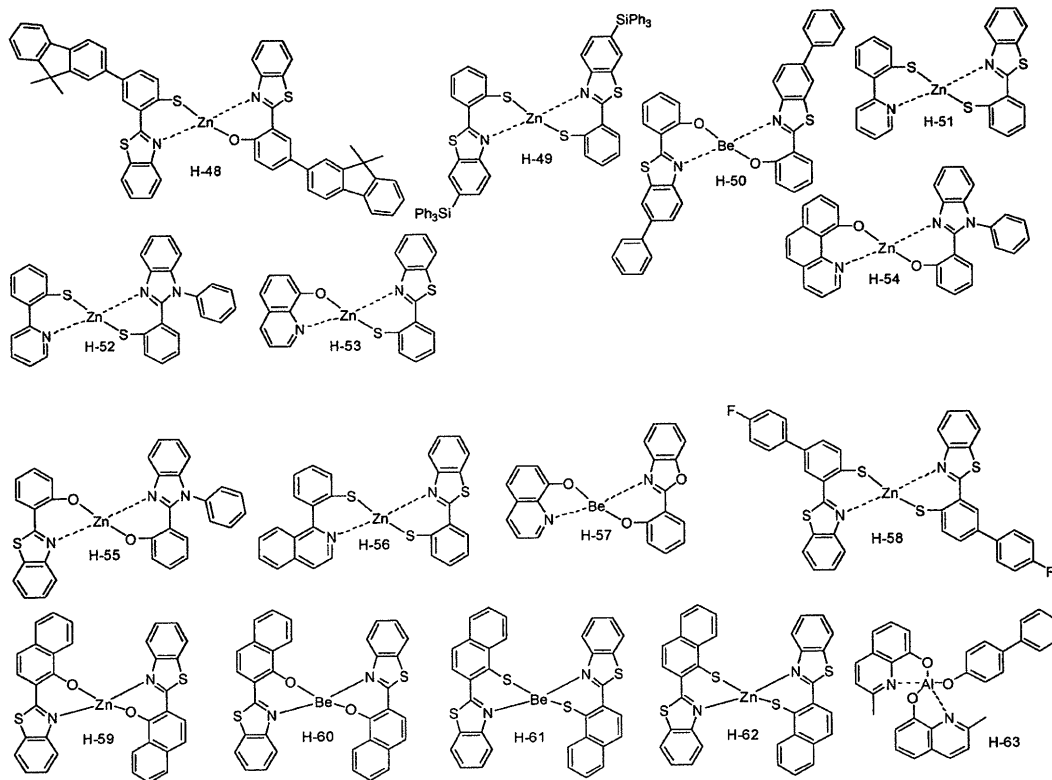
【 0 0 7 2 】

【化 2 3】



【0073】

【化 2 4】

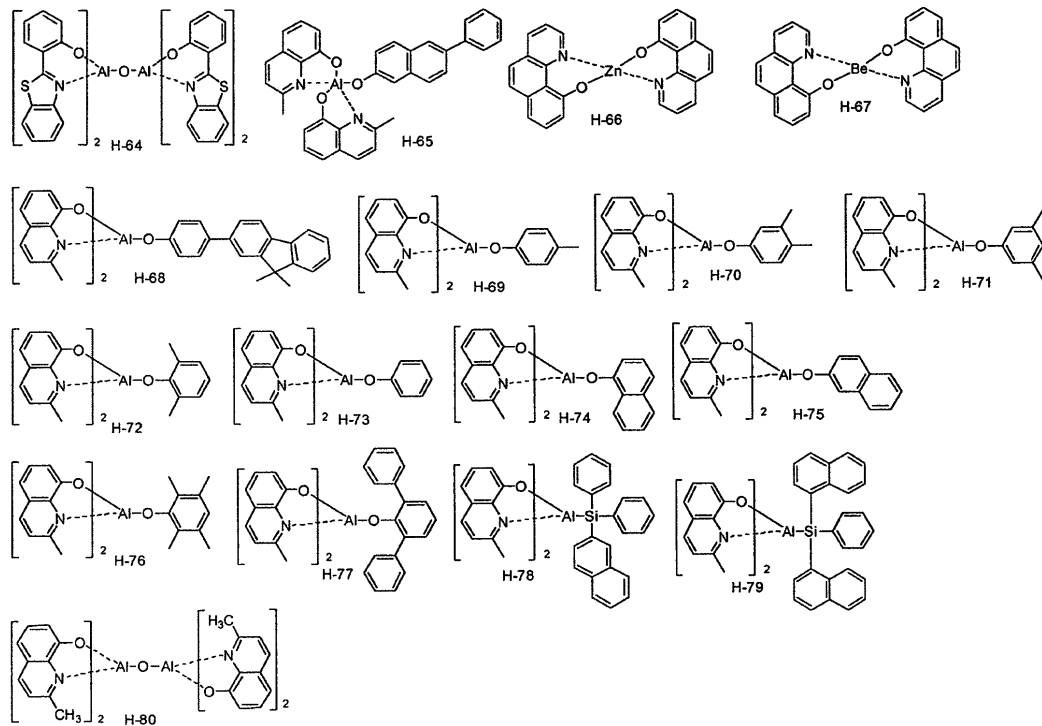


10

20

【 0 0 7 4】

【化 2 5】



30

40

【 0 0 7 5】

エレクトロルミネッセンス層は、エレクトロルミネッセンスが起こる層を意味し、これは、単層であっても、積層された2つ以上の層からなる多層であってもよい。ホスト-ドープアントの混合物が本発明の構成により使用されると、デバイス寿命および発光効率の顕著な向上を確認することができた。

50

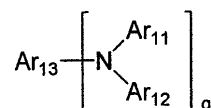
【 0 0 7 6 】

本発明による有機エレクトロルミネッセンスデバイスは、化学式（１）によって表される有機エレクトロルミネッセンス化合物に加えて、アリールアミン化合物およびスチリルアリールアミン化合物から選択される１種以上の化合物をさらに含むことができる。アリールアミン化合物またはスチリルアリールアミン化合物の例としては、化学式（１２）によって表される化合物が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

【 0 0 7 7 】

【 化 2 6 】

化学式12



10

【 0 0 7 8 】

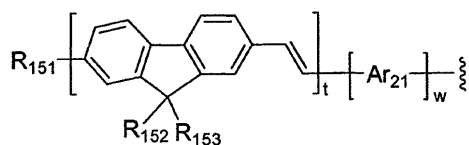
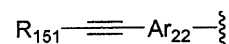
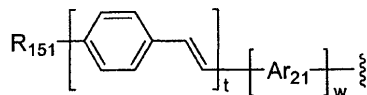
上式中、 Ar_{11} および Ar_{12} は独立に、（Ｃ１～Ｃ６０）アルキル；（Ｃ６～Ｃ６０）アリール；（Ｃ４～Ｃ６０）ヘテロアリール；（Ｃ６～Ｃ６０）アリールアミノ；（Ｃ１～Ｃ６０）アルキルアミノ； N 、 O 、および S から選択される１つ以上のヘテロ原子を含有する５または６員のヘテロシクロアルキル；または（Ｃ３～Ｃ６０）シクロアルキルを表し、あるいは Ar_{11} および Ar_{12} は、縮合環を有するまたは有さない（Ｃ３～Ｃ６０）アルキレンまたは（Ｃ３～Ｃ６０）アルケニレンを介して結合して脂環式環または単環式もしくは多環式の芳香環を形成してもよく；

20

g が１の場合、 Ar_{13} は、（Ｃ６～Ｃ６０）アリール、（Ｃ４～Ｃ６０）ヘテロアリール、または下記の構造式の１つによって表されるアリールを表し；

【 0 0 7 9 】

【 化 2 7 】



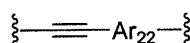
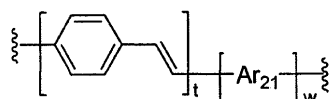
30

【 0 0 8 0 】

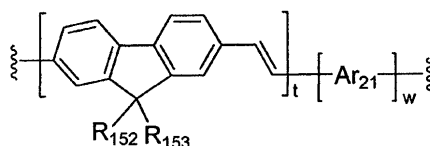
g が２の場合、 Ar_{13} は、（Ｃ６～Ｃ６０）アリーレン、（Ｃ４～Ｃ６０）ヘテロアリーレン、または下記の構造式の１つによって表されるアリーレンを表し；

【 0 0 8 1 】

【 化 2 8 】



40



【 0 0 8 2 】

上式中、 Ar_{21} および Ar_{22} は独立に、（Ｃ６～Ｃ６０）アリーレンまたは（Ｃ４

50

～C 6 0) ヘテロアリーレンを表し；

R₁₅₁、R₁₅₂、およびR₁₅₃は独立に、水素、(C 1～C 6 0) アルキル、または(C 6～C 6 0) アリールを表し；

t は 1～4 の整数であり、w は 0 または 1 の整数であり；並びに、

A_{r11} および A_{r12} のアルキル、アリール、ヘテロアリール、アリールアミノ、アルキルアミノ、シクロアルキルもしくはヘテロシクロアルキル、または A_{r13} のアリール、ヘテロアリール、アリーレンもしくはヘテロアリーレン、または A_{r21} および A_{r22} のアリーレンもしくはヘテロアリーレン、または R₁₅₁～R₁₅₃ のアルキルもしくはアリールは、ハロゲン；(C 1～C 6 0) アルキル；(C 6～C 6 0) アリール；(C 4～C 6 0) ヘテロアリール；N、O、およびS から選択される 1 つ以上のヘテロ原子を含有する 5 または 6 員のヘテロシクロアルキル；(C 3～C 6 0) シクロアルキル；トリ(C 1～C 6 0) アルキルシリル；ジ(C 1～C 6 0) アルキル(C 6～C 6 0) アリールシリル；トリ(C 6～C 6 0) アリールシリル；アダマンチル；(C 7～C 6 0) ビシクロアルキル；(C 2～C 6 0) アルケニル；(C 2～C 6 0) アルキニル；シアノ；(C 1～C 6 0) アルキルアミノ；(C 6～C 6 0) アリールアミノ；(C 6～C 6 0) アリール(C 1～C 6 0) アルキル；(C 6～C 6 0) アリールオキシ；(C 1～C 6 0) アルキルオキシ；(C 6～C 6 0) アリールチオ；(C 1～C 6 0) アルキルチオ；(C 1～C 6 0) アルコキシカルボニル；(C 1～C 6 0) アルキルカルボニル；(C 6～C 6 0) アリールカルボニル；カルボキシル；ニトロ；およびヒドロキシルからなる群より選択される 1 つ以上の置換基によってさらに置換されていてもよい。

10

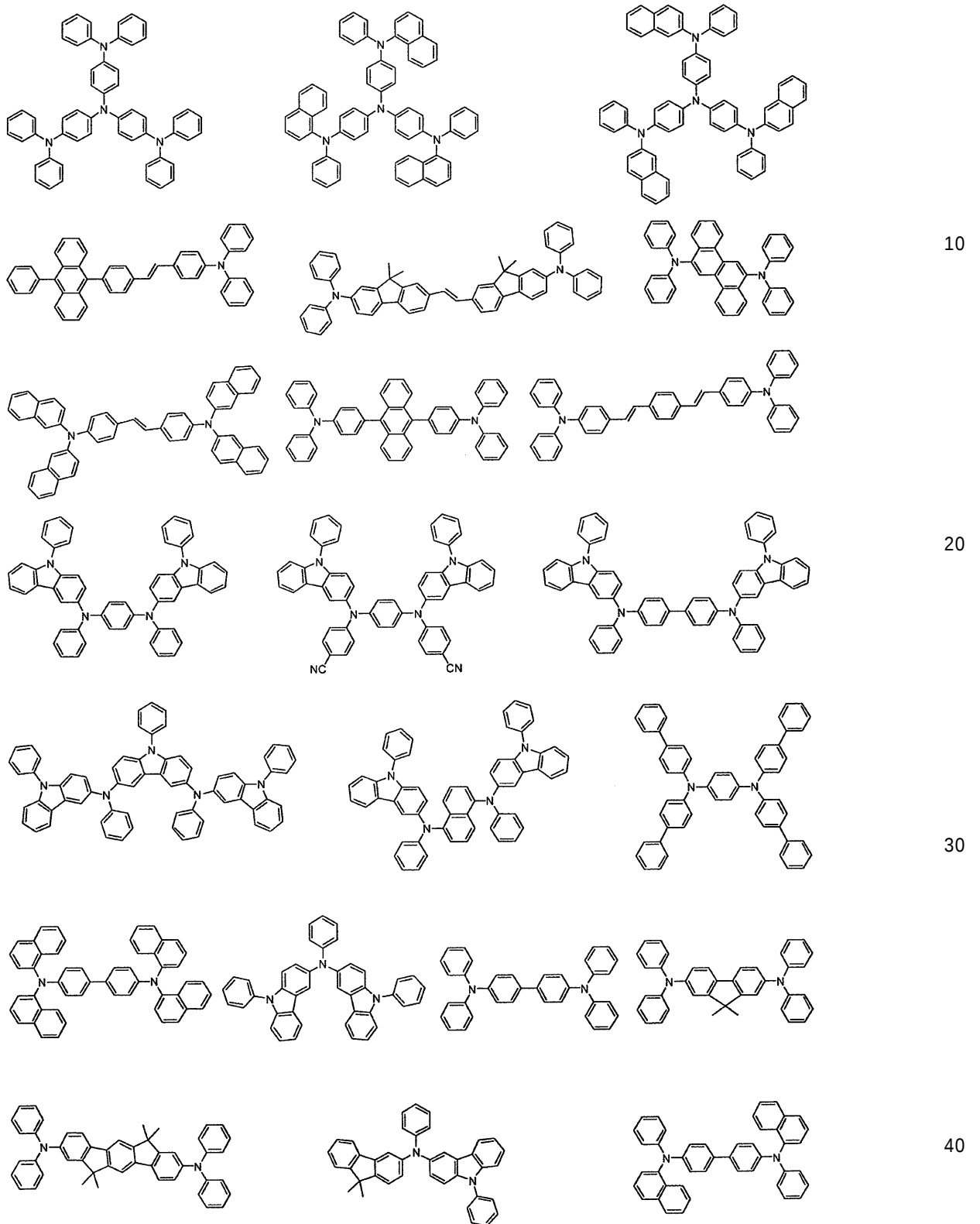
20

【0083】

上記アリールアミン化合物およびスチリルアリールアミン化合物は、下記の化合物により具体的に例示することができるが、これらに限定されるものではない。

【0084】

【化 29】



【0085】

本発明による有機エレクトロルミネッセンスデバイスにおいて、有機層は、化学式(1)によって表される有機エレクトロルミネッセンス化合物に加えて、1族、2族、第4周期および第5周期の遷移金属、ランタニド金属及びd遷移元素の有機金属からなる群より選択される1種以上の金属をさらに含むことができる。有機層は、エレクトロルミネッセンス層に加えて電荷発生層を含むことができる。

【 0 0 8 6 】

本発明は、独立発光モードのピクセル構造を有するエレクトロルミネッセンスデバイスを実現することができ、これは、サブピクセルとしての化学式(1)の化合物と、同時に並行してパターン化された、アリアルアミン化合物およびスチリルアリアルアミン化合物からなる群より選択される1種以上の化合物を含む1つ以上のサブピクセルとを含有する有機エレクトロルミネッセンスデバイスを含む。

【 0 0 8 7 】

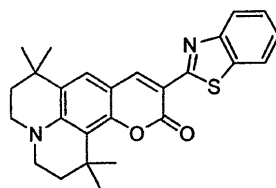
さらに、有機エレクトロルミネッセンスデバイスは、青色または緑色の波長のエレクトロルミネッセンスピークを有する化合物から選択される1種以上の化合物を同時に含む有機ディスプレイである。青色または緑色の波長のエレクトロルミネッセンスピークを有する化合物は、化学式(13)～(17)の1つによって表される化合物により具体的に例示することができるが、これらに限定されるものではない。

10

【 0 0 8 8 】

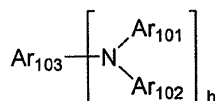
【 化 3 0 】

化学式13



20

化学式14



【 0 0 8 9 】

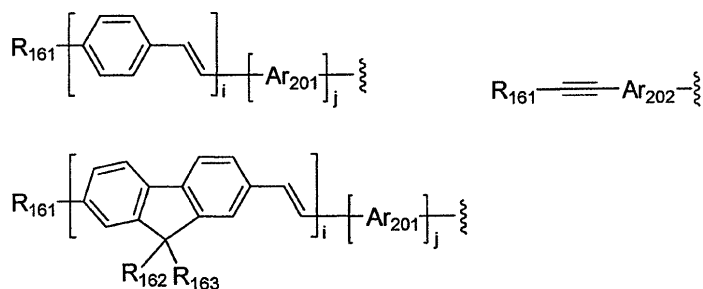
化学式(14)において、 Ar_{101} および Ar_{102} は独立に、(C1～C60)アルキル；(C6～C60)アリール；(C4～C60)ヘテロアリール；(C6～C60)アリールアミノ；(C1～C60)アルキルアミノ；N、O、およびSから選択される1つ以上のヘテロ原子を含有する5または6員のヘテロシクロアルキル；または(C3～C60)シクロアルキルを表し、あるいは Ar_{101} および Ar_{102} は、縮合環を有するまたは有さない(C3～C60)アルキレンまたは(C3～C60)アルケニレンを介して結合して脂環式環または単環式もしくは多環式の芳香環を形成してもよく；

30

h が1の場合、 Ar_{103} は、(C6～C60)アリール、(C4～C60)ヘテロアリール、または下記の構造式の1つによって表されるアリールを表し；

【 0 0 9 0 】

【 化 3 1 】



40

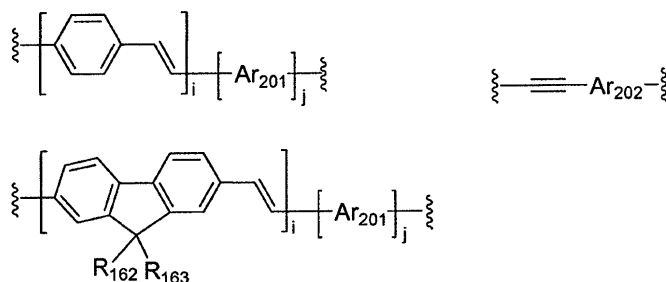
【 0 0 9 1 】

h が2の場合、 Ar_{103} は、(C6～C60)アリーレン、(C4～C60)ヘテロアリーレン、または下記の構造式の1つによって表されるアリーレンを表し；

50

【 0 0 9 2 】

【 化 3 2 】



10

【 0 0 9 3 】

上式中、 Ar_{201} および Ar_{202} は独立に、(C 6 ~ C 6 0) アリーレンまたは (C 4 ~ C 6 0) ヘテロアリーレンを表し；

R_{161} 、 R_{162} 、および R_{163} は独立に、水素、(C 1 ~ C 6 0) アルキルまたは (C 6 ~ C 6 0) アリールを表し；

i は 1 ~ 4 の整数であり、 j は 0 または 1 の整数であり；並びに

Ar_{101} および Ar_{102} のアルキル、アリール、ヘテロアリール、アリールアミノ、アルキルアミノ、シクロアルキルもしくはヘテロシクロアルキル、または Ar_{103} のアリール、ヘテロアリール、アリーレンもしくはヘテロアリーレン、または Ar_{201} および Ar_{202} のアリーレンもしくはヘテロアリーレン、または $R_{161} \sim R_{163}$ のアルキルもしくはアリールは、ハロゲン；(C 1 ~ C 6 0) アルキル；(C 6 ~ C 6 0) アリール；(C 4 ~ C 6 0) ヘテロアリール；N、O、および S から選択される 1 つ以上のヘテロ原子を含有する 5 または 6 員のヘテロシクロアルキル；(C 3 ~ C 6 0) シクロアルキル；トリ(C 1 ~ C 6 0) アルキルシリル；ジ(C 1 ~ C 6 0) アルキル(C 6 ~ C 6 0) アリールシリル；トリ(C 6 ~ C 6 0) アリールシリル；アダマンチル；(C 7 ~ C 6 0) ビシクロアルキル；(C 2 ~ C 6 0) アルケニル；(C 2 ~ C 6 0) アルキニル；シアノ；(C 1 ~ C 6 0) アルキルアミノ；(C 6 ~ C 6 0) アリールアミノ；(C 6 ~ C 6 0) アリール(C 1 ~ C 6 0) アルキル；(C 6 ~ C 6 0) アリールオキシ；(C 1 ~ C 6 0) アルキルオキシ；(C 6 ~ C 6 0) アリールチオ；(C 1 ~ C 6 0) アルキルチオ；(C 1 ~ C 6 0) アルコキシカルボニル；(C 1 ~ C 6 0) アルキルカルボニル；(C 6 ~ C 6 0) アリールカルボニル；カルボキシル；ニトロ；及びヒドロキシルからなる群より選択される 1 つ以上の置換基によってさらに置換されていてもよい。

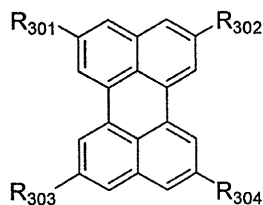
20

30

【 0 0 9 4 】

【 化 3 3 】

化学式 15



40

【 0 0 9 5 】

化学式 (1 5) において、 $R_{301} \sim R_{304}$ は独立に、水素；ハロゲン；(C 1 ~ C 6 0) アルキル；(C 6 ~ C 6 0) アリール；(C 4 ~ C 6 0) ヘテロアリール；N、O、および S から選択される 1 つ以上のヘテロ原子を含有する 5 または 6 員のヘテロシクロアルキル；(C 3 ~ C 6 0) シクロアルキル；トリ(C 1 ~ C 6 0) アルキルシリル；ジ(C 1 ~ C 6 0) アルキル(C 6 ~ C 6 0) アリールシリル；トリ(C 6 ~ C 6 0) アリールシリル；アダマンチル；(C 7 ~ C 6 0) ビシクロアルキル；(C 2 ~ C 6 0) アル

50

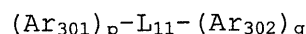
ケニル；(C 2 ~ C 6 0) アルキニル；シアノ；(C 1 ~ C 6 0) アルキルアミノ；(C 6 ~ C 6 0) アリールアミノ；(C 6 ~ C 6 0) アリール(C 1 ~ C 6 0) アルキル；(C 1 ~ C 6 0) アルキルオキシ；(C 1 ~ C 6 0) アルキルチオ；(C 6 ~ C 6 0) アリールオキシ；(C 6 ~ C 6 0) アリールチオ；(C 1 ~ C 6 0) アルコキシカルボニル；(C 1 ~ C 6 0) アルキルカルボニル；(C 6 ~ C 6 0) アリールカルボニル；カルボキシル；ニトロ；またはヒドロキシルを表し、あるいは $R_{301} \sim R_{304}$ のそれぞれは、縮合環を有するまたは有さない(C 3 ~ C 6 0) アルキレンまたは(C 3 ~ C 6 0) アルケニレンを介して隣接する置換基に結合して脂環式環または単環式もしくは多環式の芳香環を形成してもよく；

$R_{301} \sim R_{304}$ のアルキル、アルケニル、アルキニル、シクロアルキル、ヘテロシクロアルキル、アリール、ヘテロアリール、アリールシリル、アルキルシリル、アルキルアミノもしくはアリールアミノ、または、縮合環を有するまたは有さない(C 3 ~ C 6 0) アルキレンまたは(C 3 ~ C 6 0) アルケニレンを介して隣接する置換基に結合することによってそれらから形成された脂環式環または単環式もしくは多環式の芳香環は、ハロゲン；(C 1 ~ C 6 0) アルキル；(C 6 ~ C 6 0) アリール；(C 4 ~ C 6 0) ヘテロアリール；N、O、およびSから選択される1つ以上のヘテロ原子を含有する5または6員のヘテロシクロアルキル；(C 3 ~ C 6 0) シクロアルキル；トリ(C 1 ~ C 6 0) アルキルシリル；ジ(C 1 ~ C 6 0) アルキル(C 6 ~ C 6 0) アリールシリル；トリ(C 6 ~ C 6 0) アリールシリル；アダマンチル；(C 7 ~ C 6 0) ビシクロアルキル；(C 2 ~ C 6 0) アルケニル；(C 2 ~ C 6 0) アルキニル；シアノ；(C 1 ~ C 6 0) アルキルアミノ；(C 6 ~ C 6 0) アリールアミノ；(C 6 ~ C 6 0) アリール(C 1 ~ C 6 0) アルキル；(C 1 ~ C 6 0) アルキルオキシ；(C 1 ~ C 6 0) アルキルチオ；(C 6 ~ C 6 0) アリールオキシ；(C 6 ~ C 6 0) アリールチオ；(C 1 ~ C 6 0) アルコキシカルボニル；(C 1 ~ C 6 0) アルキルカルボニル；(C 6 ~ C 6 0) アリールカルボニル；カルボキシル；ニトロ；およびヒドロキシルから選択される1つ以上の置換基によってさらに置換されていてもよい。

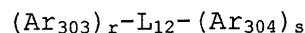
【0096】

【化34】

化学式16



化学式17



【0097】

化学式(16)および(17)において、

L_{11} は、(C 6 ~ C 6 0) アリーレンまたは(C 4 ~ C 6 0) ヘテロアリーレンを表し；

L_{12} は、アントラセニレンを表し；

$\text{Ar}_{301} \sim \text{Ar}_{304}$ は独立に、水素、(C 1 ~ C 6 0) アルキル、(C 1 ~ C 6 0) アルコキシ、ハロゲン、(C 4 ~ C 6 0) ヘテロアリール、(C 5 ~ C 6 0) シクロアルキル、および(C 6 ~ C 6 0) アリールから選択され、 $\text{Ar}_{301} \sim \text{Ar}_{304}$ のシクロアルキル、アリールまたはヘテロアリールは、(C 1 ~ C 6 0) アルキル、ハロ(C 1 ~ C 6 0) アルキル、(C 1 ~ C 6 0) アルコキシ、(C 3 ~ C 6 0) シクロアルキル、ハロゲン、シアノ、トリ(C 1 ~ C 6 0) アルキルシリル、ジ(C 1 ~ C 6 0) アルキル(C 6 ~ C 6 0) アリールシリル、およびトリ(C 6 ~ C 6 0) アリールシリルからなる群より選択される少なくとも1つの置換基を有するまたは有さない(C 6 ~ C 6 0) アリールまたは(C 4 ~ C 6 0) ヘテロアリール；ハロゲン置換基を有するまたは有さない(C 1 ~ C 6 0) アルキル；(C 1 ~ C 6 0) アルコキシ；(C 3 ~ C 6 0) シクロアルキ

ル；ハロゲン；シアノ；トリ（C 1 ～ C 6 0）アルキルシリル；ジ（C 1 ～ C 6 0）アルキル（C 6 ～ C 6 0）アリールシリル；ならびにトリ（C 6 ～ C 6 0）アリールシリルからなる群より選択される１つ以上の置換基によってさらに置換されていてもよく；並びに、

p、q、r、およびsは独立に０～４の整数を表す。

【００９８】

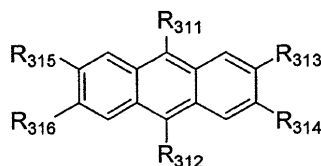
化学式（１６）または（１７）によって表される化合物は、化学式（１８）～（２１）の１つによって表される誘導体により例示することができる。

【００９９】

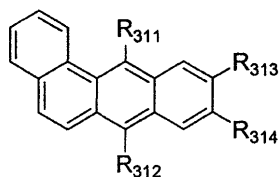
【化３５】

10

化学式18

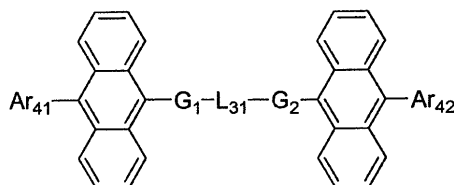


化学式19



20

化学式20



30

【０１００】

化学式（１８）～（２０）において、 R_{311} および R_{312} は独立に、（C 6 ～ C 6 0）アリール；（C 4 ～ C 6 0）ヘテロアリール；またはN、O、およびSから選択される１つ以上のヘテロ原子を含有する５または６員のヘテロシクロアルキル；または（C 3 ～ C 6 0）シクロアルキルを表し、 R_{311} および R_{312} のアリールまたはヘテロアリールは、（C 1 ～ C 6 0）アルキル、ハロ（C 1 ～ C 6 0）アルキル、（C 1 ～ C 6 0）アルコキシ、（C 3 ～ C 6 0）シクロアルキル、（C 6 ～ C 6 0）アリール、（C 4 ～ C 6 0）ヘテロアリール、ハロゲン、シアノ、トリ（C 1 ～ C 6 0）アルキルシリル、ジ（C 1 ～ C 6 0）アルキル（C 6 ～ C 6 0）アリールシリル、およびトリ（C 6 ～ C 6 0）アリールシリルからなる群より選択される１つ以上の置換基によってさらに置換されていてもよく；

40

$R_{313} \sim R_{316}$ は独立に、水素、（C 1 ～ C 6 0）アルキル、（C 1 ～ C 6 0）アルコキシ、ハロゲン、（C 4 ～ C 6 0）ヘテロアリール、（C 5 ～ C 6 0）シクロアルキルまたは（C 6 ～ C 6 0）アリールを表し、 $R_{313} \sim R_{316}$ のヘテロアリール、シクロアルキルまたはアリールは、ハロゲン置換基を有するまたは有さない（C 1 ～ C 6 0）アルキル、（C 1 ～ C 6 0）アルコキシ、（C 3 ～ C 6 0）シクロアルキル、ハロゲン、シアノ、トリ（C 1 ～ C 6 0）アルキルシリル、ジ（C 1 ～ C 6 0）アルキル（C 6 ～ C 6 0）アリールシリルおよびトリ（C 6 ～ C 6 0）アリールシリルからなる群より選択される１つ以上の置換基によってさらに置換されていてもよく；

G_1 および G_2 は独立に、化学結合、あるいは（C 1 ～ C 6 0）アルキル、（C 1 ～ C

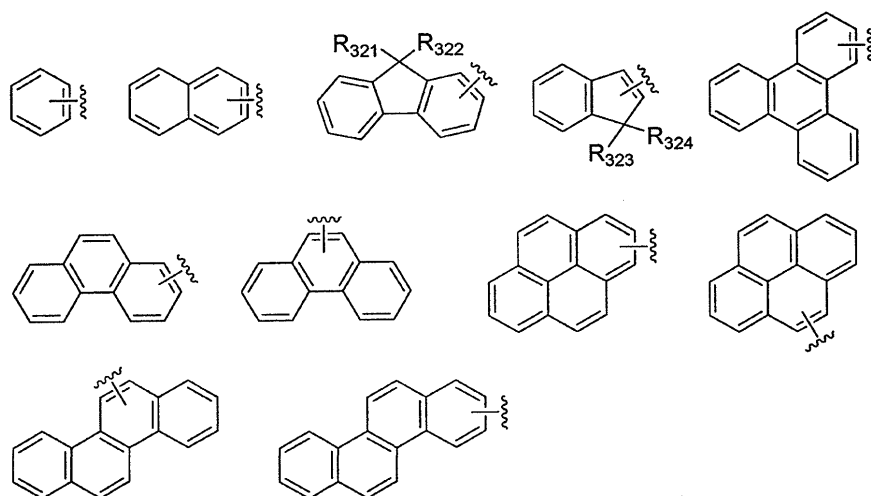
50

60) アルコキシ、(C6～C60) アリール、(C4～C60) ヘテロアリールおよびハロゲンから選択される1つ以上の置換基を有するまたは有さない(C6～C60) アリールを表し；

