

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第5554914号
(P5554914)

(45) 発行日 平成26年7月23日 (2014. 7. 23)

(24) 登録日 平成26年6月6日 (2014. 6. 6)

(51) Int. Cl.

F I

C O 7 F 15/00 (2006. 01)

C O 7 F 15/00 C S P E

C O 9 K 11/06 (2006. 01)

C O 9 K 11/06 6 6 O

H O 1 L 51/50 (2006. 01)

H O 5 B 33/14 B

H O 5 B 33/22 B

H O 5 B 33/22 D

請求項の数 9 外国語出願 (全 169 頁)

(21) 出願番号 特願2008-281102 (P2008-281102)
 (22) 出願日 平成20年10月31日 (2008. 10. 31)
 (65) 公開番号 特開2009-137941 (P2009-137941A)
 (43) 公開日 平成21年6月25日 (2009. 6. 25)
 審査請求日 平成23年10月28日 (2011. 10. 28)
 (31) 優先権主張番号 10-2007-0111837
 (32) 優先日 平成19年11月5日 (2007. 11. 5)
 (33) 優先権主張国 韓国 (KR)

(73) 特許権者 507256407
 グレイセル・ディスプレイ・インコーポレ
 ーテッド
 GRACE L DISPLAY INC.
 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
 特許業務法人センダ国際特許事務所
 (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】 新規な有機エレクトロルミネセント化合物及びこれを使用する有機エレクトロルミネセントデバイス

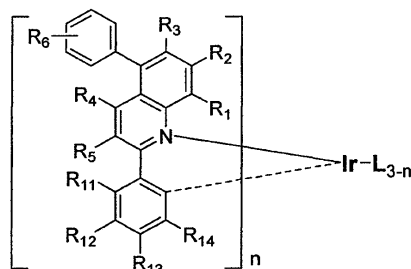
(57) 【特許請求の範囲】

【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セント化合物：

【化 1】

化学式1

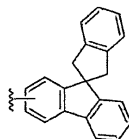


式中、L は有機配位子であり、

$R_1 \sim R_5$ 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)アルキルシリル又はトリ(C6～C60)アリールシリルを表し、

R_6 は、水素、(C1～C60)アルキル、ハロゲン又は(C6～C60)アリールを表し、

$R_{11} \sim R_{14}$ 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若しくは、
【化2】



10

を表し、

$R_{11} \sim R_{14}$ のアルキル；フェニル；ナフチル；アントリル；フルオレニルは、ハロゲン置換基を有する又は有しない(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、(C6～C60)アリールカルボニル、ジ(C1～C60)アルキルアミノ、ジ(C6～C60)アリールアミノ及び(C6～C60)アリールから選択された1種以上の置換基によって更に置換されていてよく、並びに、

n は、1～3の整数である。

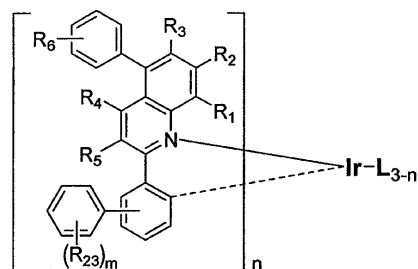
20

【請求項2】

化学式(5)～(6)の一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セント化合物：

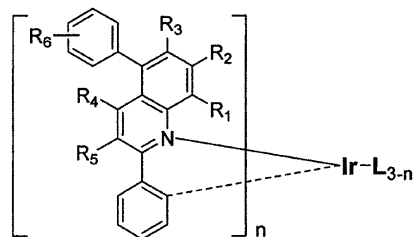
【化3】

化学式5



30

化学式6



40

式中、 L 、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 及び n は、請求項1の化学式(1)におけるのと同様に定義され、

R_{23} 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、フェニル、ジ

50

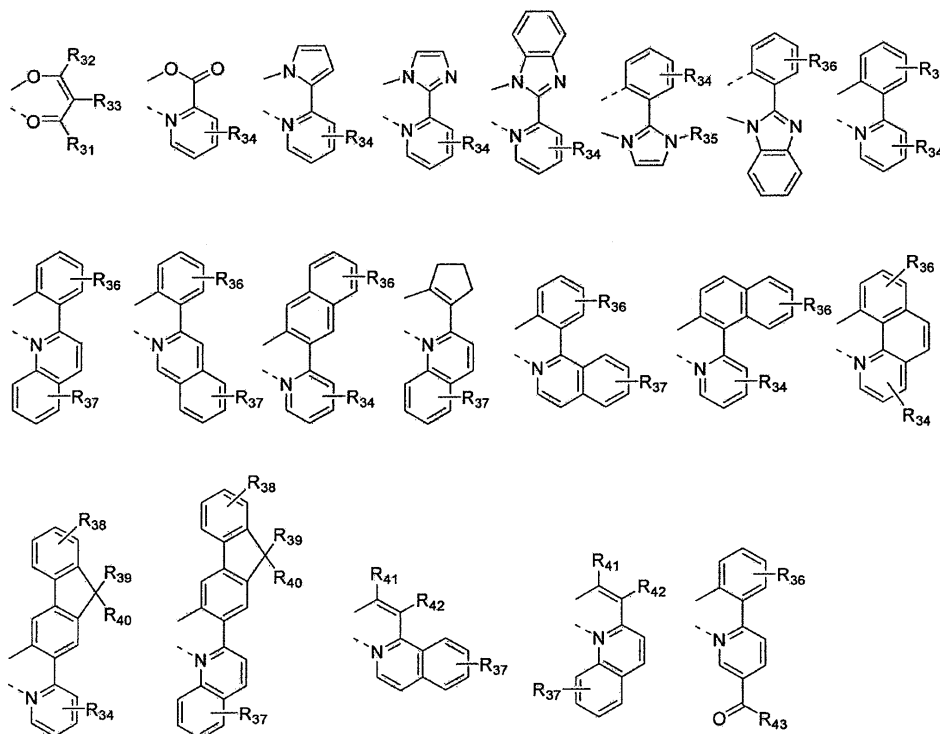
(C1～C60)アルキルアミノ、ジ(C6～C60)アリアルアミノ、ナフチル、9,9-ジ(C1～C60)アルキルフルオレニル又は9,9-ジ(C6～C60)アリアルフルオレニルを表し、並びに、

mは、1～5の整数である。

【請求項3】

配位子(L)が、下記の化学式の一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セント化合物：

【化4】



10

20

式中、R₃₁及びR₃₂は、独立に、水素；ハロゲン置換基を有する若しくは有しない(C1～C60)アルキル；(C1～C60)アルキル置換基を有する若しくは有しないフェニル；又はハロゲンを表し、

30

R₃₃～R₃₈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若しくは有しないフェニル；トリ(C1～C60)アルキルシリル；又はハロゲンを表し、

R₃₉～R₄₂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又は有しないフェニルを表し、および、

R₄₃は、(C1～C60)アルキル；(C1～C60)アルキル置換基を有する若しくは有しないフェニル；又はハロゲンを表す。

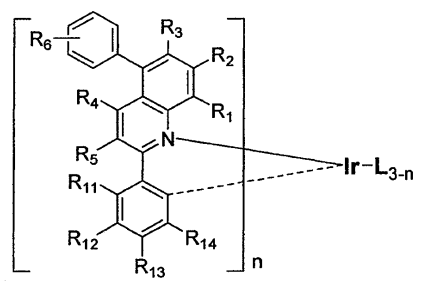
【請求項4】

第一電極、第二電極及び第一電極と第二電極との間に介在させられた少なくとも1つの有機層を含む有機エレクトロルミネセントデバイスであって、前記有機層が、化学式(1)：

40

【化 5】

化学式1



10

[式中、L は有機配位子であり、

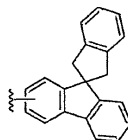
$R_1 \sim R_5$ は、独立に、水素、(C 1 ~ C 6 0) アルキル、(C 1 ~ C 6 0) アルコキシ、(C 3 ~ C 6 0) シクロアルキル、ハロゲン、トリ(C 1 ~ C 6 0) アルキルシリル又はトリ(C 6 ~ C 6 0) アリールシリルを表し、

R_6 は、水素、(C 1 ~ C 6 0) アルキル、ハロゲン又は(C 6 ~ C 6 0) アリールを表し、

$R_{11} \sim R_{14}$ は、独立に、水素、(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若しくは

20

【化 6】



を表し、

$R_{11} \sim R_{14}$ のアルキル；フェニル；ナフチル；アントリル；フルオレニルは、ハロゲン置換基を有する又は有しない(C 1 ~ C 6 0) アルキル、(C 1 ~ C 6 0) アルコキシ、ハロゲン、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) アリールアミノ及び(C 6 ~ C 6 0) アリールから選択された 1 種以上の置換基によって更に置換されていてよく、並びに n は、1 ~ 3 の整数である]

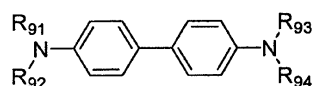
30

によって表される有機エレクトロルミネセント化合物と、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)シラン及び化学式(6) ~ (9)の一つによって表される化合物から選択された 1 種以上のホストとを含むエレクトロルミネセント領域を含む有機エレクトロルミネセントデバイス：

40

【化 7】

化学式6



[化学式(6)において、 $R_{91} \sim R_{94}$ は、独立に、水素；ハロゲン；(C 1 ~ C 6 0)

50

) 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 及び S から選択された 1 個以上のヘテロ原子を含有する 5 員若しくは 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 ; ニトロ若しくはヒドロキシルを表し、又は R_{9,1} ~ R_{9,4} のそれぞれは、縮合環を有する若しくは有しない (C 3 ~ C 6 0) アルキレン若しくは (C 3 ~ C 6 0) アルケニレンによって、隣接する置換基に結合されて、脂環式環又は単環式若しくは多環式芳香族環を形成してもよく、

10

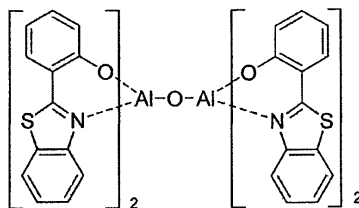
R_{9,1} ~ R_{9,4} のアルキル、アルケニル、アルキニル、シクロアルキル、ヘテロシクロアルキル、アリール、ヘテロアリール、アリールシリル、アルキルシリル、アルキルアミノ若しくはアリールアミノ、又は縮合環を有する若しくは有しない (C 3 ~ C 6 0) アルキレン若しくは (C 3 ~ C 6 0) アルケニレンによる、隣接する置換基への結合によってそれらから形成された脂環式環又は単環式若しくは多環式芳香族環は、ハロゲン ; (C 1 ~ C 6 0) アルキル ; (C 6 ~ C 6 0) アリール ; (C 4 ~ C 6 0) ヘテロアリール ; N、O 及び S から選択された 1 個以上のヘテロ原子を含有する 5 員若しくは 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た 1 種以上の置換基によって更に置換されていてよい]、

20

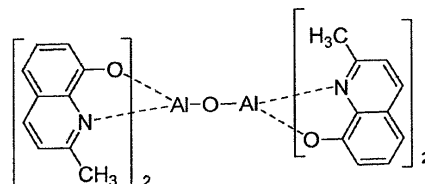
30

【化 8】

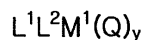
化学式7



化学式8

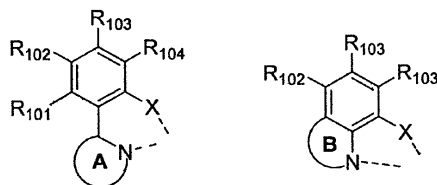


化学式9



〔化学式(9)において、配位子、 L^1 及び L^2 は、独立に、下記の構造から選択され：

【化 9】



M^1 は、2 価又は 3 価金属であり、

y は、 M^1 が 2 価金属であるとき 0 であるが、 M^1 が 3 価金属であるとき 1 であり、

Q は、(C 6 ~ C 2 0) アリールオキシ又はトリ(C 6 ~ C 2 0) アリールシリルを表し、 Q のアリールオキシ及びトリアリールシリルは、(C 1 ~ C 6 0) アルキル又は(C 6 ~ C 6 0) アリールによって更に置換されていてよく、

X は、O、S 又は S e 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、ベンゾイミダゾール、ピリジン又はキノリンを表し、

環 B は、ピリジン又はキノリンを表し、環 B は、(C 1 ~ C 6 0) アルキル；(C 1 ~ C 6 0) アルキル置換基を有する又は有しないフェニル又はナフチル；によって更に置換されていてよく、

$R_{101} \sim R_{104}$ 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 及び S から選択された 1 個以上のヘテロ原子を含有する 5 員若しくは 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

10

20

30

40

50

ルカルボニル；（C₆～C₆₀）アリアルカルボニル；カルボキシル；ニトロ若しくはヒドロキシルを表し、又はR₁₀₁～R₁₀₄のそれぞれは、縮合環を有する若しくは有しない、（C₃～C₆₀）アルキレン若しくは（C₃～C₆₀）アルケニレンによって、隣接する置換基に結合されて、脂環式環又は単環式若しくは多環式芳香族環を形成してもよく、

環A及び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、アルキルアミノ若しくはアリールアミノ、又は縮合環を有する若しくは有しない（C₃～C₆₀）アルキレン若しくは（C₃～C₆₀）アルケニレンによる、隣接する置換基への結合によってそれらから形成された脂環式環又は単環式若しくは多環式芳香族環は、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及びSから選択された1個以上のヘテロ原子を含有する5員若しくは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た1種以上の置換基によって更に置換されていてよい】。

【請求項5】

前記有機層が、アリールアミン化合物及びスチリルアリールアミン化合物からなる群から選択された1種以上の化合物；又は第1族、第2族、第4周期及び第5周期遷移金属、ランタニド金属並びにd-遷移元素の有機金属からなる群から選択された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セントデバイス。

【請求項6】

同時に、青又は緑の波長でエレクトロルミネセントピークを有する有機エレクトロルミネセントを含む、請求項4記載の有機エレクトロルミネセントデバイス。

【請求項7】

前記有機層が、エレクトロルミネセント層及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セントデバイス。

【請求項8】

還元的ドーパント及び有機物質の混合領域又は酸化的ドーパント及び有機物質の混合領域が、電極の対の間の片方又は両方の電極の内側表面上に配置されている、請求項4記載の有機エレクトロルミネセントデバイス。

【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セント化合物を含む有機太陽電池；

10

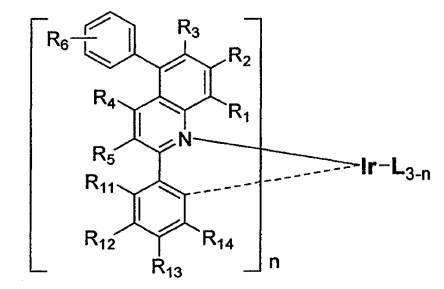
20

30

40

【化 10】

化学式1



10

式中、Lは有機配位子であり、

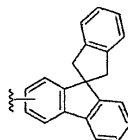
$R_1 \sim R_5$ は、独立に、水素、(C1～C60)アルキル、(C1～C60)アルコキシ、(C3～C60)シクロアルキル、ハロゲン、トリ(C1～C60)アルキルシリル又はトリ(C6～C60)アリールシリルを表し、

R_6 は、水素、(C1～C60)アルキル、ハロゲン又は(C6～C60)アリールを表し、

$R_{11} \sim R_{14}$ 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若しくは

20

【化 11】



を表し、

$R_{11} \sim R_{14}$ のアルキル；フェニル；ナフチル；アントリル；フルオレニルは、ハロゲン置換基を有する又は有しない(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；(C6～C60)アリールカルボニル；ジ(C1～C60)アルキルアミノ；ジ(C6～C60)アリールアミノ及び(C6～C60)アリールから選択された1種以上の置換基によって更に置換されていてよく、並びに

30

n は、1～3の整数である】。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

40

本発明は、高い発光効率を示す新規な有機エレクトロルミネセント化合物及びこれを使用する有機エレクトロルミネセントデバイスに関する。

【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ための最も重要な要因は、エレクトロルミネセント材料の種類である。現在まで、エレクトロルミネセント材料として蛍光材料が広く使用されてきたけれども、りん光材料の開発は、エレクトロルミネセント機構を考慮すると、理論的に4倍まで発光効率を改良するための最良の方法の一つである。

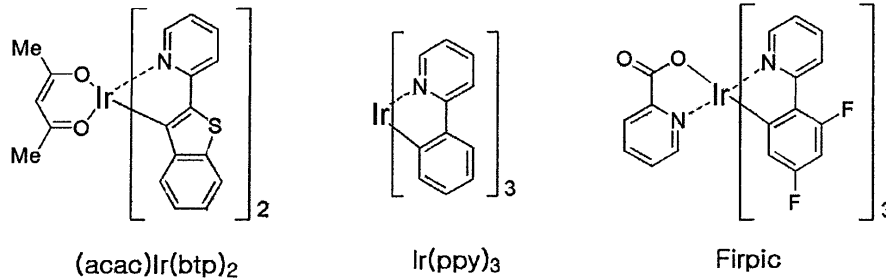
【0003】

50

現在まで、りん光材料として、それぞれ赤色、緑色及び青色の物として、(acac)Ir(btp)₂、Ir(ppy)₃及びFirpicを含む、イリジウム(III)錯体が広く知られている。特に、沢山のりん光材料が最近、日本、欧州及び米国において研究されている。

【0004】

【化1】



10

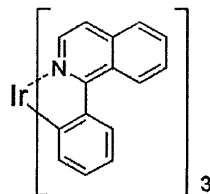
【0005】

従来の赤色りん光材料の中で、幾つかの材料が、良好なEL(エレクトロルミネセンス)特性を有すると報告されている。しかしながら、これらの中で商業化のレベルに到達しているの材料はほとんどなかった。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】



1-フェニルイソキノリン

30

【0007】

更に、寿命の顕著な問題点を有しない赤色材料は、もし、それらが良好な色純度又は発光効率を有するならば、容易に商業化しやすい。従って、上記のイリジウム錯体は、その優れた色純度及び発光効率に起因して、非常に高い商業化の可能性を有する材料である。

【0008】

しかしながら、中サイズから大サイズのOLEDパネルのためには、既知の材料のものよりも高いEL特性のレベルが実際には必要であるが、このイリジウム錯体は、まだ、単に小さいディスプレイに適用可能である材料として解釈されている。

40

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

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0009】

上記のような従来技術の問題点を克服するための、集中的な努力によって、本発明者らは、新規な有機エレクトロルミネセント化合物を開発するために研究して、優れた発光効率及び驚くほど改良された寿命を有する有機ELデバイスを実現した。遂に、本発明者らは、キノリン及びベンゼン誘導体からなる主配位子化合物において、キノリンの5位でフェニル誘導体を導入することによって合成されたイリジウム錯体を、エレクトロルミネセ

50

ントデバイスのドーパントとして適用するとき、発光効率及び寿命特性が改良されることを見出し、本発明を完成した。従って、本発明の目的は、従来の赤色りん光材料のものに対して比較したとき、一層優れた特性を与えるバックボーンを有する、新規な化合物を提供することである。本発明の他の目的は、中サイズから大サイズのOLEDパネルに適用可能である、新規な有機エレクトロルミネセント化合物を提供することである。

【0010】

本発明の更に他の目的は、この新規な有機エレクトロルミネセント化合物を含む、有機エレクトロルミネセントデバイス及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】

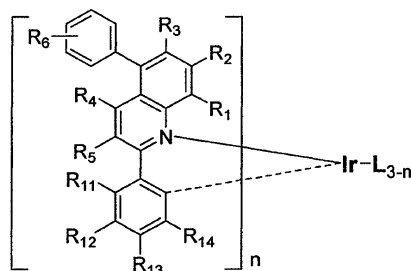
【0011】

従って、本発明は、新規な有機エレクトロルミネセント化合物及びこの化合物を含有する有機エレクトロルミネセントデバイスに関する。特に、本発明に従った有機エレクトロルミネセント化合物は、これらが、下記化学式(1)によって表されることで特徴付けられる。

【0012】

【化3】

化学式1



【0013】

式中、Lは有機配位子であり、

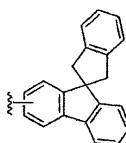
$R_1 \sim R_5$ は、独立に、水素、(C1～C60)アルキル、(C1～C60)アルコキシ、(C3～C60)シクロアルキル、ハロゲン、トリ(C1～C60)アルキルシリル又はトリ(C6～C60)アリーールシリルを表し、

R_6 は、水素、(C1～C60)アルキル、ハロゲン又は(C6～C60)アリーールを表し、

$R_{11} \sim R_{14}$ 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)アリーールカルボニル、ジ(C1～C60)アルキルアミノ、ジ(C6～C60)アリーールアミノ、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若しくは、

【0014】

【化4】



【0015】

を表し、又は $R_{11} \sim R_{14}$ のそれぞれは、縮合環を有する若しくは有しない(C3～C12)アルキレン若しくは(C3～C12)アルケニレンによって、 $R_{11} \sim R_{14}$ から他の隣接する基に結合されて、脂環式環又は単環式若しくは多環式芳香族環を形成してもよく、

$R_{11} \sim R_{14}$ のアルキル；フェニル；ナフチル；アントリル；フルオレニル；並びに縮合環を有する又は有しない（ $C3 \sim C12$ ）アルキレン又は（ $C3 \sim C12$ ）アルケニレンによる結合によってそれらから形成される脂環式環又は単環式若しくは多環式芳香族環；は、ハロゲン置換基を有する又は有しない（ $C1 \sim C60$ ）アルキル、（ $C1 \sim C60$ ）アルコキシ、ハロゲン、トリ（ $C1 \sim C60$ ）アルキルシリル、トリ（ $C6 \sim C60$ ）アリールシリル、（ $C1 \sim C60$ ）アルキルカルボニル、（ $C6 \sim C60$ ）アリールカルボニル、ジ（ $C1 \sim C60$ ）アルキルアミノ、ジ（ $C6 \sim C60$ ）アリールアミノ及び（ $C6 \sim C60$ ）アリールから選択された１種以上の置換基によって更に置換されていてよく、並びに、

n は、１～３の整数である。

10

【００１６】

図面を言及すると、図１は、ガラス１、透明電極２、正孔注入層３、正孔輸送層４、エレクトロルミネセント層５、電子輸送層６、電子注入層７及びＡ１カソード８を含有する、ＯＬＥＤの断面図を示す。

【００１７】

本明細書中に記載された用語「アルキル」及び「アルキル」部分を含む任意の置換基は、線状種及び枝分かれ種の両方を含む。

【００１８】

本明細書中に記載された用語「アリール」は、１個の水素原子の除去によって、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又は縮合環系を含む。具体例には、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、ナフタセニル及びフルオランテニルが含まれるが、これらに限定されない。

20

【００１９】

本明細書中に記載された用語「ヘテロアリール」は、 N 、 O 及び S から選択された１～４個のヘテロ原子並びに残りの芳香族環主鎖原子のための炭素原子を含有するアリール基を意味する。ヘテロアリール基は、５員又は６員の、単環式ヘテロアリール又は１個以上のベンゼン環と縮合された多環式ヘテロアリールであってよく、おおよび部分的に飽和されていてよい。ヘテロアリール基中のヘテロ原子は、酸化されるか又は四級化されて、二価のアリール基、例えば N -オキシド及び第四級塩を形成してしてもよい。具体例には、単環式ヘテロアリール基、例えば、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、ピリジニル、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、例えば、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、ベンゾイミダゾリル、ベンゾチアゾリル、ベンゾイソチアゾリル、ベンゾイソオキサゾリル、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及びベンゾジオキサソリル；並びにこれらの対応する N -オキシド（例えば、ピリジニル N -オキシド、キノリル N -オキシド）及び第四級塩が含まれるが、これらに限定されない。

30

40

【００２０】

化学式（１）のナフチルは、１-ナフチル又は２-ナフチルであってよく、アントリルは、１-アントリル、２-アントリル又は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-フルオレニル又は９-フルオレニルであってよい。

【００２１】

本明細書中に記載された「（ $C1 \sim C60$ ）アルキル」部分を含む置換基は、１～６０個の炭素原子、１～２０個の炭素原子又は１～１０個の炭素原子を含有してよい。「（ C

50

「6～C60）アリール」部分を含む置換基は、6～60個の炭素原子、6～20個の炭素原子又は6～12個の炭素原子を含有してよい。「(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個の炭素原子又は4～12個の炭素原子を含有してよい。「(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個の炭素原子又は3～7個の炭素原子を含有してよい。「(C2～C60）アルケニル又はアルキニル」部分を含む置換基は、2～60個の炭素原子、2～20個の炭素原子又は2～10個の炭素原子を含有してよい。

【0022】

縮合環を有する若しくは有しない(C3～C12)アルキレン又は(C3～C12)アルケニレンによる結合によって、化学式(1)中の $R_{11} \sim R_{14}$ の2個の隣接する基から形成される脂環式環又は単環式若しくは多環式芳香族環は、ベンゼン、ナフタレン、アントラセン、フルオレン、インデン又はフェナントレンである。大括弧〔 〕内の化合物はイリジウムの主配位子として機能し、Lは副配位子として機能する。また、本発明に従った有機エレクトロルミネセント化合物には、主配位子：副配位子＝2：1の比を有する錯体($n=2$)及び主配位子：副配位子＝1：2の比を有する錯体($n=1$)並びに副配位子(L)を含有しないトリスキレート化錯体($n=3$)が含まれる。

10

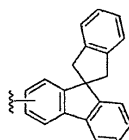
【0023】

$R_{11} \sim R_{14}$ 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、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、フルオレニル又は

20

【0024】

【化5】



30

【0025】

を表し、このフルオレニルは、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又はトリフェニルシリルによって、更に置換されていてよい。

【0026】

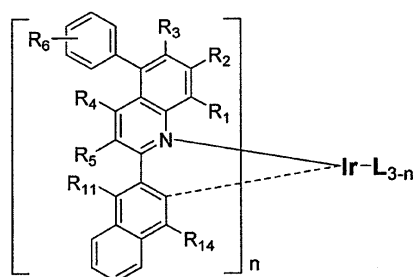
本発明に従った有機エレクトロルミネセント化合物は、化学式(2)～(6)の一つによって表される化合物によって例示することができる。

40

【0027】

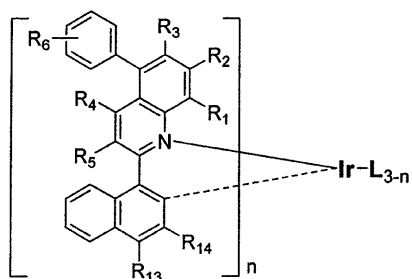
【化 6】

化学式2



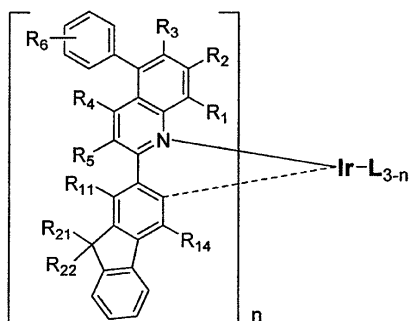
10

化学式3



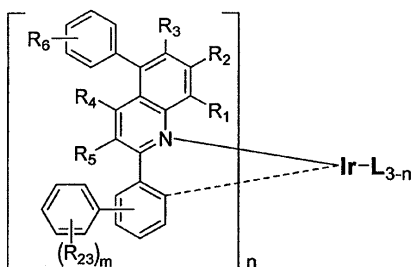
20

化学式4



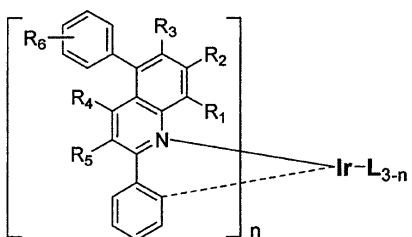
30

化学式5



40

化学式6



【 0 0 2 8 】

50

式中、 L 、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 、 R_{11} 、 R_{13} 、 R_{14} 及び n は、化学式 (1) におけるのと同様に定義され、

R_{21} 及び R_{22} は、独立に、水素、(C1 ~ C60) アルキル、(C6 ~ C60) アリールを表し、又は R_{21} 及び R_{22} は、縮合環を有する若しくは有しない、(C3 ~ C12) アルキレン若しくは (C3 ~ C12) アルケニレンによって、お互いに結合されて、脂環式環又は単環式若しくは多環式芳香族環を形成してもよく、

R_{23} 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、フェニル、ジ (C1 ~ C60) アルキルアミノ、ジ (C6 ~ C60) アリールアミノ、ナフチル、9, 9 - ジ (C1 ~ C60) アルキルフルオレニル又は 9, 9 - ジ (C6 ~ C60) 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。

【0029】

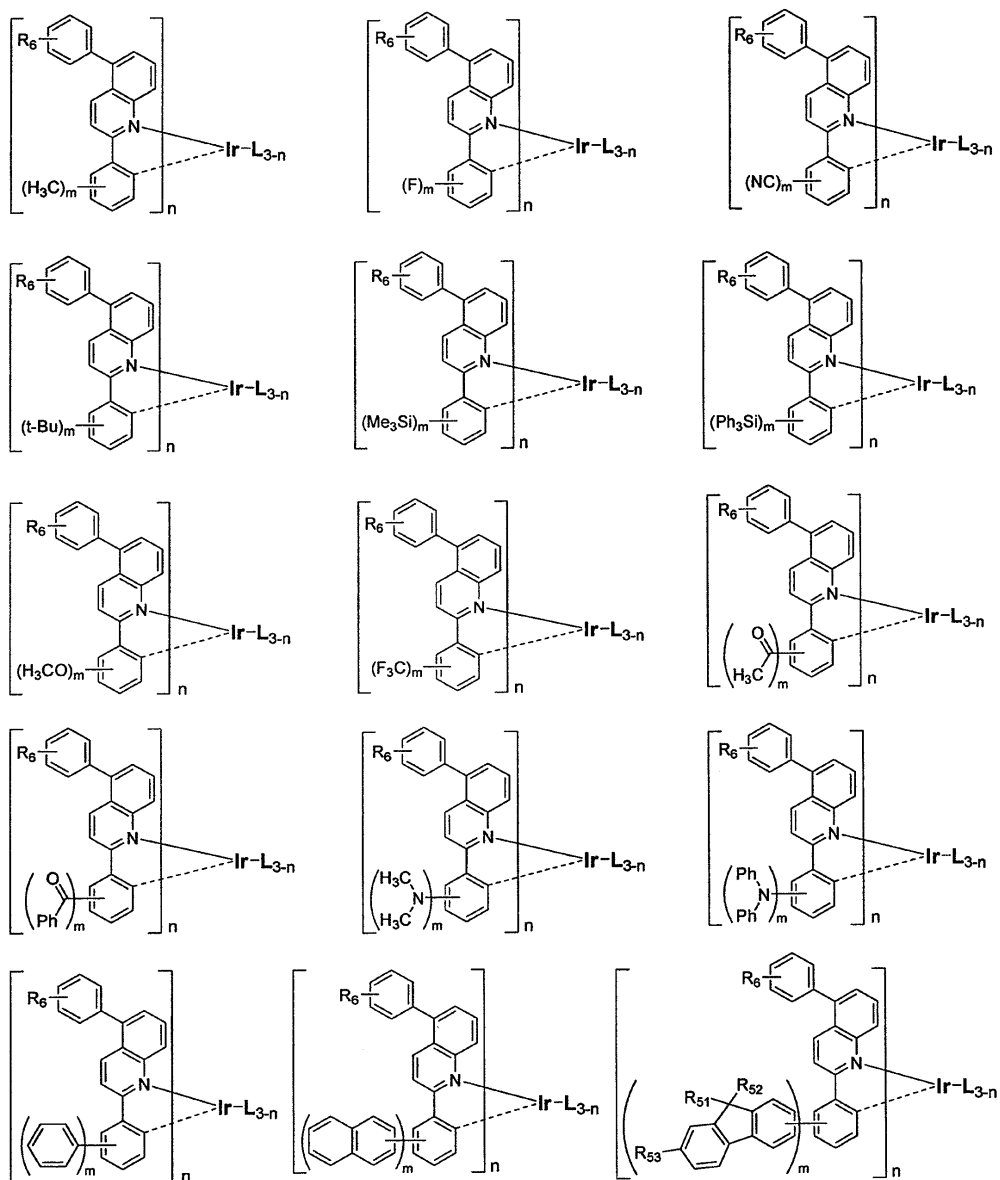
化学式 (1) の R_1 ~ R_5 は、独立に、水素、メチル、エチル、 n - プロピル、 i - プロピル、 n - ブチル、 i - ブチル、 t - ブチル、 n - ペンチル、 i - ペンチル、 n - ヘキシル、 n - ヘプチル、 n - オクチル、エチルヘキシル、メトキシ、エトキシ、ブトキシ、シクロプロピル、シクロヘキシル、シクロヘプチル、フルオロ、トリメチルシリル、トリプロピルシリル、トリ (t - ブチル) シリル、 t - ブチルジメチルシリル又はトリフェニルシリルを表し、および R_6 は、水素、メチル、エチル、 n - プロピル、 i - プロピル、 n - ブチル、 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、フルオレニル又はスピロビフルオレニルを表す。

【0030】

本発明に従った有機エレクトロルミネセント化合物は、下記の化合物によって特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。

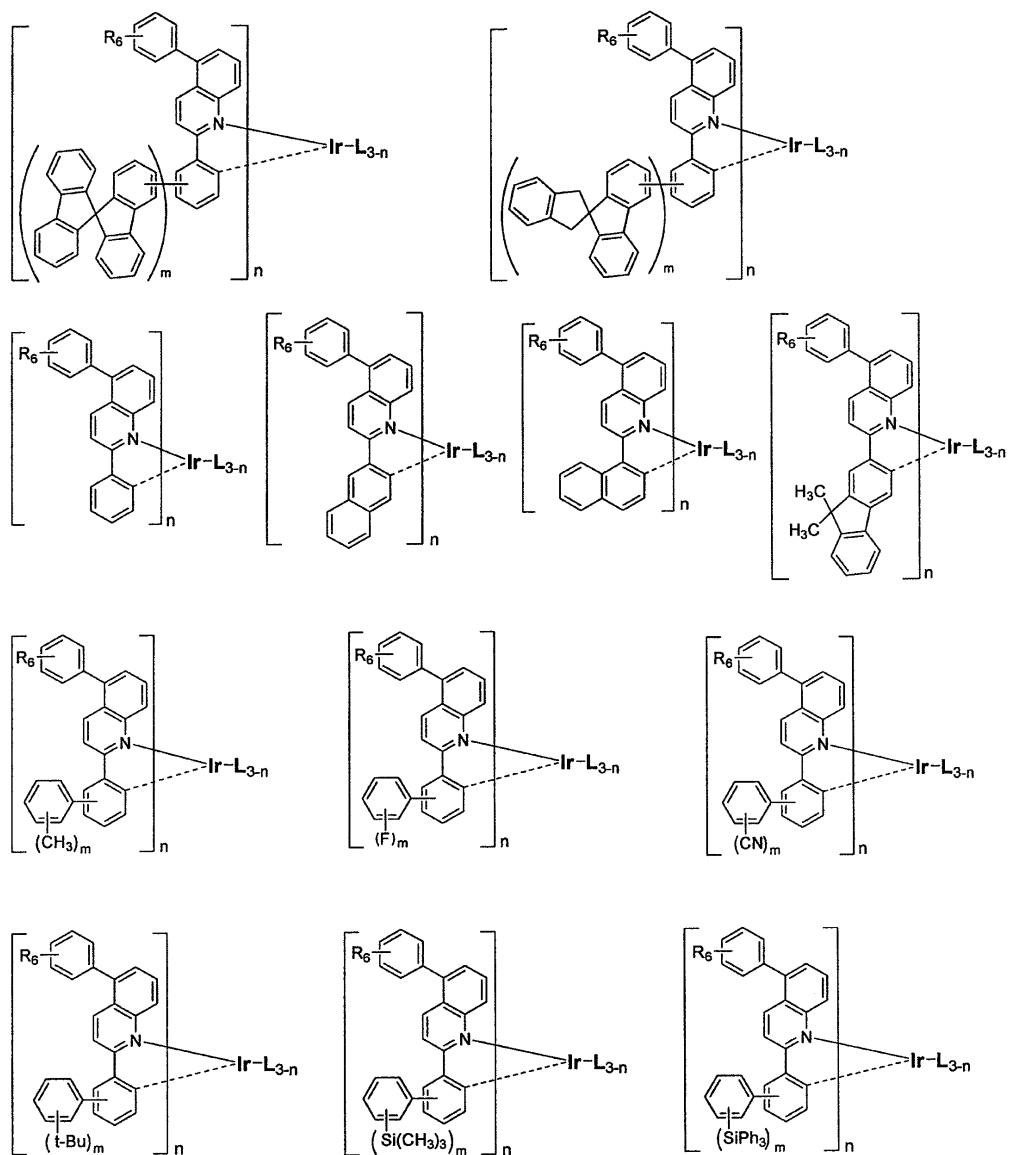
【0031】

【化 7】



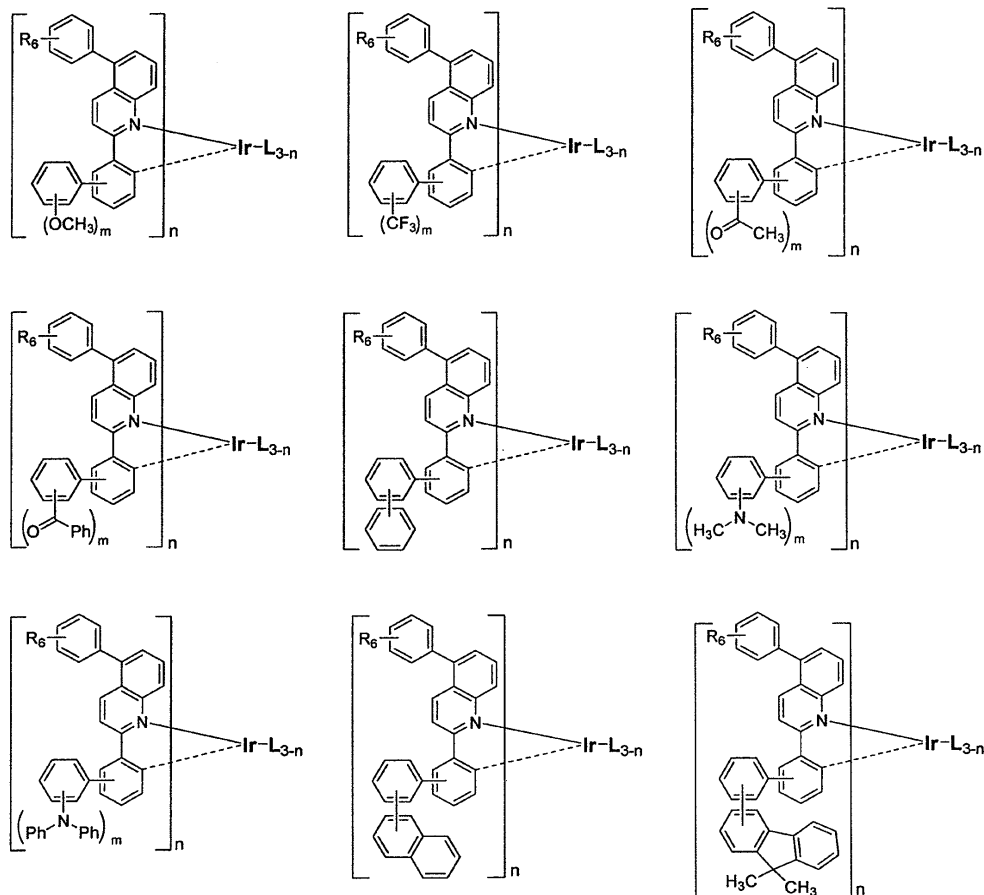
【 0 0 3 2 】

【化 8】



【 0 0 3 3 】

【化 9】



10

20

【0034】

式中、L は、有機配位子を表し、

R₆ 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、フェニル又はナフチルを表し、

30

R₅₁ 及び 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、フェニル若しくはナフチルを表し、又は R₅₁ 及び R₅₂ は、縮合環を有する若しくは有しない (C₃ ~ C₁₂) アルキレン若しくは (C₃ ~ C₁₂) アルケニレンによって、お互いに結合されて、脂環式環又は単環式若しくは多環式芳香族環を形成してもよく、

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、フェニル又はナフチルを表し、

40

m は、1 ~ 3 の整数であり、並びに、

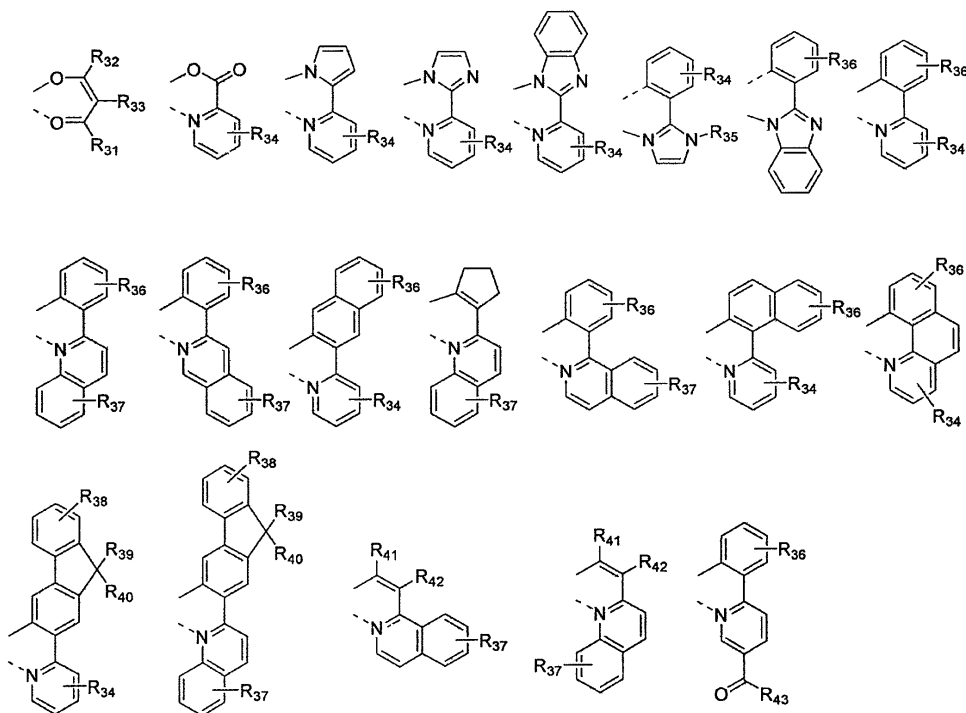
n は、1 ~ 3 の整数である。

【0035】

本発明に従った有機エレクトロルミネセント化合物の副配位子 (L) には、下記の構造が含まれる。

【0036】

【化 10】



10

20

【0037】

式中、 R_{31} 及び R_{32} は、独立に、水素；ハロゲン置換基を有する若しくは有しない（C1～C60）アルキル；（C1～C60）アルキル置換基を有する若しくは有しないフェニル；又はハロゲンを表し、