Ar₄₁ および Ar₄₂ は独立に、下記の構造または(C4～C60) ヘテロアリールから選択されるアリールを表し；

【0101】

【化36】



10

20

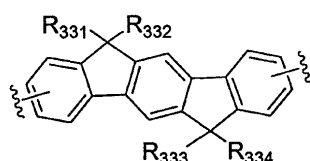
【0102】

Ar₄₁ および Ar₄₂ のアリールまたはヘテロアリールは、(C1～C60) アルキル、(C1～C60) アルコキシ、(C6～C60) アリール、および(C4～C60) ヘテロアリールから選択される1つ以上の置換基によって置換されていてもよく；

L₃₁ は、(C6～C60) アリーレン、(C4～C60) ヘテロアリーレン、または下記の構造によって表される化合物を表し；

【0103】

【化37】



30

【0104】

L₃₁ のアリーレンまたはヘテロアリーレンは、(C1～C60) アルキル、(C1～C60) アルコキシ、(C6～C60) アリール、(C4～C60) ヘテロアリールおよびハロゲンから選択される1つ以上の置換基によって置換されていてもよく；

R₃₂₁、R₃₂₂、R₃₂₃、およびR₃₂₄ は独立に、水素、(C1～C60) アルキルまたは(C6～C60) アリールを表し、あるいはこれらのそれぞれは、縮合環を有するまたは有さない(C3～C60) アルキレンまたは(C3～C60) アルケニレンを介して隣接する置換基に結合して脂環式環または単環式もしくは多環式の芳香環を形成してもよく；

40

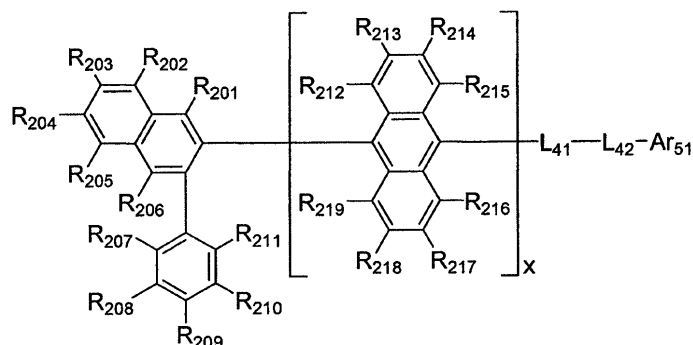
R₃₃₁、R₃₃₂、R₃₃₃、およびR₃₃₄ は独立に、水素、(C1～C60) アルキル、(C1～C60) アルコキシ、(C6～C60) アリール、(C4～C60) ヘテロアリールまたはハロゲンを表し、あるいはこれらのそれぞれは、縮合環を有するまたは有さない(C3～C60) アルキレンまたは(C3～C60) アルケニレンを介して隣接する置換基に結合して脂環式環または単環式もしくは多環式の芳香環を形成してもよい。

50

【 0 1 0 5 】

【 化 3 8 】

化学式21



10

【 0 1 0 6 】

化学式 2 1 において、

L_{41} および L_{42} は独立に、化学結合、(C 6 ~ C 6 0) アリーレンまたは (C 3 ~ C 6 0) ヘテロアリーレンを表し、 L_{41} および L_{42} のアリーレンまたはヘテロアリーレンは、(C 1 ~ C 6 0) アルキル、ハロゲン、シアノ、(C 1 ~ C 6 0) アルコキシ、(C 3 ~ C 6 0) シクロアルキル、(C 6 ~ C 6 0) アリール、(C 3 ~ C 6 0) ヘテロアリール、トリ(C 1 ~ C 3 0) アルキルシリル、ジ(C 1 ~ C 3 0) アルキル(C 6 ~ C 3 0) アリールシリル、およびトリ(C 6 ~ C 3 0) アリールシリルから選択される 1 つ以上の置換基によってさらに置換されていてもよく、

20

$R_{201} \sim R_{219}$ は独立に、水素；ハロゲン；(C 1 ~ C 6 0) アルキル；(C 6 ~ C 6 0) アリール；(C 4 ~ C 6 0) ヘテロアリール；N、O、および S から選択される 1 つ以上のヘテロ原子を含有する 5 または 6 員のヘテロシクロアルキル；(C 3 ~ C 6 0) シクロアルキル；トリ(C 1 ~ C 6 0) アルキルシリル；ジ(C 1 ~ C 6 0) アルキル(C 6 ~ C 6 0) アリールシリル；トリ(C 6 ~ C 6 0) アリールシリル；アダマンチル；(C 7 ~ C 6 0) ビシクロアルキル；(C 2 ~ C 6 0) アルケニル；(C 2 ~ C 6 0) アルキニル；(C 1 ~ C 6 0) アルコキシ；シアノ；(C 1 ~ C 6 0) アルキルアミノ；(C 6 ~ C 6 0) アリールアミノ；(C 6 ~ C 6 0) アリール(C 1 ~ C 6 0) アルキル；(C 6 ~ C 6 0) アリールオキシ；(C 6 ~ C 6 0) アリールチオ；(C 1 ~ C 6 0) アルコキシカルボニル；カルボキシル；ニトロまたはヒドロキシルを表し、あるいは $R_{201} \sim R_{219}$ のそれぞれは、縮合環を有するまたは有さない(C 3 ~ C 6 0) アルキレンまたは(C 3 ~ C 6 0) アルケニレンを介して隣接する置換基に結合して脂環式環または単環式もしくは多環式の芳香環を形成してもよく、

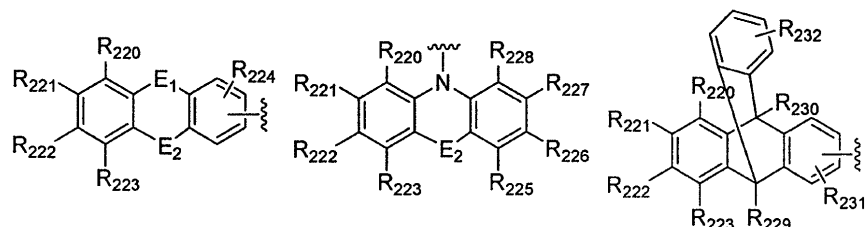
30

Ar_{51} は、(C 6 ~ C 6 0) アリール；(C 4 ~ C 6 0) ヘテロアリール；N、O、および S から選択される 1 つ以上のヘテロ原子を含有する 5 または 6 員のヘテロシクロアルキル；(C 3 ~ C 6 0) シクロアルキル；アダマンチル；(C 7 ~ C 6 0) ビシクロアルキルまたは下記の構造から選択される置換基を表し；

40

【 0 1 0 7 】

【 化 3 9 】



【 0 1 0 8 】

50

上式中、 $R_{220} \sim R_{232}$ は独立に、水素；ハロゲン；(C1～C60)アルキル；(C6～C60)アリール；(C4～C60)ヘテロアリール；N、O、およびSから選択される1つ以上のヘテロ原子を含有する5または6員のヘテロシクロアルキル；(C3～C60)シクロアルキル；トリ(C1～C60)アルキルシリル；ジ(C1～C60)アルキル(C6～C60)アリールシリル；トリ(C6～C60)アリールシリル；アダマンチル；(C7～C60)ビスシクロアルキル；(C2～C60)アルケニル；(C2～C60)アルキニル；(C1～C60)アルコキシ；シアノ；(C1～C60)アルキルアミノ；(C6～C60)アリールアミノ；(C6～C60)アリール(C1～C60)アルキル；(C6～C60)アリールオキシ；(C6～C60)アリールチオ；(C1～C60)アルコキシカルボニル；カルボキシル；ニトロまたはヒドロキシルを表し；

10

E_1 および E_2 は独立に、化学結合、(C R_{233} R R_{234}) $_z$ -、-N(R R_{235}) -、-S-、-O-、-Si(R R_{236})(R R_{237}) -、-P(R R_{238}) -、-(C=O) -、-B(R R_{239}) -、-In(R R_{240}) -、-Se-、-Ge(R R_{241})(R R_{242}) -、Sn(R R_{243})(R R_{244}) -、-Ga(R R_{245}) - または -C(R R_{246})=C(R R_{247}) - を表し；

$R_{233} \sim R_{247}$ は独立に、水素；ハロゲン；(C1～C60)アルキル；(C6～C60)アリール；(C4～C60)ヘテロアリール；N、O、およびSから選択される1つ以上のヘテロ原子を含有する5または6員のヘテロシクロアルキル；(C3～C60)シクロアルキル；トリ(C1～C60)アルキルシリル；ジ(C1～C60)アルキル(C6～C60)アリールシリル；トリ(C6～C60)アリールシリル；アダマンチル；(C7～C60)ビスシクロアルキル；(C2～C60)アルケニル；(C2～C60)アルキニル；(C1～C60)アルコキシ；シアノ；(C1～C60)アルキルアミノ；(C6～C60)アリールアミノ；(C6～C60)アリール(C1～C60)アルキル；(C6～C60)アリールオキシ；(C6～C60)アリールチオ；(C1～C60)アルコキシカルボニル；カルボキシル；ニトロまたはヒドロキシルを表し、あるいは $R_{233} \sim R_{247}$ のそれぞれは、縮合環を有するまたは有さない(C3～C60)アルキレンまたは(C3～C60)アルケニレンを介して隣接する置換基に結合して脂環式環または単環式もしくは多環式の芳香環を形成してもよく；

20

Ar_{51} のアリール、ヘテロアリール、ヘテロシクロアルキル、アダマンチルもしくはビスシクロアルキル、または $R_{201} \sim R_{232}$ のアルキル、アルケニル、アルキニル、シクロアルキル、ヘテロシクロアルキル、アリール、ヘテロアリール、アリールシリル、アルキルシリル、アルキルアミノもしくはアリールアミノは、ハロゲン；(C1～C60)アルキル；(C6～C60)アリール；(C4～C60)ヘテロアリール；N、O、およびSから選択される1つ以上のヘテロ原子を含有する5または6員のヘテロシクロアルキル；(C3～C60)シクロアルキル；トリ(C1～C60)アルキルシリル；ジ(C1～C60)アルキル(C6～C60)アリールシリル；トリ(C6～C60)アリールシリル；アダマンチル；(C7～C60)ビスシクロアルキル；(C2～C60)アルケニル；(C2～C60)アルキニル；(C1～C60)アルコキシ；シアノ；(C1～C60)アルキルアミノ；(C6～C60)アリールアミノ；(C6～C60)アリール(C1～C60)アルキル；(C6～C60)アリールオキシ；(C6～C60)アリールチオ；(C1～C60)アルコキシカルボニル；カルボキシル；ニトロおよびヒドロキシルから選択される1つ以上の置換基によってさらに置換されていてもよく；

30

40

x は 1～4 の整数であり；並びに

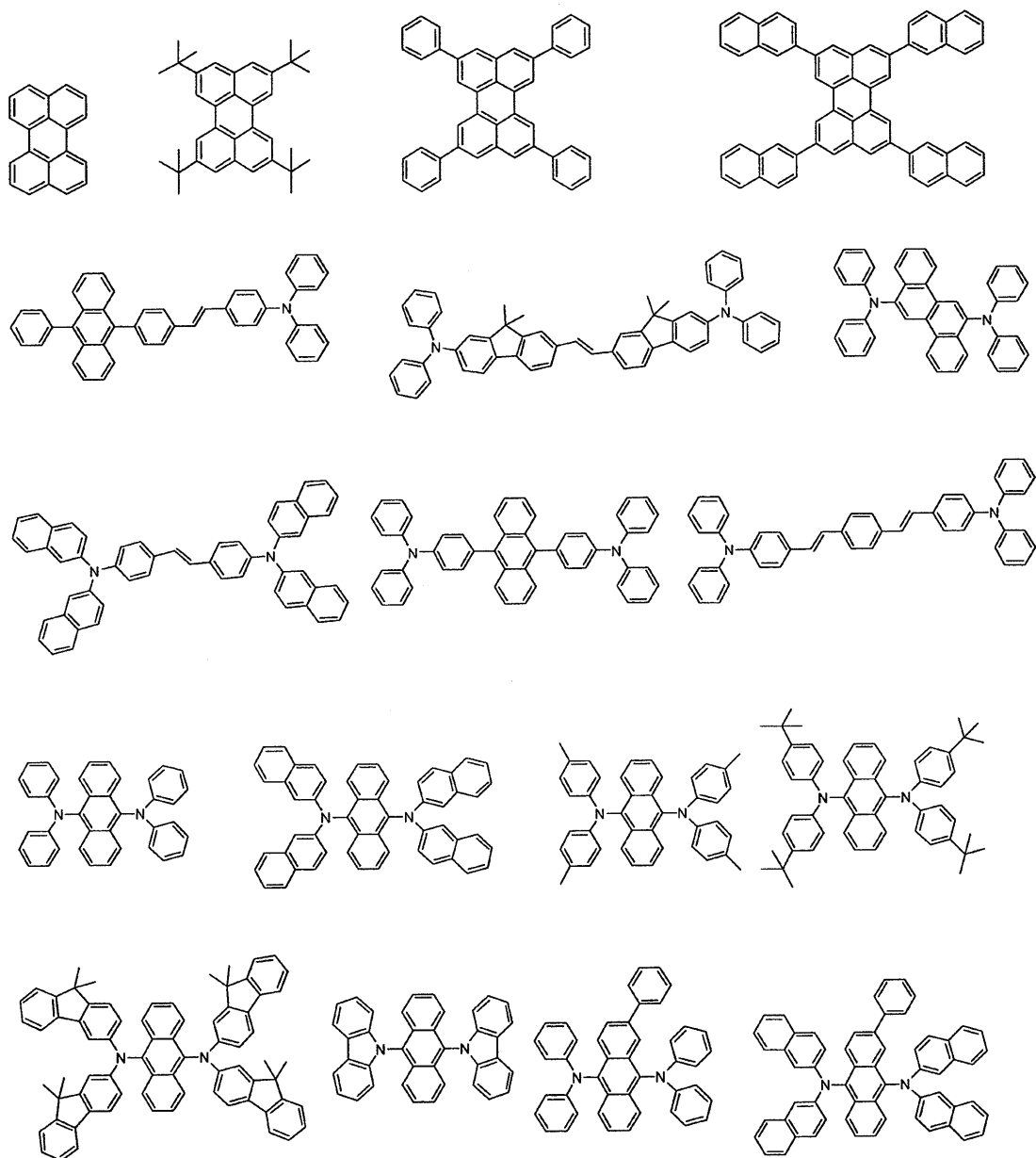
z は 0～4 の整数である。

【0109】

緑色または青色エレクトロルミネッセンスを有する有機化合物および有機金属化合物は、下記の化合物によってより具体的に例示することができるが、これらに限定されるわけではない。

【0110】

【化 4 0】



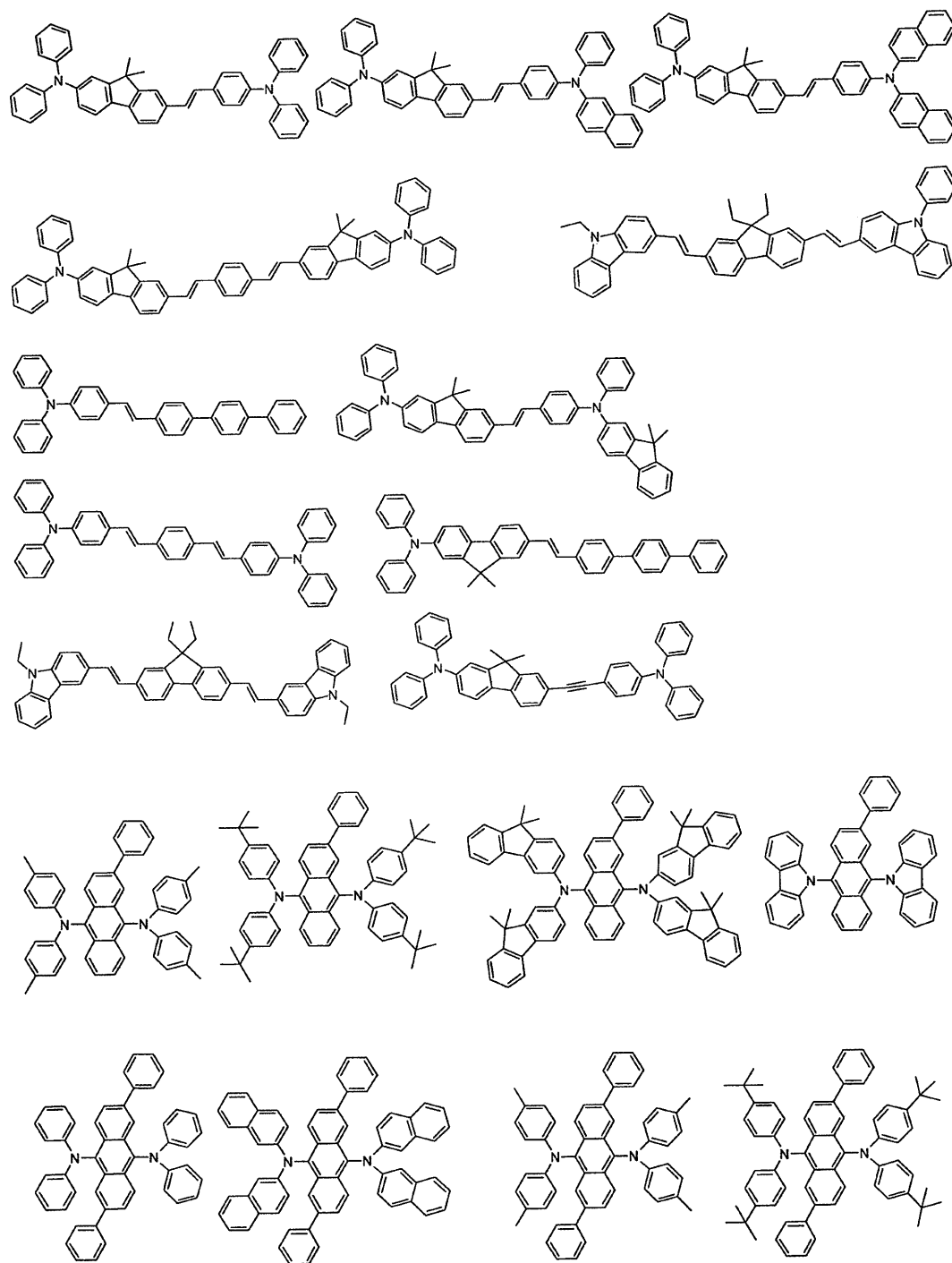
10

20

30

【 0 1 1 1】

【化 4 1】



10

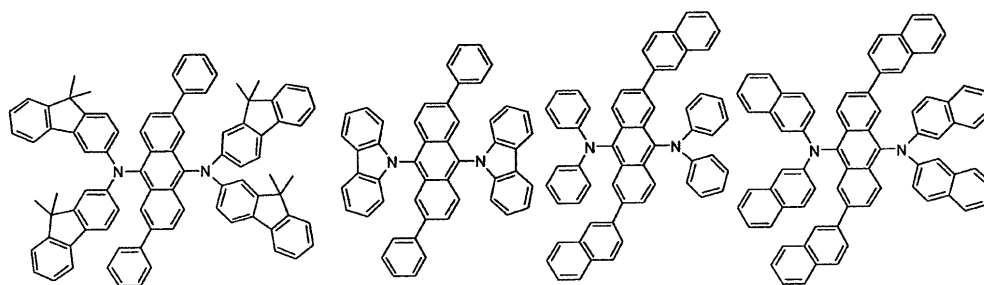
20

30

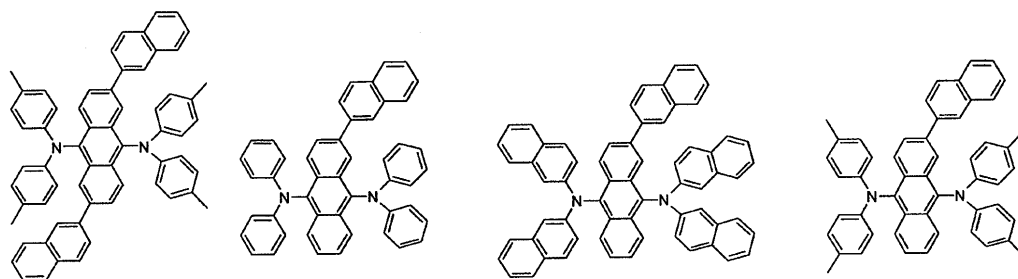
【 0 1 1 2】

40

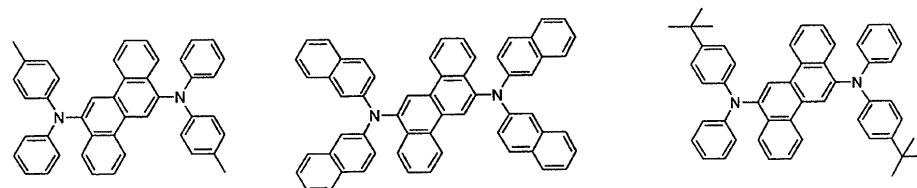
【化 4 2】



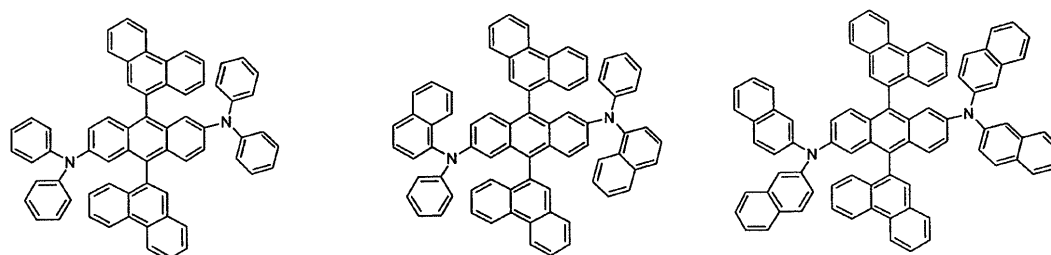
10



20

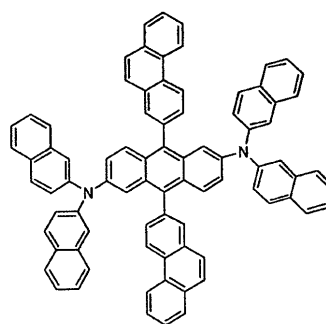
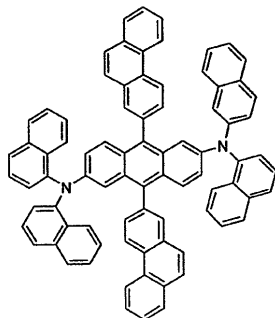
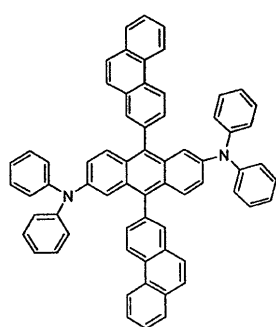


30

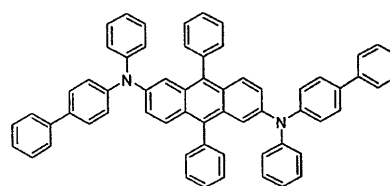
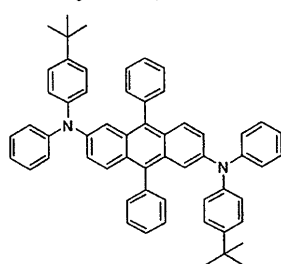
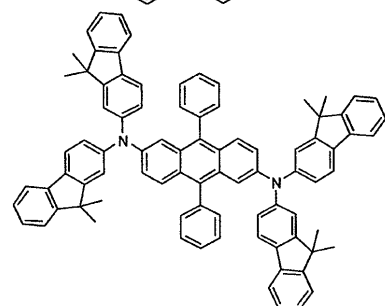
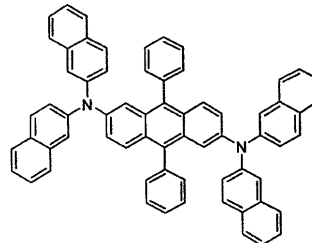
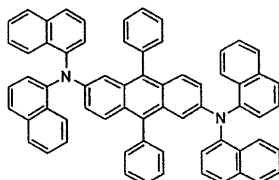
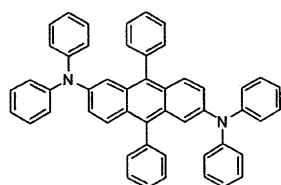


【 0 1 1 3 】

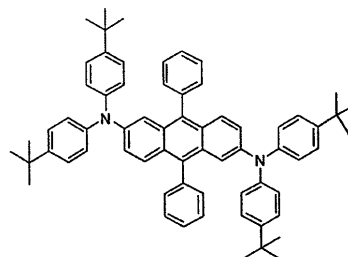
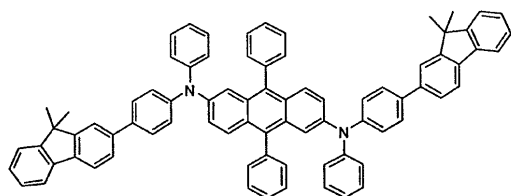
【化 4 3】



10



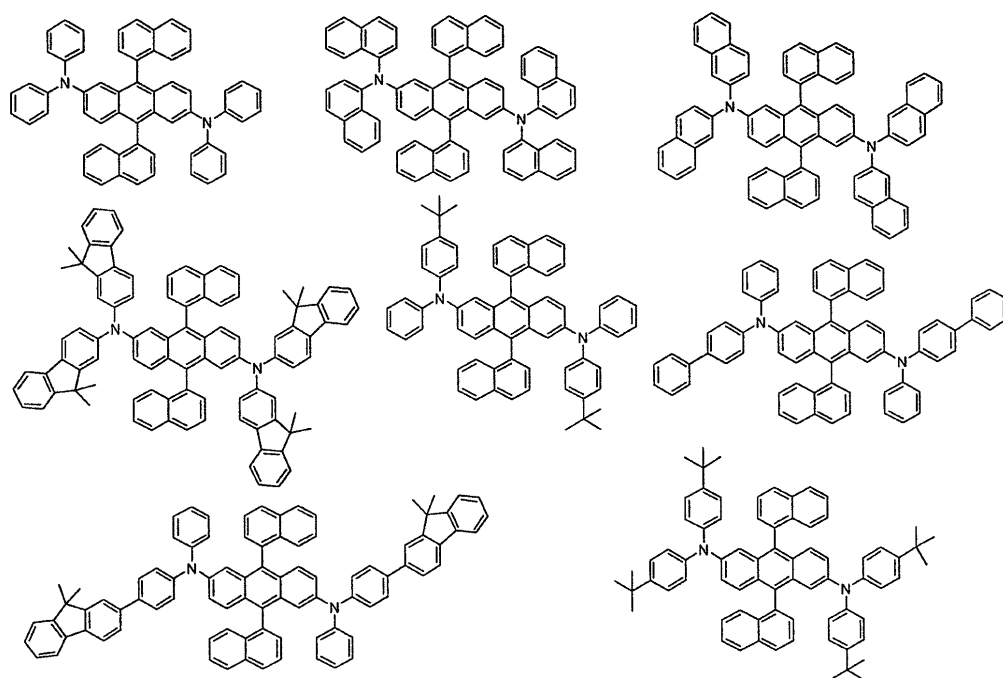
20



30

【 0 1 1 4 】

【化 4 4】

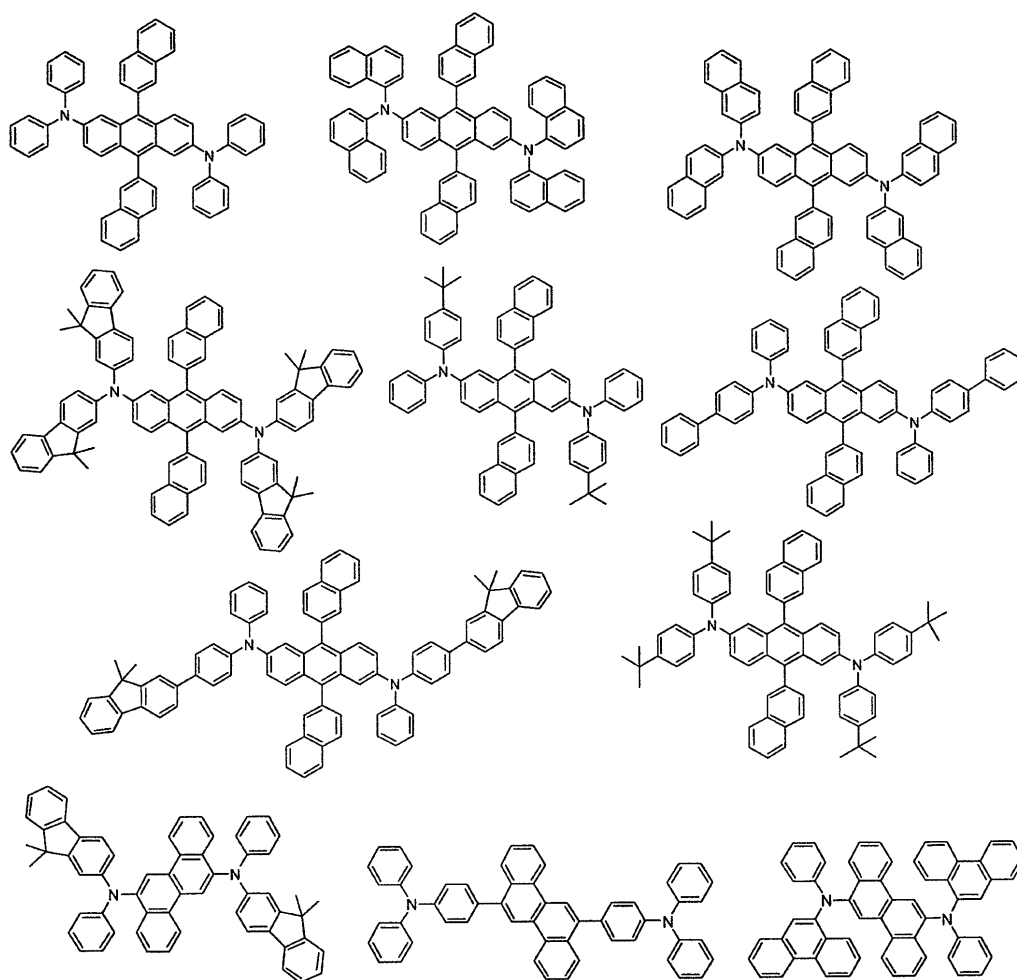


10

20

【 0 1 1 5】

【化 4 5】



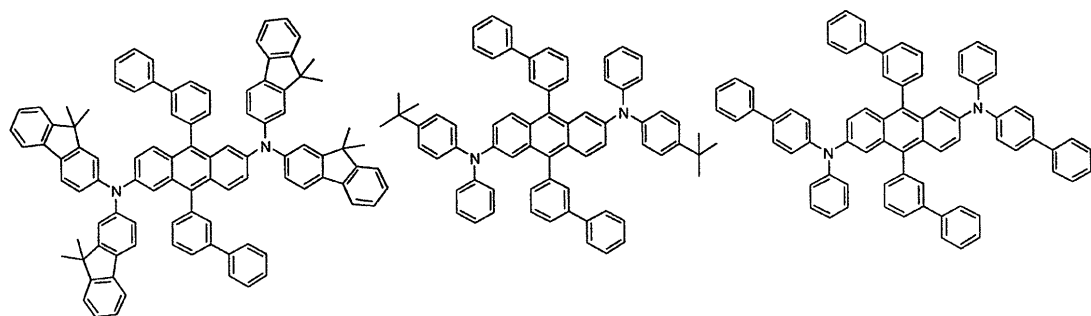
30

40

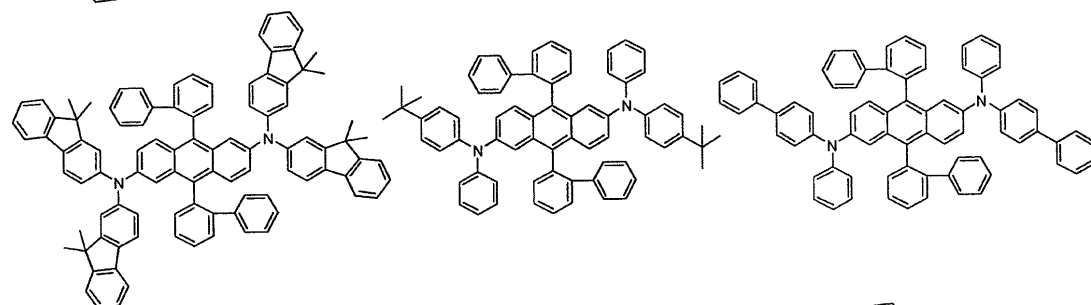
【 0 1 1 6】

50

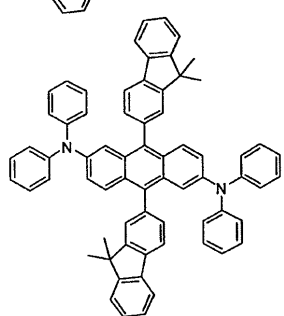
【化 4 6】



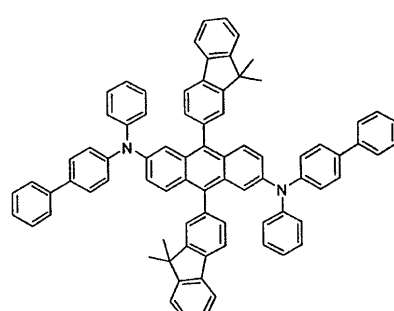
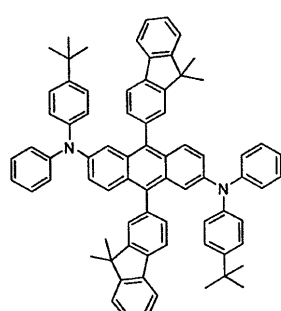
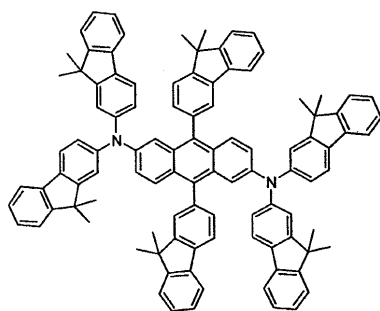
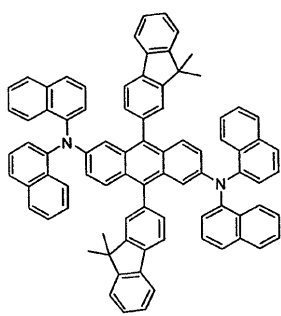
10



20

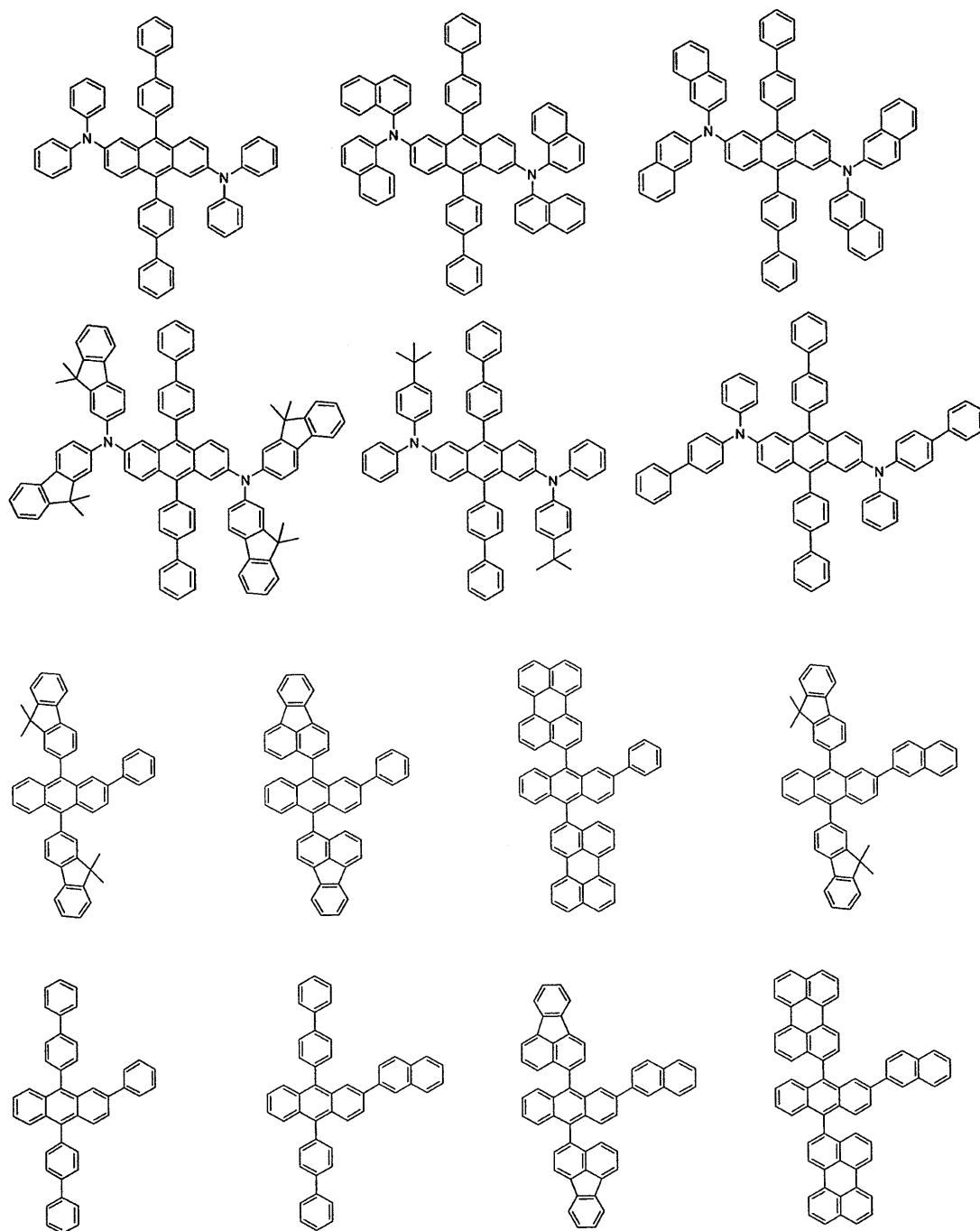


30



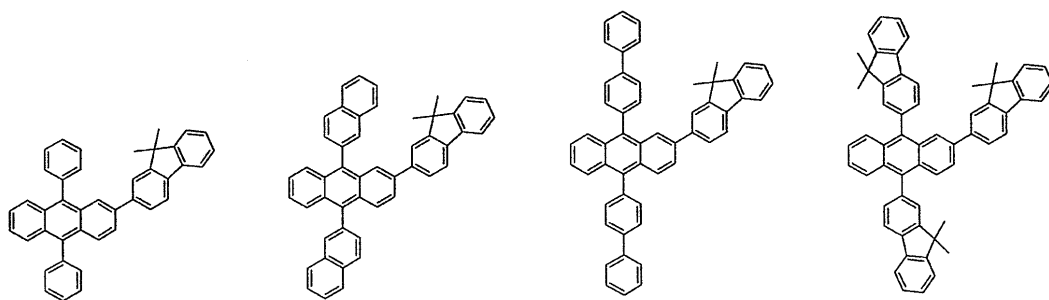
【 0 1 1 7 】

【化 4 7】

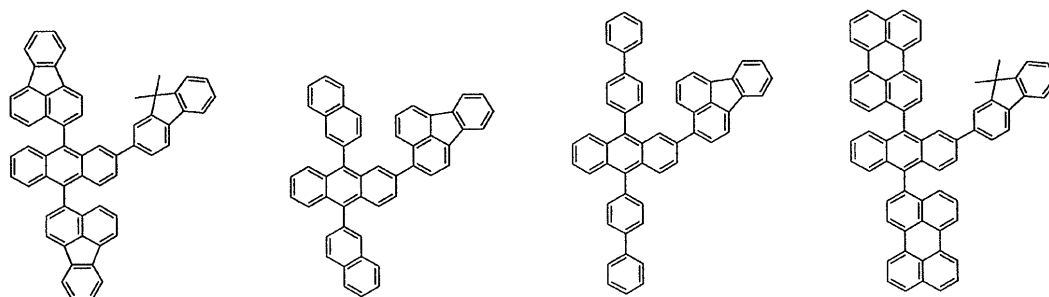


【 0 1 1 8 】

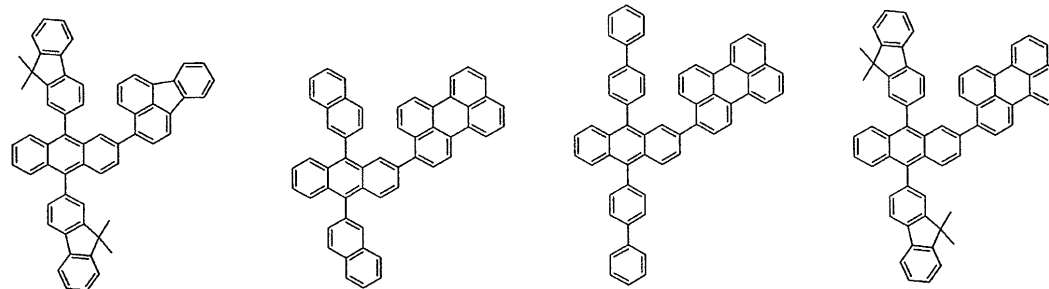
【化 4 8】



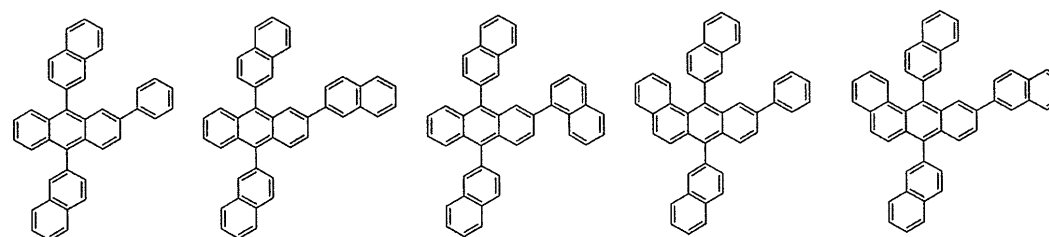
10



20

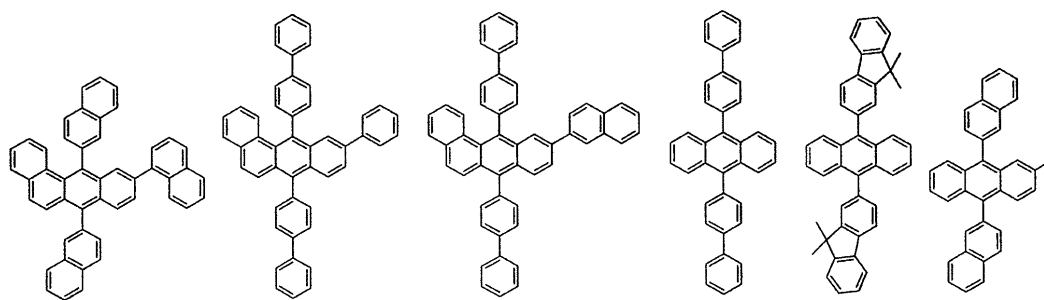


30

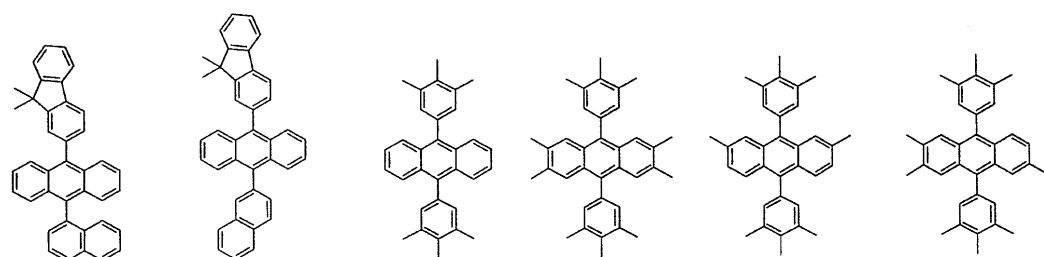
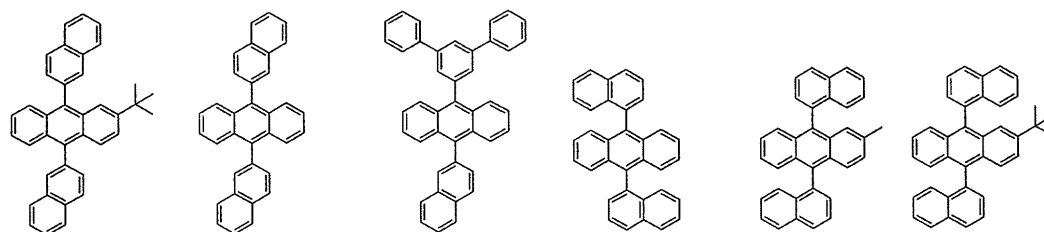


【 0 1 1 9】

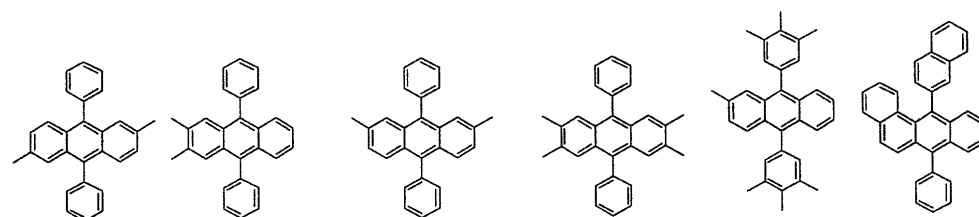
【化 4 9】



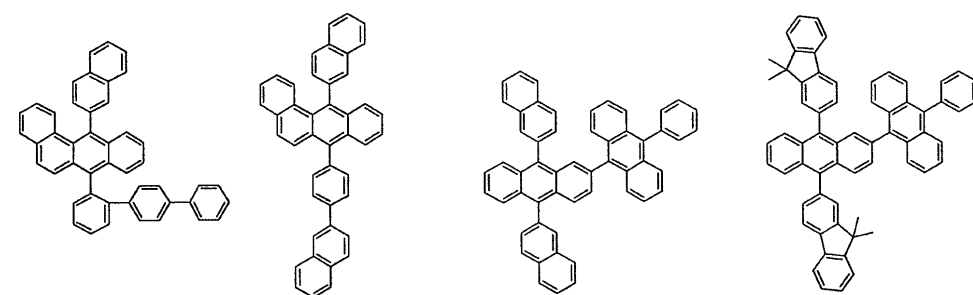
10



20



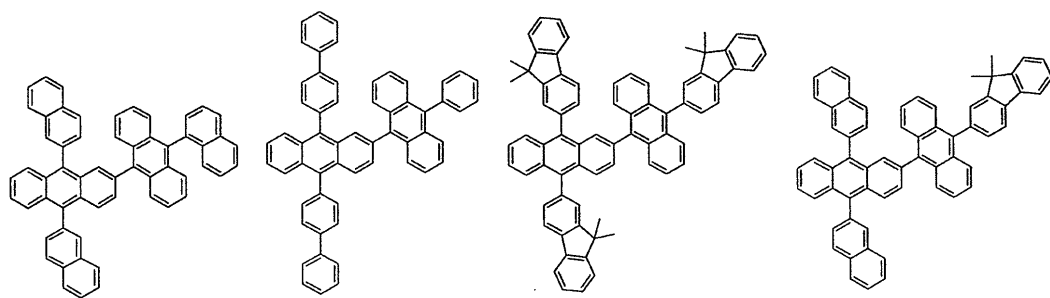
30



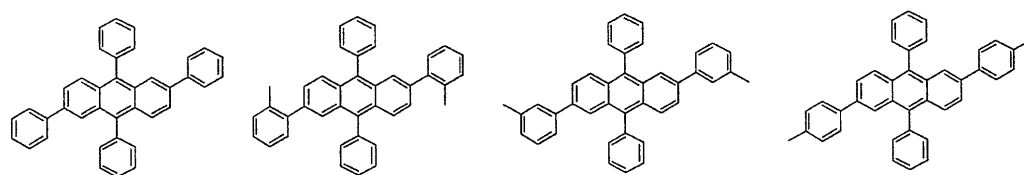
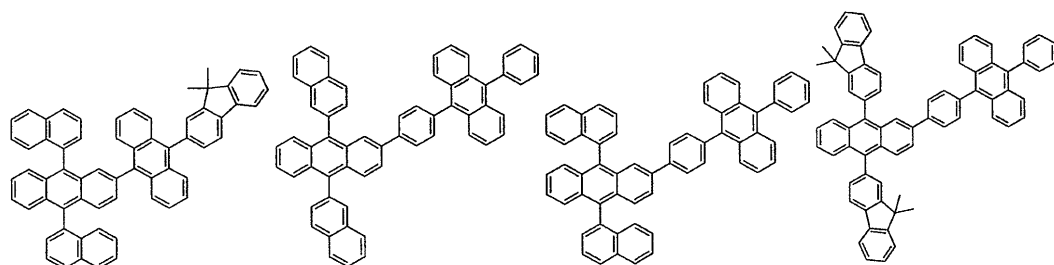
40

【 0 1 2 0 】

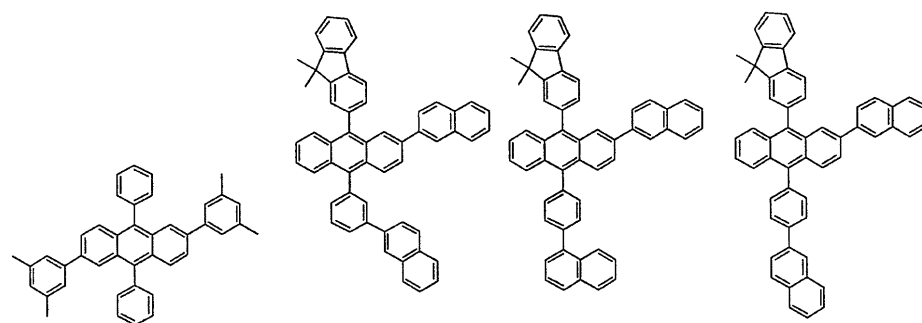
【化 5 0】



10



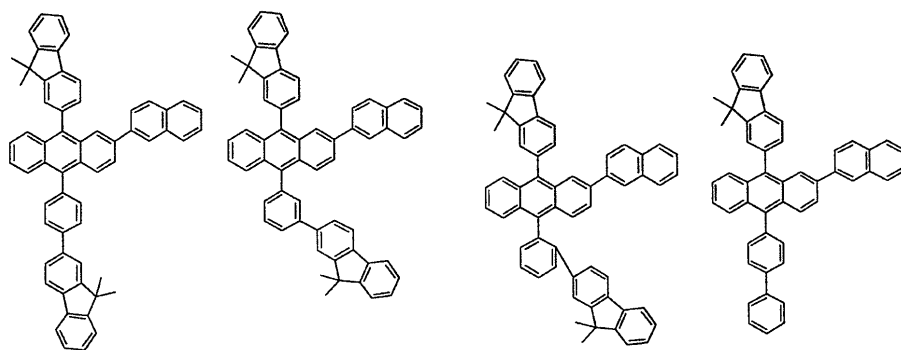
20



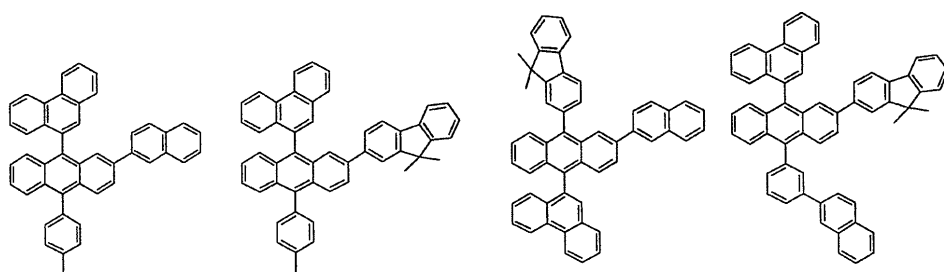
30

【 0 1 2 1】

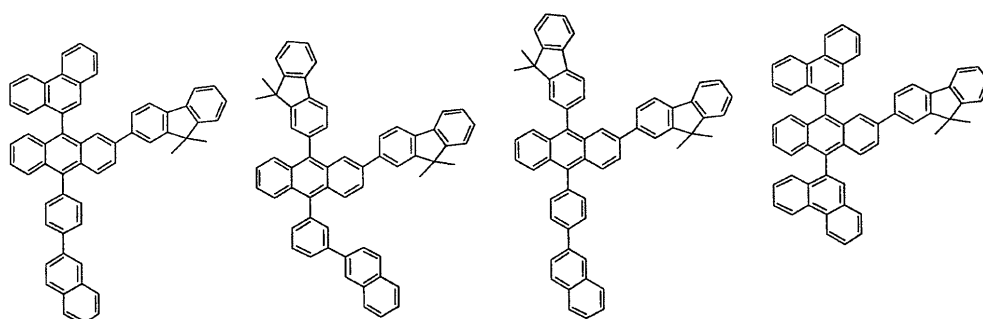
【化 5 1】



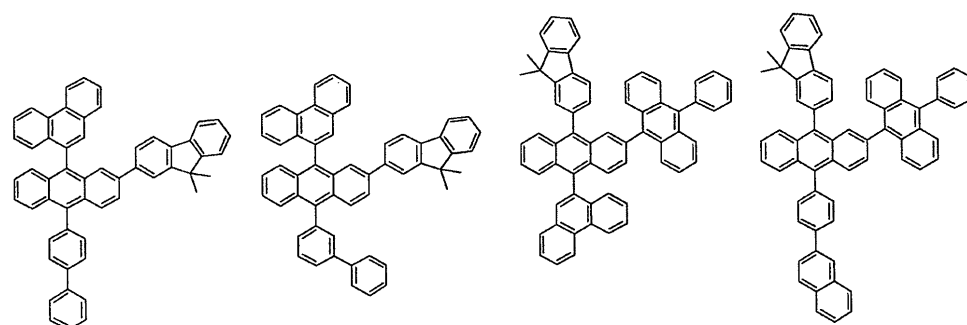
10



20



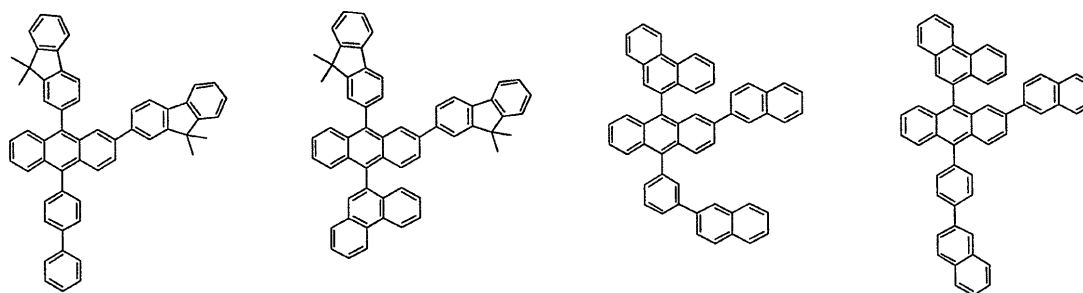
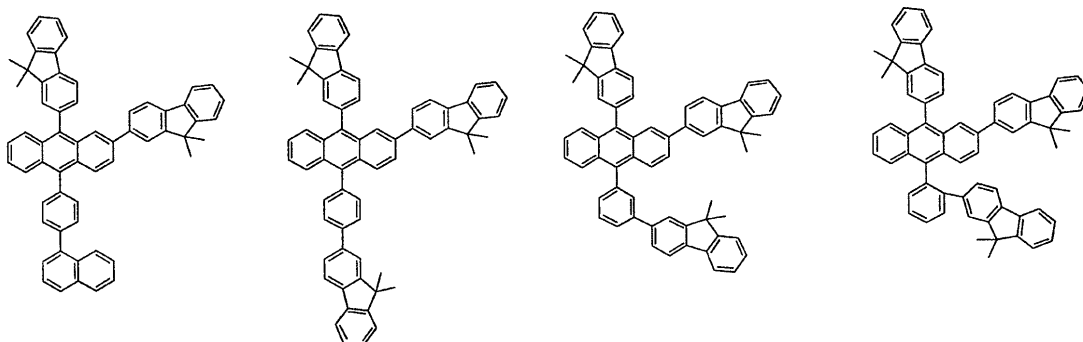
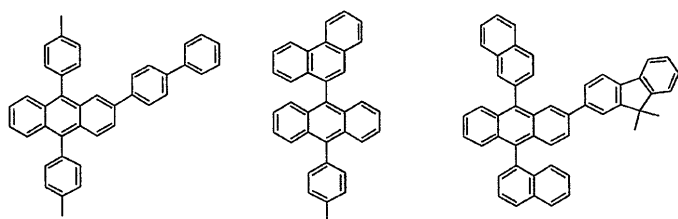
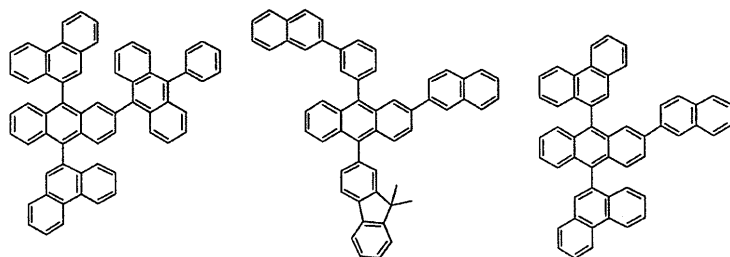
30



40

【 0 1 2 2】

【化 5 2】



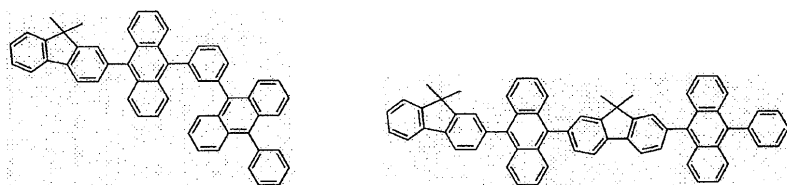
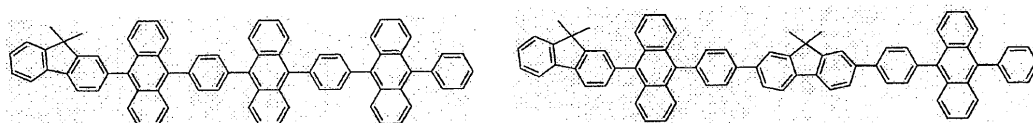
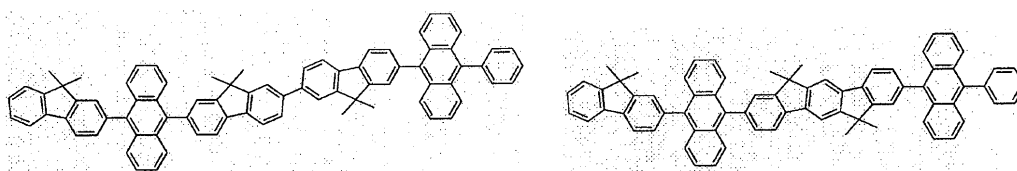
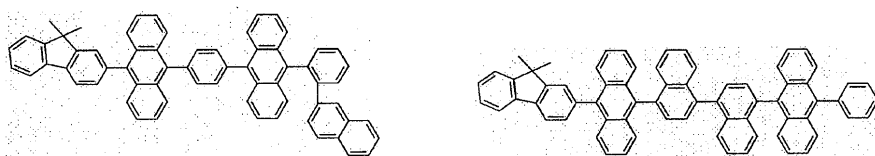
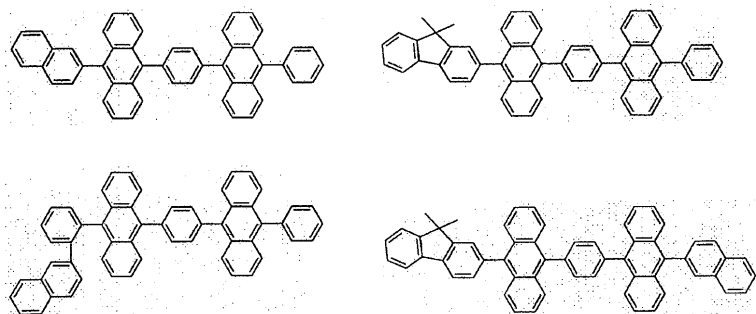
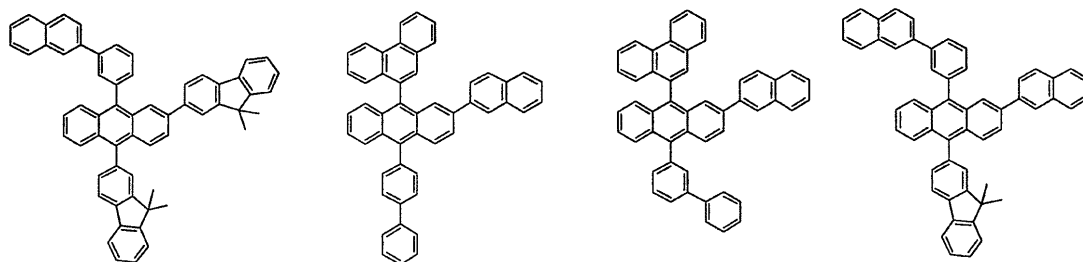
10