$R_{33} \sim R_{38}$ 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若しくは有しないフェニル；トリ（C1～C60）アルキルシリル；又はハロゲンを表し、

$R_{39} \sim R_{42}$ 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又は有しないフェニル；を表し、並びに、

R_{43} は、（C1～C60）アルキル；（C1～C60）アルキル置換基を有する若しくは有しないフェニル；又はハロゲンを表す。

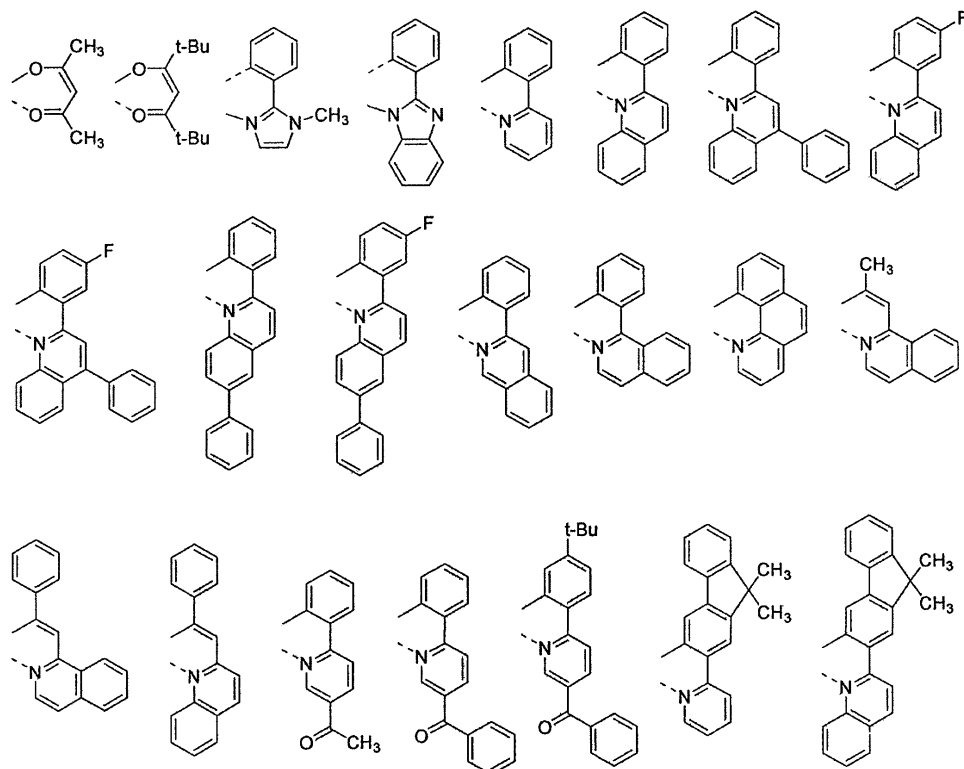
30

【0038】

本発明に従った有機エレクトロルミネセント化合物の副配位子（L）は、下記の構造によって例示することができるが、これら構造に限定されない。

【0039】

【化 1 1】



10

20

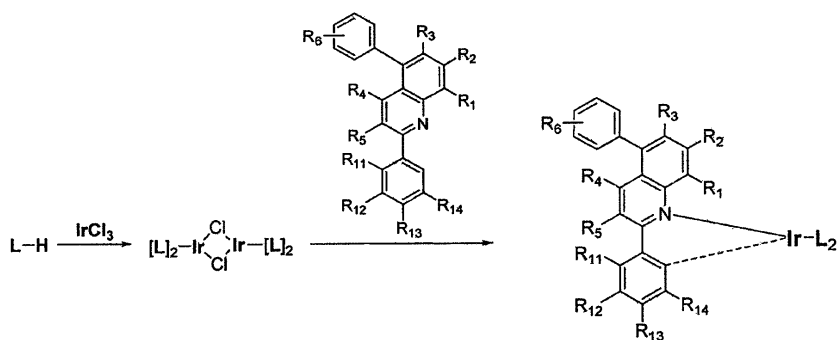
【 0 0 4 0 】

本発明に従った有機エレクトロルミネセント化合物の製造方法は、下記に示される反応図式(1)～(3)を参照することによって説明される。

【 0 0 4 1 】

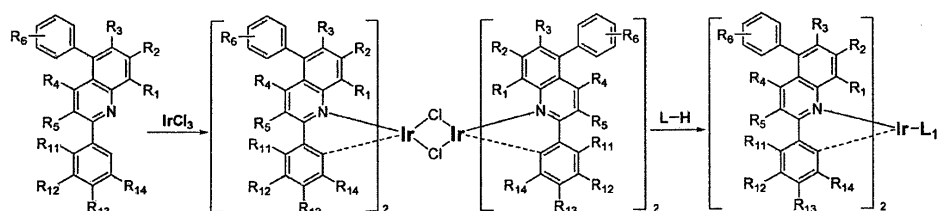
【化 1 2】

反応図式1



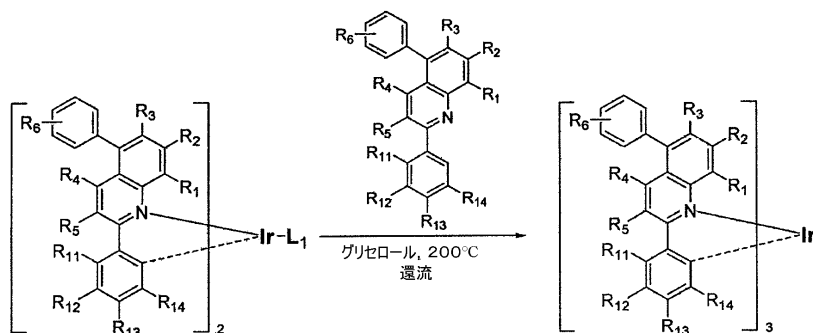
10

反応図式2



20

反応図式3



30

【0042】

式中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 、 R_{11} 、 R_{12} 、 R_{13} 、 R_{14} 及び L は、化学式(1)におけるのと同様に定義される。

【0043】

反応図式(1)は、 $n = 1$ を有する化学式(1)の化合物をもたらし、ここでは、三塩化イリジウム($IrCl_3$)及び副配位子化合物($L-H$)が、1:2~3のモル比で、溶媒中で混合され、この混合物が還流下で加熱され、その後ジイリジウム二量体を単離する。この反応段階において、好ましい溶媒は、アルコール又はアルコール/水の混合溶媒、例えば、2-エトキシエタノール及び2-エトキシエタノール/水混合物である。単離されたジイリジウム二量体は、次いで、有機溶媒中で主配位子化合物と共に加熱されて、最終生成物として、1:2の主配位子:副配位子の比を有する有機りん光イリジウム化合物をもたらす。この反応は、有機溶媒、例えば、2-エトキシエタノール及び2-メトキシエチルエーテルと共に混合されている $AgCF_3SO_3$ 、 Na_2CO_3 又は $NaOH$ と共に実施される。

40

【0044】

反応図式(2)は、 $n = 2$ を有する化学式(1)の化合物をもたらし、ここでは、三塩

50

化イリジウム (IrCl_3) 及び主配位子化合物が、1 : 2 ~ 3 のモル比で、溶媒中で混合され、この混合物が還流下で加熱され、その後ジイリジウム二量体を単離する。この反応段階において、好ましい溶媒は、アルコール又はアルコール/水の混合溶媒、例えば、2 - エトキシエタノール及び2 - エトキシエタノール/水混合物である。単離されたジイリジウム二量体は、次いで、有機溶媒中で副配位子化合物 (L - H) と共に加熱されて、最終生成物として、2 : 1 の主配位子 : 副配位子の比を有する有機りん光イリジウム化合物をもたらす。最終生成物中の、主配位子化合物と副配位子 (L) とのモル比は、組成物に応じた反応剤の適切なモル比によって決定される。この反応は、有機溶媒、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及び1, 2 - ジクロロエタンと共に混合されている AgCF_3SO_3 、 Na_2CO_3 又は NaOH と共に実施することができる。

10

【0045】

反応図式 (3) は、 $n = 3$ を有する化学式 (1) の化合物をもたらし、ここでは、反応図式 (2) に従って調製されたイリジウム錯体及び主配位子化合物が、1 : 2 ~ 3 のモル比でグリセロール中で混合され、この混合物が還流下で加熱されて、3 個の主配位子で配位された有機りん光イリジウム錯体を得る。

【0046】

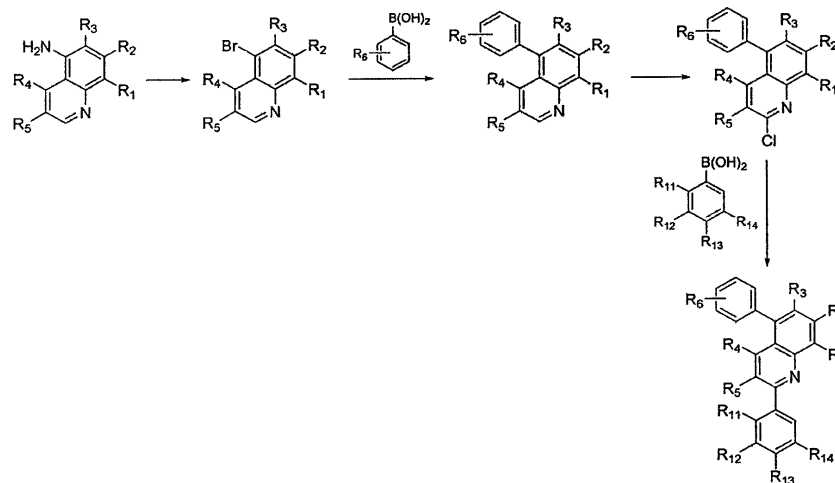
本発明において主配位子として使用される化合物は、従来のプロセスに基づいて、反応図式 (4) に従って調製することができる。

【0047】

【化13】

20

反応図式4



30

【0048】

式中、 $R_1 \sim R_6$ 及び $R_{11} \sim R_{14}$ は、化学式 (1) におけるように定義される。

【0049】

本発明は、また、化学式 (1) によって表される1種以上の有機エレクトロルミネセント化合物を含む有機太陽電池を提供する。

40

【0050】

本発明は、また、第一電極 ; 第二電極 ; 及び第一電極と第二電極との間に介在させられた少なくとも1つの有機層 ; を含む有機エレクトロルミネセントデバイスであって、この有機層が、化学式 (1) によって表される1種以上の化合物を含むデバイスを提供する。

【0051】

本発明に従った有機エレクトロルミネセントデバイスは、有機層が、エレクトロルミネセントドーパントとしての化学式 (1) によって表される0.01 ~ 10重量%の量の1種以上の有機エレクトロルミネセント化合物と、1種以上のホスト (host) とを含む

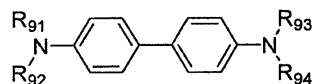
50

エレクトロルミネセント領域を含有することで特徴付けられる。本発明に従った有機エレクトロルミネセントデバイスに適用されるホストは、特に制限されないが、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、又は化学式(6)~(9)の一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。

【0052】

【化14】

化学式6



【0053】

化学式(6)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及びSから選択された1個以上のヘテロ原子を含有する5員若しくは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；ニトロ若しくはヒドロキシルを表し、又は $R_{91} \sim R_{94}$ のそれぞれは、縮合環を有する若しくは有しない(C3~C60)アルキレン若しくは(C3~C60)アルケニレンによって、隣接する置換基に結合されて、脂環式環又は単環式若しくは多環式芳香族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、アルキルアミノ若しくはアリールアミノ、又は縮合環を有する若しくは有しない(C3~C60)アルキレン若しくは(C3~C60)アルケニレンによる、隣接する置換基への結合によってそれらから形成された脂環式環又は単環式若しくは多環式芳香族環は、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及びSから選択された1個以上のヘテロ原子を含有する5員若しくは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た1種以上の置換基によって更に置換されていてよい。

【0054】

10

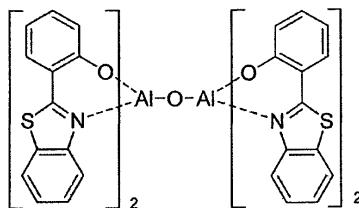
20

30

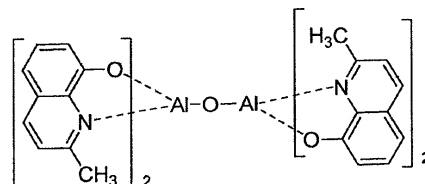
40

【化 1 5】

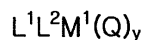
化学式7



化学式8



化学式9

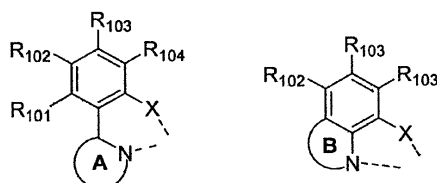


【 0 0 5 5】

化学式(9)において、配位子、 L^1 及び L^2 は、独立に、下記の構造から選択され、

【 0 0 5 6】

【化 1 6】



【 0 0 5 7】

M^1 は、2 価又は 3 価金属であり、

y は、 M^1 が 2 価金属であるとき 0 であり、他方、 y は、 M^1 が 3 価金属であるとき 1 であり、

Q は、(C 6 ~ C 2 0) アリールオキシ又はトリ(C 6 ~ C 2 0) アリールシリルを表し、 Q のアリールオキシ及びトリアリールシリルは、(C 1 ~ C 6 0) アルキル又は(C 6 ~ C 6 0) アリールによって更に置換されていてよく、

X は、O、S 又は S e 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、ベンゾイミダゾール、ピリジン又はキノリンを表し、

環 B は、ピリジン又はキノリンを表し、環 B は、(C 1 ~ C 6 0) アルキル；又は(C 1 ~ C 6 0) アルキル置換基を有する若しくは有しないフェニル若しくはナフチル；によって更に置換されていてよく、

$R_{101} \sim R_{104}$ 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 及び S から選択された 1 個以上のヘテロ原子を含有する 5 員若しくは 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

10

20

30

40

50

）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；ニトロ若しくはヒドロキシルを表し、又は $R_{101} \sim R_{104}$ のそれぞれは、縮合環を有する若しくは有しない（C 3 ～ C 6 0）アルキレン若しくは（C 3 ～ C 6 0）アルケニレンによって、隣接する置換基に結合されて、脂環式環又は単環式若しくは多環式芳香族環を形成してもよく、

環 A 及び $R_{101} \sim R_{104}$ 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、アルキルアミノ若しくはアリールアミノ、又は縮合環を有する若しくは有しない（C 3 ～ C 6 0）アルキレン若しくは（C 3 ～ C 6 0）アルケニレンによる、隣接する置換基への結合によってそれらから形成された脂環式環又は単環式若しくは多環式芳香族環は、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 及び S から選択された 1 個以上のヘテロ原子を含有する 5 員若しくは 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）ビスシクロアルキル；（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た 1 種以上の置換基によって更に置換されていてよい。

【 0 0 5 8 】

配位子、 L^1 及び L^2 は、独立に、下記の構造から選択される。

【 0 0 5 9 】

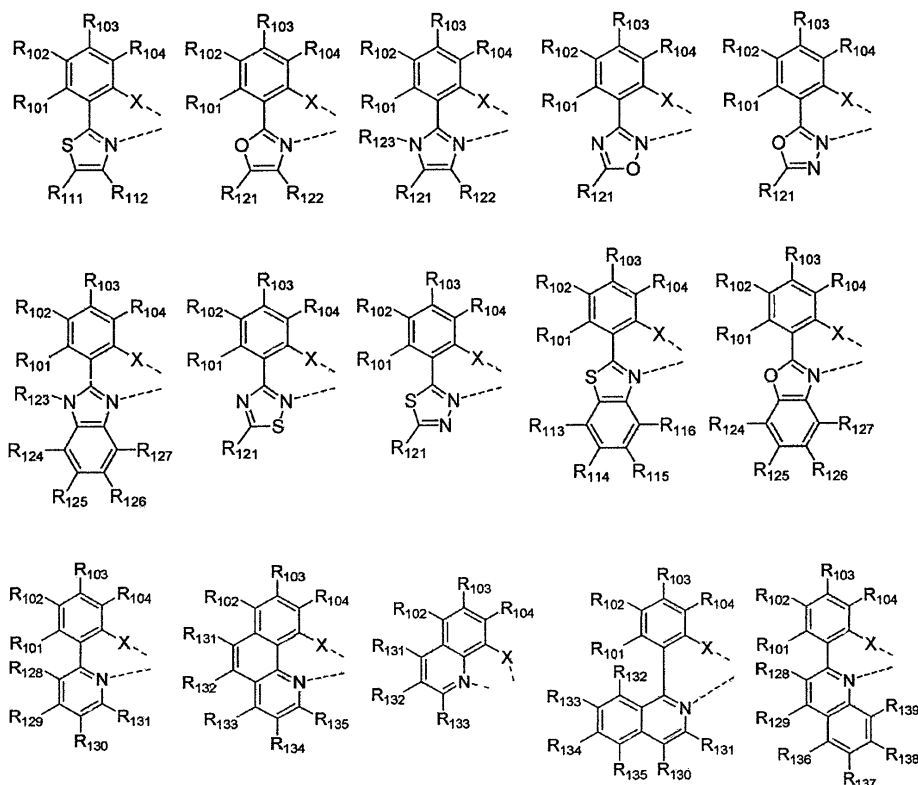
10

20

【 0 0 6 0 】

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及びSから選択された1個以上のヘテロ原子を含有する5員若しくは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）ピシクロアルキル；（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；ニトロ若しくはヒドロキシルを表し、又はR₁₀₁ ~ R₁₀₄のそれぞれは、縮合環を有する若しくは有しない（C₃ ~ C₆₀）アルキレン若しくは（C₃ ~ C₆₀）アルケニレンによって、隣接する置換基に結合されて、脂環式環又は単環式若しくは多環式芳香族環を形成してもよく、

R₁₁₁ ~ R₁₁₆ 及び 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 及び S から選択された 1 個以上のヘテロ原子を含有する 5 員若しくは 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；



20

30

40

50

(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 ; ニトロ若しくはヒドロキシルを表し、又は $R_{111} \sim R_{116}$ 及び $R_{121} \sim R_{139}$ のそれぞれは、縮合環を有する若しくは有しない、(C 3 ~ C 6 0) アルキレン若しくは (C 3 ~ C 6 0) アルケニレンによって、隣接する置換基に結合されて、脂環式環又は単環式若しくは多環式芳香族環を形成してもよく、

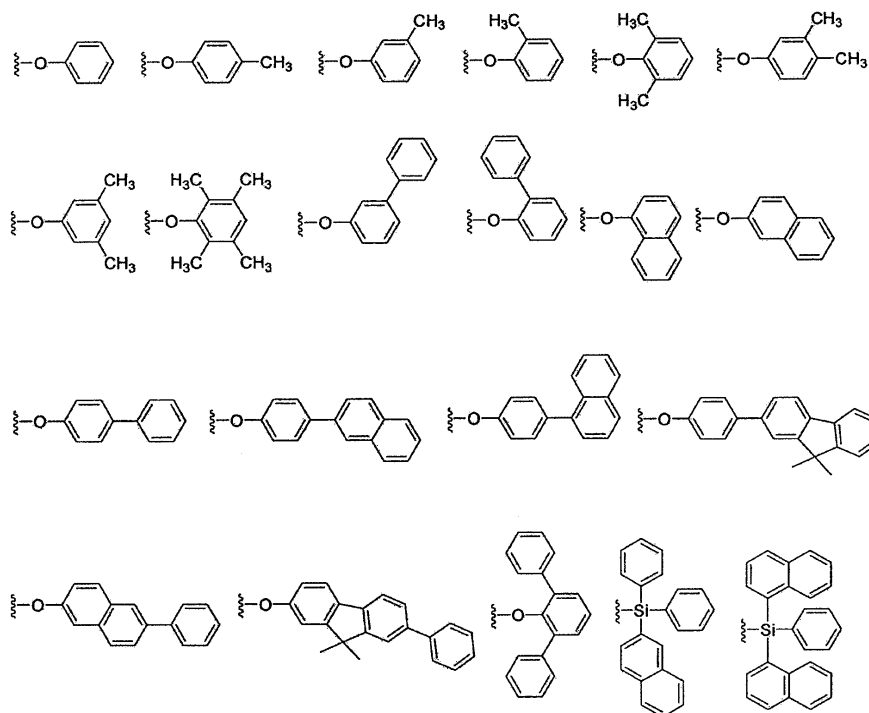
$R_{101} \sim R_{104}$ 、 $R_{111} \sim R_{116}$ 及び $R_{121} \sim R_{139}$ のアルキル、アルケニル、アルキニル、シクロアルキル、ヘテロシクロアルキル、アリール、ヘテロアリール、アリールシリル、アルキルシリル、アルキルアミノ若しくはアリールアミノ、又は縮合環を有する若しくは有しない (C 3 ~ C 6 0) アルキレン若しくは (C 3 ~ C 6 0) アルケニレンによる、隣接する置換基への結合によってそれらから形成された脂環式環又は単環式若しくは多環式芳香族環は、ハロゲン ; (C 1 ~ C 6 0) アルキル ; (C 6 ~ C 6 0) アリール ; (C 4 ~ C 6 0) ヘテロアリール ; N、O 及び S から選択された 1 個以上のヘテロ原子を含有する 5 員若しくは 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た 1 種以上の置換基によって更に置換されていてよい。