20

30

【 0 1 2 3 】

【化 5 3】



【 0 1 2 4】

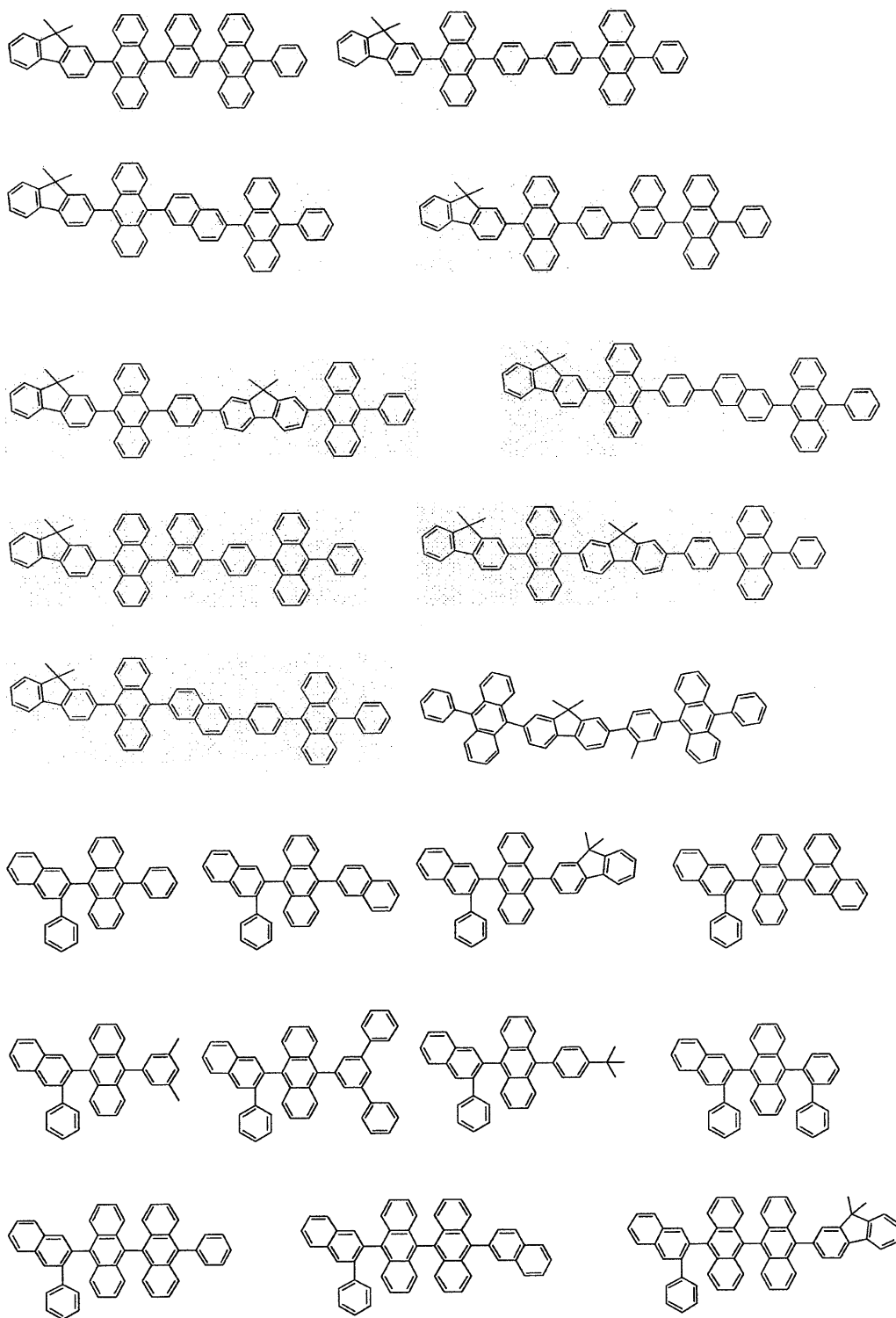
10

20

30

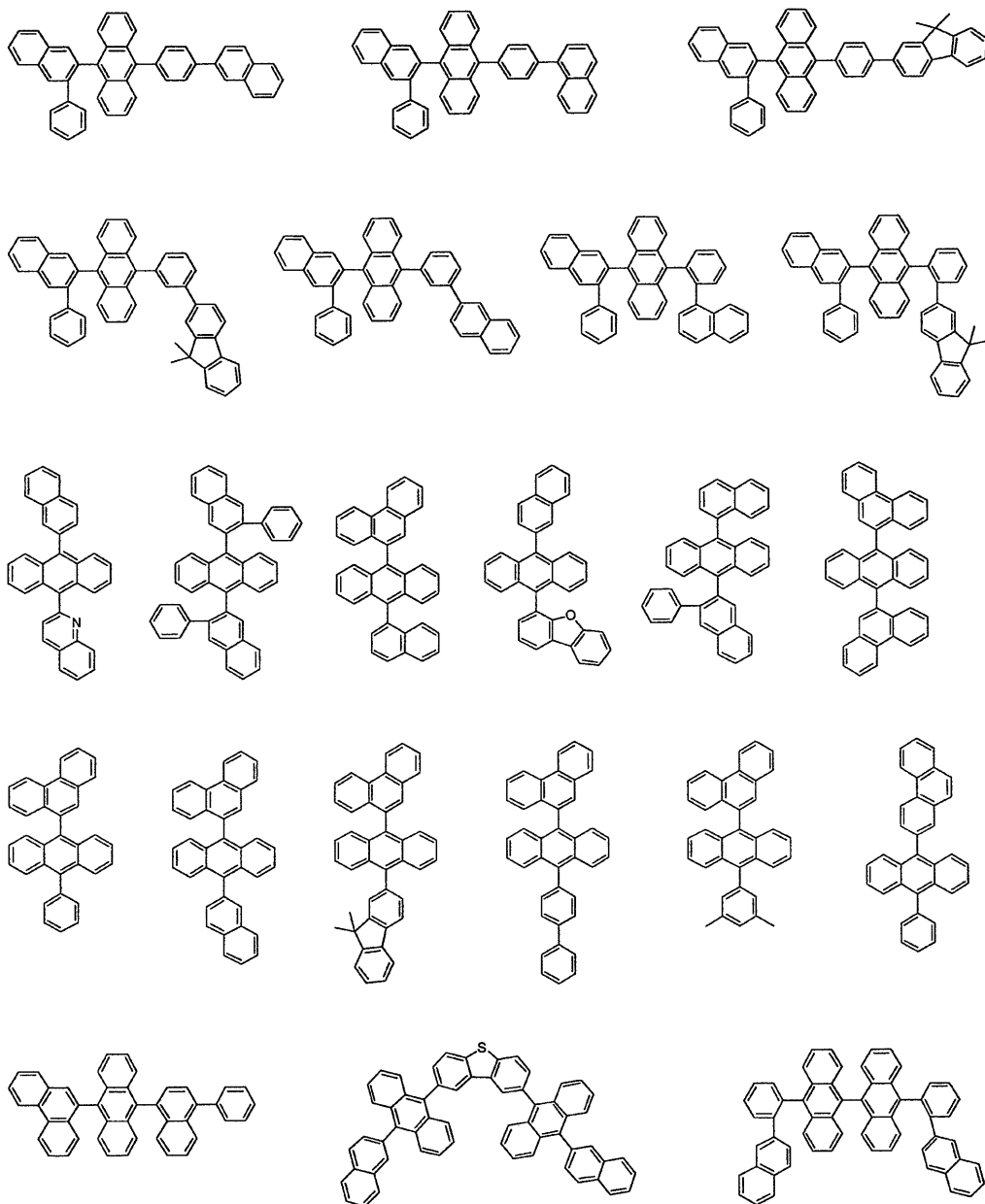
40

【化 5 4】



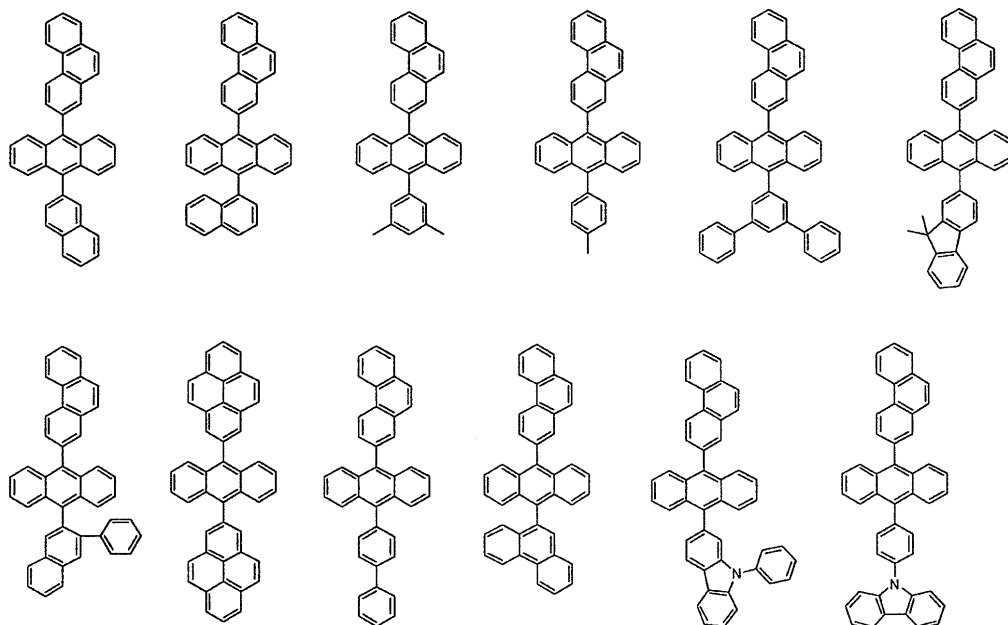
【 0 1 2 5 】

【化 5 5】



【 0 1 2 6 】

【化 5 6】



10

【0127】

20

本発明による有機エレクトロルミネッセンスデバイスにおいては、カルコゲニド層、金属ハロゲン化物層、および金属酸化物層から選択される1つ以上の層（以降、「表面層」と呼ぶ）を、電極の対の少なくとも1つの側の内面上に配置することが好ましい。特に、ケイ素およびアルミニウム金属（酸化物を含む）のカルコゲニド層をEL媒体層のアノード表面上に配置し、金属ハロゲン化物層または金属酸化物層をEL媒体層のカソード表面上に配置することが好ましい。それによって、動作安定性を得ることができる。

【0128】

カルコゲニドの例としては、好ましくは SiO_x （ $1 < x < 2$ ）、 AlO_x （ $1 < x < 1.5$ ）、 SiON 、 SiAlON 等が挙げられる。金属ハロゲン化物の例としては、好ましくは LiF 、 MgF_2 、 CaF_2 、ランタニドのフッ化物などが挙げられる。金属酸化物の例としては、好ましくは Cs_2O 、 Li_2O 、 MgO 、 SrO 、 BaO 、 CaO 等が挙げられる。

30

【0129】

本発明による有機エレクトロルミネッセンスデバイスにおいては、このように製造された電極の対の少なくとも1つの表面上に、電子輸送化合物と還元性ドーパントとの混合領域、または正孔輸送化合物と酸化性ドーパントとの混合領域を配置することも好ましい。したがって、電子輸送化合物は還元されて陰イオンになり、それによって混合領域からEL媒体への電子の注入および輸送が促進される。さらに、正孔輸送化合物は酸化されて陽イオンを形成するので、混合領域からEL媒体への正孔の注入および輸送が促進される。好ましい酸化性ドーパントとしては、種々のルイス酸およびアクセプター化合物が挙げられる。好ましい還元性ドーパントとしては、アルカリ金属、アルカリ金属化合物、アルカリ土類金属、希土類金属、およびそれらの混合物が挙げられる。

40

【0130】

従来のリン光材料よりも優れたEL特性および熱安定性を有する骨格を有する本発明による有機エレクトロルミネッセンス化合物は、従来の材料と比較して、より高い量子効率およびより低い動作電圧が得られる。したがって、本発明による有機エレクトロルミネッセンス化合物をOLEDパネルに使用すると、中型から大型のOLEDの開発において、さらに向上された結果が期待される。この化合物が高効率の材料として有機太陽電池に使用されると、従来の材料と比較して、より優れた特性が期待される。

【0131】

50

本発明の代表的化合物に言及することによって、本発明による化合物、その調製方法、およびそれより製造されたデバイスのエレクトロルミネッセンス特性に関して本発明をさらに説明するが、これらは単に実施態様の事例として提供するものであって、本発明の限定を意図したものでは決していない。

【実施例】

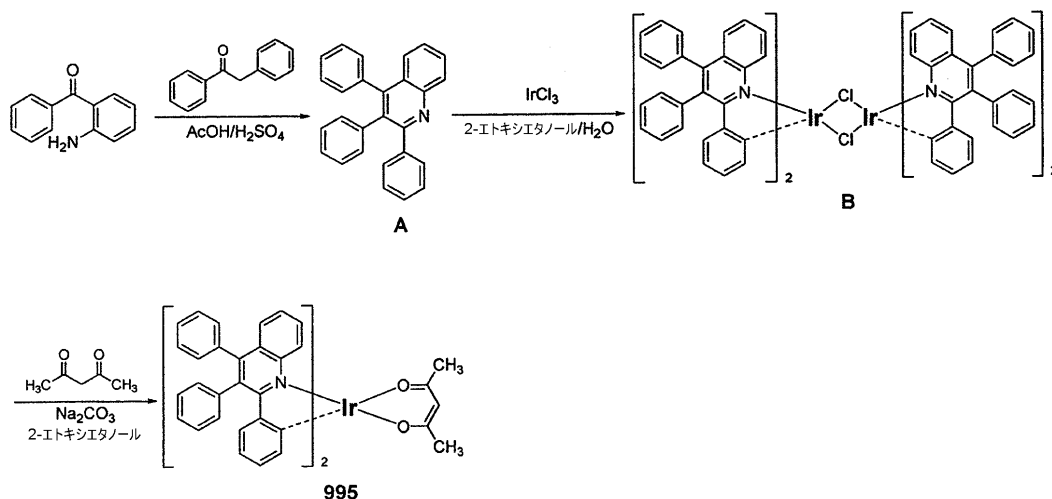
【0132】

調製実施例

調製実施例 1 化合物(995)の調製

【0133】

【化57】



10

20

【0134】

化合物(A)の調製

反応容器中に、2-アミノベンゾフェノン(10.0g、50.7mmol)、1-フェニルアセトフェノン(9.0g、50.7mmol)、酢酸(169mL)、および硫酸(10滴)を投入し、その混合物をアルゴン雰囲気存在下で還流しながら撹拌した。反応終了後、反応混合物を室温まで冷却し、過剰量の水酸化アンモニウム水溶液を反応混合物に加えた。生成した固体を濾過し、蒸留水で洗浄した。この固体をカラムクロマトグラフィーで精製して、化合物(A)(12.5g、69%)を得た。

30

【0135】

化合物(B)の調製

化合物(A)(9.0g、25.2mmol)および塩化イリジウム(3.4g、11.5mmol)を2-エトキシエタノール(38mL)および蒸留水(13mL)の中に溶解させ、この溶液を還流下で24時間撹拌した。反応が完結したときに、反応混合物を室温まで冷却した。生成した固体を濾過し、乾燥させて、化合物(B)(6.9g、100%)を得た。

【0136】

化合物(995)の調製

化合物(B)(6.9g、5.9mmol)、2,4-ペンタンジオン(1.2g、11.7mmol)、および炭酸ナトリウム(3.1g、29.4mmol)を2-エトキシエタノール(100mL)の中に溶解させ、この溶液を4時間加熱した。反応が完結したときに、反応混合物を室温まで冷却し、生成した固体沈殿物を濾過した。シリカゲルカラムクロマトグラフィーおよび再結晶により精製して、化合物(995)(4.2g、36%)を赤色結晶として得た。

【0137】

調製実施例1と同じ手順により、表1中の有機エレクトロルミネッセンス化合物(化合物1~化合物1009)を調製した。それらの¹H NMRおよびMS/FABのデータ

40

50

は表 2 に示されている。

【 0 1 3 8 】

【 表 1 】

表 1

化合物 番号	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	R ₅	R ₆	R ₇ R ₈	L	n
1	H	H	H	H					2
2	H	H	H	H					2
3	H	H	H	H					2
4	H	H	H	H					2
5	H	H	H	H					2
6	H	H	H	H					2
7	H	H	H	H					2
8	H	H	H	H					2
9	H	H	H	H					2

10

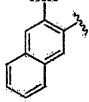
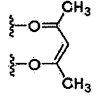
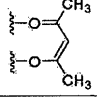
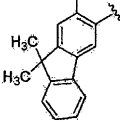
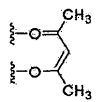
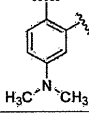
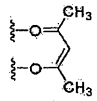
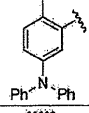
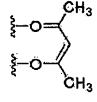
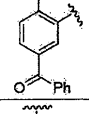
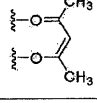
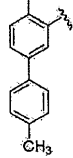
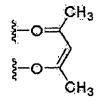
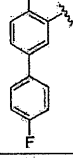
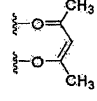
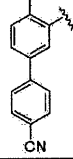
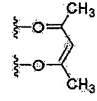
20

30

【 0 1 3 9 】

【表 2】

表1の続き

10	H	H	H	H					2
11	H	H	H	H					2
12	H	H	H	H					2
13	H	H	H	H					2
14	H	H	H	H					2
15	H	H	H	H					2
16	H	H	H	H					2
17	H	H	H	H					2
18	H	H	H	H					2

10

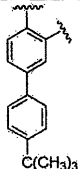
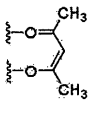
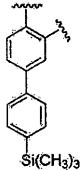
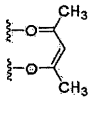
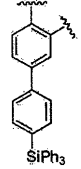
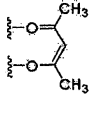
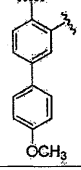
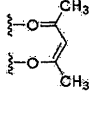
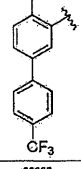
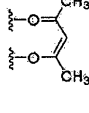
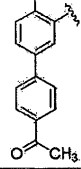
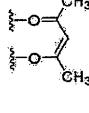
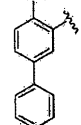
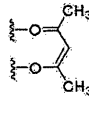
20

30

【 0 1 4 0 】

【表 3】

表1の続き

19	H	H	H	H					2
20	H	H	H	H					2
21	H	H	H	H					2
22	H	H	H	H					2
23	H	H	H	H					2
24	H	H	H	H					2
25	H	H	H	H					2

10

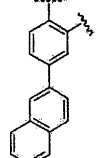
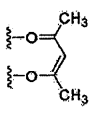
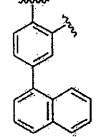
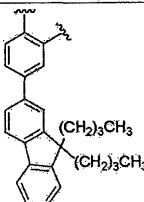
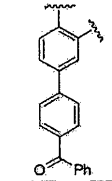
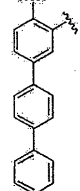
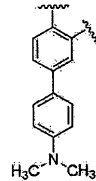
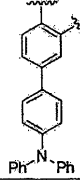
20

30

【 0 1 4 1 】

【表 4】

表1の続き

26	H	H	H	H					2
27	H	H	H	H					2
28	H	H	H	H					2
29	H	H	H	H					2
30	H	H	H	H					2
31	H	H	H	H					2
32	H	H	H	H					2

10

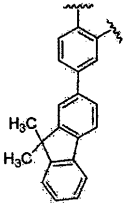
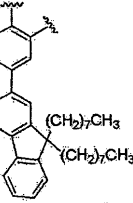
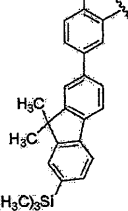
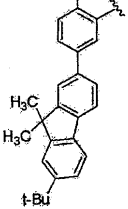
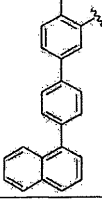
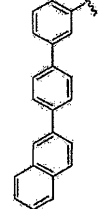
20

30

【 0 1 4 2 】

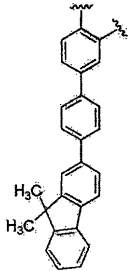
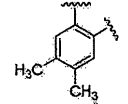
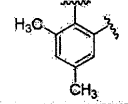
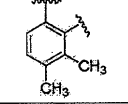
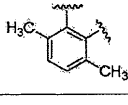
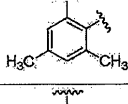
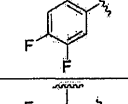
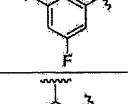
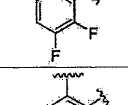
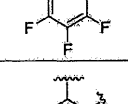
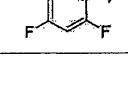
【表 5】

表1の続き

33	H	H	H	H					2
34	H	H	H	H					2
35	H	H	H	H					2
36	H	H	H	H					2
37	H	H	H	H					2
38	H	H	H	H					2

【表 6】

表1の続き

39	H	H	H	H					2
40	H	H	H	H					2
41	H	H	H	H					2
42	H	H	H	H					2
43	H	H	H	H					2
44	H	H	H	H					2
45	H	H	H	H					2
46	H	H	H	H					2
47	H	H	H	H					2
48	H	H	H	H					2
49	H	H	H	H					2

【表 7】

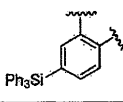
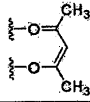
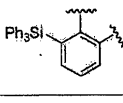
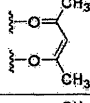
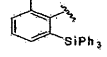
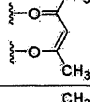
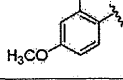
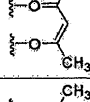
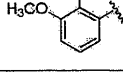
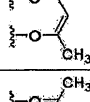
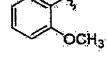
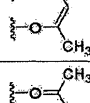
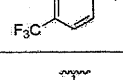
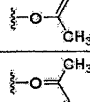
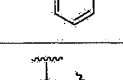
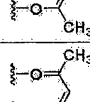
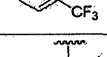
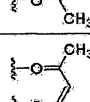
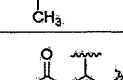
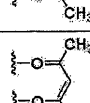
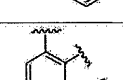
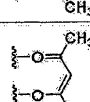
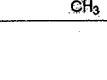
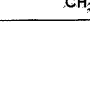
表1の続き

50	H	H	H	H					2
51	H	H	H	H					2
52	H	H	H	H					2
53	H	H	H	H					2
54	H	H	H	H					2
55	H	H	H	H					2
56	H	H	H	H					2
57	H	H	H	H					2
58	H	H	H	H					2
59	H	H	H	H					2
60	H	H	H	H					2
61	H	H	H	H					2
62	H	H	H	H					2

【 0 1 4 5 】

【表 8】

表1の続き

63	H	H	H	H					2
64	H	H	H	H					2
65	H	H	H	H					2
66	H	H	H	H					2
67	H	H	H	H					2
68	H	H	H	H					2
69	H	H	H	H					2
70	H	H	H	H					2
71	H	H	H	H					2
72	H	H	H	H					2
73	H	H	H	H					2
74	H	H	H	H					2

10

20

30

【 0 1 4 6 】

【表 9】

表1の続き

75	H	H	H	H				2
76	H	H	H	H				2
77	H	H	H	H				2
78	H	H	H	H				2
79	H	H	H	H				2
80	H	H	H	H				2
81	H	H	H	H				2
82	H	H	H	H				2
83	H	H	H	H				2
84	H	H	H	H				2
85	H	H	H	H				2
86	H	H	H	H				2

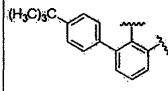
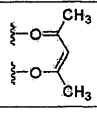
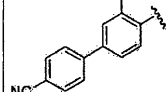
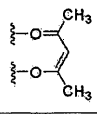
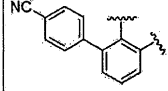
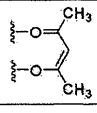
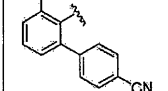
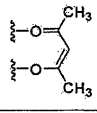
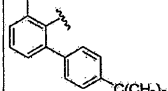
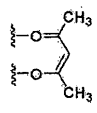
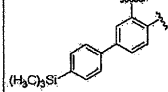
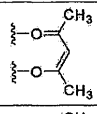
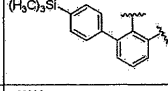
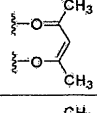
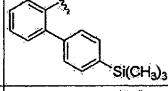
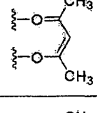
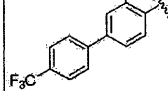
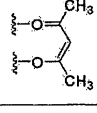
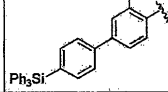
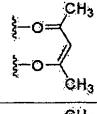
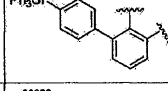
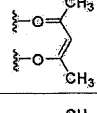
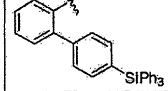
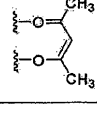
10

20

30

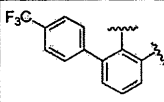
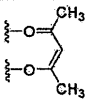
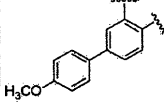
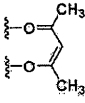
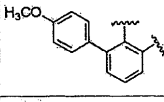
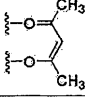
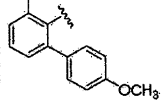
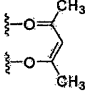
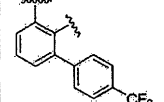
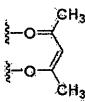
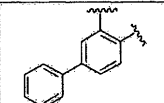
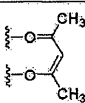
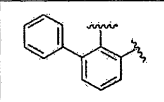
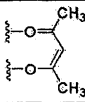
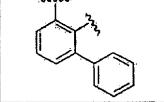
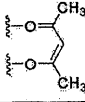
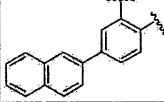
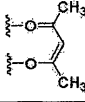
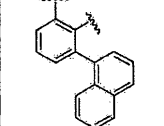
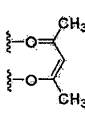
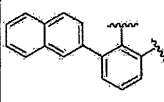
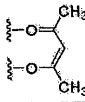
【表 10】

表1の続き

87	H	H	H	H					2
88	H	H	H	H					2
89	H	H	H	H					2
90	H	H	H	H					2
91	H	H	H	H					2
92	H	H	H	H					2
93	H	H	H	H					2
94	H	H	H	H					2
95	H	H	H	H					2
96	H	H	H	H					2
97	H	H	H	H					2
98	H	H	H	H					2

【表 1 1】

表1の続き

99	H	H	H	H					2
100	H	H	H	H					2
101	H	H	H	H					2
102	H	H	H	H					2
103	H	H	H	H					2
104	H	H	H	H					2
105	H	H	H	H					2
106	H	H	H	H					2
107	H	H	H	H					2
108	H	H	H	H					2
109	H	H	H	H					2

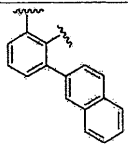
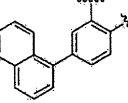
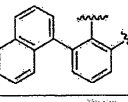
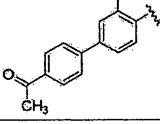
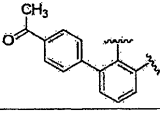
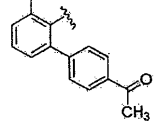
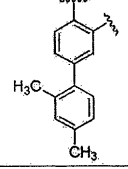
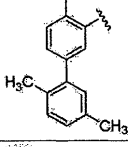
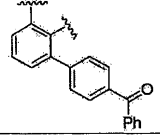
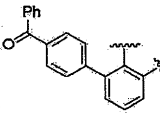
10

20

30

【表 1 2】

表1の続き

110	H	H	H	H					2
111	H	H	H	H					2
112	H	H	H	H					2
113	H	H	H	H					2
114	H	H	H	H					2
115	H	H	H	H					2
116	H	H	H	H					2
117	H	H	H	H					2
118	H	H	H	H					2
119	H	H	H	H					2

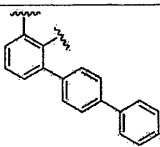
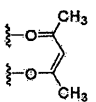
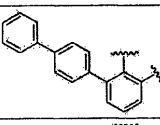
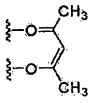
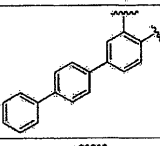
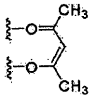
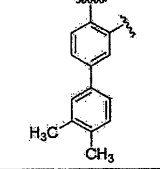
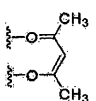
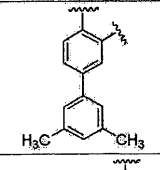
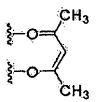
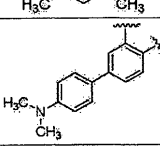
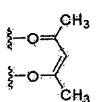
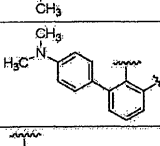
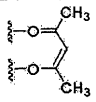
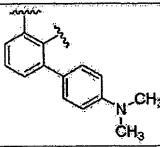
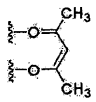
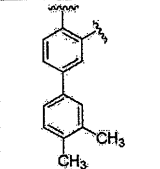
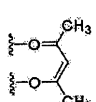
10

20

30

【表 1 3】

表1の続き

120	H	H	H	H					2
121	H	H	H	H					2
122	H	H	H	H					2
123	H	H	H	H					2
124	H	H	H	H					2
125	H	H	H	H					2
126	H	H	H	H					2
127	H	H	H	H					2
128	H	H	H	H					2

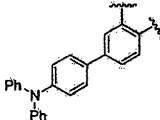
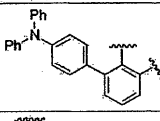
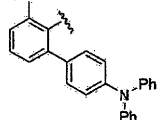
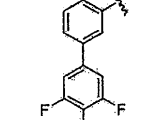
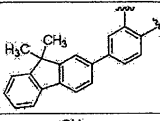
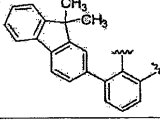
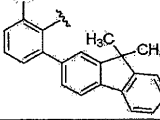
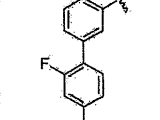
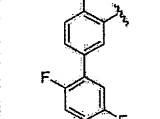
10

20

30

【表 1 4】

表1の続き

129	H	H	H	H					2
130	H	H	H	H					2
131	H	H	H	H					2
132	H	H	H	H					2
133	H	H	H	H					2
134	H	H	H	H					2
135	H	H	H	H					2
136	H	H	H	H					2
137	H	H	H	H					2

10

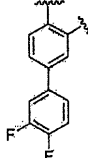
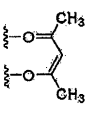
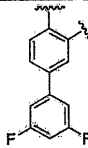
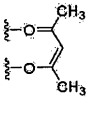
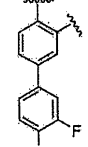
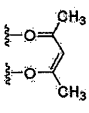
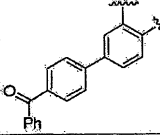
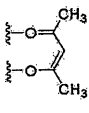
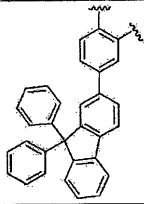
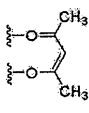
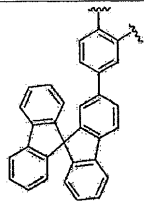
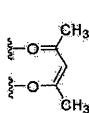
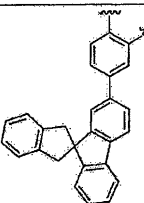
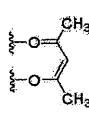
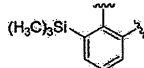
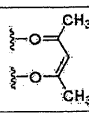
20

30

【 0 1 5 2 】

【表 15】

表1の続き

138	H	H	H	H					2
139	H	H	H	H					2
140	H	H	H	H					2
141	H	H	H	H					2
142	H	H	H	H					2
143	H	H	H	H					2
144	H	H	H	H					2
145	H	H	H	H					2

10

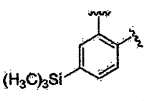
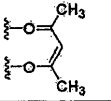
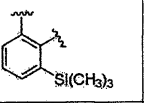
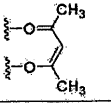
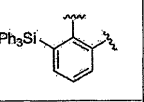
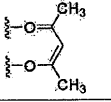
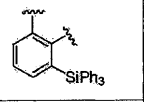
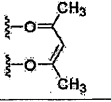
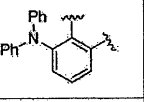
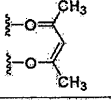
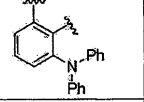
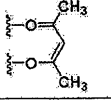
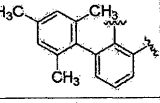
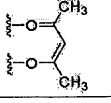
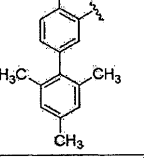
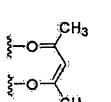
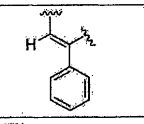
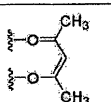
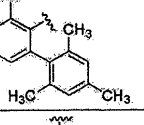
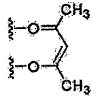
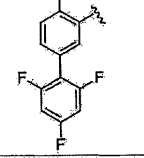
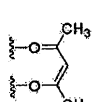
20

30

40

【表 16】

表1の続き

146	H	H	H	H					2
147	H	H	H	H					2
148	H	H	H	H					2
149	H	H	H	H					2
150	H	H	H	H					2
151	H	H	H	H					2
152	H	H	H	H					2
153	H	H	H	H					2
154	H	H	H	H					2
155	H	H	H	H					2
156	H	H	H	H					2

10

20

30

【 0 1 5 4 】

【表 17】

表1の続き

157	H	H	H	H					2
158	H	H	H	H					2
159	H	H	H	H					2
160	H	H	H	H					2
161	H	H	H	H					2
162	H	H	H	H					2
163	H	H	H	H					2
164	H	H	H	H					2
165	H	H	H	H					2
166	H	H	H	H					2
167	H	H	H	H					2

【 0 1 5 5 】

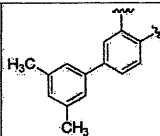
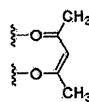
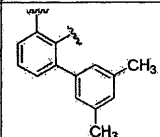
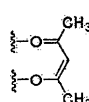
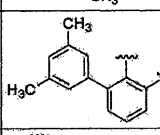
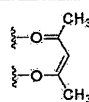
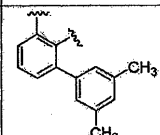
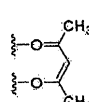
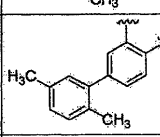
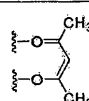
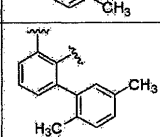
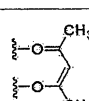
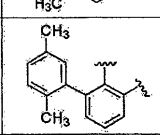
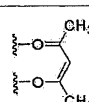
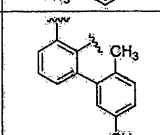
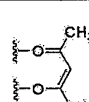
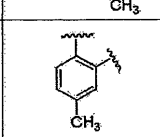
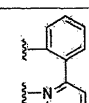
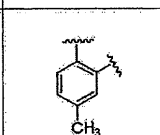
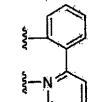
10

20

30

【表 18】

表1の続き

168	H	H	H	H					2
169	H	H	H	H					2
170	H	H	H	H					2
171	H	H	H	H					2
172	H	H	H	H					2
173	H	H	H	H					2
174	H	H	H	H					2
175	H	H	H	H					2
176	H	H	H	H					2
177	H	H	H	H					2

10

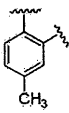
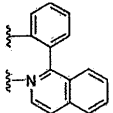
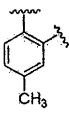
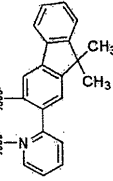
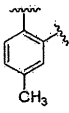
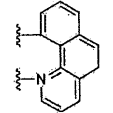
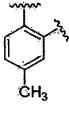
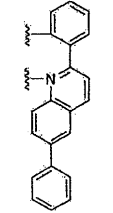
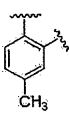
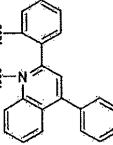
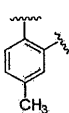
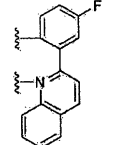
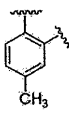
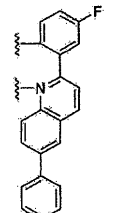
20

30

【 0 1 5 6 】

【表 19】

表1の続き

178	H	H	H	H					2
179	H	H	H	H					2
180	H	H	H	H					2
181	H	H	H	H					2
182	H	H	H	H					2
183	H	H	H	H					2
184	H	H	H	H					2

10

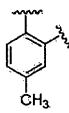
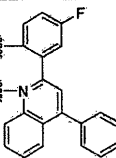
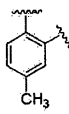
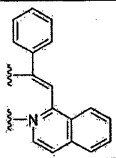
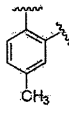
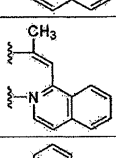
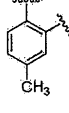
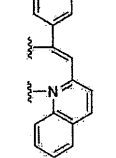
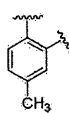
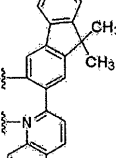
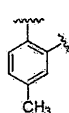
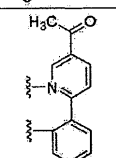
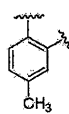
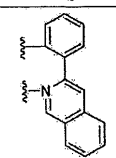
20

30

【 0 1 5 7 】

【表 20】

表1の続き

185	H	H	H	H					2
186	H	H	H	H					2
187	H	H	H	H					2
188	H	H	H	H					2
189	H	H	H	H					2
190	H	H	H	H					2
191	H	H	H	H					2

10

20

30

【表 2 1】

表1の続き

192	H	H	H	H					2
193	H	H	H	H					2
194	H	H	H	H					2
195	H	H	H	H					2
196	H	H	H	H					2
197	H	H	H	H					1
198	H	H	H	H				—	3
199	H	H	H	H					2
200	H	H	H	H					2
201	H	H	H	H					2

【 0 1 5 9 】

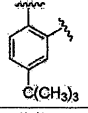
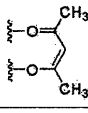
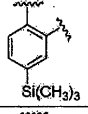
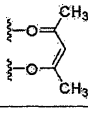
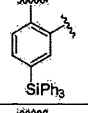
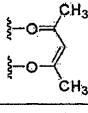
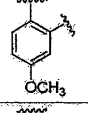
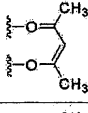
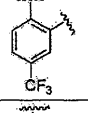
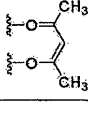
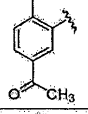
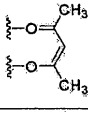
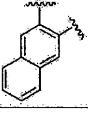
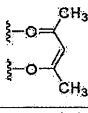
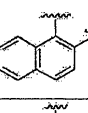
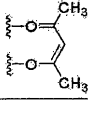
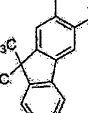
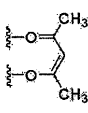
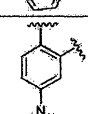
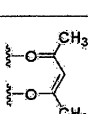
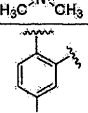
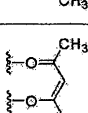
10

20

30

【表 2 2】

表1の続き

202	H	H	H	H					2
203	H	H	H	H					2
204	H	H	H	H					2
205	H	H	H	H					2
206	H	H	H	H					2
207	H	H	H	H					2
208	H	H	H	H					2
209	H	H	H	H					2
210	H	H	H	H					2
211	H	H	H	H					2
212	H	H	H	H					2

10

20

30

【表 2 3】

表1の続き

213	H	H	H	H					2
214	H	H	H	H					2
215	H	H	H	H					2
216	H	H	H	H					2
217	H	H	H	H					2
218	H	H	H	H					2
219	H	H	H	H					2
220	H	H	H	H					2

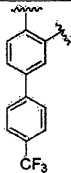
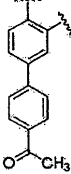
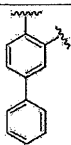
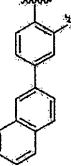
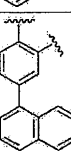
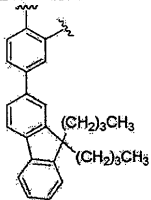
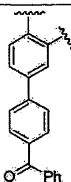
10

20

30

【表 2 4】

表1の続き

221	H	H	H	H					2
222	H	H	H	H					2
223	H	H	H	H					2
224	H	H	H	H					2
225	H	H	H	H					2
226	H	H	H	H					2
227	H	H	H	H					2

10

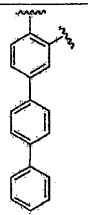
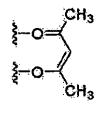
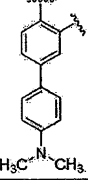
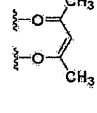
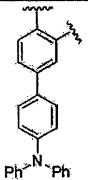
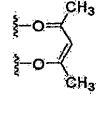
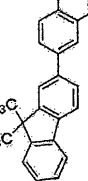
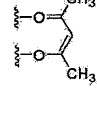
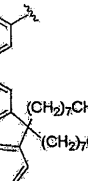
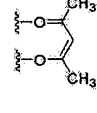
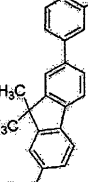
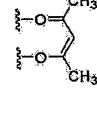
20

30

【 0 1 6 2 】

【表 2 5】

表1の続き

228	H	H	H	H					2
229	H	H	H	H					2
230	H	H	H	H					2
231	H	H	H	H					2
232	H	H	H	H					2
233	H	H	H	H					2

10

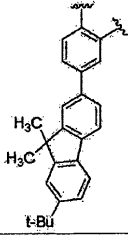
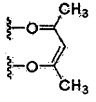
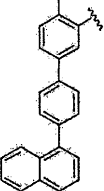
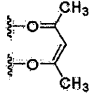
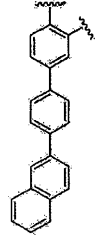
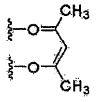
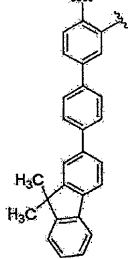
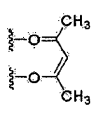
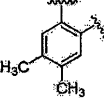
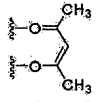
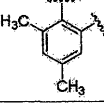
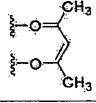
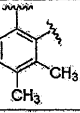
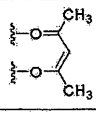
20

30

【 0 1 6 3 】

【表 2 6】

表1の続き

234	H	H	H	H					2
235	H	H	H	H					2
236	H	H	H	H					2
237	H	H	H	H					2
238	H	H	H	H					2
239	H	H	H	H					2
240	H	H	H	H					2

【 0 1 6 4 】

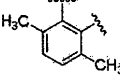
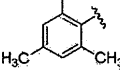
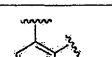
10

20

30

【表 27】

表1の続き

241	H	H	H	H					2
242	H	H	H	H					2
243	H	H	H	H					2
244	H	H	H	H					2
245	H	H	H	H					2
246	H	H	H	H					2
247	H	H	H	H					2
248	H	H	H	H					2
249	H	H	H	H					2
250	H	H	H	H					2
251	H	H	H	H					2
252	H	H	H	H					2
253	H	H	H	H					2

10

20

30

【表 2 8】

表1の続き

254	H	H	H	H					2
255	H	H	H	H					2
256	H	H	H	H					2
257	H	H	H	H					2
258	H	H	H	H					2
259	H	H	H	H					2
260	H	H	H	H					2
261	H	H	H	H					2
262	H	H	H	H					2
263	H	H	H	H					2
264	H	H	H	H					2
265	H	H	H	H					2
266	H	H	H	H					2

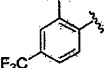
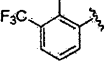
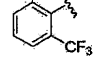
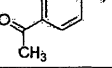
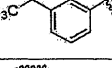
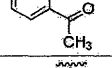
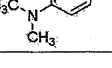
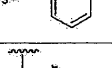
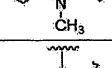
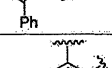
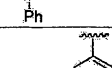
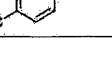
10

20

30

【表 29】

表1の続き

267	H	H	H	H					2
268	H	H	H	H					2
269	H	H	H	H					2
270	H	H	H	H					2
271	H	H	H	H					2
272	H	H	H	H					2
273	H	H	H	H					2
274	H	H	H	H					2
275	H	H	H	H					2
276	H	H	H	H					2
277	H	H	H	H					2
278	H	H	H	H					2

10

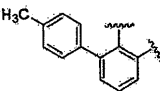
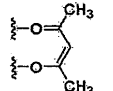
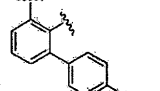
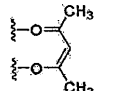
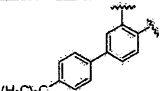
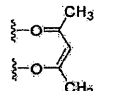
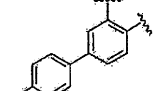
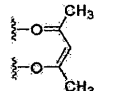
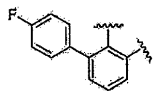
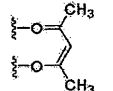
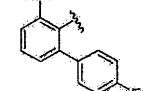
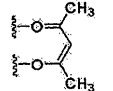
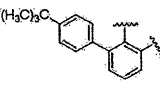
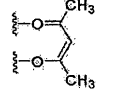
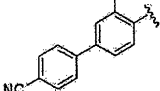
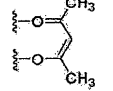
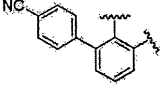
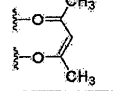
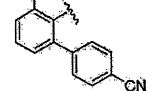
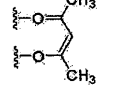
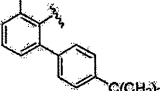
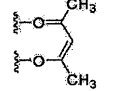
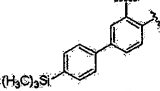
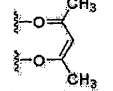
20

30

【0167】

【表 30】

表1の続き

279	H	H	H	H					2
280	H	H	H	H					2
281	H	H	H	H					2
282	H	H	H	H					2
283	H	H	H	H					2
284	H	H	H	H					2
285	H	H	H	H					2
286	H	H	H	H					2
287	H	H	H	H					2
288	H	H	H	H					2
289	H	H	H	H					2
290	H	H	H	H					2

【 0 1 6 8 】

10

20

30

【表 3 1】

表1の続き

291	H	H	H	H					2
292	H	H	H	H					2
293	H	H	H	H					2
294	H	H	H	H					2
295	H	H	H	H					2
296	H	H	H	H					2
297	H	H	H	H					2
298	H	H	H	H					2
299	H	H	H	H					2
300	H	H	H	H					2
301	H	H	H	H					2
302	H	H	H	H					2

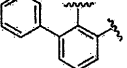
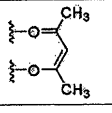
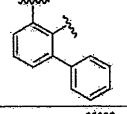
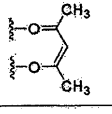
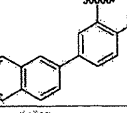
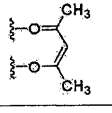
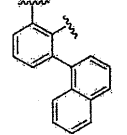
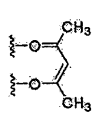
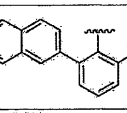
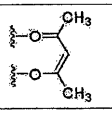
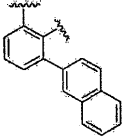
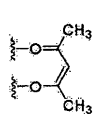
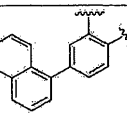
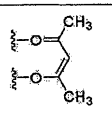
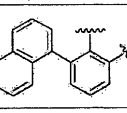
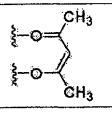
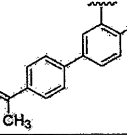
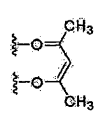
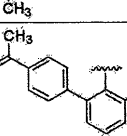
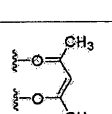
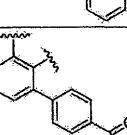
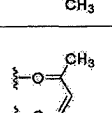
10

20

30

【表 3 2】

表1の続き

303	H	H	H	H					2
304	H	H	H	H					2
305	H	H	H	H					2
306	H	H	H	H					2
307	H	H	H	H					2
308	H	H	H	H					2
309	H	H	H	H					2
310	H	H	H	H					2
311	H	H	H	H					2
312	H	H	H	H					2
313	H	H	H	H					2

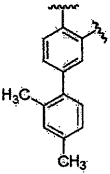
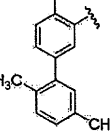
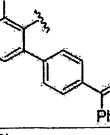
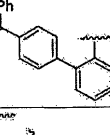
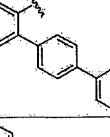
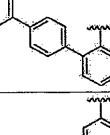
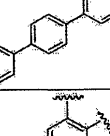
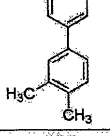
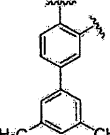
10

20

30

【表 3 3】

表1の続き

314	H	H	H	H					2
315	H	H	H	H					2
316	H	H	H	H					2
317	H	H	H	H					2
318	H	H	H	H					2
319	H	H	H	H					2
320	H	H	H	H					2
321	H	H	H	H					2
322	H	H	H	H					2

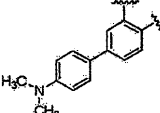
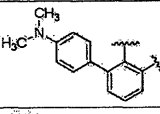
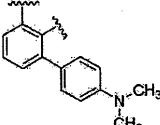
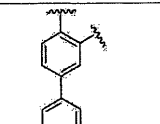
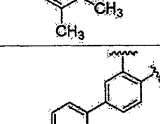
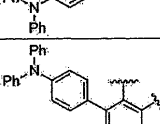
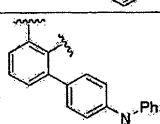
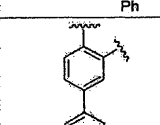
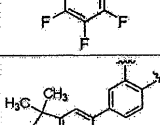
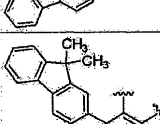
10

20

30

【表 3 4】

表1の続き

323	H	H	H	H					2
324	H	H	H	H					2
325	H	H	H	H					2
326	H	H	H	H					2
327	H	H	H	H					2
328	H	H	H	H					2
329	H	H	H	H					2
330	H	H	H	H					2
331	H	H	H	H					2
332	H	H	H	H					2

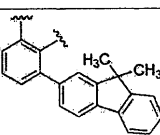
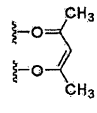
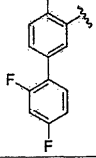
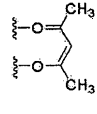
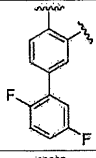
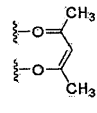
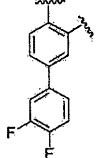
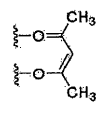
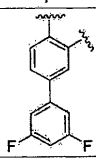
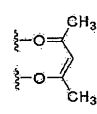
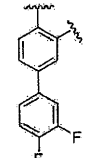
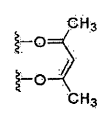
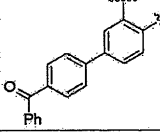
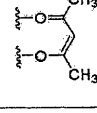
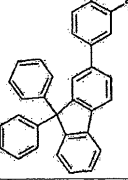
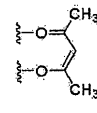
10

20

30

【表 3 5】

表1の続き

333	H	H	H	H					2
334	H	H	H	H					2
335	H	H	H	H					2
336	H	H	H	H					2
337	H	H	H	H					2
338	H	H	H	H					2
339	H	H	H	H					2
340	H	H	H	H					2

10

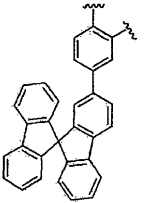
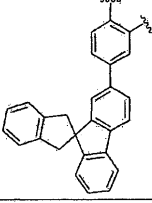
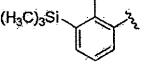
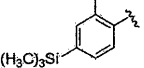
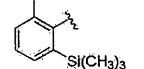
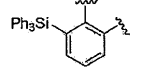
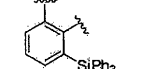
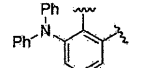
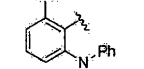
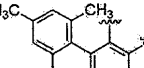
20

30

【 0 1 7 3 】

【表 3 6】

表1の続き

341	H	H	H	H					2
342	H	H	H	H					2
343	H	H	H	H					2
344	H	H	H	H					2
345	H	H	H	H					2
346	H	H	H	H					2
347	H	H	H	H					2
348	H	H	H	H					2
349	H	H	H	H					2
350	H	H	H	H					2

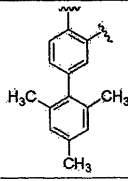
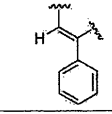
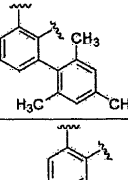
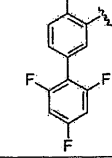
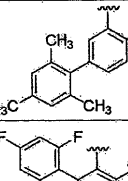
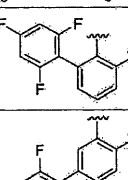
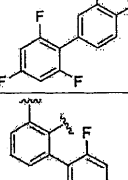
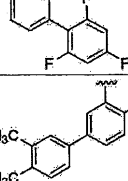
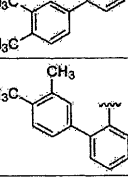
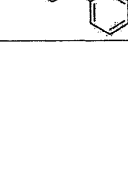
10

20

30

【表 3 7】

表1の続き

351	H	H	H	H					2
352	H	H	H	H					2
353	H	H	H	H					2
354	H	H	H	H					2
355	H	H	H	H					2
356	H	H	H	H					2
357	H	H	H	H					2
358	H	H	H	H					2
359	H	H	H	H					2
360	H	H	H	H					2

10

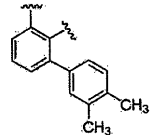
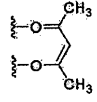
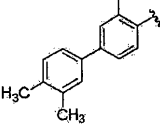
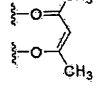
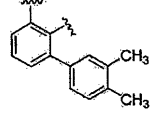
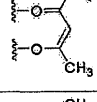
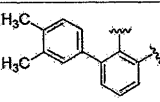
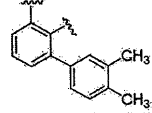
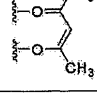
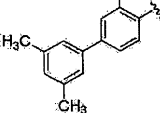
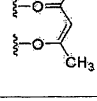
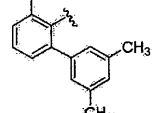
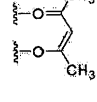
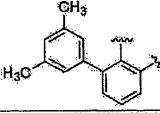
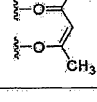
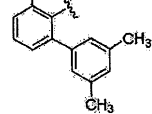
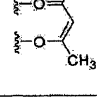
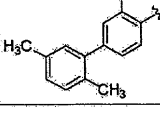
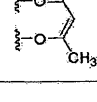
20

30

【 0 1 7 5 】

【表 3 8】

表1の続き

361	H	H	H	H					2
362	H	H	H	H					2
363	H	H	H	H					2
364	H	H	H	H					2
365	H	H	H	H					2
366	H	H	H	H					2
367	H	H	H	H					2
368	H	H	H	H					2
369	H	H	H	H					2
370	H	H	H	H					2

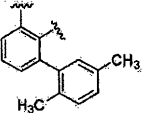
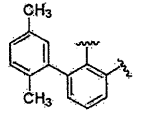
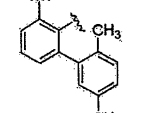
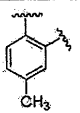
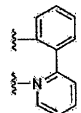
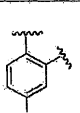
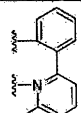
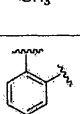
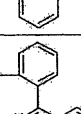
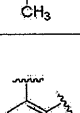
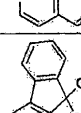
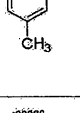
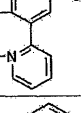
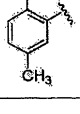
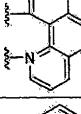
10

20

30

【表 3 9】

表1の続き

371	H	H	H	H					2
372	H	H	H	H					2
373	H	H	H	H					2
374	H	H	H	H					2
375	H	H	H	H					2
376	H	H	H	H					2
377	H	H	H	H					2
378	H	H	H	H					2
379	H	H	H	H					2

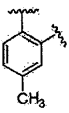
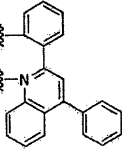
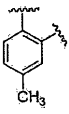
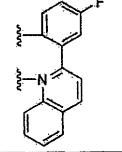
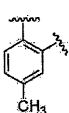
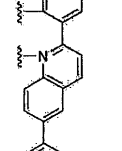
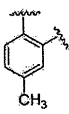
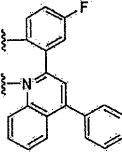
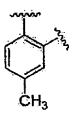
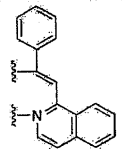
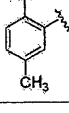
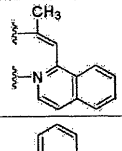
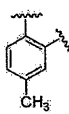
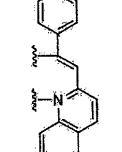
10

20

30

【表 4 0】

表1の続き

380	H	H	H	H					2
381	H	H	H	H					2
382	H	H	H	H					2
383	H	H	H	H					2
384	H	H	H	H					2
385	H	H	H	H					2
386	H	H	H	H					2

10

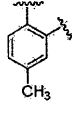
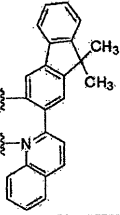
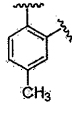
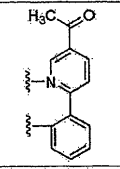
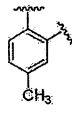
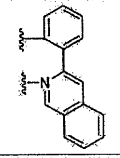
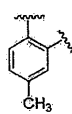
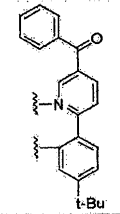
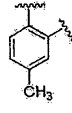
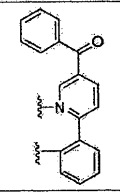
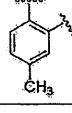
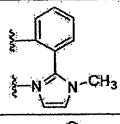
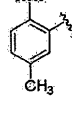
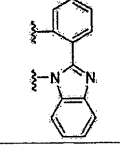
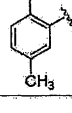
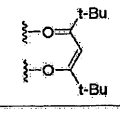
20

30

【 0 1 7 8 】

【表 4 1】

表1の続き

387	H	H	H	H					2
388	H	H	H	H					2
389	H	H	H	H					2
390	H	H	H	H					2
391	H	H	H	H					2
392	H	H	H	H					2
393	H	H	H	H					2
394	H	H	H	H					2

10

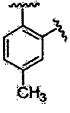
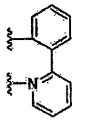
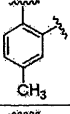
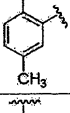
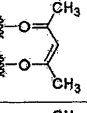
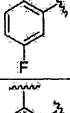
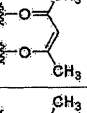
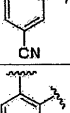
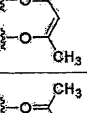
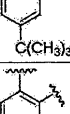
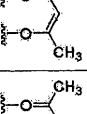
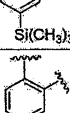
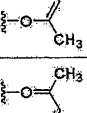
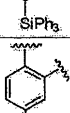
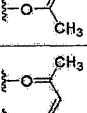
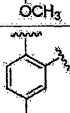
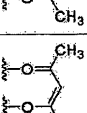
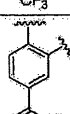
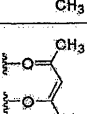
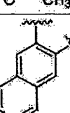
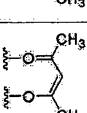
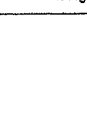
20

30

【 0 1 7 9 】

【表 4 2】

表1の続き

395	H	H	H	H					1
396	H	H	H	H				-	3
397	H	H	H	H					2
398	H	H	H	H					2
399	H	H	H	H					2
400	H	H	H	H					2
401	H	H	H	H					2
402	H	H	H	H					2
403	H	H	H	H					2
404	H	H	H	H					2
405	H	H	H	H					2
406	H	H	H	H					2

10

20

30

【 0 1 8 0 】

【表 4 3】

表1の続き

407	H	H	H	H					2
408	H	H	H	H					2
409	H	H	H	H					2
410	H	H	H	H					2
411	H	H	H	H					2
412	H	H	H	H					2
413	H	H	H	H					2
414	H	H	H	H					2
415	H	H	H	H					2

10

20

30

【 0 1 8 1 】

【表 4 4】

表1の続き

416	H	H	H	H					2
417	H	H	H	H					2
418	H	H	H	H					2
419	H	H	H	H					2
420	H	H	H	H					2
421	H	H	H	H					2
422	H	H	H	H					2
423	H	H	H	H					2

10

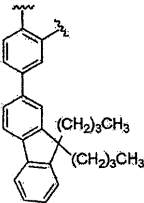
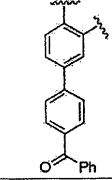
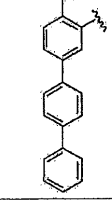
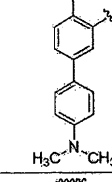
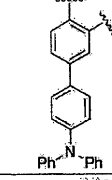
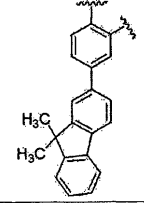
20

30

【 0 1 8 2 】

【表 4 5】

表1の続き

424	H	H	H	H					2
425	H	H	H	H					2
426	H	H	H	H					2
427	H	H	H	H					2
428	H	H	H	H					2
429	H	H	H	H					2

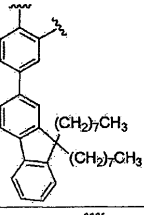
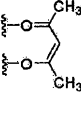
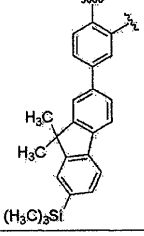
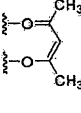
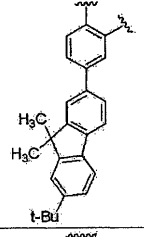
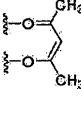
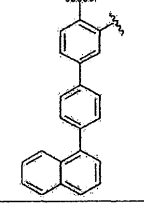
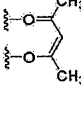
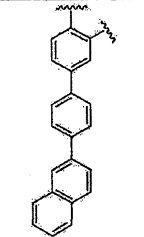
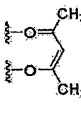
10