【 0 0 6 1 】

化学式 (9) において、 M^1 は、Be、Zn、Mg、Cu 及び Ni から選択された 2 価金属又は Al、Ga、In 及び B から選択された 3 価金属であり、Q は、下記の構造から選択される。

【 0 0 6 2 】

【 化 1 8 】



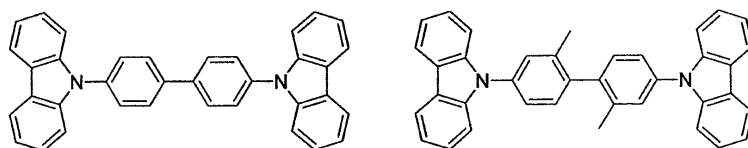
【 0 0 6 3 】

化学式 (6) の化合物は、下記の構造によって表される化合物によって特に例示するこ

とができるが、これらに限定されるわけではない。

【 0 0 6 4 】

【 化 1 9 】



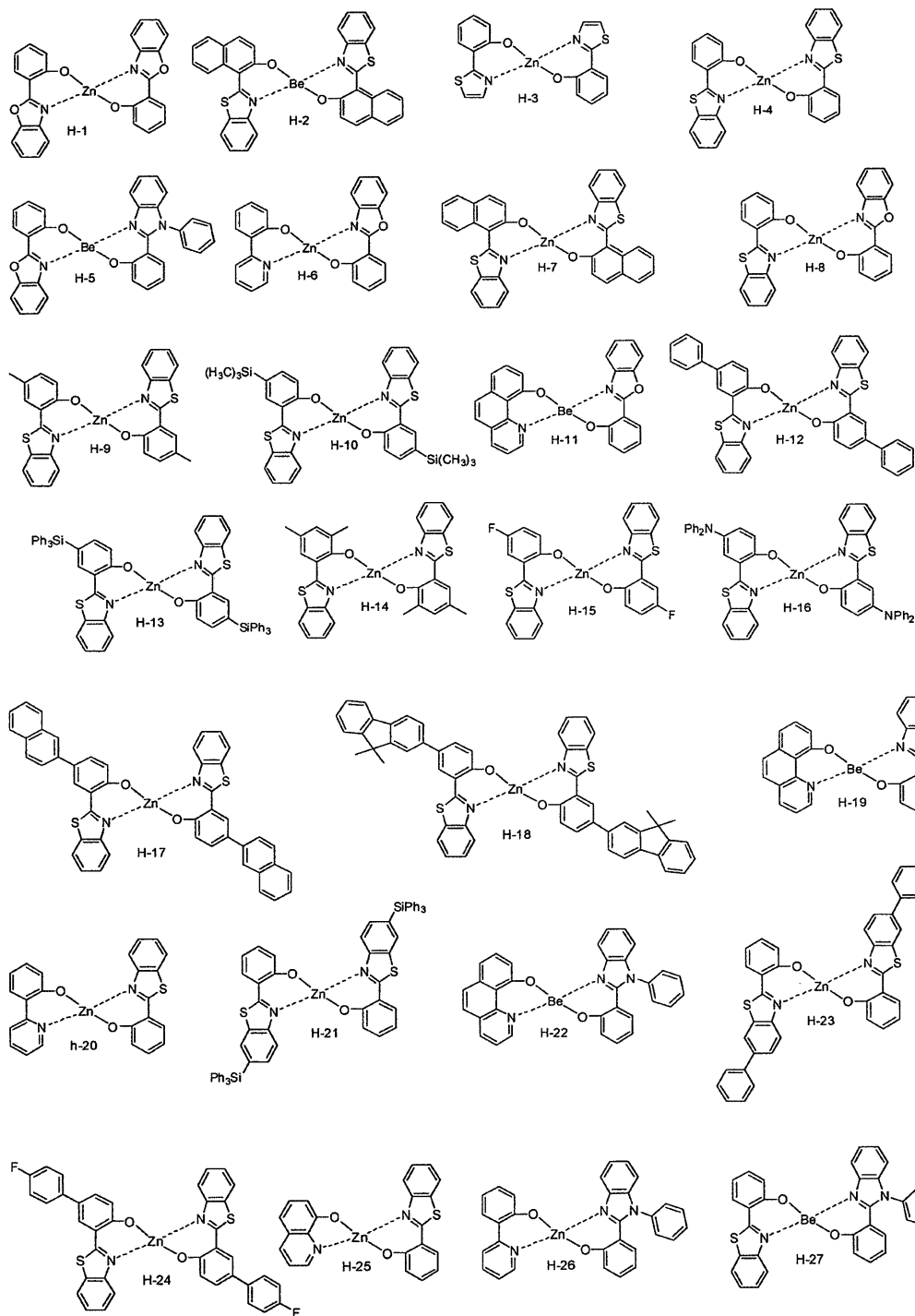
【 0 0 6 5 】

化学式 (7) ~ (9) の一つによって表される化合物は、下記の構造の一つを有する化合物によって特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。

10

【 0 0 6 6 】

【化 20】



【 0 0 6 7 】

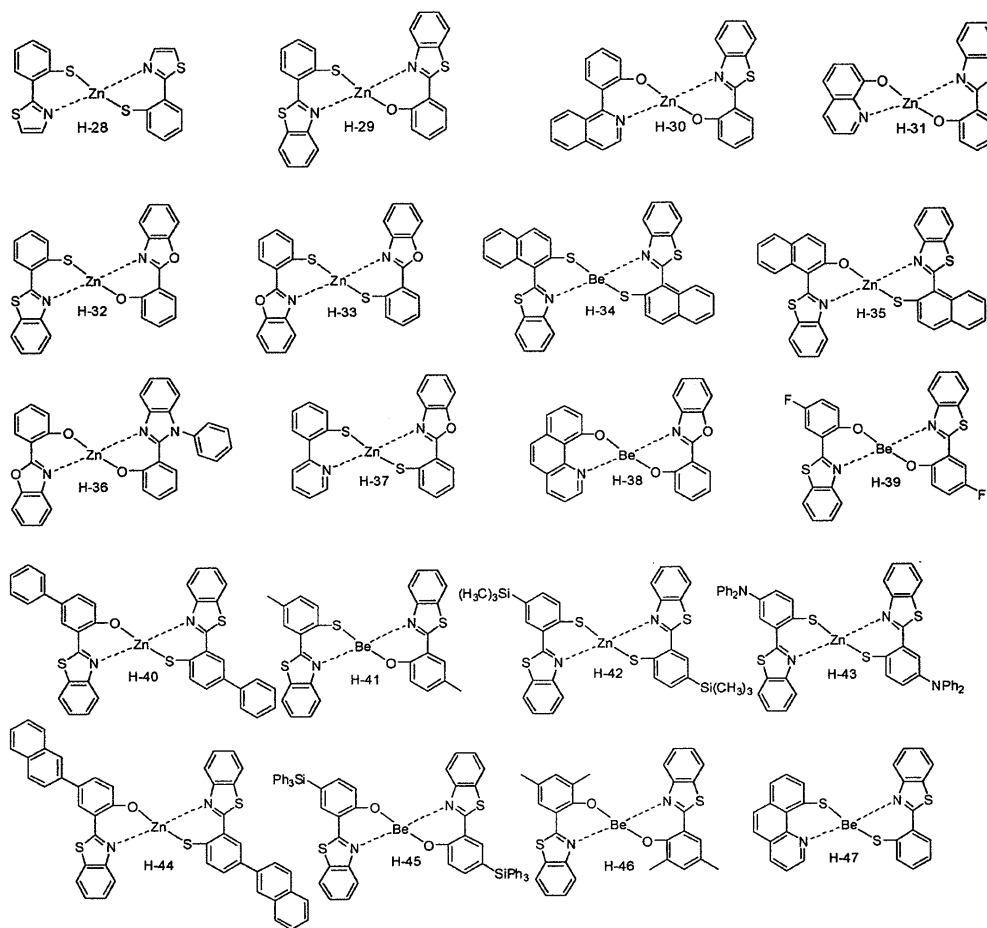
10

20

30

40

【化 2 1】

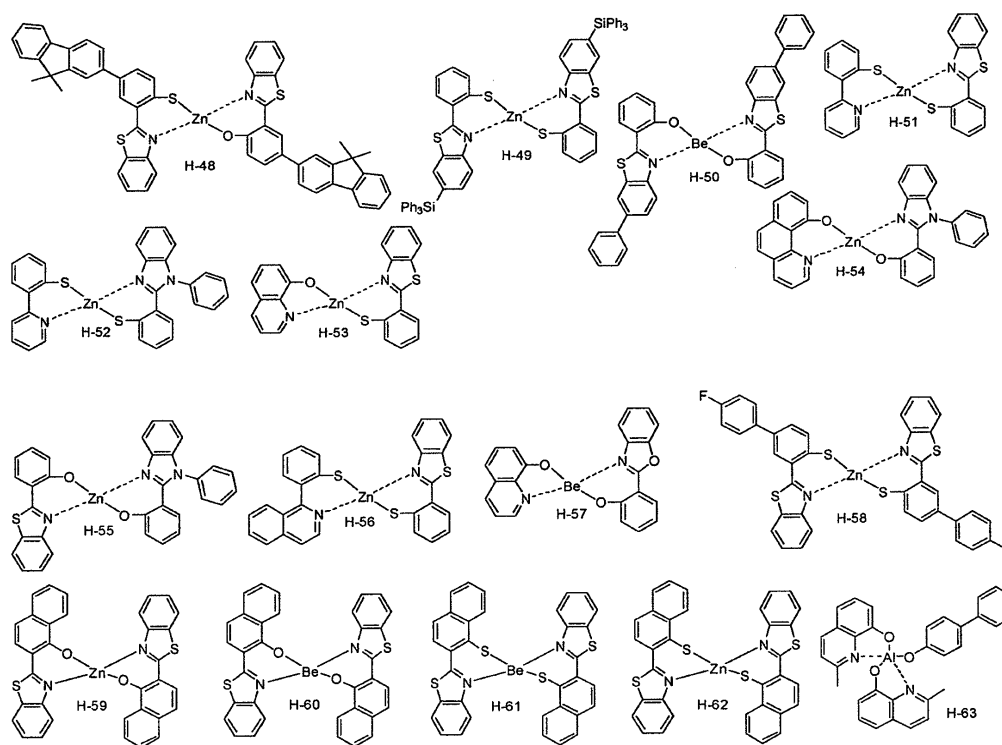


10

20

【 0 0 6 8】

【化 2 2】



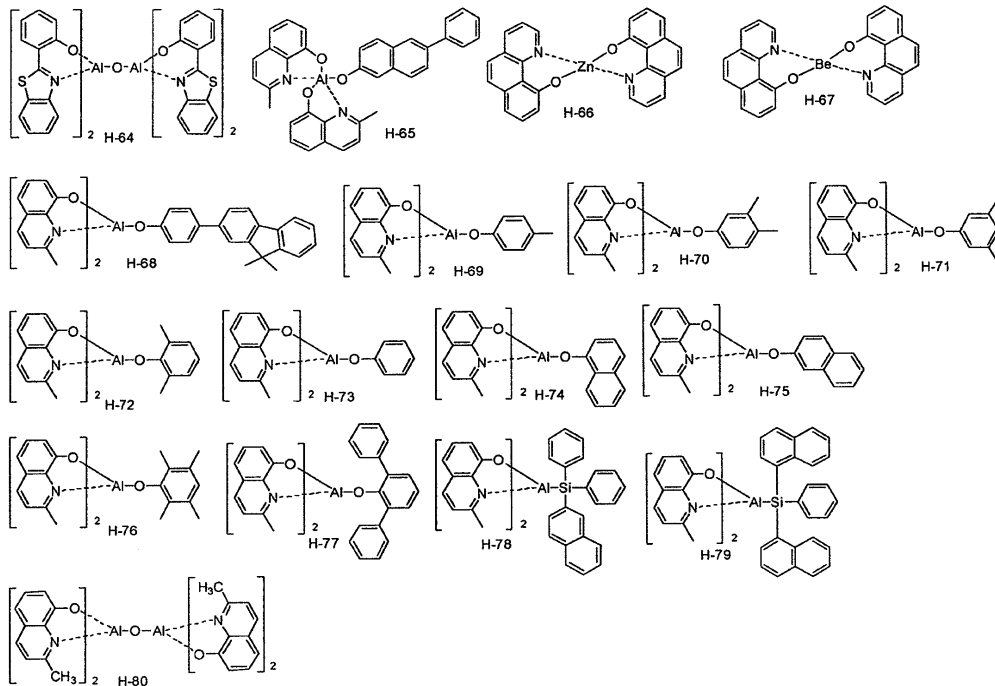
30

40

【 0 0 6 9】

50

【化 2 3】



10

20

【0070】

エレクトロルミネセント層は、エレクトロルミネセンスが生じる層を意味し、これは、単一層又は積層化された2枚以上の層からなる複数層であり得る。ホスト-ドーパントの混合物が、本発明の構成に従って使用されるとき、デバイス寿命及び発光効率における顕著な改良を確認することができた。

【0071】

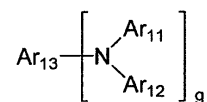
本発明に従った有機エレクトロルミネセントデバイスは、更に、アリールアミン化合物及びスチリルアリールアミン化合物から選択された1種以上の化合物並びに化学式(1)によって表される有機エレクトロルミネセント化合物を含むことができる。アリールアミン又はスチリルアリールアミン化合物の例には、化学式(10)によって表される化合物が含まれるが、これらはこの化合物に限定されない。

30

【0072】

【化 2 4】

化学式10



【0073】

式中、 Ar_{11} 及び 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及びSから選択された1個以上のヘテロ原子を含有する5員若しくは6員のヘテロシクロアルキル；若しくは(C3~C60)シクロアルキルを表し、又は Ar_{11} 及び Ar_{12} は、縮合環を有する若しくは有しない(C3~C60)アルキレン若しくは(C3~C60)アルケニレンによって結合されて、脂環式環又は単環式若しくは多環式芳香族環を形成してもよく、

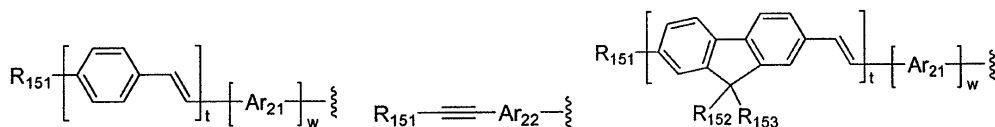
40

g が1であるとき、 Ar_{13} は、(C6~C60)アリール、(C4~C60)ヘテロアリール又は下記の構造式の一つによって表されるアリールを表し、

【0074】

50

【化 2 5】

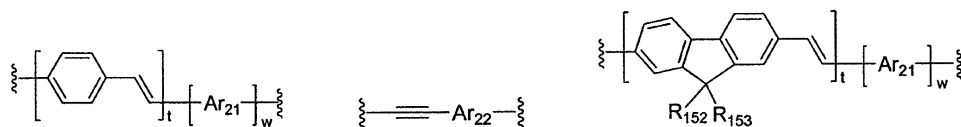


【0075】

g が 2 であるとき、 Ar_{13} は、(C 6 ~ C 6 0) アリーレン、(C 4 ~ C 6 0) ヘテロアリーレン又は下記の構造式の一つによって表されるアリーレンを表し、

【0076】

【化 2 6】



【0077】

(式中、 Ar_{21} 及び Ar_{22} は、独立に、(C 6 ~ C 6 0) アリーレン又は (C 4 ~ C 6 0) ヘテロアリーレンを表し、

R_{151} 、 R_{152} 及び R_{153} は、独立に、水素、(C 1 ~ C 6 0) アルキル又は (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 又は 1 の整数である)

並びに、

Ar_{11} 及び Ar_{12} 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、シクロアルキル若しくはヘテロシクロアルキル、又は Ar_{13} のアリール、ヘテロアリール、アリーレン若しくはヘテロアリーレン又は Ar_{21} 及び Ar_{22} のアリーレン若しくはヘテロアリーレン、又は $R_{151} \sim R_{153}$ のアルキル若しくはアリールは、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 及び S から選択された 1 個以上のヘテロ原子を含有する 5 員若しくは 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から選択された 1 種以上の置換基によって更に置換されていてよい。

【0078】

アリールアミン化合物及びスチリルアリールアミン化合物は、下記の化合物によって更に具体的に例示できるが、これらの化合物に限定されない。

【0079】

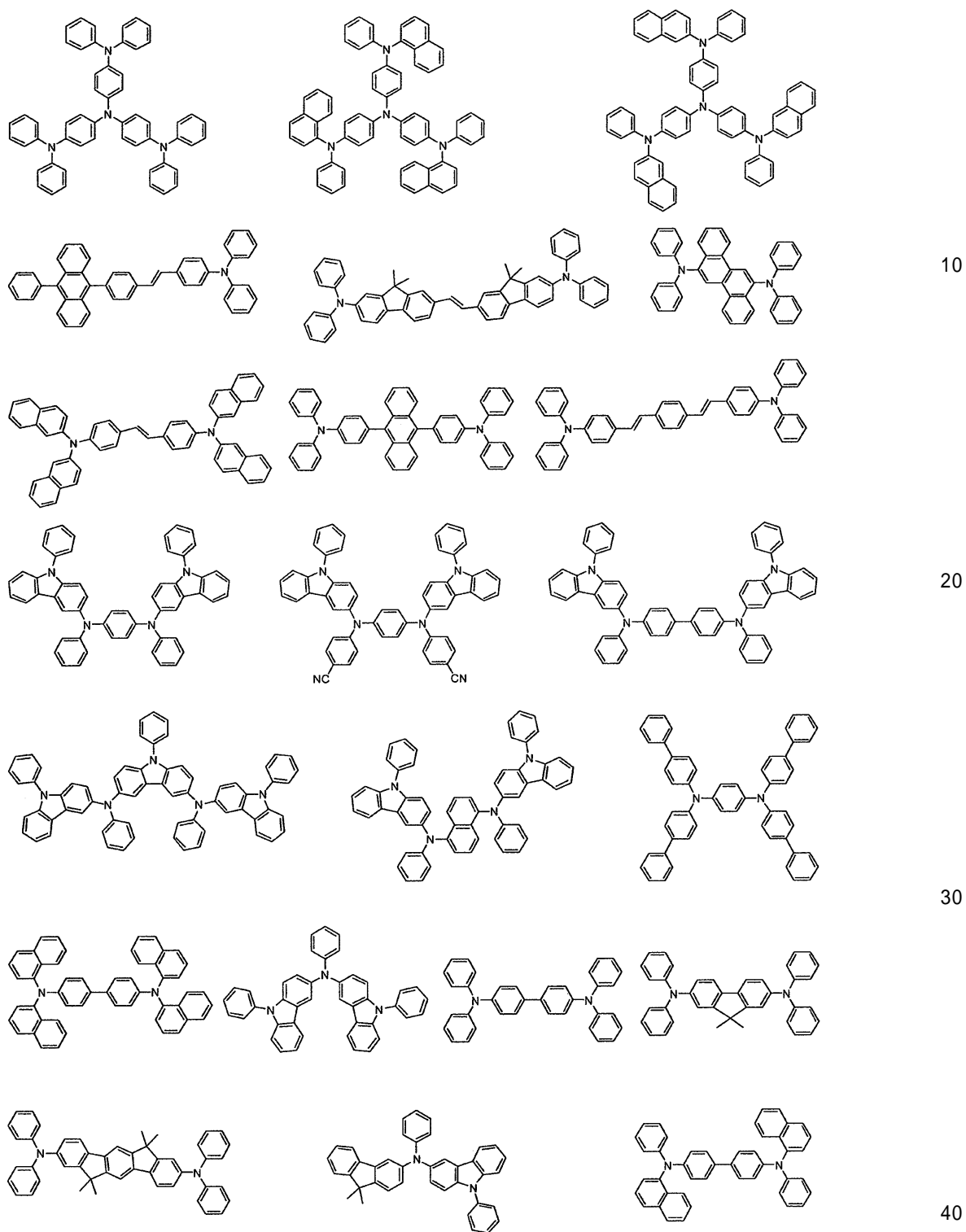
10

20

30

40

【化 27】



【0080】

本発明に従った有機エレクトロルミネセントデバイスにおいて、有機層は、更に、第1族、第2族、第4周期及び第5周期遷移金属、ランタニド金属並びにd-遷移元素の有機金属からなる群から選択された1種以上の金属並びに化学式(1)によって表される有機エレクトロルミネセント化合物を含有し得る。この有機層は、エレクトロルミネセント層に加えて、電荷発生層を含有し得る。