20

30

【表 4 6】

表1の続き

430	H	H	H	H					2
431	H	H	H	H					2
432	H	H	H	H					2
433	H	H	H	H					2
434	H	H	H	H					2

10

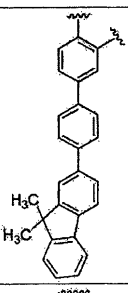
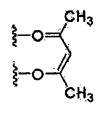
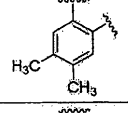
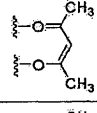
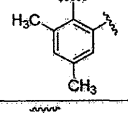
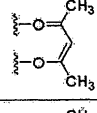
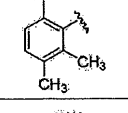
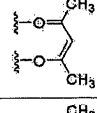
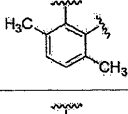
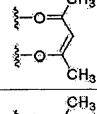
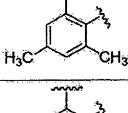
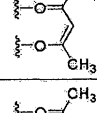
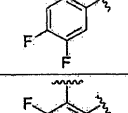
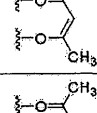
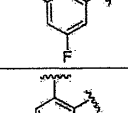
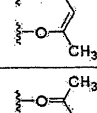
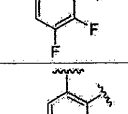
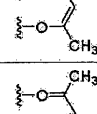
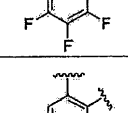
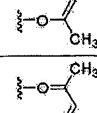
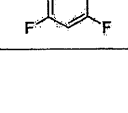
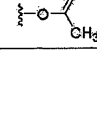
20

30

【 0 1 8 4 】

【表 4 7】

表1の続き

435	H	H	H	H					2
436	H	H	H	H					2
437	H	H	H	H					2
438	H	H	H	H					2
439	H	H	H	H					2
440	H	H	H	H					2
441	H	H	H	H					2
442	H	H	H	H					2
443	H	H	H	H					2
444	H	H	H	H					2
445	H	H	H	H					2

10

20

30

【表 4 8】

表1の続き

446	H	H	H	H					2
447	H	H	H	H					2
448	H	H	H	H					2
449	H	H	H	H					2
450	H	H	H	H					2
451	H	H	H	H					2
452	H	H	H	H					2
453	H	H	H	H					2
454	H	H	H	H					2
455	H	H	H	H					2
456	H	H	H	H					2
457	H	H	H	H					2
458	H	H	H	H					2

10

20

30

【表 4 9】

表1の続き

459	H	H	H	H					2
460	H	H	H	H					2
461	H	H	H	H					2
462	H	H	H	H					2
463	H	H	H	H					2
464	H	H	H	H					2
465	H	H	H	H					2
466	H	H	H	H					2
467	H	H	H	H					2
468	H	H	H	H					2
469	H	H	H	H					2
470	H	H	H	H					2

10

20

30

【 0 1 8 7 】

【表 50】

表1の続き

471	H	H	H	H					2
472	H	H	H	H					2
473	H	H	H	H					2
474	H	H	H	H					2
475	H	H	H	H					2
476	H	H	H	H					2
477	H	H	H	H					2
478	H	H	H	H					2
479	H	H	H	H					2
480	H	H	H	H					2
481	H	H	H	H					2
482	H	H	H	H					2

10

20

30

【表 5 1】

表1の続き

483	H	H	H	H					2
484	H	H	H	H					2
485	H	H	H	H					2
486	H	H	H	H					2
487	H	H	H	H					2
488	H	H	H	H					2
489	H	H	H	H					2
490	H	H	H	H					2
491	H	H	H	H					2
492	H	H	H	H					2
493	H	H	H	H					2
494	H	H	H	H					2

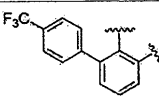
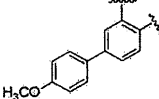
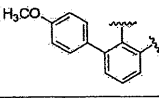
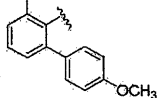
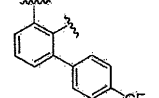
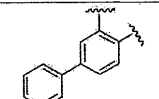
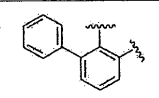
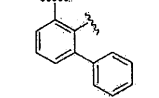
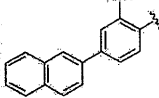
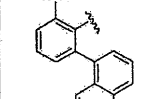
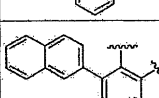
10

20

30

【表 5 2】

表1の続き

495	H	H	H	H					2
496	H	H	H	H					2
497	H	H	H	H					2
498	H	H	H	H					2
499	H	H	H	H					2
500	H	H	H	H					2
501	H	H	H	H					2
502	H	H	H	H					2
503	H	H	H	H					2
504	H	H	H	H					2
505	H	H	H	H					2

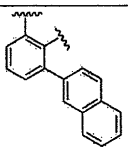
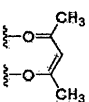
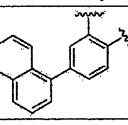
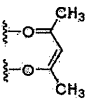
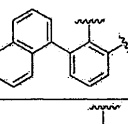
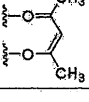
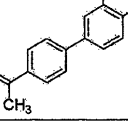
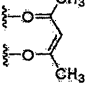
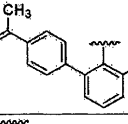
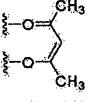
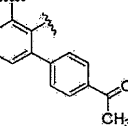
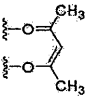
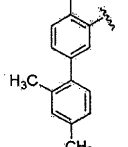
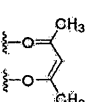
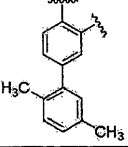
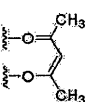
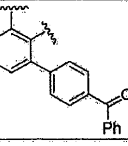
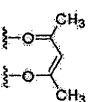
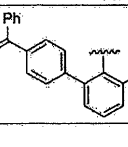
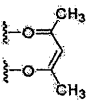
10

20

30

【表 5 3】

表1の続き

506	H	H	H	H					2
507	H	H	H	H					2
508	H	H	H	H					2
509	H	H	H	H					2
510	H	H	H	H					2
511	H	H	H	H					2
512	H	H	H	H					2
513	H	H	H	H					2
514	H	H	H	H					2
515	H	H	H	H					2

10

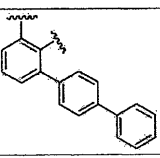
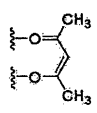
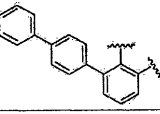
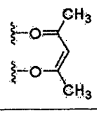
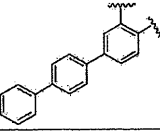
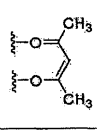
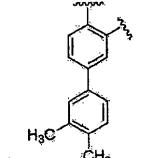
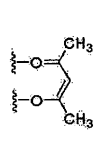
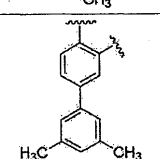
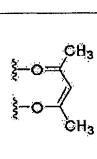
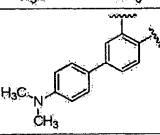
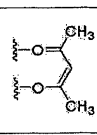
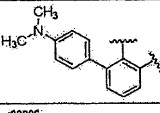
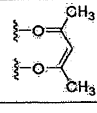
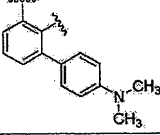
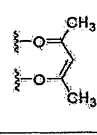
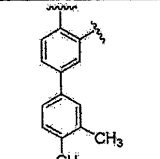
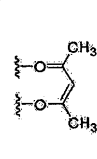
20

30

40

【表 5 4】

表1の続き

516	H	H	H	H					2
517	H	H	H	H					2
518	H	H	H	H					2
519	H	H	H	H					2
520	H	H	H	H					2
521	H	H	H	H					2
522	H	H	H	H					2
523	H	H	H	H					2
524	H	H	H	H					2

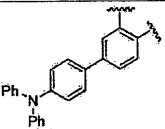
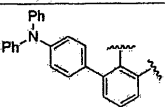
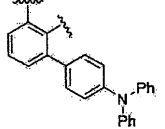
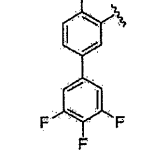
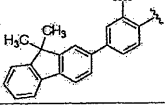
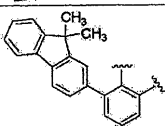
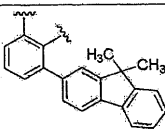
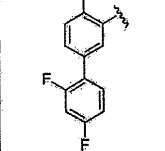
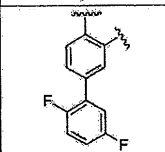
10

20

30

【表 5 5】

表1の続き

525	H	H	H	H					2
526	H	H	H	H					2
527	H	H	H	H					2
528	H	H	H	H					2
529	H	H	H	H					2
530	H	H	H	H					2
531	H	H	H	H					2
532	H	H	H	H					2
533	H	H	H	H					2

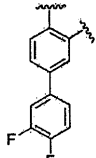
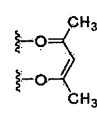
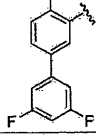
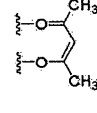
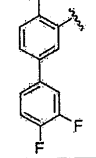
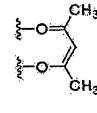
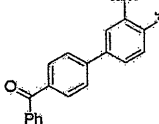
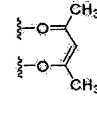
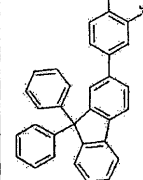
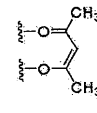
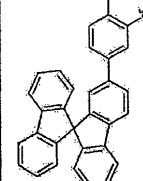
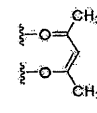
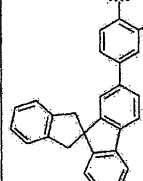
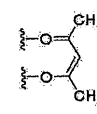
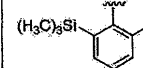
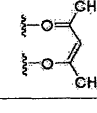
10

20

30

【表 5 6】

表1の続き

534	H	H	H	H					2
535	H	H	H	H					2
536	H	H	H	H					2
537	H	H	H	H					2
538	H	H	H	H					2
539	H	H	H	H					2
540	H	H	H	H					2
541	H	H	H	H					2

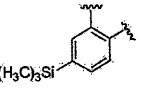
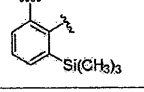
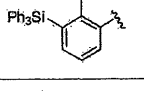
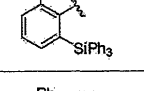
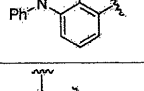
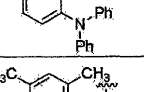
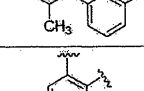
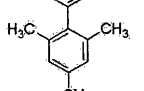
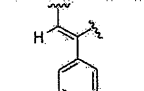
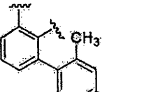
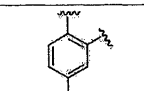
10

20

30

【表 5 7】

表1の続き

542	H	H	H	H					2
543	H	H	H	H					2
544	H	H	H	H					2
545	H	H	H	H					2
546	H	H	H	H					2
547	H	H	H	H					2
548	H	H	H	H					2
549	H	H	H	H					2
550	H	H	H	H					2
551	H	H	H	H					2
552	H	H	H	H					2

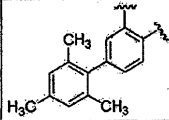
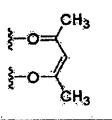
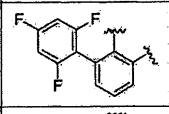
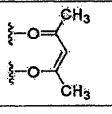
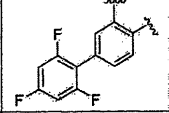
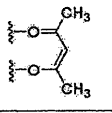
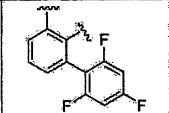
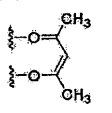
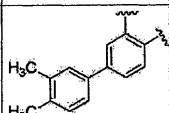
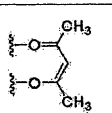
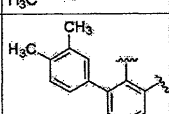
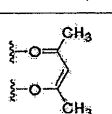
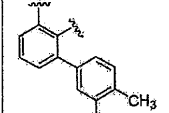
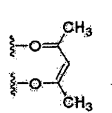
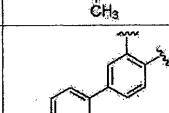
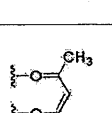
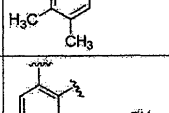
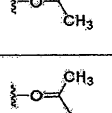
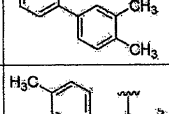
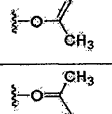
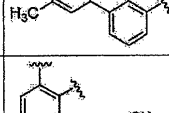
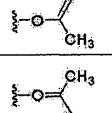
10

20

30

【表 5 8】

表1の続き

553	H	H	H	H					2
554	H	H	H	H					2
555	H	H	H	H					2
556	H	H	H	H					2
557	H	H	H	H					2
558	H	H	H	H					2
559	H	H	H	H					2
560	H	H	H	H					2
561	H	H	H	H					2
562	H	H	H	H					2
563	H	H	H	H					2

10

20

30

【表 5 9】

表1の続き

564	H	H	H	H					2
565	H	H	H	H					2
566	H	H	H	H					2
567	H	H	H	H					2
568	H	H	H	H					2
569	H	H	H	H					2
570	H	H	H	H					2
571	H	H	H	H					2
572	H	H	H	H					2
573	H	H	H	H					2

【 0 1 9 7 】

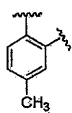
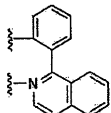
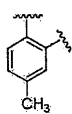
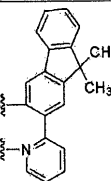
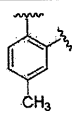
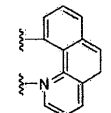
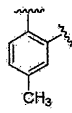
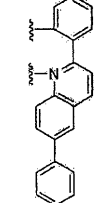
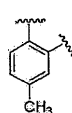
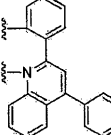
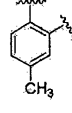
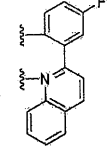
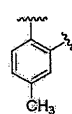
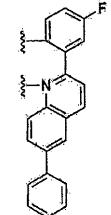
10

20

30

【表 6 0】

表1の続き

574	H	H	H	H					2
575	H	H	H	H					2
576	H	H	H	H					2
577	H	H	H	H					2
578	H	H	H	H					2
579	H	H	H	H					2
580	H	H	H	H					2

10

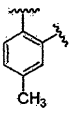
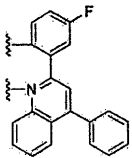
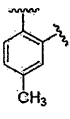
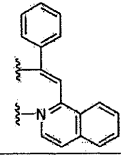
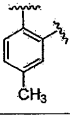
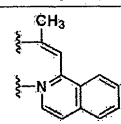
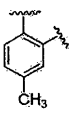
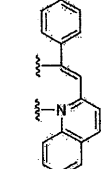
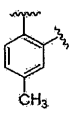
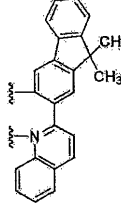
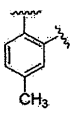
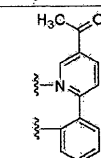
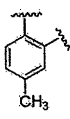
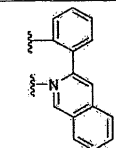
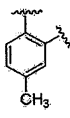
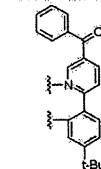
20

30

【 0 1 9 8 】

【表 6 1】

表1の続き

581	H	H	H	H					2
582	H	H	H	H					2
583	H	H	H	H					2
584	H	H	H	H					2
585	H	H	H	H					2
586	H	H	H	H					2
587	H	H	H	H					2
588	H	H	H	H					2

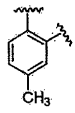
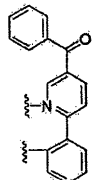
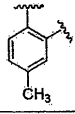
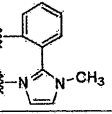
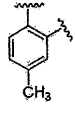
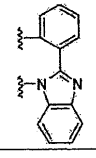
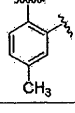
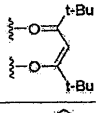
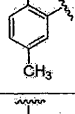
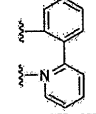
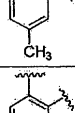
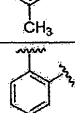
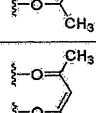
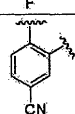
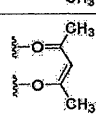
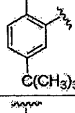
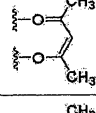
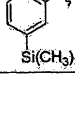
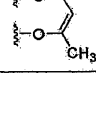
10

20

30

【表 6 2】

表1の続き

589	H	H	H	H					2
590	H	H	H	H					2
591	H	H	H	H					2
592	H	H	H	H					2
593	H	H	H	H					1
594	H	H	H	H				-	3
595	H	H	H	H					2
596	H	H	H	H					2
597	H	H	H	H					2
598	H	H	H	H					2
599	H	H	H	H					2

10

20

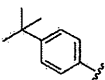
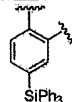
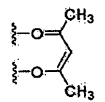
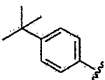
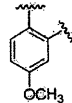
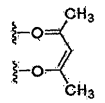
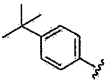
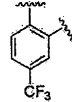
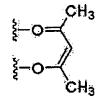
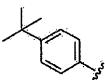
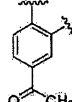
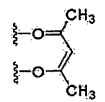
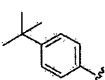
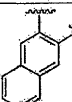
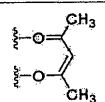
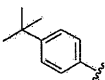
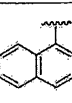
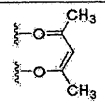
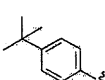
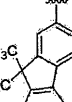
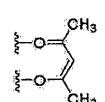
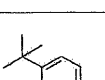
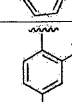
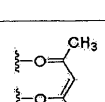
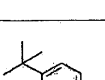
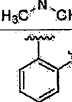
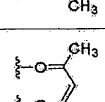
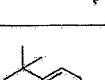
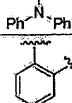
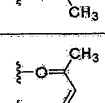
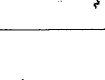
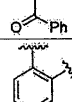
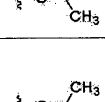
30

【 0 2 0 0 】

40

【表 6 3】

表1の続き

600	H	H	H	H					2
601	H	H	H	H					2
602	H	H	H	H					2
603	H	H	H	H					2
604	H	H	H	H					2
605	H	H	H	H					2
606	H	H	H	H					2
607	H	H	H	H					2
608	H	H	H	H					2
609	H	H	H	H					2
610	H	H	H	H					2

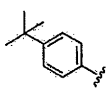
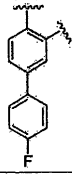
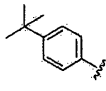
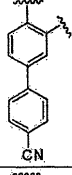
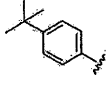
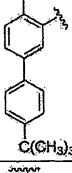
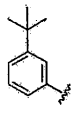
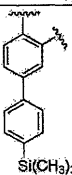
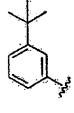
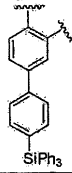
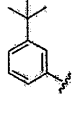
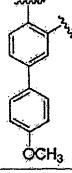
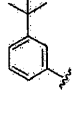
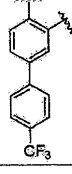
10

20

30

【表 6 4】

表1の続き

611	H	H	H	H					2
612	H	H	H	H					2
613	H	H	H	H					2
614	H	H	H	H					2
615	H	H	H	H					2
616	H	H	H	H					2
617	H	H	H	H					2

10

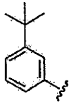
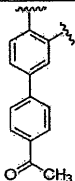
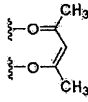
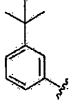
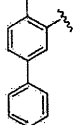
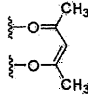
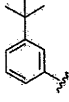
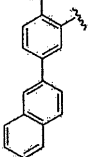
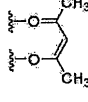
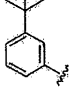
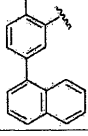
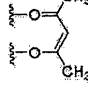
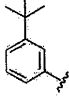
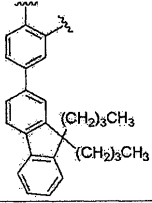
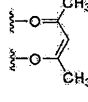
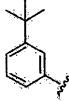
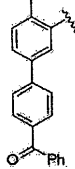
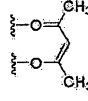
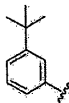
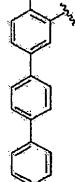
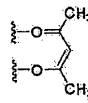
20

30

【 0 2 0 2 】

【表 6 5】

表1の続き

618	H	H	H	H					2
619	H	H	H	H					2
620	H	H	H	H					2
621	H	H	H	H					2
622	H	H	H	H					2
623	H	H	H	H					2
624	H	H	H	H					2

10

20

30

【 0 2 0 3 】

【表 6 6】

表1の続き

625	H	H	H	H					2
626	H	H	H	H					2
627	H	H	H	H					2
628	H	H	H	H					2
629	H	H	H	H					2
630	H	H	H	H					2

10

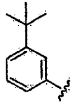
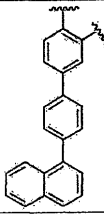
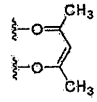
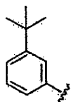
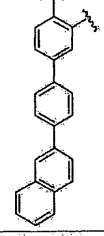
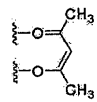
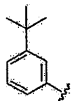
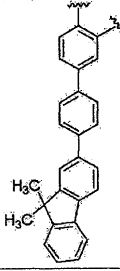
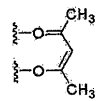
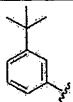
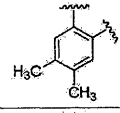
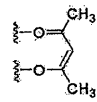
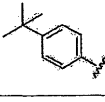
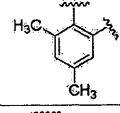
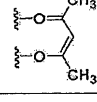
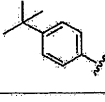
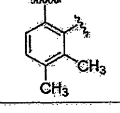
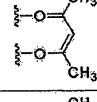
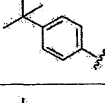
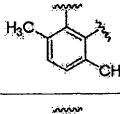
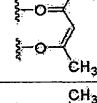
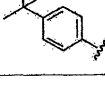
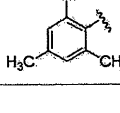
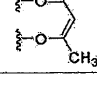
20

30

【 0 2 0 4 】

【表 6 7】

表1の続き

631	H	H	H	H					2
632	H	H	H	H					2
633	H	H	H	H					2
634	H	H	H	H					2
635	H	H	H	H					2
636	H	H	H	H					2
637	H	H	H	H					2
638	H	H	H	H					2

10

20

30

【 0 2 0 5 】

【表 6 8】

表1の続き

639	H	H	H	H					2
640	H	H	H	H					2
641	H	H	H	H					2
642	H	H	H	H					2
643	H	H	H	H					2
644	H	H	H	H					2
645	H	H	H	H					2
646	H	H	H	H					2
647	H	H	H	H					2
648	H	H	H	H					2
649	H	H	H	H					2
650	H	H	H	H					2
651	H	H	H	H					2

10

20

30

【表 6 9】

表1の続き

652	H	H	H	H					2
653	H	H	H	H					2
654	H	H	H	H					2
655	H	H	H	H					2
656	H	H	H	H					2
657	H	H	H	H					2
658	H	H	H	H					2
659	H	H	H	H					2
660	H	H	H	H					2
661	H	H	H	H					2
662	H	H	H	H					2
663	H	H	H	H					2
664	H	H	H	H					2

【 0 2 0 7 】

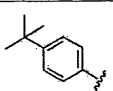
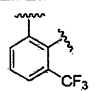
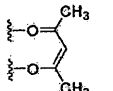
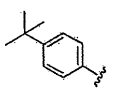
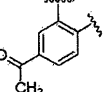
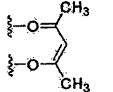
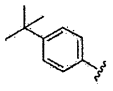
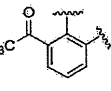
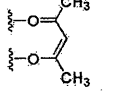
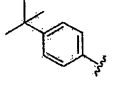
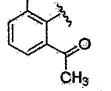
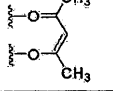
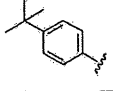
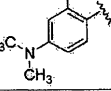
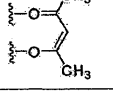
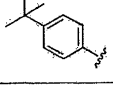
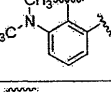
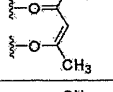
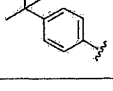
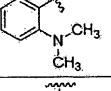
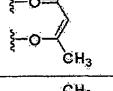
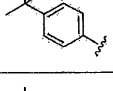
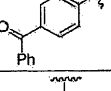
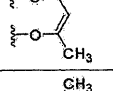
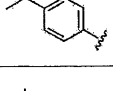
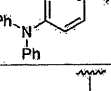
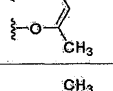
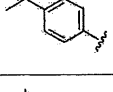
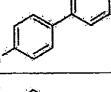
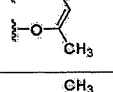
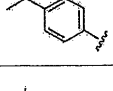
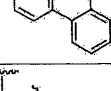
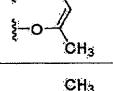
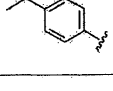
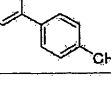
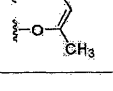
10

20

30

【表 70】

表1の続き

665	H	H	H	H					2
666	H	H	H	H					2
667	H	H	H	H					2
668	H	H	H	H					2
669	H	H	H	H					2
670	H	H	H	H					2
671	H	H	H	H					2
672	H	H	H	H					2
673	H	H	H	H					2
674	H	H	H	H					2
675	H	H	H	H					2
676	H	H	H	H					2

10

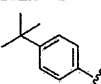
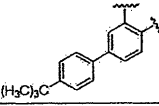
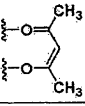
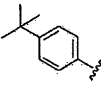
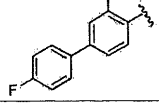
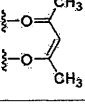
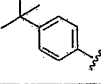
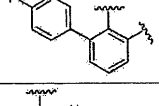
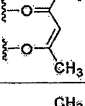
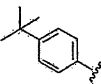
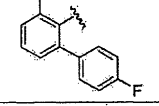
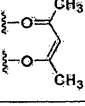
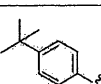
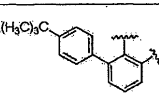
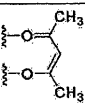
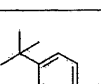
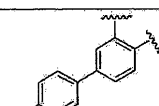
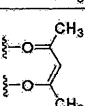
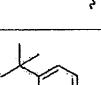
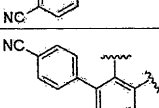
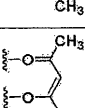
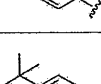
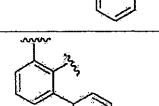
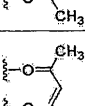
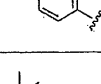
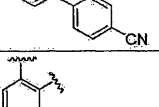
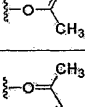
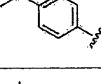
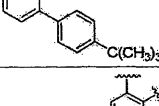
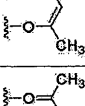
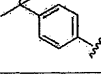
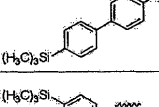
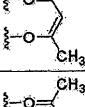
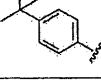
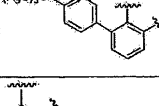
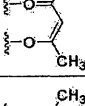
20

30

【 0 2 0 8 】

【表 7 1】

表1の続き

677	H	H	H	H					2
678	H	H	H	H					2
679	H	H	H	H					2
680	H	H	H	H					2
681	H	H	H	H					2
682	H	H	H	H					2
683	H	H	H	H					2
684	H	H	H	H					2
685	H	H	H	H					2
686	H	H	H	H					2
687	H	H	H	H					2
688	H	H	H	H					2

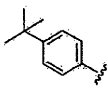
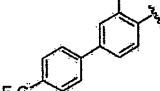
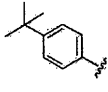
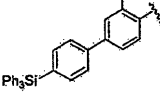
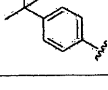
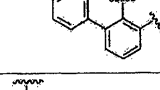
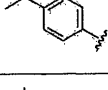
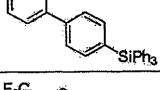
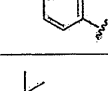
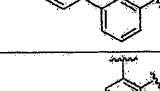
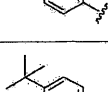
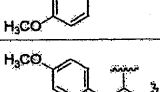
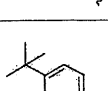
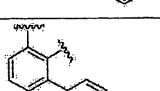
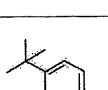
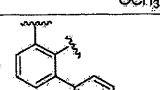
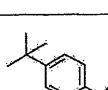
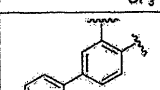
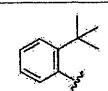
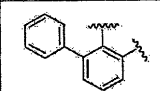
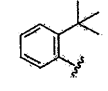
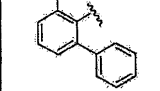
10

20

30

【表 7 2】

表1の続き

689	H	H	H	H					2
690	H	H	H	H					2
691	H	H	H	H					2
692	H	H	H	H					2
693	H	H	H	H					2
694	H	H	H	H					2
695	H	H	H	H					2
696	H	H	H	H					2
697	H	H	H	H					2
698	H	H	H	H					2
699	H	H	H	H					2
700	H	H	H	H					2

10

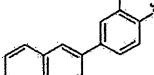
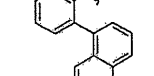
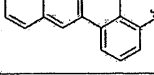
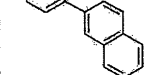
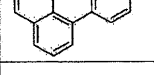
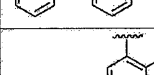
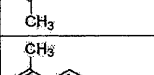
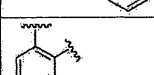
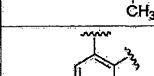
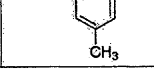
20

30

【 0 2 1 0 】

【表 7 3】

表1の続き

701	H	H	H	H					2
702	H	H	H	H					2
703	H	H	H	H					2
704	H	H	H	H					2
705	H	H	H	H					2
706	H	H	H	H					2
707	H	H	H	H					2
708	H	H	H	H					2
709	H	H	H	H					2
710	H	H	H	H					2

10

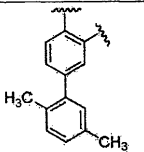
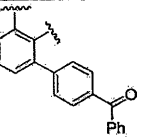
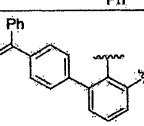
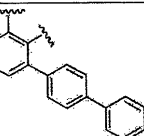
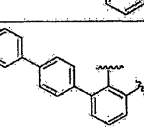
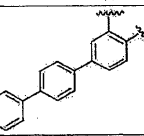
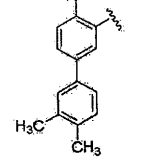
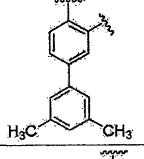
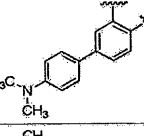
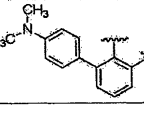
20

30

【 0 2 1 1 】

【表 7 4】

表1の続き

711	H	H	H	H					2
712	H	H	H	H					2
713	H	H	H	H					2
714	H	H	H	H					2
715	H	H	H	H					2
716	H	H	H	H					2
717	H	H	H	H					2
718	H	H	H	H					2
719	H	H	H	H					2
720	H	H	H	H					2

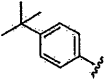
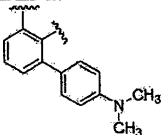
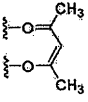
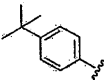
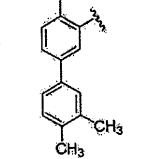
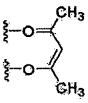
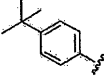
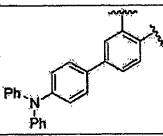
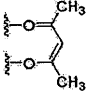
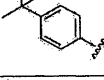
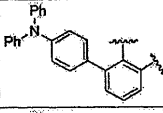
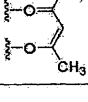
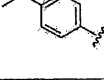
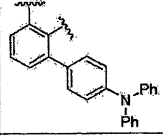
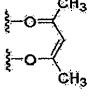
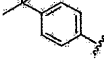
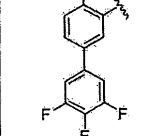
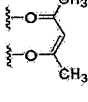
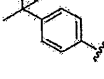
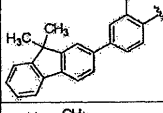
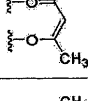
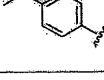
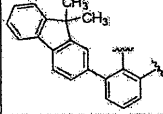
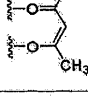
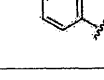
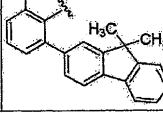
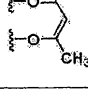
10

20

30

【表 7 5】

表1の続き

721	H	H	H	H					2
722	H	H	H	H					2
723	H	H	H	H					2
724	H	H	H	H					2
725	H	H	H	H					2
726	H	H	H	H					2
727	H	H	H	H					2
728	H	H	H	H					2
729	H	H	H	H					2

10

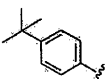
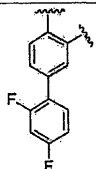
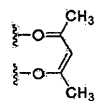
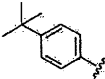
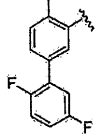
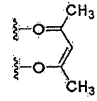
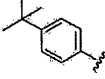
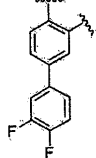
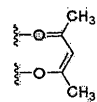
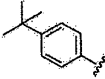
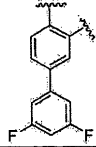
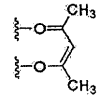
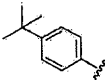
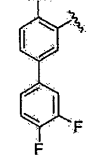
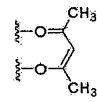
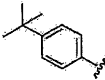
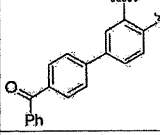
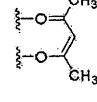
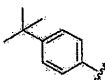
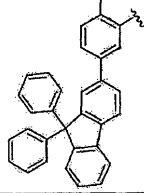
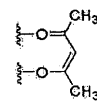
20

30

【 0 2 1 3 】

【表 7 6】

表1の続き

730	H	H	H	H					2
731	H	H	H	H					2
732	H	H	H	H					2
733	H	H	H	H					2
734	H	H	H	H					2
735	H	H	H	H					2
736	H	H	H	H					2

10

20

30

【表 77】

表1の続き

737	H	H	H	H					2
738	H	H	H	H					2
739	H	H	H	H					2
740	H	H	H	H					2
741	H	H	H	H					2
742	H	H	H	H					2
743	H	H	H	H					2
744	H	H	H	H					2
745	H	H	H	H					2
746	H	H	H	H					2

10

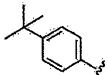
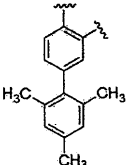
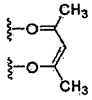
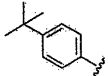
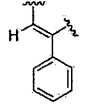
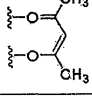
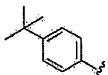
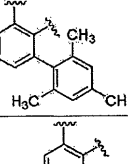
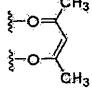
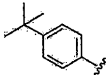
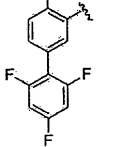
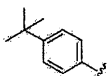
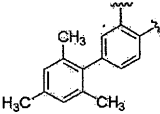
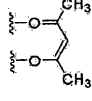
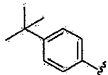
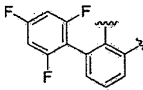
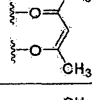
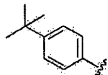
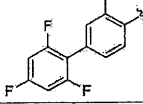
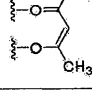
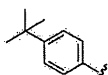
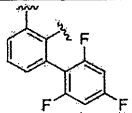
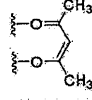
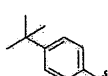
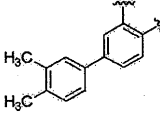
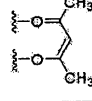
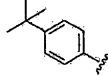
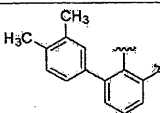
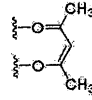
20

30

【 0 2 1 5 】

【表 7 8】

表1の続き

747	H	H	H	H					2
748	H	H	H	H					2
749	H	H	H	H					2
750	H	H	H	H					2
751	H	H	H	H					2
752	H	H	H	H					2
753	H	H	H	H					2
754	H	H	H	H					2
755	H	H	H	H					2
756	H	H	H	H					2

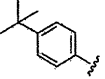
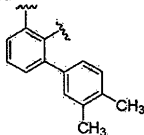
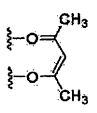
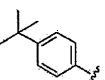
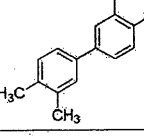
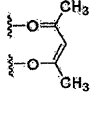
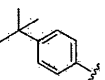
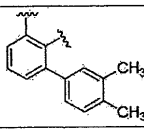
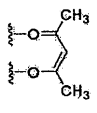
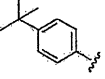
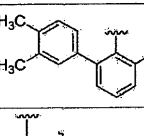
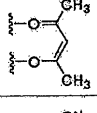
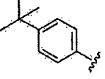
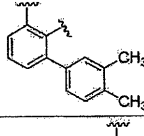
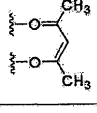
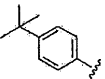
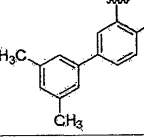
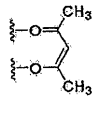
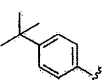
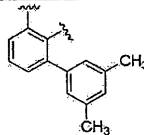
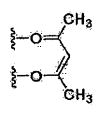
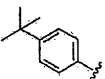
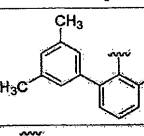
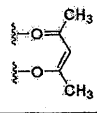
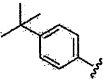
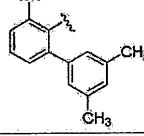
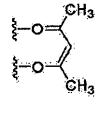
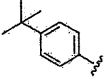
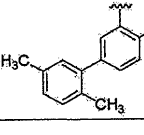
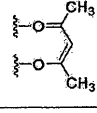
10

20

30

【表 7 9】

表1の続き

757	H	H	H	H					2
758	H	H	H	H					2
759	H	H	H	H					2
760	H	H	H	H					2
761	H	H	H	H					2
762	H	H	H	H					2
763	H	H	H	H					2
764	H	H	H	H					2
765	H	H	H	H					2
766	H	H	H	H					2

10

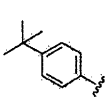
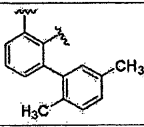
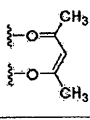
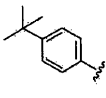
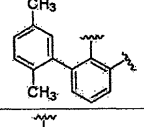
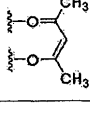
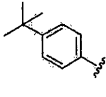
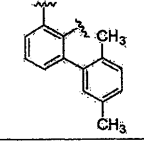
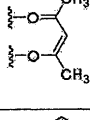
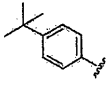
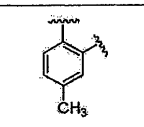
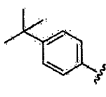
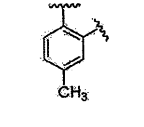
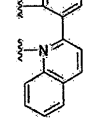
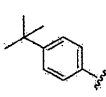
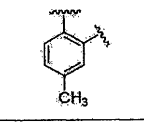
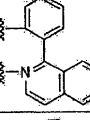
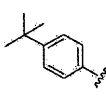
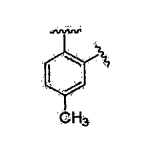
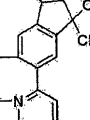
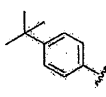
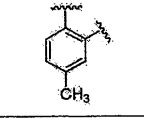
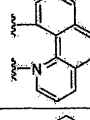
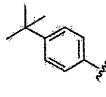
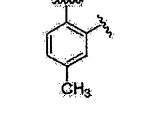
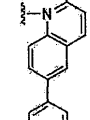
20

30

【 0 2 1 7 】

【表 80】

表1の続き

767	H	H	H	H					2
768	H	H	H	H					2
769	H	H	H	H					2
770	H	H	H	H					2
771	H	H	H	H					2
772	H	H	H	H					2
773	H	H	H	H					2
774	H	H	H	H					2
775	H	H	H	H					2

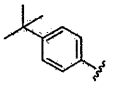
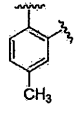
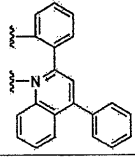
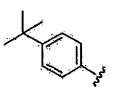
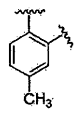
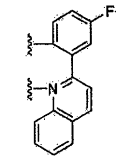
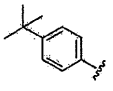
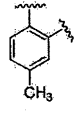
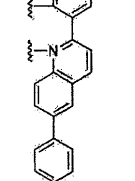
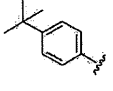
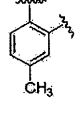
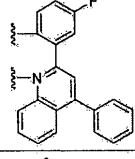
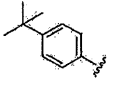
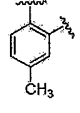
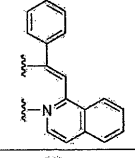
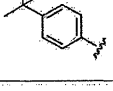
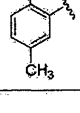
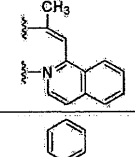
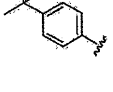
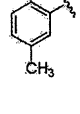
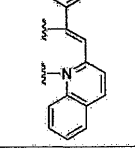
10

20

30

【表 8 1】

表1の続き

776	H	H	H	H					2
777	H	H	H	H					2
778	H	H	H	H					2
779	H	H	H	H					2
780	H	H	H	H					2
781	H	H	H	H					2
782	H	H	H	H					2

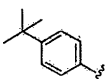
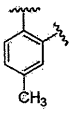
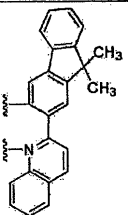
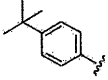
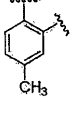
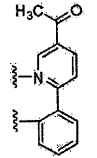
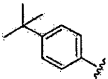
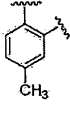
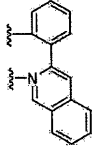
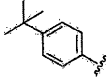
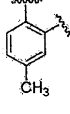
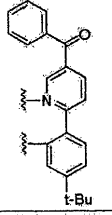
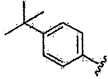
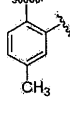
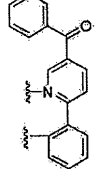
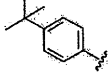
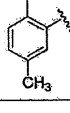
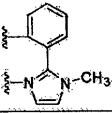
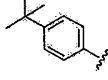
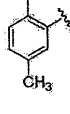
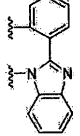
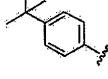
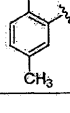
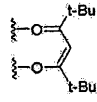
10

20

30

【表 8 2】

表1の続き

783	H	H	H	H					2
784	H	H	H	H					2
785	H	H	H	H					2
786	H	H	H	H					2
787	H	H	H	H					2
788	H	H	H	H					2
789	H	H	H	H					2
790	H	H	H	H					2

10

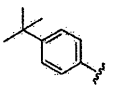
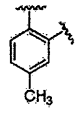
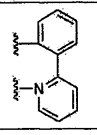
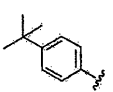
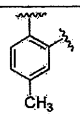
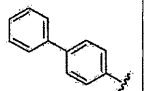
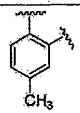
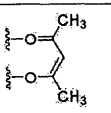
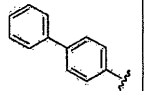
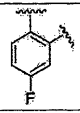
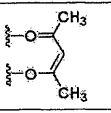
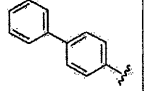
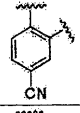
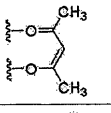
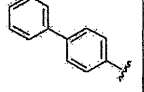
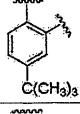
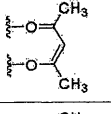
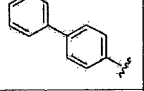
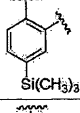
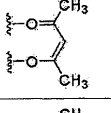
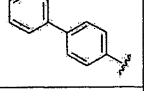
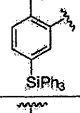
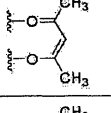
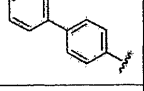
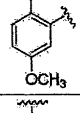
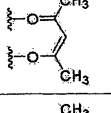
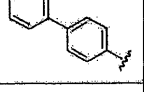
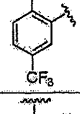
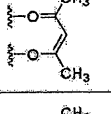
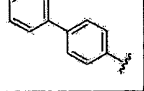
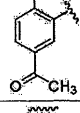
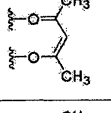
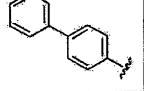
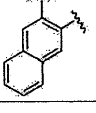
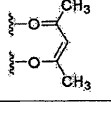
20

30

【 0 2 2 0 】

【表 8 3】

表1の続き

791	H	H	H	H					1
792	H	H	H	H				-	3
793	H	H	H	H					2
794	H	H	H	H					2
795	H	H	H	H					2
796	H	H	H	H					2
797	H	H	H	H					2
798	H	H	H	H					2
799	H	H	H	H					2
800	H	H	H	H					2
801	H	H	H	H					2
802	H	H	H	H					2

10

20

30

【 0 2 2 1 】

【表 8 4】

表1の続き

803	H	H	H	H					2
804	H	H	H	H					2
805	H	H	H	H					2
806	H	H	H	H					2
807	H	H	H	H					2
808	H	H	H	H					2
809	H	H	H	H					2
810	H	H	H	H					2
811	H	H	H	H					2

10

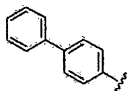
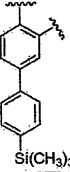
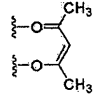
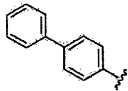
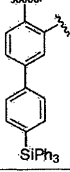
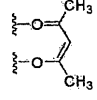
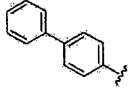
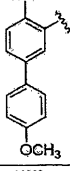
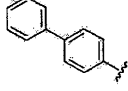
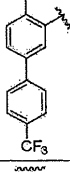
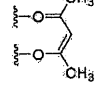
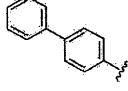
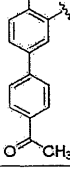
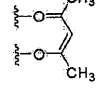
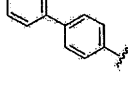
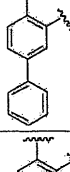
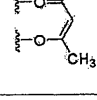
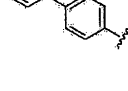
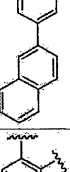
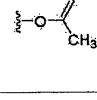
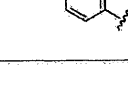
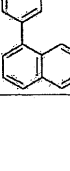
20

30

【 0 2 2 2 】

【表 8 5】

表1の続き

812	H	H	H	H					2
813	H	H	H	H					2
814	H	H	H	H					2
815	H	H	H	H					2
816	H	H	H	H					2
817	H	H	H	H					2
818	H	H	H	H					2
819	H	H	H	H					2

10

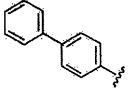
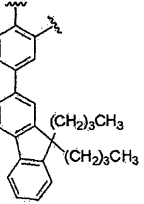
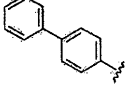
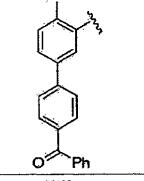
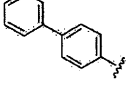
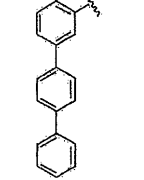
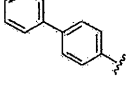
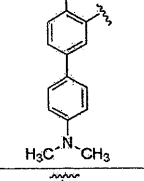
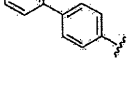
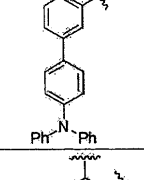
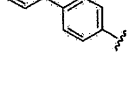
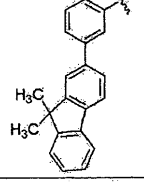
20

30

【 0 2 2 3 】

【表 8 6】

表1の続き

820	H	H	H	H					2
821	H	H	H	H					2
822	H	H	H	H					2
823	H	H	H	H					2
824	H	H	H	H					2
825	H	H	H	H					2

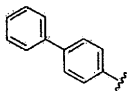
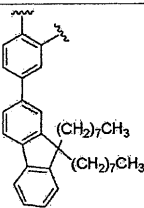
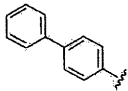
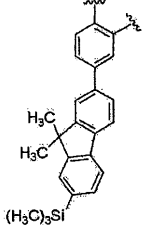
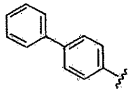
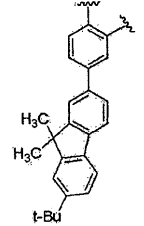
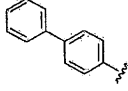
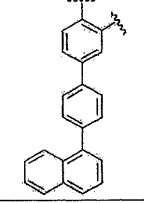
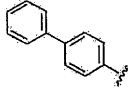
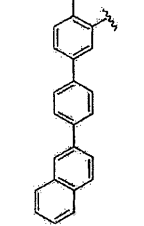
10

20

30

【表 87】

表1の続き

826	H	H	H	H					2
827	H	H	H	H					2
828	H	H	H	H					2
829	H	H	H	H					2
830	H	H	H	H					2

10

20

30

【表 8 8】

表1の続き

831	H	H	H	H					2
832	H	H	H	H					2
833	H	H	H	H					2
834	H	H	H	H					2
835	H	H	H	H					2
836	H	H	H	H					2
837	H	H	H	H					2
838	H	H	H	H					2
839	H	H	H	H					2
840	H	H	H	H					2
841	H	H	H	H					2

【 0 2 2 6 】

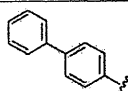
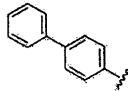
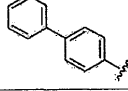
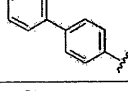
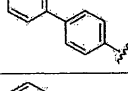
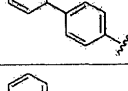
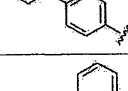
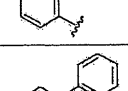
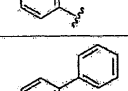
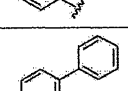
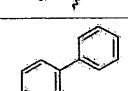
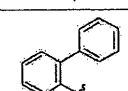
10

20

30

【表 8 9】

表1の続き

842	H	H	H	H					2
843	H	H	H	H					2
844	H	H	H	H					2
845	H	H	H	H					2
846	H	H	H	H					2
847	H	H	H	H					2
848	H	H	H	H					2
849	H	H	H	H					2
850	H	H	H	H					2
851	H	H	H	H					2
852	H	H	H	H					2
853	H	H	H	H					2
854	H	H	H	H					2

【 0 2 2 7 】

10

20

30

【表 90】

表1の続き

855	H	H	H	H					2
856	H	H	H	H					2
857	H	H	H	H					2
858	H	H	H	H					2
859	H	H	H	H					2
860	H	H	H	H					2
861	H	H	H	H					2
862	H	H	H	H					2
863	H	H	H	H					2
864	H	H	H	H					2
865	H	H	H	H					2
866	H	H	H	H					2

10

20

30

【表 9 1】

表1の続き

867	H	H	H	H					2
868	H	H	H	H					2
869	H	H	H	H					2
870	H	H	H	H					2
871	H	H	H	H					2
872	H	H	H	H					2
873	H	H	H	H					2
874	H	H	H	H					2
875	H	H	H	H					2
876	H	H	H	H					2
877	H	H	H	H					2
878	H	H	H	H					2

10

20

30

【表 9 2】

表1の続き

879	H	H	H	H					2
880	H	H	H	H					2
881	H	H	H	H					2
882	H	H	H	H					2
883	H	H	H	H					2
884	H	H	H	H					2
885	H	H	H	H					2
886	H	H	H	H					2
887	H	H	H	H					2
888	H	H	H	H					2
889	H	H	H	H					2
890	H	H	H	H					2

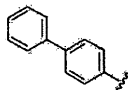
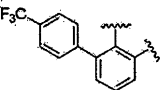
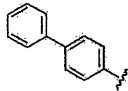
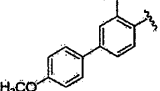
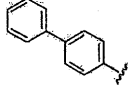
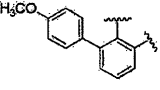
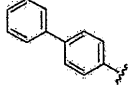
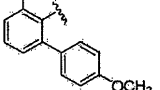
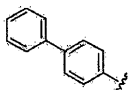
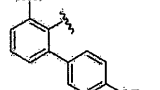
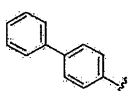
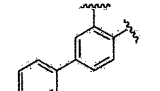
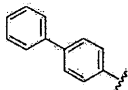
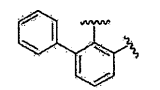
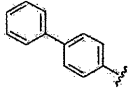
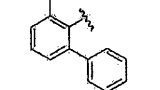
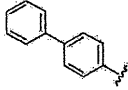
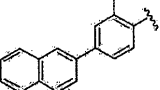
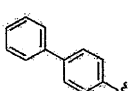
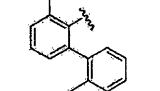
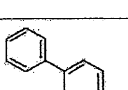
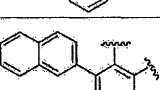
10

20

30

【表 9 3】

表1の続き

891	H	H	H	H					2
892	H	H	H	H					2
893	H	H	H	H					2
894	H	H	H	H					2
895	H	H	H	H					2
896	H	H	H	H					2
897	H	H	H	H					2
898	H	H	H	H					2
899	H	H	H	H					2
900	H	H	H	H					2
901	H	H	H	H					2

10

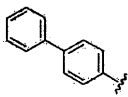
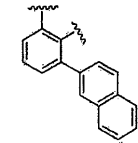
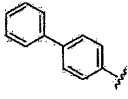
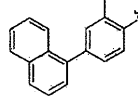
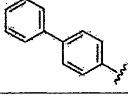
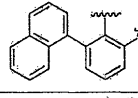
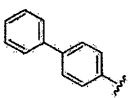
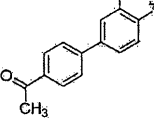
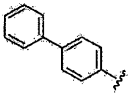
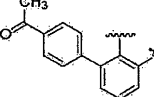
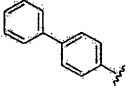
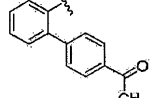
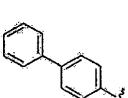
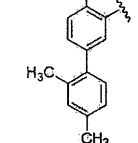
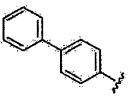
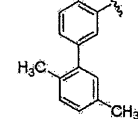
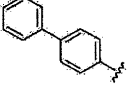
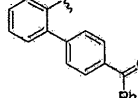
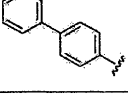
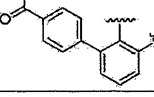
20

30

【 0 2 3 1 】

【表 9 4】

表1の続き

902	H	H	H	H					2
903	H	H	H	H					2
904	H	H	H	H					2
905	H	H	H	H					2
906	H	H	H	H					2
907	H	H	H	H					2
908	H	H	H	H					2
909	H	H	H	H					2
910	H	H	H	H					2
911	H	H	H	H					2

10

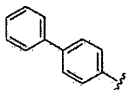
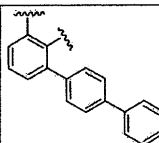
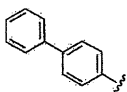
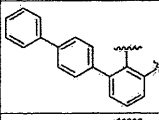
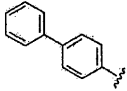
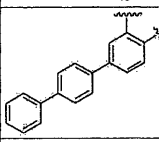
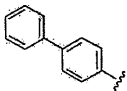
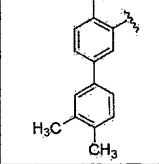
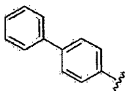
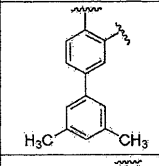
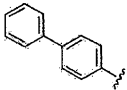
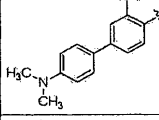
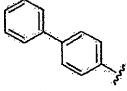
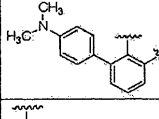
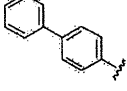
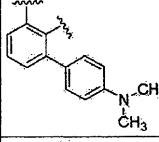
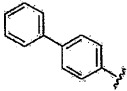
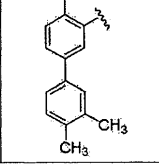
20

30

40

【表 95】

表1の続き

912	H	H	H	H					2
913	H	H	H	H					2
914	H	H	H	H					2
915	H	H	H	H					2
916	H	H	H	H					2
917	H	H	H	H					2
918	H	H	H	H					2
919	H	H	H	H					2
920	H	H	H	H					2

10

20

30

【0233】

【表 9 6】

表1の続き

921	H	H	H	H					2
922	H	H	H	H					2
923	H	H	H	H					2
924	H	H	H	H					2
925	H	H	H	H					2
926	H	H	H	H					2
927	H	H	H	H					2
928	H	H	H	H					2
929	H	H	H	H					2

10

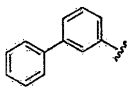
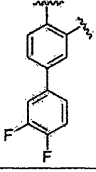
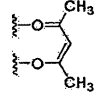
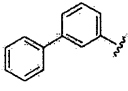
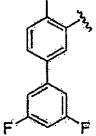
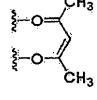
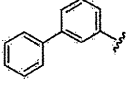
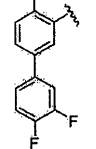
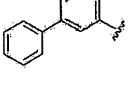
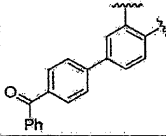
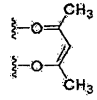
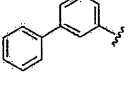
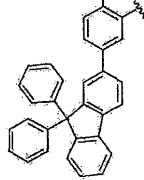
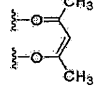
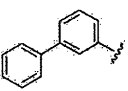
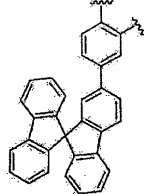
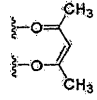
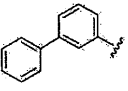
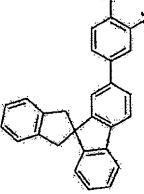
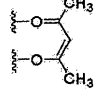
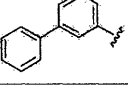
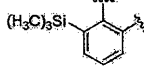
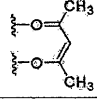
20

30

【 0 2 3 4 】

【表 9 7】

表1の続き

930	H	H	H	H					2
931	H	H	H	H					2
932	H	H	H	H					2
933	H	H	H	H					2
934	H	H	H	H					2
935	H	H	H	H					2
936	H	H	H	H					2
937	H	H	H	H					2

10

20

30

【表 9 8】

表1の続き

938	H	H	H	H					2
939	H	H	H	H					2
940	H	H	H	H					2
941	H	H	H	H					2
942	H	H	H	H					2
943	H	H	H	H					2
944	H	H	H	H					2
945	H	H	H	H					2
946	H	H	H	H					2
947	H	H	H	H					2
948	H	H	H	H					2

10

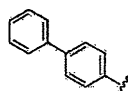
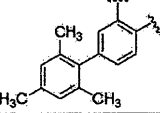
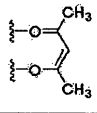
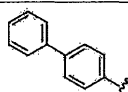
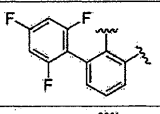
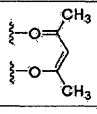
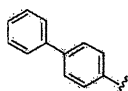
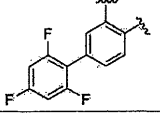
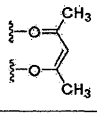
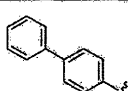
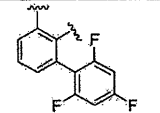
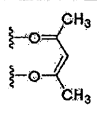
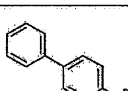
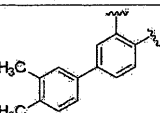
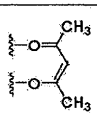
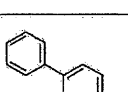
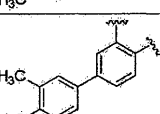
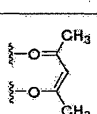
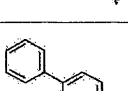
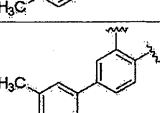
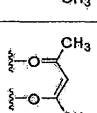
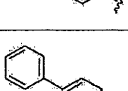
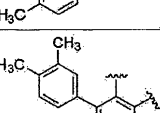
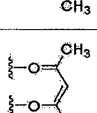
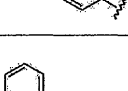
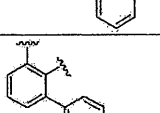
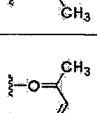
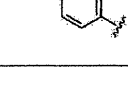
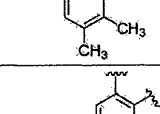
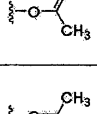
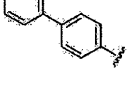
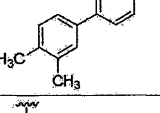
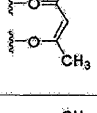
20

30

【 0 2 3 6 】

【表 9 9】

表 1 の続き

949	H	H	H	H					2
950	H	H	H	H					2
951	H	H	H	H					2
952	H	H	H	H					2
953	H	H	H	H					2
954	H	H	H	H					2
955	H	H	H	H					2
956	H	H	H	H					2
957	H	H	H	H					2
958	H	H	H	H					2
959	H	H	H	H					2