【0081】

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セントデバイスであって、サブピクセルとして化学式(1)の化合物と；同時に平行にパターン形成された

、アリールアミン化合物及びスチリルアリールアミン化合物からなる群から選択された 1 種以上の化合物を含有する 1 個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セントデバイスを含むエレクトロルミネセントデバイスを実現することができる。

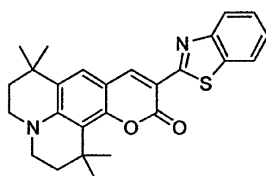
【0082】

更に、この有機エレクトロルミネセントデバイスは、同時に、青又は緑の波長のエレクトロルミネセントピークを有する化合物から選択された 1 種以上の化合物を含有する、有機ディスプレイである。青又は緑の波長のエレクトロルミネセントピークを有する化合物は、化学式(11)～(15)の一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が、これらの化合物に限定されない。

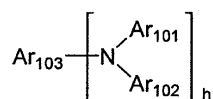
【0083】

【化28】

化学式11



化学式12



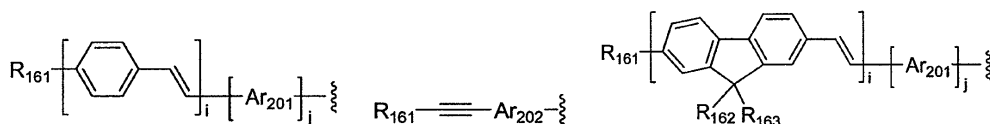
【0084】

化学式(12)において、 Ar_{101} 及び 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及びSから選択された 1 個以上のヘテロ原子を含有する 5 員若しくは 6 員のヘテロシクロアルキル；若しくは(C3～C60)シクロアルキルを表し、又は Ar_{101} 及び Ar_{102} は、縮合環を有する若しくは有しない、(C3～C60)アルキレン若しくは(C3～C60)アルケニレンによって結合されて、脂環式環又は単環式若しくは多環式芳香族環を形成してもよく、

h が 1 であるとき、 Ar_{103} は、(C6～C60)アリール、(C4～C60)ヘテロアリール又は下記の構造式の一つによって表されるアリールを表し、

【0085】

【化29】

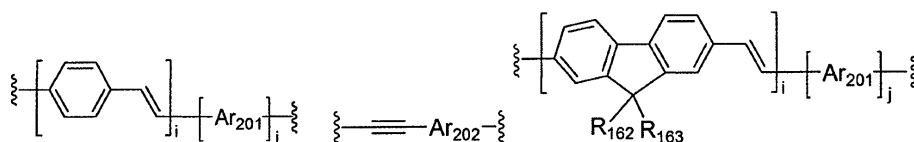


【0086】

h が 2 であるとき、 Ar_{103} は、(C6～C60)アリーレン、(C4～C60)ヘテロアリーレン又は下記の構造式の一つによって表されるアリーレンを表し、

【0087】

【化30】



【0088】

(式中、 Ar_{201} 及び Ar_{202} は、独立に、(C6～C60)アリーレン又は(C4

10

20

30

40

50

～C 6 0) ヘテロアリーレンを表し、

R_{161} 、 R_{162} 及び R_{163} は、独立に、水素、(C 1 ～ C 6 0) アルキル又は (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 又は 1 の整数である)

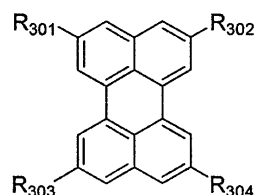
並びに、

Ar_{101} 及び 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、シクロアルキル若しくはヘテロシクロアルキル又は Ar_{103} のアリール、ヘテロアリール、アリーレン若しくはヘテロアリーレン又は Ar_{201} 及び Ar_{202} のアリーレン若しくはヘテロアリーレン又は $R_{161} \sim R_{163}$ のアルキル若しくはアリールは、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 及び S から選択された 1 個以上のヘテロ原子を含有する 5 員若しくは 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) ピシクロアルキル；(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から選択された 1 種以上の置換基によって更に置換されていてよい。

【0089】

【化31】

化学式13



【0090】

化学式(13)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 及び S から選択された 1 個以上のヘテロ原子を含有する 5 員若しくは 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) ピシクロアルキル；(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；ニトロ若しくはヒドロキシルを表し、又は $R_{301} \sim R_{304}$ のそれぞれは、縮合環を有する若しくは有しない(C 3 ～ C 6 0) アルキレン若しくは(C 3 ～ C 6 0) アルケニレンによって、隣接する置換基に結合されて、脂環式環又は単環式若しくは多環式芳香族環を形成してもよく、

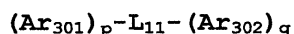
$R_{301} \sim R_{304}$ のアルキル、アルケニル、アルキニル、シクロアルキル、ヘテロシクロアルキル、アリール、ヘテロアリール、アリールシリル、アルキルシリル、アルキルアミノ若しくはアリールアミノ、又は縮合環を有する若しくは有しない(C 3 ～ C 6 0)

アルキレン若しくは(C3～C60)アルケニレンによる、隣接する置換基への結合によってそれらから形成された脂環式環又は単環式若しくは多環式芳香族環は、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及びSから選択された1個以上のヘテロ原子を含有する5員若しくは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た1種以上の置換基によって更に置換されていてよい。

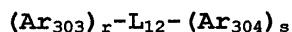
【0091】

【化32】

化学式14



化学式15



【0092】

化学式(14)及び(15)において、

L₁₁は、(C6～C60)アリーレン又は(C4～C60)ヘテロアリーレンを表し、

L₁₂は、アントラセニレンを表し、

Ar₃₀₁～Ar₃₀₄は、独立に、水素、(C1～C60)アルキル、(C1～C60)アルコキシ、ハロゲン、(C4～C60)ヘテロアリール、(C5～C60)シクロアルキル及び(C6～C60)アリールから選択され、Ar₃₀₁～Ar₃₀₄のシクロアルキル、アリール又はヘテロアリールは、(C1～C60)アルキル、ハロ(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、シアノ、トリ(C1～C60)アルキルシリル、ジ(C1～C60)アルキル(C6～C60)アリールシリル及びトリ(C6～C60)アリールシリルからなる群から選択された少なくとも1個の置換基を有する又は有しない(C6～C60)アリール又は(C4～C60)ヘテロアリール；ハロゲン置換基を有する又は有しない(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、シアノ、トリ(C1～C60)アルキルシリル、ジ(C1～C60)アルキル(C6～C60)アリールシリル並びにトリ(C6～C60)アリールシリルからなる群から選択された1種以上の置換基によって更に置換されていてよく、並びに

p、q、r及びsは、独立に、0～4の整数を表す。

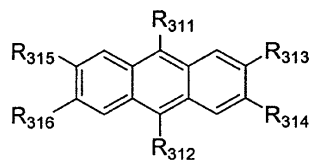
【0093】

化学式(14)又は(15)によって表される化合物は、化学式(16)～(19)の一つによって表されるアントラセン誘導体及びベンゾ[a]アントラセン誘導体によって例示することができる。

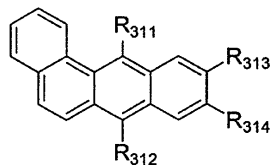
【0094】

【化 3 3】

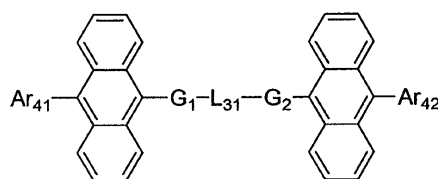
化学式16



化学式17



化学式18



10

20

【0095】

化学式(16)～(18)において、 R_{311} 及び R_{312} は、独立に、(C6～C60)アリール；(C4～C60)ヘテロアリール；又はN、O及びSから選択された1個以上のヘテロ原子を含有する5員若しくは6員のヘテロシクロアルキル；又は(C3～C60)シクロアルキルを表し、 R_{311} 及び R_{312} のアリール又はヘテロアリールは、(C1～C60)アルキル、ハロ(C1～C60)アルキル、(C1～C60)アルコキシ、(C3～C60)シクロアルキル、(C6～C60)アリール、(C4～C60)ヘテロアリール、ハロゲン、シアノ、トリ(C1～C60)アルキルシリル、ジ(C1～C60)アルキル(C6～C60)アリールシリル及びトリ(C6～C60)アリールシリルからなる群から選択された1種以上の置換基によって更に置換されていてよく、

30

$R_{313} \sim R_{316}$ は、独立に、水素、(C1～C60)アルキル、(C1～C60)アルコキシ、ハロゲン、(C4～C60)ヘテロアリール、(C5～C60)シクロアルキル又は(C6～C60)アリールを表し、 $R_{313} \sim R_{316}$ のヘテロアリール、シクロアルキル又はアリールは、ハロゲン置換基を有する又は有しない(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、シアノ、トリ(C1～C60)アルキルシリル、ジ(C1～C60)アルキル(C6～C60)アリールシリル及びトリ(C6～C60)アリールシリルからなる群から選択された1種以上の置換基によって更に置換されていてよく、

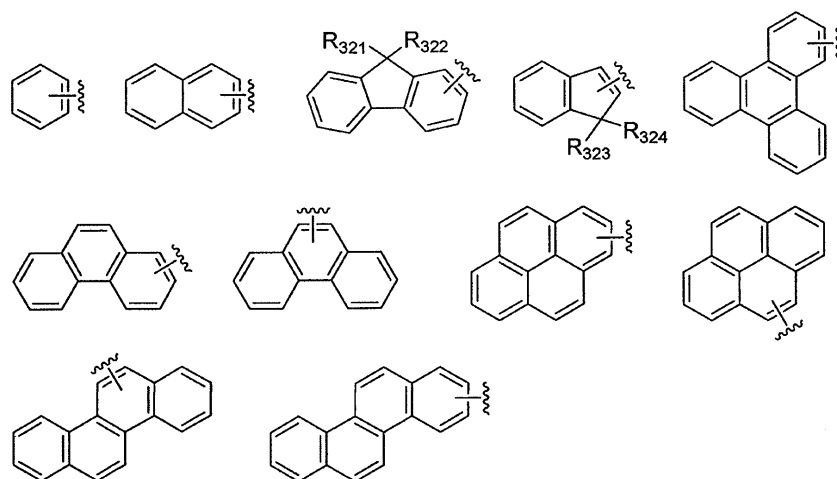
G_1 及び G_2 は、独立に、化学結合又は(C1～C60)アルキル、(C1～C60)アルコキシ、(C6～C60)アリール、(C4～C60)ヘテロアリール及びハロゲンから選択された1種以上の置換基を有する又は有しない(C6～C60)アリーレンを表し、

40

Ar_{41} 及び Ar_{42} は、下記の構造から選択されたアリール又は(C4～C60)ヘテロアリールを表し、

【0096】

【化 3 4】



10

【0097】

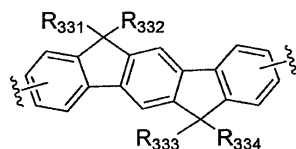
Ar_{41} 及び Ar_{42} のアリール又はヘテロアリールは、(C1～C60)アルキル、(C1～C60)アルコキシ、(C6～C60)アリール及び(C4～C60)ヘテロアリールから選択された1種以上の置換基によって置換されていてよく、

L_{31} は、(C6～C60)アリーレン、(C4～C60)ヘテロアリーレン又は下記の構造によって表される化合物を表し、

20

【0098】

【化 3 5】



【0099】

L_{31} のアリーレン又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)ヘテロアリール及びハロゲンから選択された1種以上の置換基によって置換されていてよく、

30

R_{321} 、 R_{322} 、 R_{323} 及び R_{324} は、独立に、水素、(C1～C60)アルキル若しくは(C6～C60)アリールを表し、又はこれらのそれぞれは、縮合環を有する若しくは有しない(C3～C60)アルキレン若しくは(C3～C60)アルケニレンによって、隣接する置換基に結合されて、脂環式環又は単環式若しくは多環式芳香族環を形成してもよく、

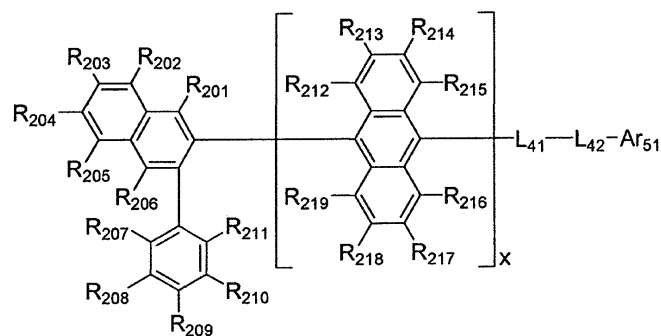
R_{331} 、 R_{332} 、 R_{333} 及び R_{334} は、独立に、水素、(C1～C60)アルキル、(C1～C60)アルコキシ、(C6～C60)アリール、(C4～C60)ヘテロアリール若しくはハロゲンを表し、又はこれらのそれぞれは、縮合環を有する若しくは有しない、(C3～C60)アルキレン若しくは(C3～C60)アルケニレンによって、隣接する置換基に結合されて、脂環式環又は単環式若しくは多環式芳香族環を形成してもよい。

40

【0100】

【化 3 6】

化学式19



10

【0101】

化学式19において、

L_{41} 及び L_{42} は、独立に、化学結合又は (C6 ~ C60) アリーレン若しくは (C3 ~ C60) ヘテロアリーレンを表し、 L_{41} 及び L_{42} のアリーレン又はヘテロアリーレンは、(C1 ~ C60) アルキル、ハロゲン、シアノ、(C1 ~ C60) アルコキシ、(C3 ~ C60) シクロアルキル、(C6 ~ C60) アリール、(C3 ~ C60) ヘテロアリール、トリ(C1 ~ C30) アルキルシリル、ジ(C1 ~ C30) アルキル(C6 ~ C30) アリールシリル及びトリ(C6 ~ C30) アリールシリルから選択された1種以上の置換基によって更に置換されていてよく、

20

$R_{201} \sim R_{219}$ 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及びSから選択された1個以上のヘテロ原子を含有する5員若しくは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；ニトロ若しくはヒドロキシルを表し、又は $R_{201} \sim R_{219}$ のそれぞれは、縮合環を有する若しくは有しない、(C3 ~ C60) アルキレン若しくは(C3 ~ C60) アルケニレンによって、隣接する置換基に結合されて、脂環式環又は単環式若しくは多環式芳香族環を形成してもよく、

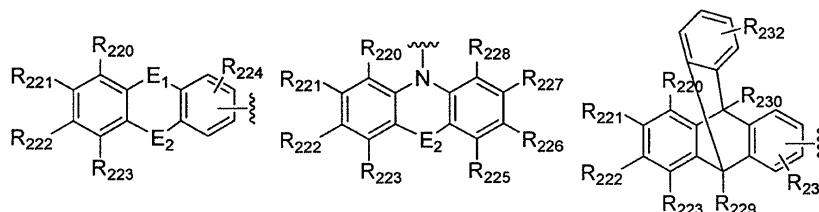
30

Ar_{51} は、(C6 ~ C60) アリール；(C4 ~ C60) ヘテロアリール；N、O及びSから選択された1個以上のヘテロ原子を含有する5員若しくは6員のヘテロシクロアルキル；(C3 ~ C60) シクロアルキル；アダマンチル；(C7 ~ C60) ビシクロアルキル又は下記の構造から選択された置換基を表し、

【0102】

【化 3 7】

40



【0103】

$R_{220} \sim R_{232}$ 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及びSから選択された1

50

個以上のヘテロ原子を含有する 5 員若しくは 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) ピシクロアルキル；(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；ニトロ又はヒドロキシルを表し、

E₁ 及び E₂ は、独立に、化学結合、- (C R_{2 3 3} R_{2 3 4})_z -、- N (R_{2 3 5}) -、- S -、- O -、- Si (R_{2 3 6}) (R_{2 3 7}) -、- P (R_{2 3 8}) -、- C (= O) -、- B (R_{2 3 9}) -、- In (R_{2 4 0}) -、- Se -、- Ge (R_{2 4 1}) (R_{2 4 2}) -、- Sn (R_{2 4 3}) (R_{2 4 4}) -、- Ga (R_{2 4 5}) - 又は - C (R_{2 4 6}) = C (R_{2 4 7}) - を表し、

R_{2 3 3} ~ R_{2 4 7} 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 及び S から選択された 1 個以上のヘテロ原子を含有する 5 員若しくは 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) ピシクロアルキル；(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；ニトロ若しくはヒドロキシルを表し、又は R_{2 3 3} ~ R_{2 4 7} のそれぞれは、縮合環を有する若しくは有しない(C 3 ~ C 6 0) アルキレン若しくは(C 3 ~ C 6 0) アルケニレンによって、隣接する置換基に結合されて、脂環式環又は単環式若しくは多環式芳香族環を形成してもよく、

A r_{5 1} のアリール、ヘテロアリール、ヘテロシクロアルキル、アダマンチル若しくはピシクロアルキル又は R_{2 0 1} ~ R_{2 3 2} 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、アルキルアミノ若しくはアリールアミノは、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 及び S から選択された 1 個以上のヘテロ原子を含有する 5 員若しくは 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) ピシクロアルキル；(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；ニトロ及びヒドロキシルから選択された 1 種以上の置換基によって更に置換されていてよく、

x は、1 ~ 4 の整数であり、並びに

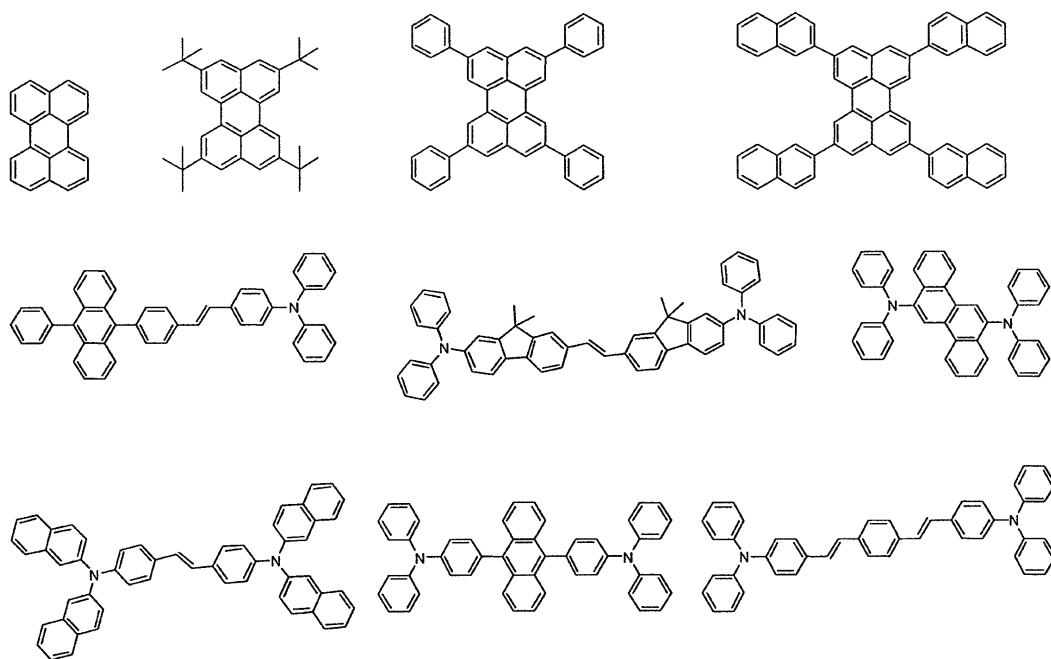
z は、0 ~ 4 の整数である。

【0104】

緑又は青エレクトロルミネセンスを有する有機化合物及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、これらの化合物に限定されない。

【0105】

【化 3 8】

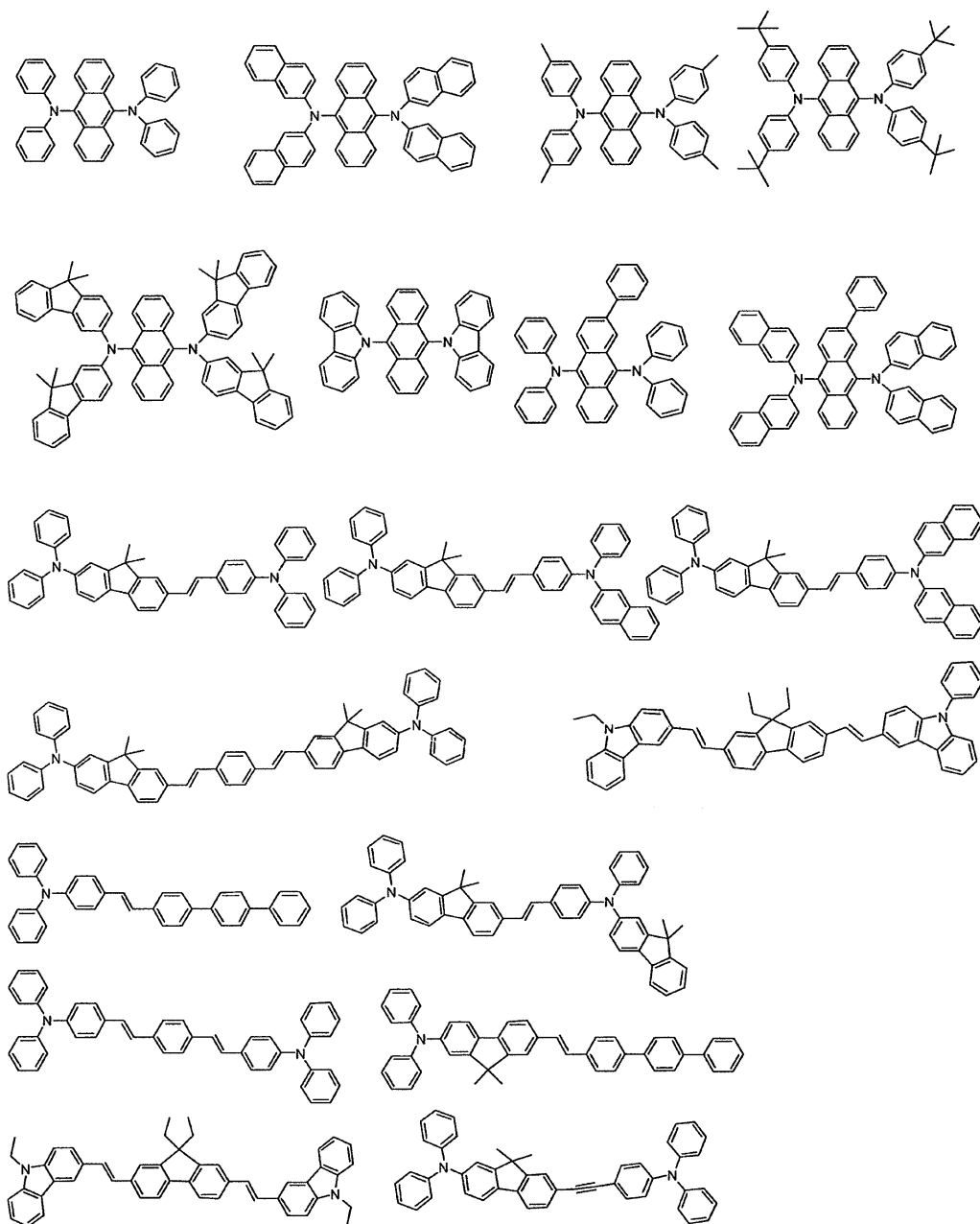


10

【 0 1 0 6】

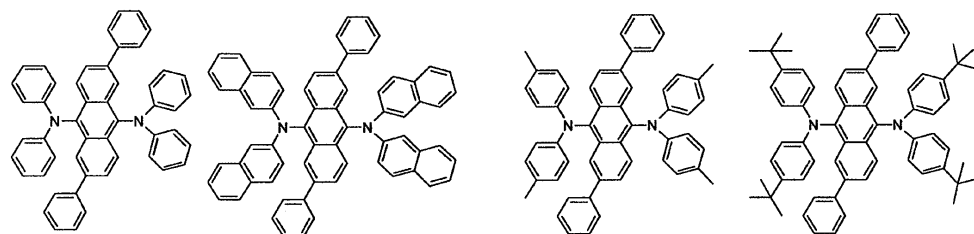
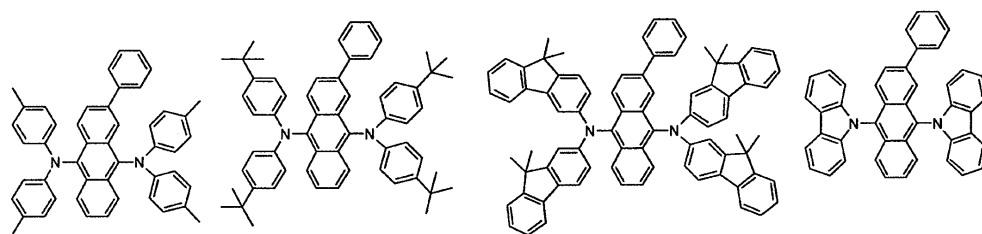
20

【化 3 9】

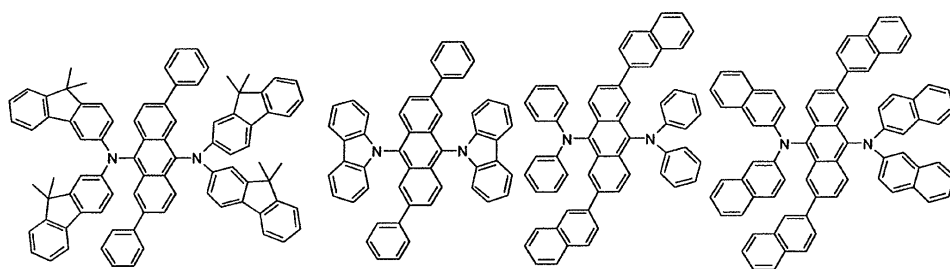


【 0 1 0 7 】

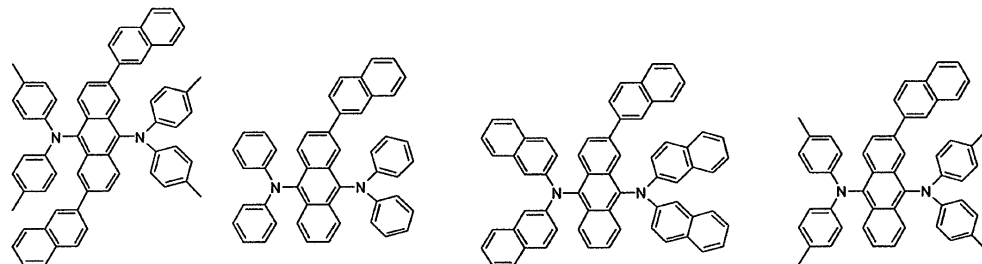
【化 4 0】



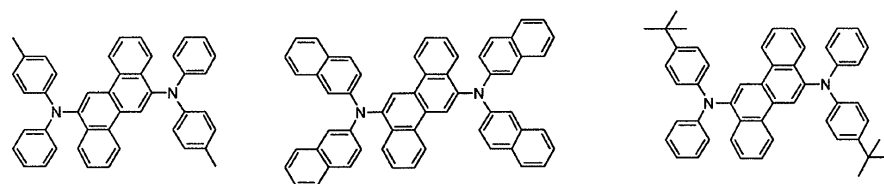
10



20



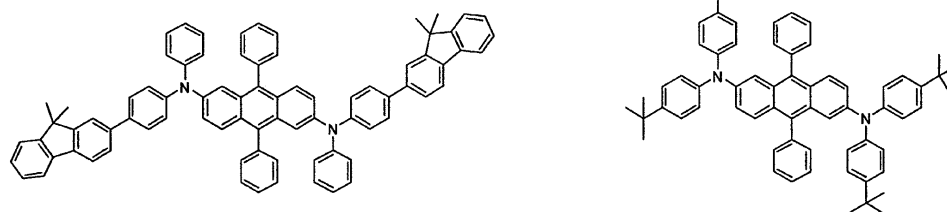
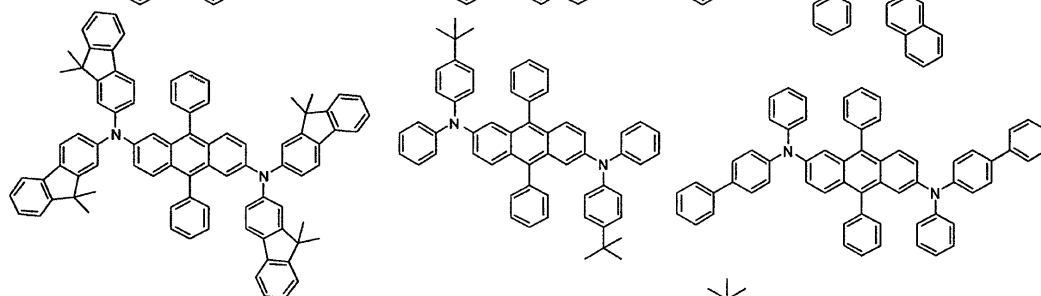
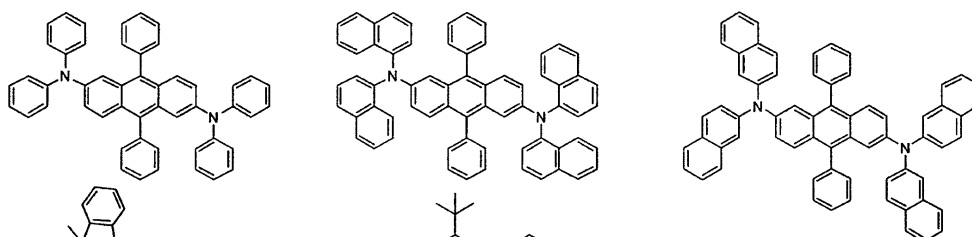
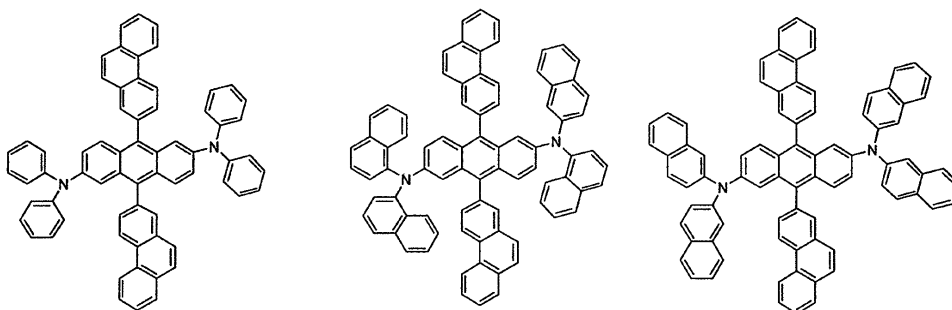
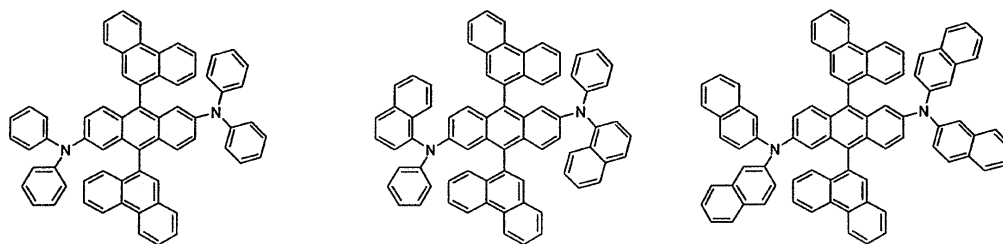
30