10

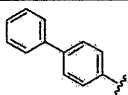
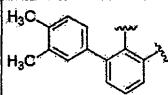
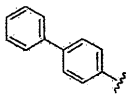
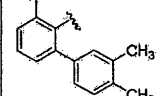
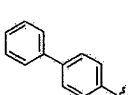
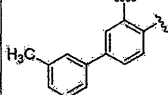
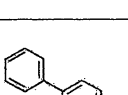
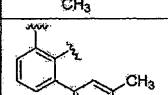
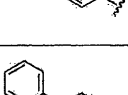
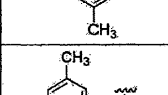
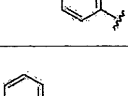
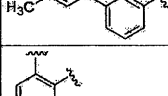
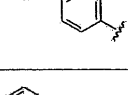
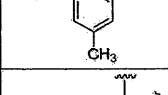
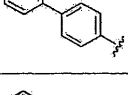
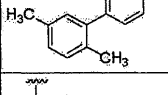
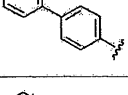
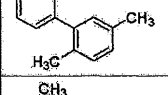
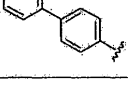
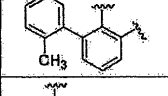
20

30

【 0 2 3 7 】

【表 100】

表1の続き

960	H	H	H	H					2
961	H	H	H	H					2
962	H	H	H	H					2
963	H	H	H	H					2
964	H	H	H	H					2
965	H	H	H	H					2
966	H	H	H	H					2
967	H	H	H	H					2
968	H	H	H	H					2
969	H	H	H	H					2

10

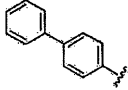
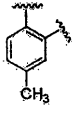
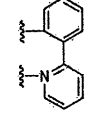
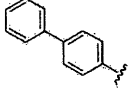
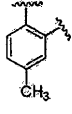
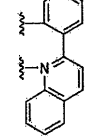
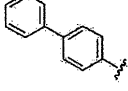
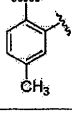
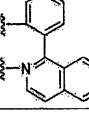
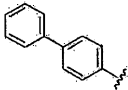
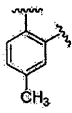
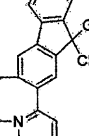
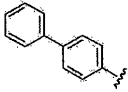
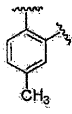
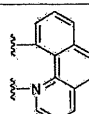
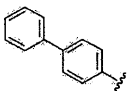
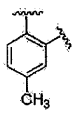
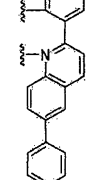
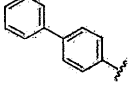
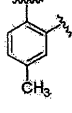
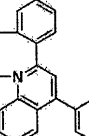
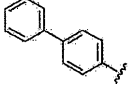
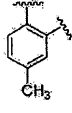
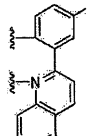
20

30

【0238】

【表 101】

表1の続き

970	H	H	H	H					2
971	H	H	H	H					2
972	H	H	H	H					2
973	H	H	H	H					2
974	H	H	H	H					2
975	H	H	H	H					2
976	H	H	H	H					2
977	H	H	H	H					2

10

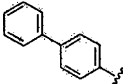
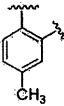
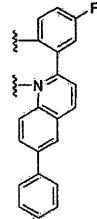
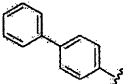
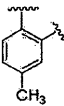
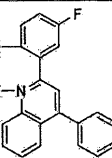
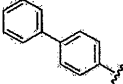
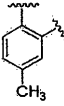
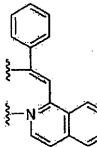
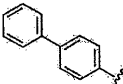
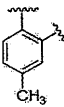
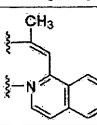
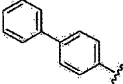
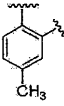
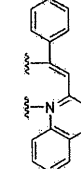
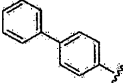
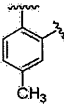
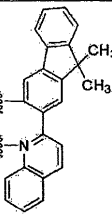
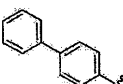
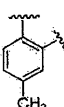
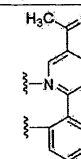
20

30

【0239】

【表 102】

表1の続き

978	H	H	H	H					2
979	H	H	H	H					2
980	H	H	H	H					2
981	H	H	H	H					2
982	H	H	H	H					2
983	H	H	H	H					2
984	H	H	H	H					2

10

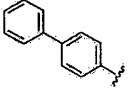
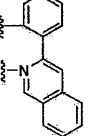
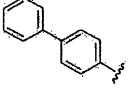
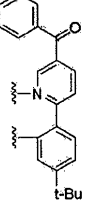
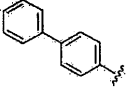
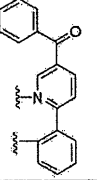
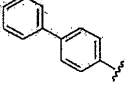
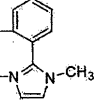
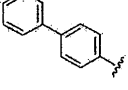
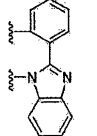
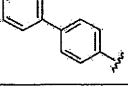
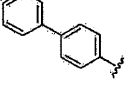
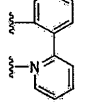
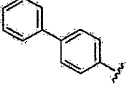
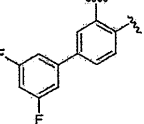
20

30

【0240】

【表 103】

表1の続き

985	H	H	H	H					2
986	H	H	H	H					2
987	H	H	H	H					2
988	H	H	H	H					2
989	H	H	H	H					2
990	H	H	H	H					2
991	H	H	H	H					1
992	H	H	H	H				-	3
993	H	H	H	H					2

【0241】

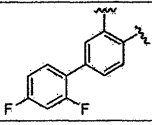
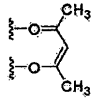
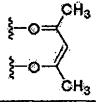
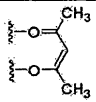
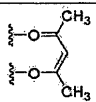
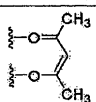
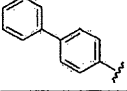
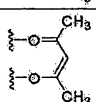
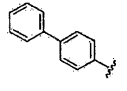
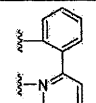
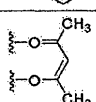
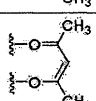
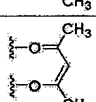
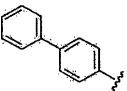
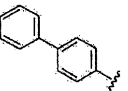
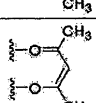
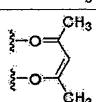
10

20

30

【表 104】

表1の続き

994	H	H	H	H					2
995	H	H	H	H					2
996	H	H	H	H					2
997	H	H	H	H					2
998	H	H	H	H					2
999	H	H	H	H					2
1000	H	H	H	H					2
1001	H	H	H	H					2
1002	H	H	H	H					2
1003	H	H	H	H					2
1004	H	H	H	H					2
1005	H	H	H	H					2

10

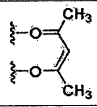
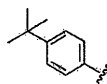
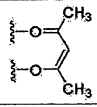
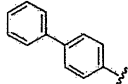
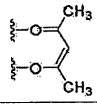
20

30

【0242】

【表 1 0 5】

表1の続き

1006	H	H	H	H					2
1007	H	H	H	H					2
1008	H	H	H	H					2
1009	H	H	H	H				-	3

【 0 2 4 3】

【表 106】

表2

化合物 番号	¹ H NMR(CDCl ₃ , 200 MHz)	MS/FAB	
		実測値	計算値
1	δ = 8.05(m, 2H), 7.87(m, 2H), 7.68-7.61(m, 4H), 7.48-7.43(m, 10H), 7.32(m, 8H), 7.22-7.15(m, 8H), 4.60(s, 1H), 2.35(s, 6H), 2.09(s, 6H)	1032	1032.33
2	δ = 8.04(m, 2H), 7.97(m, 2H), 7.69-7.62(m, 4H), 7.49-7.45(m, 10H), 7.33(m, 8H), 7.22(m, 4H), 7.06(m, 4H), 4.59(s, 1H), 2.09(s, 6H)	1040	1040.28
10	δ = 8.40(m, 2H), 8.05(m, 2H), 7.76(m, 2H), 7.67(m, 8H), 7.48(m, 10H), 7.32-7.22(m, 16H), 4.62(s, 1H), 2.10(s, 6H)	1104	1104.33
11	δ = 8.02(m, 2H), 7.67-7.62(m, 10H), 7.48-7.41(m, 12H), 7.32-7.22(m, 16H), 4.59(s, 1H), 2.12(s, 6H)	1104	1104.33
12	δ = 8.28(s, 2H), 8.05(m, 2H), 7.93(m, 2H), 7.84(m, 2H), 7.68-7.55(m, 6H), 7.48-7.40(m, 10H), 7.38-7.22(m, 16H), 4.58(s, 1H), 2.09(s, 6H), 1.67(s, 12H)	1236	1236.42
40	δ = 8.05(m, 2H), 7.68-7.61(m, 6H), 7.48-7.40(m, 10H), 7.32(m, 8H), 7.22(m, 4H), 7.03(m, 2H), 4.62(s, 1H), 2.36(s, 12H), 2.09(s, 6H)	1060	1060.36
41	δ = 8.05(m, 2H), 7.68-7.61(m, 4H), 7.43-7.40(m, 10H), 7.32-7.22(m, 12H), 6.96(m, 4H), 4.59(s, 1H), 2.36(s, 12H), 2.08(s, 6H)	1060	1060.36
44	δ = 8.05(m, 2H), 7.68-7.60(m, 6H), 7.48-7.43(m, 10H), 7.32(m, 8H), 7.22(m, 4H), 6.88(m, 2H), 4.60(s, 1H), 2.38(s, 12H), 2.09(s, 6H)	1060	1060.36
51	δ = 8.05(m, 2H), 7.70-7.61(m, 6H), 7.48-7.40(m, 10H), 7.33-7.32(m, 10H), 7.22(m, 4H), 6.99(m, 2H), 4.60(s, 1H), 2.09(s, 6H)	1040	1040.28
52	δ = 8.04(m, 2H), 7.68-7.61(m, 4H), 7.48-7.40(m, 10H), 7.32-7.22(m, 14H), 7.12-7.06(m, 4H), 4.58(s, 1H), 2.10(s, 6H)	1040	1040.28
104	δ = 8.21(m, 2H), 8.05(m, 2H), 7.68-7.61(m, 4H), 7.50-7.40(m, 18H), 7.32-7.22(m, 18H), 4.62(s, 1H), 2.08(s, 6H)	1156	1156.36
177	δ = 8.1-7.9(m, 6H), 7.7-7.6(m, 7H), 7.48-7.40(m, 12H), 7.32-7.20(m, 19H), 2.35(s, 6H)	1137	1137.39
182	δ = 8.05-7.99(m, 4H), 7.87(m, 2H), 7.68-7.61(m, 7H), 7.48-7.40(m, 13H), 7.32-7.22(m, 18H), 7.15(m, 4H), 2.35(s, 6H)	1213	1213.39
184	δ = 8.11-8.05(m, 3H), 7.90-7.70(m, 6H), 7.68-7.61(m, 4H), 7.48-7.42(m, 13H), 7.32-7.22(m, 16H), 7.15(m, 4H), 6.99(m, 1H), 2.35(s, 6H)	1231	1231.39
192	δ = 9.03(s, 1H), 8.05-8.01(m, 3H), 7.91-7.81(m, 6H), 7.68-7.61(m, 4H), 7.54-7.43(m, 13H), 7.38-7.32(m, 10H), 7.22-7.15(m, 8H), 2.40(s, 6H), 1.35(s, 9H)	1247	1247.44
202	δ = 8.1-7.9(m, 4H), 7.7-7.6(m, 4H), 7.48-7.40(m, 14H), 7.32-7.22(m, 6H), 7.03-7.01(m, 4H), 6.10(s, 1H), 2.30(s, 3H), 1.71(s, 3H), 1.34(s, 18H)	1152	1152.4
242	δ = 8.05(m, 2H), 7.68-7.60(m, 6H), 7.48-7.43(m, 10H), 7.32(m, 4H), 7.22(m, 2H), 7.03(m, 4H), 6.88(m, 2H), 4.58(s, 1H), 2.32(s, 12H), 2.08(s, 6H)	1096	1096.34
302	δ = 8.21(s, 2H), 8.05(m, 2H), 7.68-7.61(m, 4H), 7.50-7.32(m, 26H), 7.22(m, 4H), 7.03(m, 4H), 4.62(s, 1H), 2.09(s, 6H)	1192	1192.34

10

20

30

【0244】

【表 107】

表2の続き

395	$\delta = 8.56(\text{m}, 2\text{H}), 8.05-7.99(\text{m}, 3\text{H}), 7.87(\text{m}, 1\text{H}), 7.68-7.61(\text{m}, 2\text{H}), 7.54-7.43(\text{m}, 9\text{H}), 7.32-7.22(\text{m}, 9\text{H}), 7.15(\text{m}, 2\text{H}), 7.03-6.98(\text{m}, 4\text{H}), 2.35(\text{s}, 3\text{H})$	889	889.24
396	$\delta = 8.05(\text{m}, 3\text{H}), 7.87(\text{m}, 3\text{H}), 7.68-7.60(\text{m}, 6\text{H}), 7.48-7.43(\text{m}, 15\text{H}), 7.32(\text{m}, 6\text{H}), 7.22-7.15(\text{m}, 9\text{H}), 7.03(\text{m}, 6\text{H}), 2.35(\text{s}, 9\text{H})$	1357	1357.41
413	$\delta = 8.1(\text{m}, 4\text{H}), 7.7-7.6(\text{m}, 8\text{H}), 7.48-7.40(\text{m}, 10\text{H}), 7.36-7.22(\text{m}, 8\text{H}), 7.13-7.03(\text{m}, 10\text{H}), 6.10(\text{s}, 1\text{H}), 2.35(\text{s}, 6\text{H}), 2.30(\text{s}, 3\text{H}), 1.71(\text{s}, 3\text{H})$	1220	1220.43
467	$\delta = 8.1-8.0(\text{m}, 4\text{H}), 7.7-7.6(\text{m}, 4\text{H}), 7.5-7.4(\text{m}, 8\text{H}), 7.36-7.3(\text{m}, 10\text{H}), 7.22-7.12(\text{m}, 6\text{H}), 6.10(\text{s}, 1\text{H}), 2.35(\text{s}, 6\text{H}), 2.30(\text{s}, 3\text{H}), 1.71(\text{s}, 3\text{H})$	1168	1168.25
509	$\delta = 8.2-8.1(\text{m}, 4\text{H}), 7.92-9.7(\text{m}, 6\text{H}), 7.6-7.59(\text{m}, 6\text{H}), 7.5-7.4(\text{m}, 10\text{H}), 7.36-7.32(\text{m}, 8\text{H}), 7.22-7.12(\text{m}, 6\text{H}), 6.10(\text{s}, 1\text{H}), 2.55(\text{s}, 6\text{H}), 2.35(\text{s}, 6\text{H}), 2.30(\text{s}, 3\text{H}), 1.71(\text{s}, 3\text{H})$	1268	1268.52
599	$\delta = 8.1-8.0(\text{m}, 4\text{H}), 7.7-7.6(\text{m}, 8\text{H}), 7.48-7.4(\text{m}, 10\text{H}), 7.35-7.22(\text{m}, 10\text{H}), 6.10(\text{s}, 1\text{H}), 2.30(\text{s}, 3\text{H}), 1.71(\text{s}, 3\text{H}), 1.34(\text{s}, 18\text{H}), 0.66(\text{s}, 18\text{H})$	1260	1260.78
635	$\delta = 8.05(\text{m}, 2\text{H}), 7.68(\text{m}, 4\text{H}), 7.48-7.32(\text{m}, 18\text{H}), 7.22(\text{m}, 2\text{H}), 6.96(\text{m}, 4\text{H}), 4.60(\text{s}, 1\text{H}), 2.35(\text{s}, 12\text{H}), 2.09(\text{s}, 6\text{H}), 1.34(\text{s}, 18\text{H})$	1172	1172.48
638	$\delta = 8.03(\text{m}, 2\text{H}), 7.68-7.60(\text{m}, 6\text{H}), 7.48-7.32(\text{m}, 18\text{H}), 7.22(\text{m}, 2\text{H}), 6.88(\text{s}, 2\text{H}), 4.59(\text{s}, 1\text{H}), 2.34(\text{s}, 12\text{H}), 2.05(\text{s}, 6\text{H}), 1.32(\text{s}, 18\text{H})$	1172	1172.48
645	$\delta = 8.04(\text{m}, 2\text{H}), 7.70-7.61(\text{m}, 6\text{H}), 7.48-7.32(\text{m}, 20\text{H}), 7.22(\text{m}, 2\text{H}), 6.99(\text{m}, 2\text{H}), 4.58(\text{s}, 1\text{H}), 2.09(\text{s}, 6\text{H}), 1.32(\text{s}, 18\text{H})$	1152	1152.40
698	$\delta = 8.21(\text{m}, 2\text{H}), 8.05(\text{m}, 2\text{H}), 7.68-7.61(\text{m}, 4\text{H}), 7.50-7.32(\text{m}, 30\text{H}), 7.22(\text{m}, 4\text{H}), 4.58(\text{s}, 1\text{H}), 2.08(\text{s}, 6\text{H}), 1.35(\text{s}, 18\text{H})$	1268	1268.48
749	$\delta = 8.1-7.9(\text{m}, 4\text{H}), 7.7-7.6(\text{m}, 4\text{H}), 7.5-7.4(\text{m}, 14\text{H}), 7.35-7.22(\text{m}, 10\text{H}), 6.73(\text{m}, 4\text{H}), 6.10(\text{s}, 1\text{H}), 2.35(\text{s}, 18\text{H}), 2.30(\text{s}, 3\text{H}), 1.71(\text{s}, 3\text{H}), 1.34(\text{s}, 18\text{H})$	1352	1352.77
814	$\delta = 8.1-7.6(\text{m}, 12\text{H}), 7.54-7.40(\text{m}, 18\text{H}), 7.37-7.32(\text{m}, 12\text{H}), 7.22-6.83(\text{m}, 8\text{H}), 6.1(\text{s}, 1\text{H}), 3.73(\text{s}, 6\text{H}), 2.30(\text{s}, 3\text{H}), 1.71(\text{s}, 3\text{H})$	1368	1368.64
862	$\delta = 8.1-7.7(\text{m}, 4\text{H}), 7.6-7.54(\text{m}, 6\text{H}), 7.5-7.4(\text{m}, 12\text{H}), 7.32-7.3(\text{m}, 10\text{H}), 7.28-7.20(\text{m}, 10\text{H}), 6.1(\text{s}, 1\text{H}), 2.30(\text{s}, 3\text{H}), 1.71(\text{s}, 3\text{H})$	1292	1292.39
974	$\delta = 8.8(\text{m}, 1\text{H}), 8.1-7.9(\text{m}, 5\text{H}), 7.7-7.6(\text{m}, 6\text{H}), 7.54-7.48(\text{m}, 16\text{H}), 7.4-7.32(\text{m}, 11\text{H}), 7.30-7.20(\text{m}, 11\text{H}), 2.35(\text{s}, 6\text{H})$	1263	1263.55
995	$\delta = 8.05(\text{d}, 2\text{H}), 7.99(\text{m}, 2\text{H}), 7.68(\text{m}, 4\text{H}), 7.48(\text{m}, 11\text{H}), 7.35(\text{m}, 12\text{H}), 7.28(\text{m}, 6\text{H}), 1.71(\text{s}, 3\text{H}), 1.31(\text{s}, 3\text{H})$	1004	1004.3
1008	$\delta = 8.05-7.99(\text{m}, 4\text{H}), 7.68-7.61(\text{m}, 4\text{H}), 7.54(\text{m}, 8\text{H}), 7.48-7.43(\text{m}, 10\text{H}), 7.35-7.32(\text{m}, 12\text{H}), 7.28-7.22(\text{m}, 6\text{H}), 4.62(\text{s}, 1\text{H}), 2.10(\text{s}, 6\text{H})$	1156	1156.36

10

20

30

【0245】

実施例 1

OLED (1) の製造

本発明による有機エレクトロルミネッセンス化合物を使用して OLED デバイスを製造した。

【0246】

最初に、OLED 用ガラス (サムソン・コーニング (Samsung Corning 製造) (1) から作製した透明電極 ITO 薄膜 (15 $\Omega/\square$) (2) に対して、トリクロロエチレン、アセトン、エタノール、および蒸留水を順次用いた超音波洗浄を行い、使用するまでイソプロパノール中で保管した。

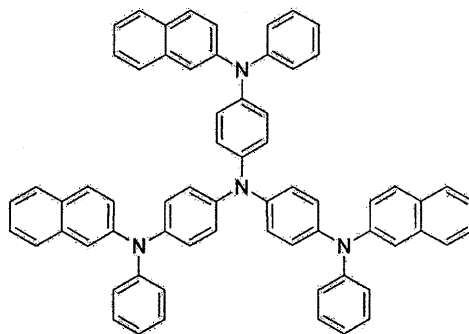
40

【0247】

次に、ITO 基体を真空蒸着装置の基体ホルダーに取り付け、4, 4', 4''-トリス (N, N-(2-ナフチル)-フェニルアミノ)トリフェニルアミン (2-TNATA) を真空蒸着装置のセル内に入れ、次いで装置を 10^{-6} のチャンバー内の真空まで排気した。セルに電流を印加して 2-TNATA を蒸発させ、それによって ITO 基体上に 60 nm の厚さを有する正孔注入層 (3) を蒸着した。

【0248】

【化 5 8】



2-TNATA

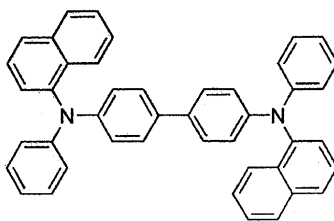
10

【 0 2 4 9 】

次に、真空蒸着装置の別のセルに、N, N' - ビス(α - ナフチル) - N, N' - ジフェニル - 4, 4' - ジアミン(NPB)を投入し、セルに電流を印加してNPBを蒸発させ、それによって正孔注入層上に厚さ20nmの正孔輸送層(4)を蒸着した。

【 0 2 5 0 】

【化 5 9】



NPB

20

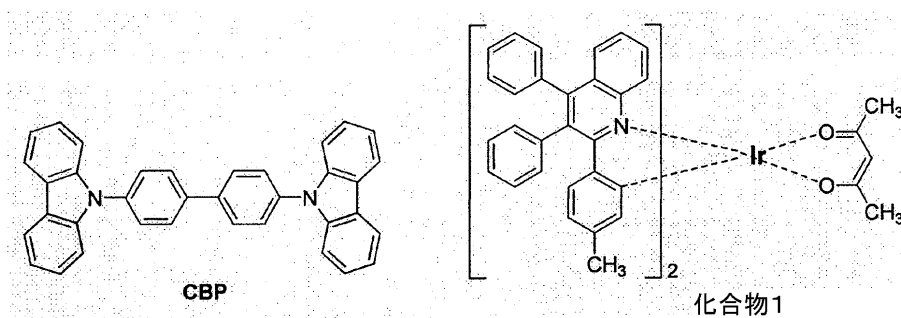
【 0 2 5 1 】

上記真空蒸着装置の別のセルに、4, 4' - N, N' - ジカルバゾール - ビフェニル(CBP)をエレクトロルミネッセンスのホスト材料として投入し、本発明による有機エレクトロルミネッセンス化合物(たとえば化合物1)をさらに別のセルに投入した。これら2つの材料を異なる速度で蒸発させてドーピングを行い、正孔輸送層上に30nmの厚さを有するエレクトロルミネッセンス層(5)を蒸着した。好適なドーピング濃度は、CBPを基準にして4~10mol%である。

30

【 0 2 5 2 】

【化 6 0】



CBP

化合物1

40

【 0 2 5 3 】

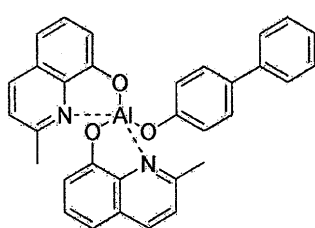
次に、エレクトロルミネッセンス層上に、ビス(2 - メチル - 8 - キノリナト)(p - フェニルフェノラト)アルミニウム(III)(BA1q)を正孔ブロッキング層として10nmの厚さでNPBと同じ方法で蒸着し、トリス(8 - ヒドロキシキノリン)アルミニウム(III)(A1q)を電子輸送層(6)として厚さ20nmで蒸着し、その後リ

50

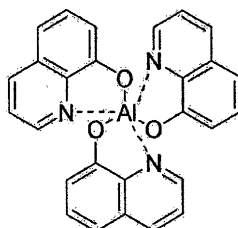
チウムキノレート (Li q) を電子注入層 (7) として厚さ 1 ~ 2 nm で蒸着した。その後、別の真空蒸着装置を使用して Al カソード (8) を厚さ 150 nm で蒸着して、OLED を製造した。

【0254】

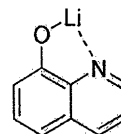
【化61】



BAlq



Alq



Li q

10

【0255】

実施例 2

OLED (2) の製造

実施例 1 の手順により正孔注入層および正孔輸送層を形成し、その上に以下のようにしてエレクトロルミネッセンス層を蒸着した。上記真空蒸着装置の別のセルに、本発明によるエレクトロルミネッセンスのホスト材料として H-2 を投入し、さらに別のセルに本発明による有機エレクトロルミネッセンス化合物 (化合物 177) を投入した。これら 2 つの材料を異なる速度で蒸発させてドーピングを行い、正孔輸送層上に 30 nm の厚さを有するエレクトロルミネッセンス層 (5) を蒸着した。好適なドーピング濃度は、ホストを基準にして 4 ~ 10 mol % である。次に、実施例 1 と同じ手順により、正孔ブロッキング層、電子輸送層、および電子注入層を蒸着し、次いで別の真空蒸着装置を使用して Al カソードを厚さ 150 nm で蒸着して、OLED を製造した。

20

【0256】

実施例 3

OLED (3) の製造

実施例 2 と同じ手順により正孔注入層、正孔輸送層、およびエレクトロルミネッセンス層を形成し、次いで電子輸送層および電子注入層を蒸着した。その後、別の真空蒸着装置を使用して Al カソードを厚さ 150 nm で蒸着して、OLED を製造した。

30

【0257】

実施例 1 で作製した OLED の性能を確認するために、その OLED の発光効率を 10 mA / cm² において測定した。種々の特性を表 3 に示す。

【0258】

【表 108】

表3

	材料	ホスト	正孔 ブロッキング層	EL 色	動作電圧	最大発光効率 (cd/A)
実施例1	化合物 1	CBP	BAlq	赤色	7.7	10.6
	化合物 10	CBP	BAlq	赤色	7.8	9.3
	化合物 44	CBP	BAlq	赤色	7.6	10.8
	化合物 177	CBP	BAlq	赤色	8.0	11.6
	化合物 374	CBP	BAlq	赤色	8.1	11.4
	化合物 379	CBP	BAlq	赤色	8.2	10.2
	化合物 589	CBP	BAlq	赤色	7.9	12.1
	化合物 643	CBP	BAlq	赤色	8.1	10.6
実施例2	化合物 790	CBP	BAlq	赤色	8.3	10.3
	化合物 177	H-2	BAlq	赤色	8.1	11.4
	化合物 374	H-7	BAlq	赤色	8.1	11.3
実施例3	化合物 790	H-64	BAlq	赤色	8.0	10.5
	化合物 44	H-8	-	赤色	6.8	11.3
	化合物 589	H-12	-	赤色	7.1	12.2
	化合物 790	H-64	-	赤色	7.1	10.6

10

【0259】

化合物(10)の場合、2-ナフチルの導入によって、効率は幾分低下したが、HOM
Oレベルに影響し、色座標が向上する効果が得られた。それぞれ2-フェニルキノリン、
ppy、フェニル(6-フェニルピリジン-3-イル)メタノンを補助配位子として導入
した化合物(177)、(374)、および(589)は、本発明による化合物の中で最
高の発光効率(それぞれ11.6cd/A、11.4cd/A、および12.1cd/A
)を示した。したがって、適切な補助配位子を使用することによってリン光デバイスの発
光効率を向上することができる。

20

【0260】

同一のデバイス構造の場合、ELデバイス中にCBPの代わりに本発明によるホストを
使用しても、効率、色座標、および動作電圧において、CPBのものからの顕著な変化は
もたらされなかった。したがって、これらのホストは、従来のエレクトロルミネッセンス
のホストとしてのCBPの代わりに、本発明によるドーパントとともに使用する場合、
リン光性ホストとして使用することができることが期待される。本発明によるホストを、
正孔ブロッキング層を使用することなく、使用する場合、このデバイスは、従来のホスト
を使用したデバイスと比較して同等またはより高い発光効率を示し、動作電圧が0.8~
0.9V低下するためにOLEDの減少した電力消費をもたらす。本発明がOLEDの大量
生産に使用されると、大量生産のための時間も短縮することができ、商業化において大
きな利点となりうる。

30

【符号の説明】

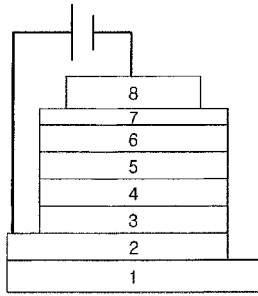
【0261】

- 1 ガラス
- 2 透明電極
- 3 正孔注入層
- 4 正孔輸送層
- 5 エレクトロルミネッセンス層
- 6 電子輸送層
- 7 電子注入層
- 8 A1カソード

40

【図 1】

図 1



フロントページの続き

(51)Int.Cl. F I テーマコード(参考)
H 0 1 L 31/04 D

- (72)発明者 ユム, サン・チン
大韓民国, ソウル・152-053, グロ-グウ, グロ・3-ドン・1274, シンサン・ミソジ
ウム・104-805
- (72)発明者 チョー, ヤン・チュン
大韓民国, ソウル・136-060, ソンブク-グウ, ドナム-ドン・15-1, サムスン・アパ
ートメント・101-1111
- (72)発明者 クォン, ヒョク・チュー
大韓民国, ソウル・130-100, ドンデムン-グウ, チャンガン・ドン, サムスン・レミアン
・2・チャ・アパートメント・224-2001
- (72)発明者 キム, ボン・ゴク
大韓民国, ソウル・135-090, ガンナム-グウ, サムソン-ドン・4, ハンソル・アパ
ートメント, 101-1108
- (72)発明者 キム, ソン・ミン
大韓民国, ソウル・157-886, カンソ-グウ, ファゴク-8・ドン・392-27, サーレ
ムハウス・102-ホ
- (72)発明者 ユーン, スン・スー
大韓民国, ソウル・135-884, ガンナム-グウ, スソ-ドン, サミク・アパートメント・4
05-1409

F ターム(参考) 3K107 AA01 BB01 CC04 CC07 CC21 CC42 DD53 DD59 DD64 DD67
DD68 DD69 DD71 DD73 DD74 DD78 DD84
4H050 AA01 AA03 AB92 WB11 WB13 WB14 WB21
5F051 AA11

【外国語明細書】

2009137949000001.pdf

2009137949000002.pdf

2009137949000003.pdf

2009137949000004.pdf