【 0 1 0 8】

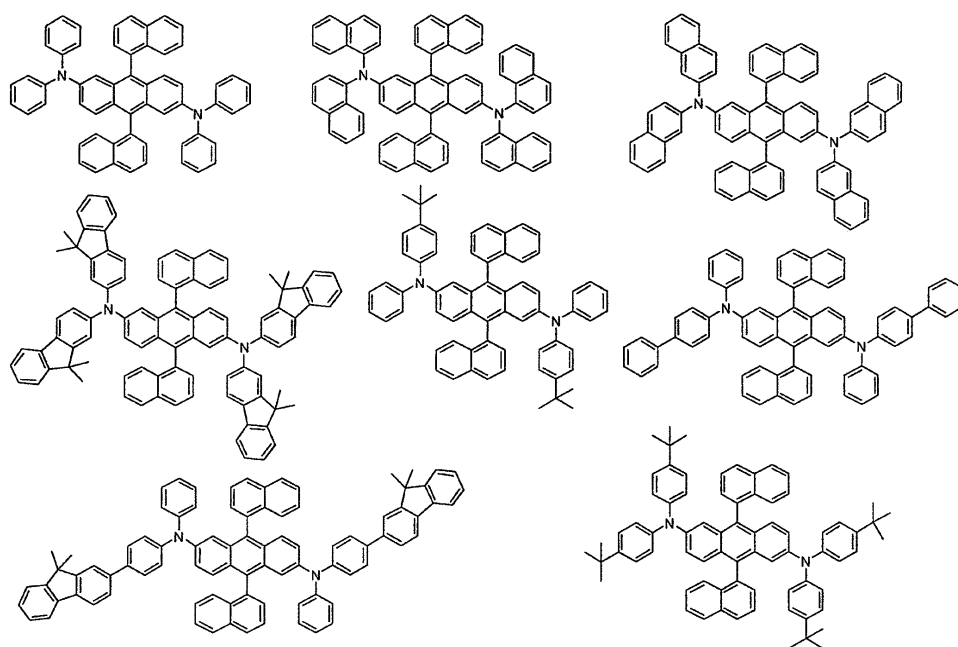
40

【化 4 1】



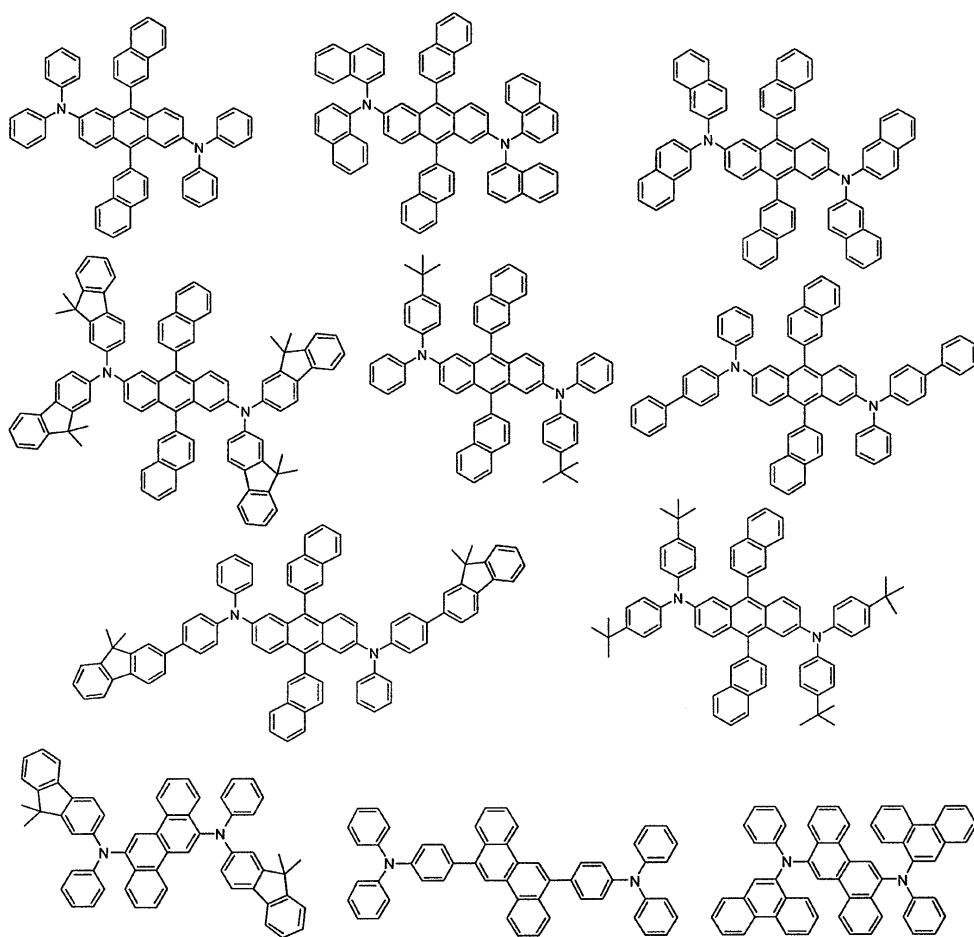
【 0 1 0 9 】

【化 4 2】



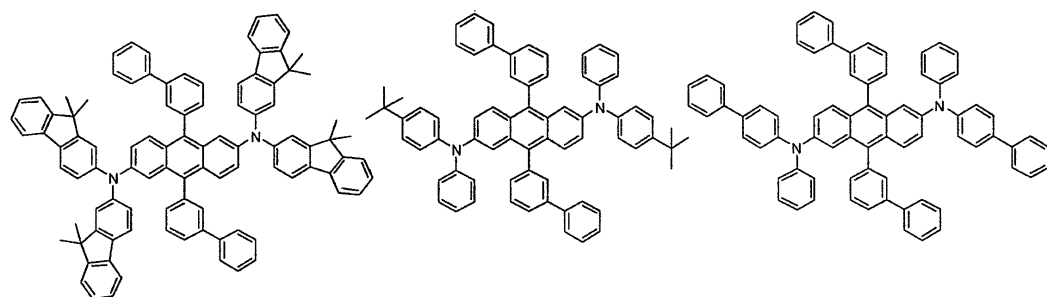
【 0 1 1 0 】

【化 4 3】

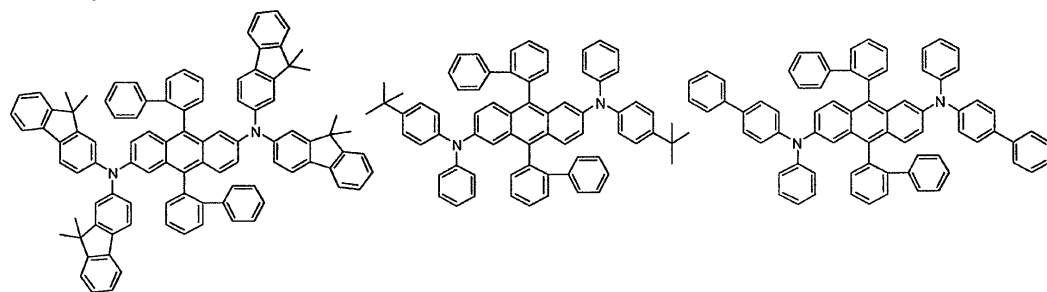


【 0 1 1 1 】

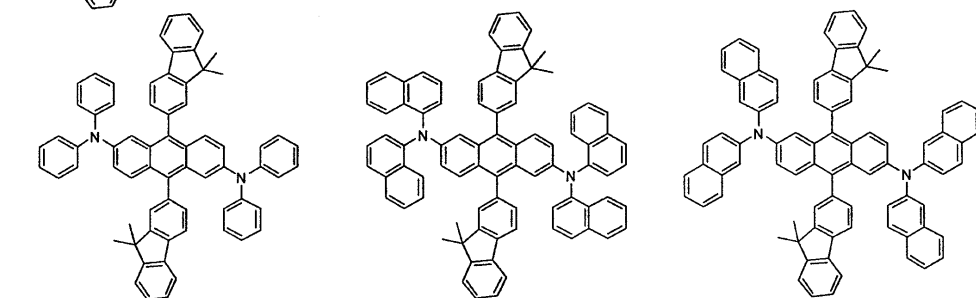
【化 4 4】



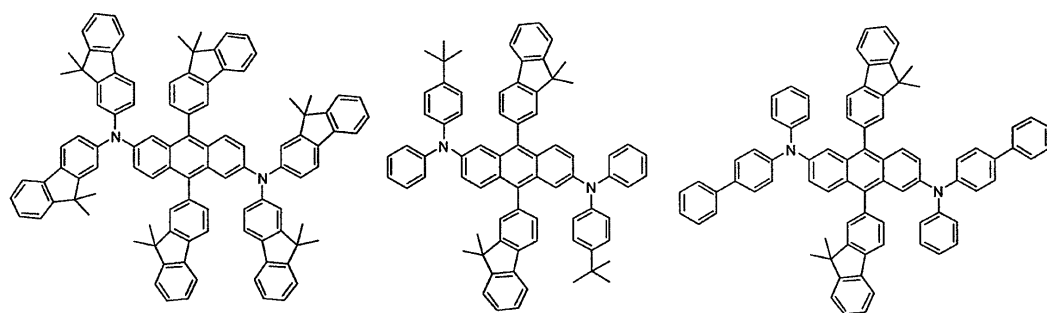
10



20

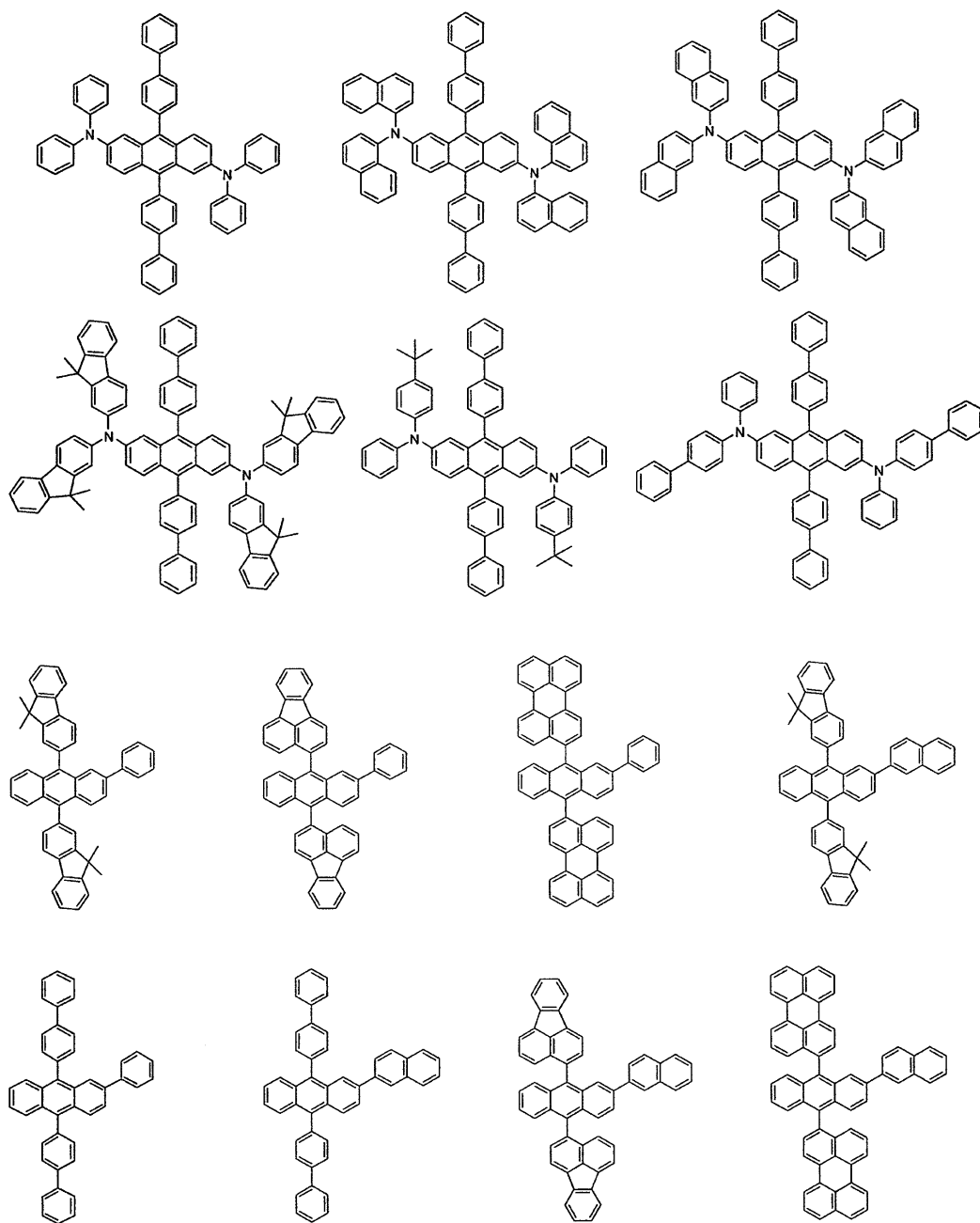


30



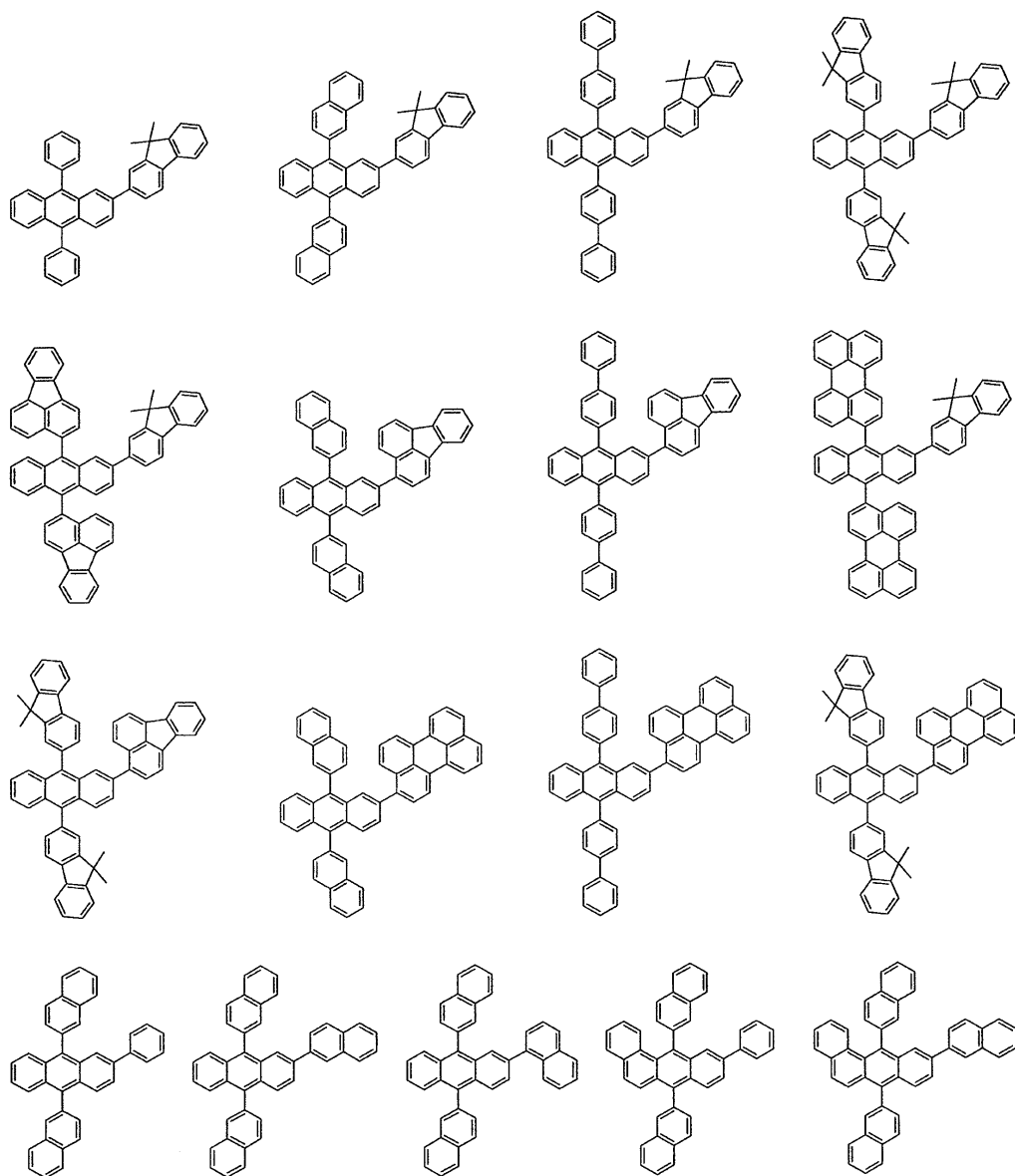
【 0 1 1 2 】

【化 4 5】



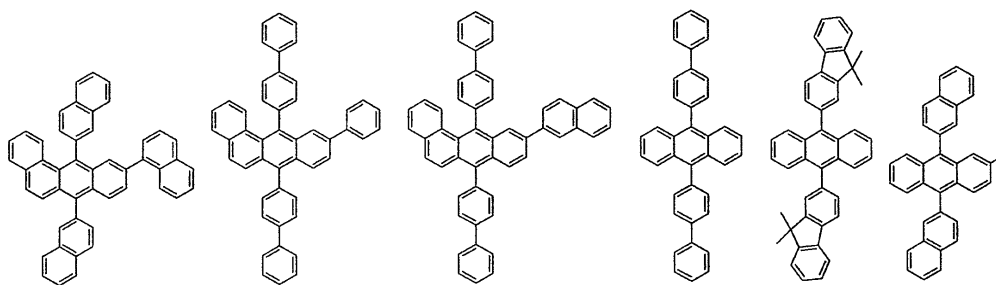
【 0 1 1 3 】

【化 4 6】

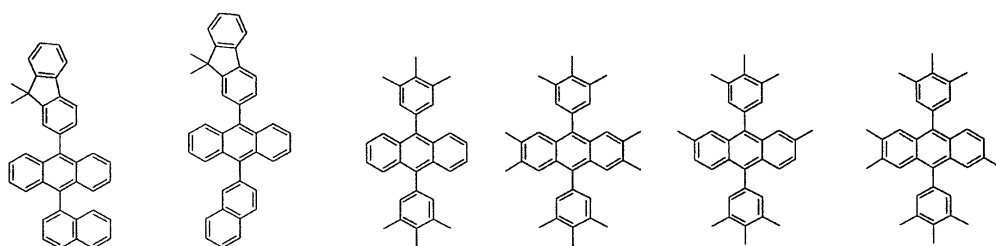
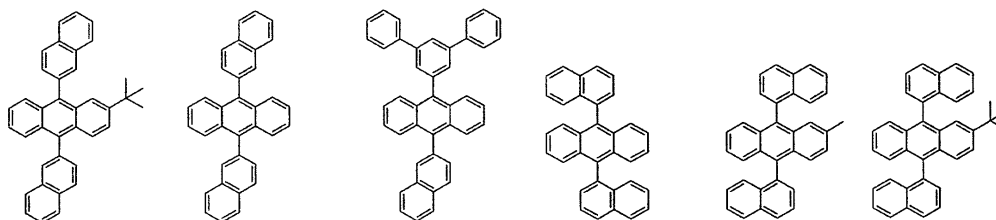


【 0 1 1 4】

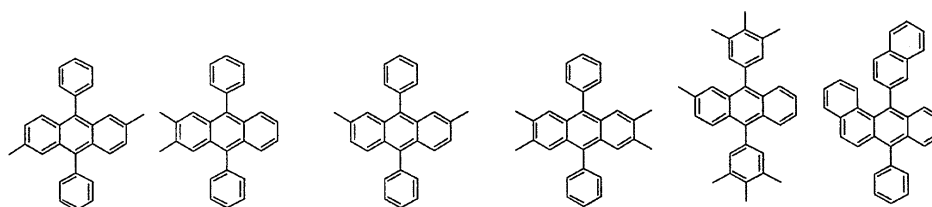
【化 4 7】



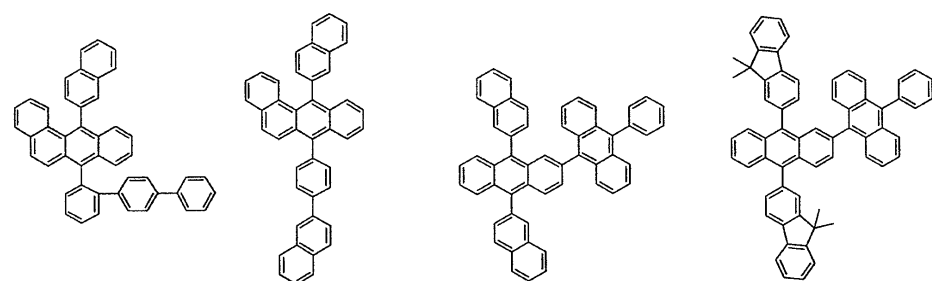
10



20



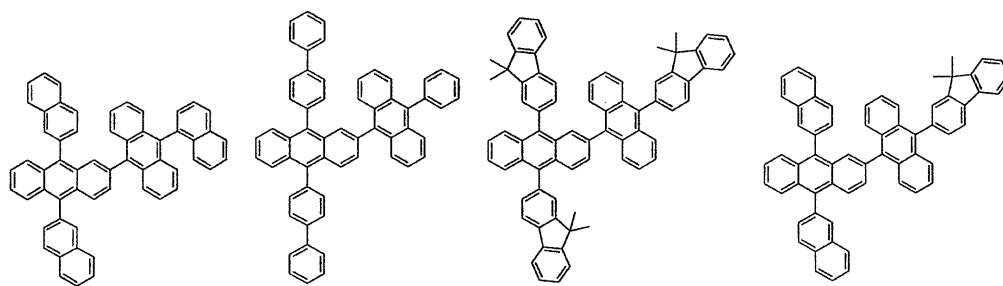
30



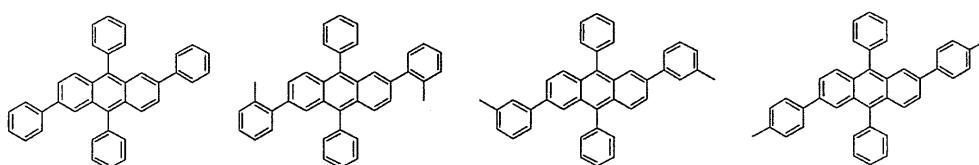
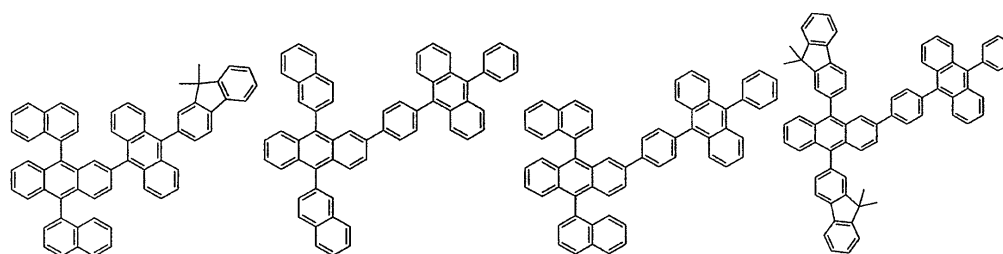
40

【 0 1 1 5 】

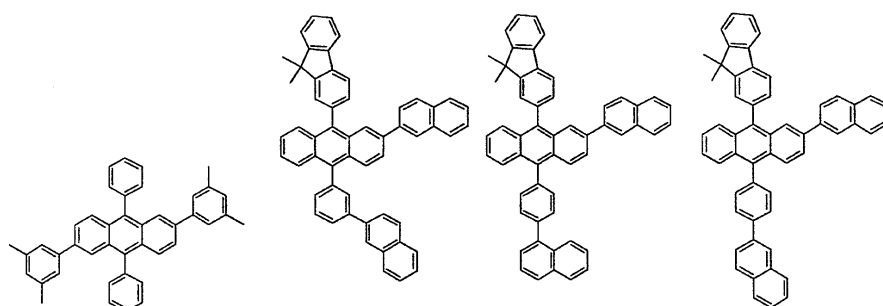
【化 4 8】



10



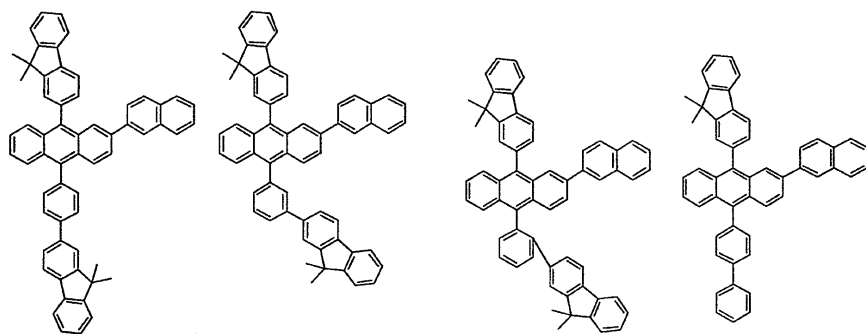
20



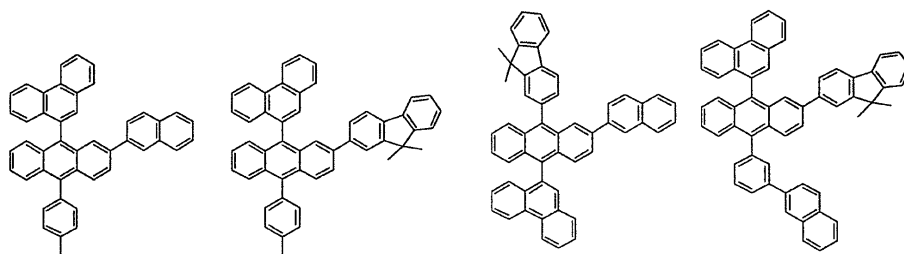
30

【 0 1 1 6 】

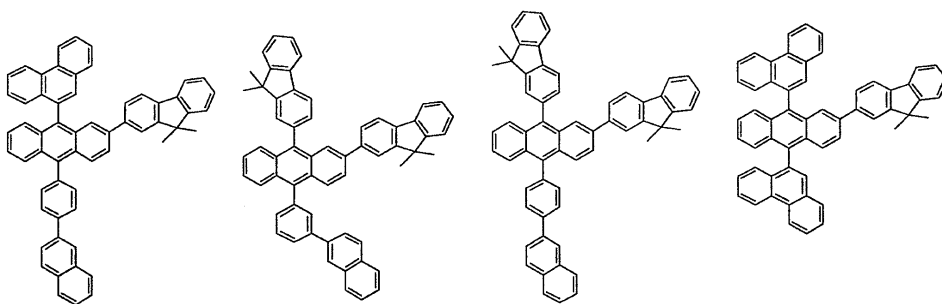
【化 4 9】



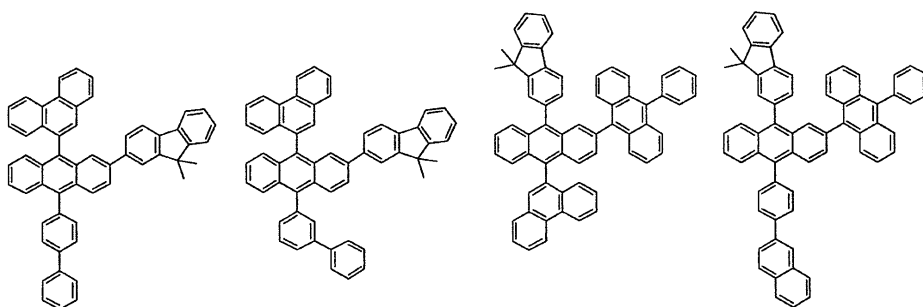
10



20

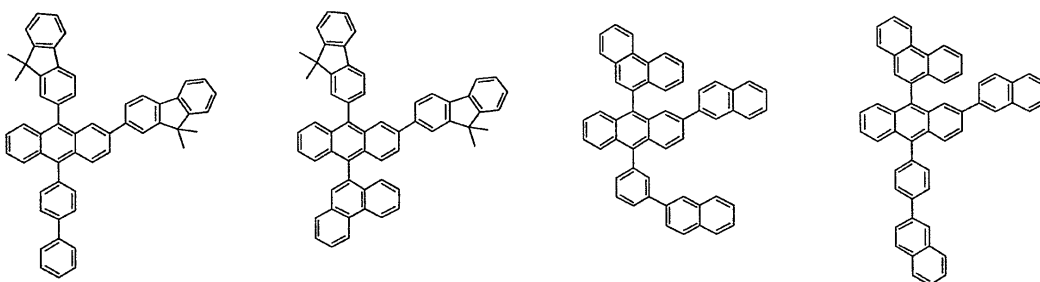
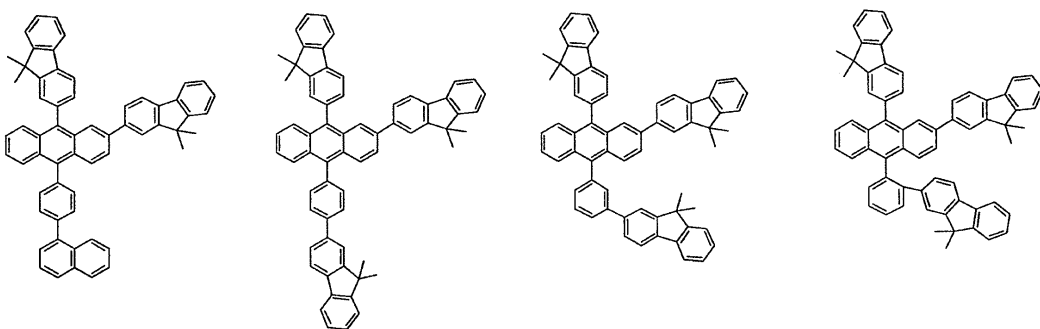
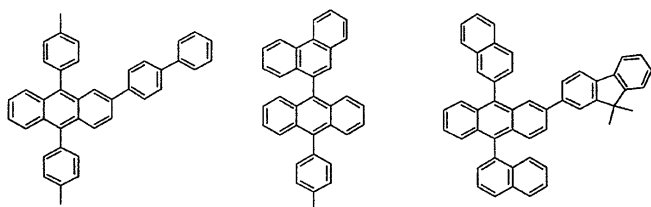
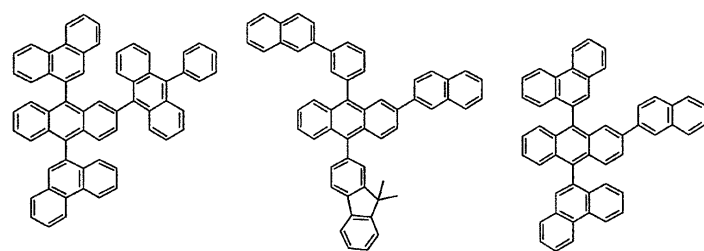


30



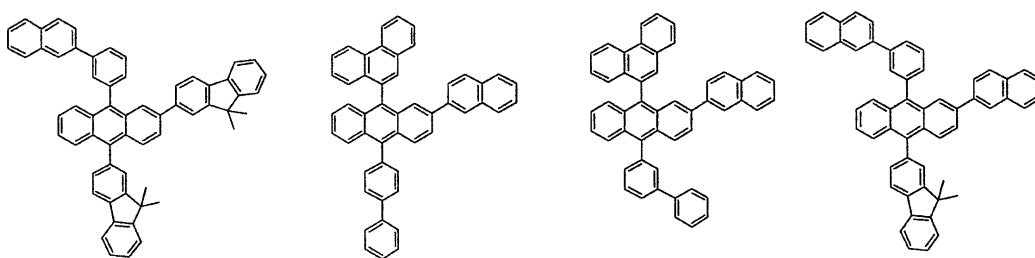
【 0 1 1 7 】

【化 5 0】

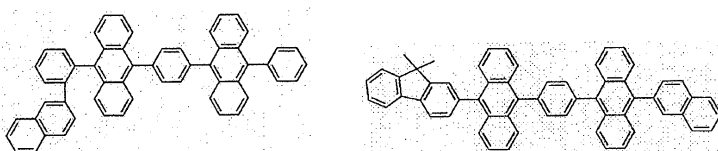
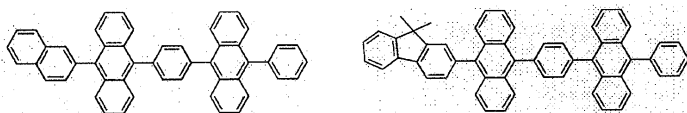


【 0 1 1 8】

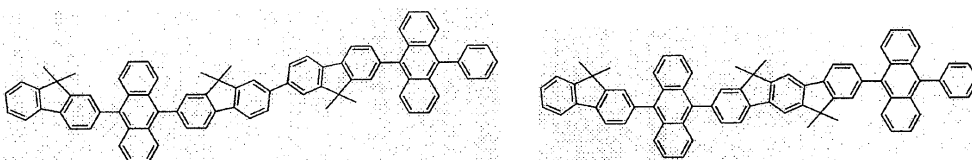
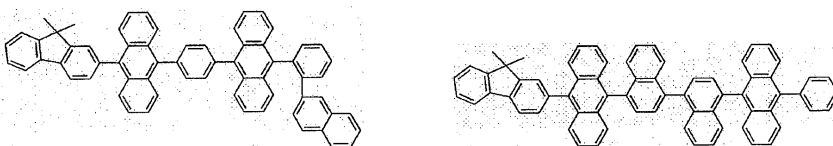
【化 5 1】



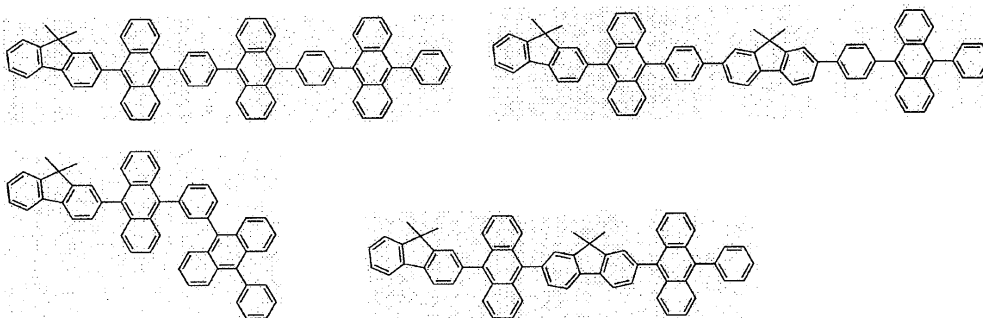
10



20



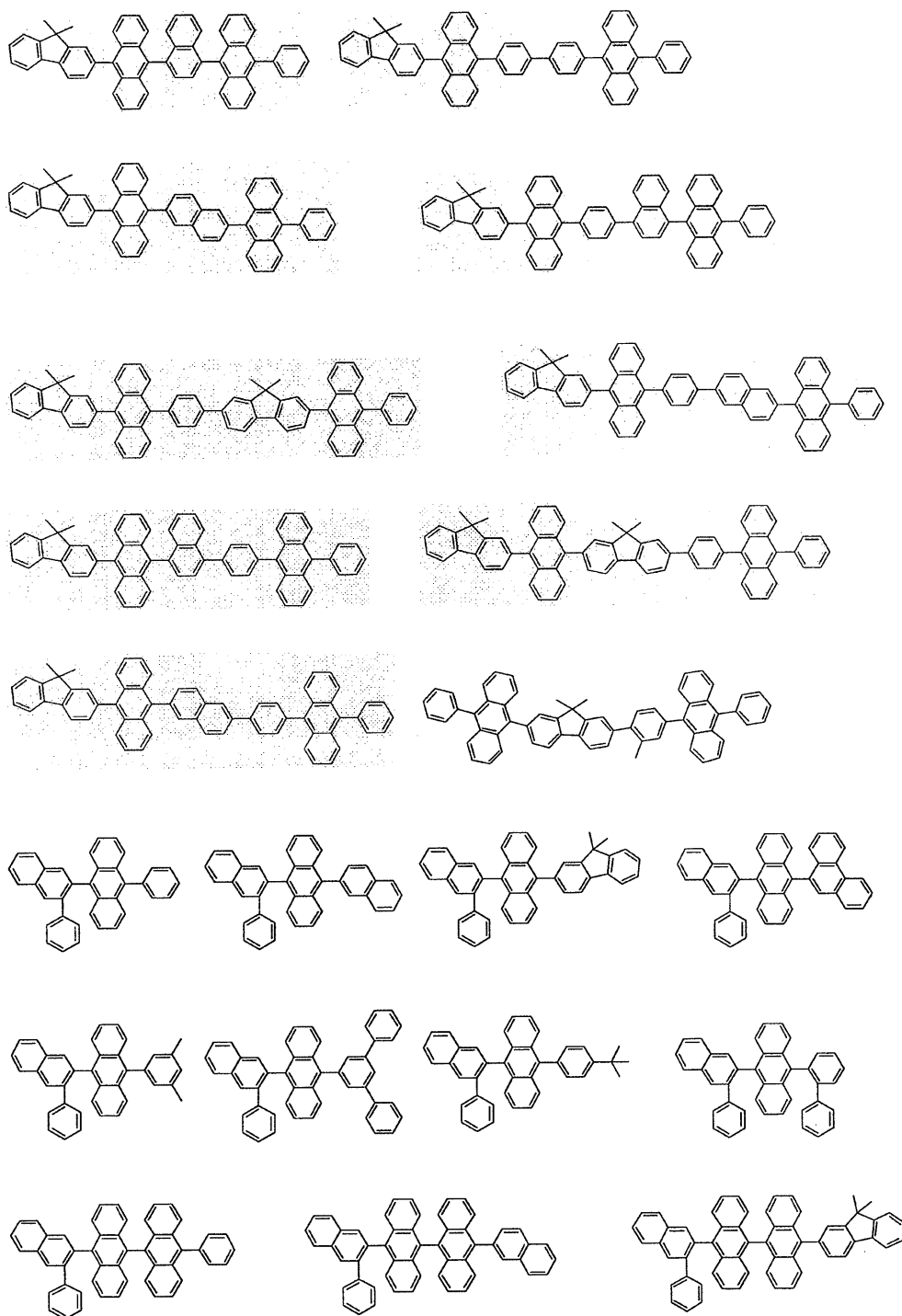
30



【 0 1 1 9】

40

【化 5 2】



【 0 1 2 0】

10

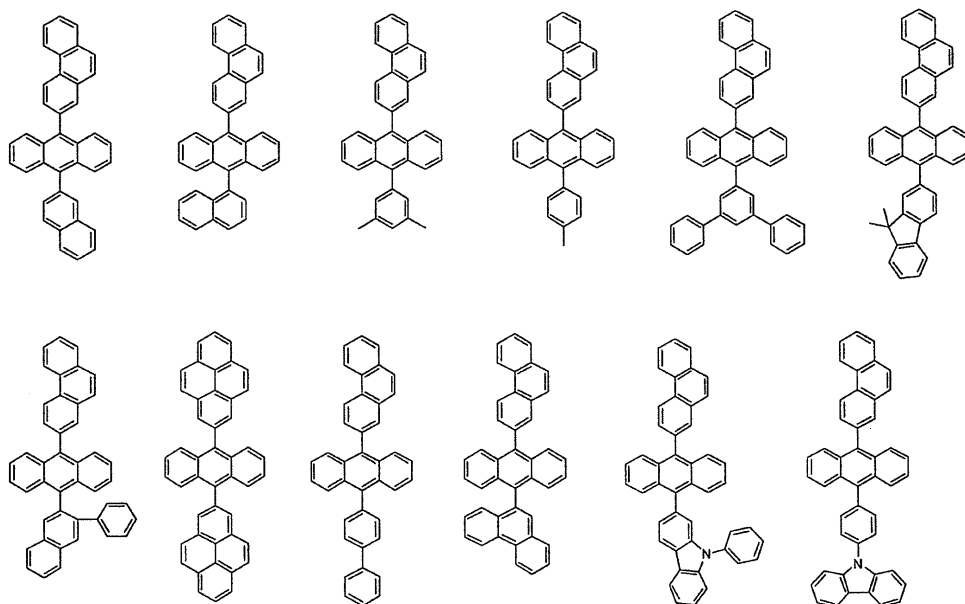
20

30

40

【 0 1 2 1 】

【化 5 4】



10

【0122】

20

本発明に従った有機エレクトロルミネセントデバイスにおいて、カルコゲニド層、金属ハロゲン化物層及び金属酸化物層から選択された1以上の層（以下、「表面層」として言及する）を、電極の対の少なくとも一方側の内表面上に置くことが好ましい。特に、EL媒体層（EL medium layer）のアノード表面上に珪素及びアルミニウム金属（酸化物を含む）のカルコゲニド層を配置し、EL媒体層のカソード表面上に金属ハロゲン化物層又は金属酸化物層を配置することが好ましい。その結果、動作における安定性を得ることができる。

【0123】

カルコゲニドの例には、好ましくは、 SiO_x （ $1 < x < 2$ ）、 AlO_x （ $1 < x < 1.5$ ）、 SiON 、 SiAlON などが含まれる。金属ハロゲン化物の例には、好ましくは、 LiF 、 MgF_2 、 CaF_2 、ランタニドのフッ化物などが含まれる。金属酸化物の例には、好ましくは、 Cs_2O 、 Li_2O 、 MgO 、 SrO 、 BaO 、 CaO などが含まれる。

30

【0124】

本発明に従った有機エレクトロルミネセントデバイスにおいて、このようにして製造された電極の対の少なくとも1つの表面上に、電子輸送化合物及び還元的ドーパントの混合領域又は酸化的ドーパントを有する正孔輸送化合物の混合領域を配置することも好ましい。従って、電子輸送化合物はアニオンにまで還元され、そうして、この混合領域からEL媒体への電子の注入及び輸送が容易になる。更に、正孔輸送化合物が酸化されてカチオンを生成するので、この混合領域からEL媒体への正孔の注入及び輸送が容易になる。好ましい酸化的ドーパントには、種々のルイス酸及び受容体化合物が含まれる。好ましい還元的ドーパントには、アルカリ金属、アルカリ金属化合物、アルカリ土類金属、希土類金属及びこれらの混合物が含まれる。

40

【0125】

従来のりん光材料よりも優れたEL特性及び熱安定性のバックボーンを有する、本発明に従った有機エレクトロルミネセント化合物は、従来の材料に比較して、より高い量子効率及びより低い動作電圧を提供する。従って、本発明に従った有機エレクトロルミネセント化合物をOLEDパネルに適用すると、中から大サイズを有するOLEDの開発において、更に向上した結果が期待される。この化合物を、高効率の材料として有機太陽電池に適用すると、従来の材料に比較して一層優れた特性が期待される。

50

【発明を実施するための最良の形態】

【0126】

本発明を、更に、本発明に従った新規な有機エレクトロルミネセント化合物の調製方法に関して実施例を参照することによって説明するが、この実施例は、例示のみのために示され、決して本発明の範囲を限定するように意図されるものではない。

【実施例】

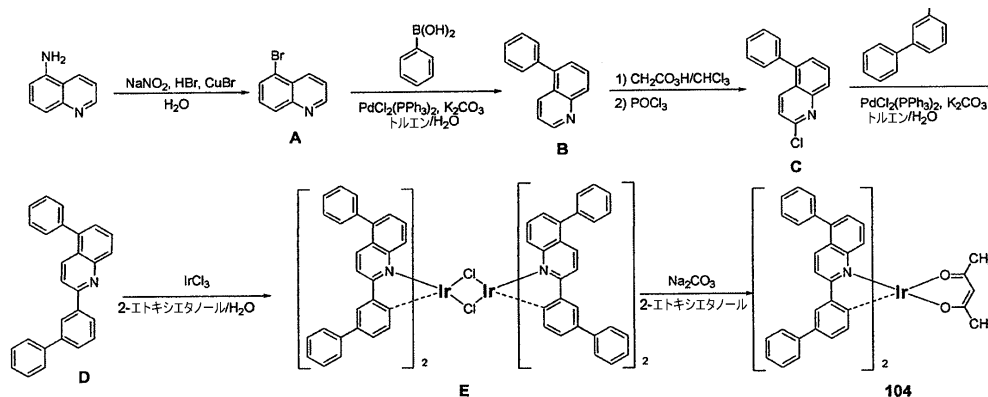
【0127】

調製実施例

[調製実施例1] 化合物(104)の調製

【0128】

【化55】



【0129】

化合物(A)の調製

臭化水素水溶液(48%水溶液、HBr)(60mL)中に、5-アミノキノリン(20.0g、138.7ミリモル)を溶解し、この溶液を-10℃にまで冷却した。これに、亜硝酸ナトリウム水溶液(10.9g、158.1ミリモル)(100mLのH₂O中)を添加した。0℃で10分間撹拌した後、この反応混合物に、臭化銅(CuBr)(23.1g、160.9ミリモル)の溶液(240mLのH₂O及び65mLのHBr水溶液中)を添加した。得られた混合物を、撹拌しながら60℃で30分間加熱した。反応が完結したとき、この反応混合物を室温に冷却し、これに氷水を注いだ。NaOH水溶液(4M)を使用することによって、pHを約10に調節した後、この混合物を酢酸エチルによって抽出し、減圧下で濾過した。シリカゲルカラムクロマトグラフィーによる精製によって、化合物(A)(18.2g、87.4ミリモル)を得た。

【0130】

化合物(B)の調製

化合物(A)(18.0g、86.5ミリモル)、フェニルボロン酸(12.7g、103.8ミリモル)、テトラキスパラジウム(0)トリフェニルホスフィン(Pd(PPh₃)₄)(3.6g、5.2ミリモル)を、トルエン(150mL)及びエタノール(45mL)中に溶解させた。これに、2M炭酸ナトリウム水溶液(70mL)を添加した後、得られた混合物を、120℃で還流下で4時間撹拌した。次いで、この混合物を25℃にまで冷却し、蒸留水(200mL)を添加して、反応をクエンチした。得られた混合物を酢酸エチル(300mL)によって抽出し、抽出物を減圧下で乾燥した。シリカゲルカラムクロマトグラフィーによる精製によって、化合物(B)(14.6g、70.9ミリモル)を得た。

【0131】

化合物(C)の調製

化合物(B)(14.0g、68.2ミリモル)を、クロロホルム(200mL)中に溶解させ、この溶液にペルオキシ酢酸(150mL)を添加した。この反応混合物を、還流下で4時間撹拌した。この反応が完結したとき、反応混合物を室温にまで冷却し、これ

10

20

30

40

50

に氷水を注いだ。水酸化ナトリウム水溶液（１０Ｍ）を使用することによって、ｐＨを約１０に調節した。次いで、生成された固体を減圧下で得た。この固体を５にまで冷却し、これに POCl_3 （１５０ｍＬ）を添加し、この混合物を、１００で還流下で１時間攪拌した。この溶液を室温にまで冷却し、これに氷水を添加した。水酸化ナトリウム水溶液（１０Ｍ）を使用することによって、この溶液のｐＨを約８に調節した後、この混合物をジクロロメタンによって抽出し、減圧下で濾過した。シリカゲルカラムクロマトグラフィーによる精製によって、化合物（Ｃ）（６．２ｇ、２５．９ミリモル）を得た。

【０１３２】

化合物（Ｄ）の調製

化合物（Ｃ）（６．０ｇ、２５．０ミリモル）、３－ピフェニルボロン酸（６．０ｇ、３０．０ミリモル）、テトラキスパラジウム（０）トリフェニルホスフィン（ $\text{Pd}(\text{PPh}_3)_4$ ）（１．１ｇ、１．５ミリモル）を、トルエン（１００ｍＬ）及びエタノール（３０ｍＬ）中に溶解させた。これに、２Ｍ炭酸ナトリウム水溶液（３０ｍＬ）を添加した後、得られた混合物を、１２０で還流下で４時間攪拌した。次いで、この混合物を２５にまで冷却し、蒸留水（２００ｍＬ）を添加して、反応をクエンチした。得られた混合物を酢酸エチル（３００ｍＬ）によって抽出し、抽出物を減圧下で乾燥した。シリカゲルカラムクロマトグラフィーによる精製によって、化合物（Ｄ）（７．２ｇ、２０．０ミリモル）を得た。

【０１３３】

化合物（Ｅ）の調製

化合物（Ｄ）（７．０ｇ、１９．６ミリモル）及び塩化イリジウム（ IrCl_3 ）（２．６３ｇ、８．８２ミリモル）を、２－エトキシエタノール（８０ｍＬ）及び蒸留水（３５ｍＬ）中に溶解させ、この溶液を、還流下で２４時間攪拌した。この反応が完結したとき、反応混合物を冷却した。次いで、調製された固体を、濾過し、乾燥して、化合物（Ｅ）（９．１ｇ、７．７９ミリモル）を得た。

【０１３４】

化合物（１０４）の調製

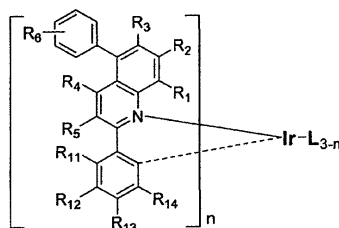
化合物（Ｅ）（９．１ｇ、７．８ミリモル）、２，４－ペンタンジオン（０．９ｇ、９．３ミリモル）及び Na_2CO_3 （３．０ｇ、２８．０ミリモル）を、２－エトキシエタノール（２４０ｍＬ）中に溶解させ、この溶液を４時間加熱した。反応が完結したとき、この反応混合物を室温にまで冷却し、調製された固体沈殿を濾過した。シリカゲルカラムクロマトグラフィー及び再結晶による精製によって、化合物（１０４）（０．８ｇ、１．３ミリモル、全体収率：１６％）を、赤色結晶として得た。

【０１３５】

調製実施例１と同じ手順に従って、表１中の有機エレクトロルミネセント化合物（化合物１～化合物１０１９）を調製した。それらの ^1H NMR及びMS/FABデータを、表２中に記載する。

【０１３６】

【化５６】



【０１３７】

10

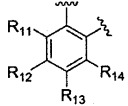
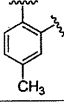
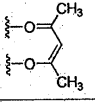
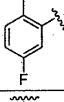
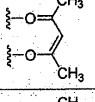
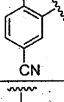
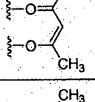
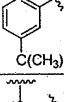
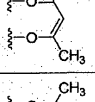
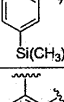
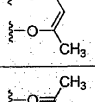
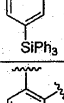
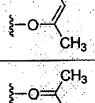
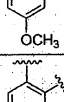
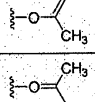
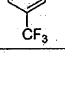
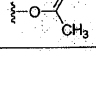
20

30

40

【表 1】

表1

No.	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	R ₅	R ₆		L	n
1	H	H	H	H	H	H			2
2	H	H	H	H	H	H			2
3	H	H	H	H	H	H			2
4	H	H	H	H	H	H			2
5	H	H	H	H	H	H			2
6	H	H	H	H	H	H			2
7	H	H	H	H	H	H			2
8	H	H	H	H	H	H			2

【 0 1 3 8 】

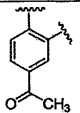
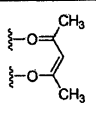


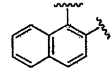

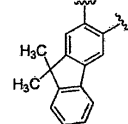
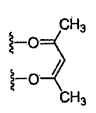
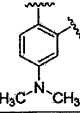
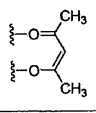
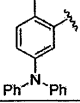
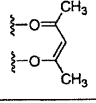
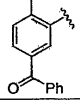
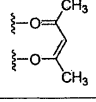
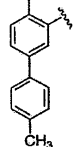
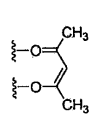
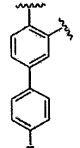
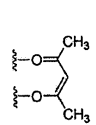
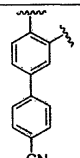
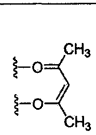
10

20

30

【表 2】

表1の続き

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

【 0 1 3 9 】

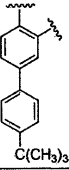
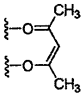
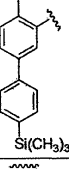
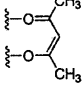
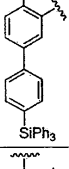
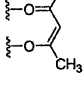
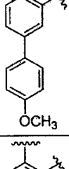
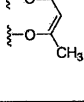
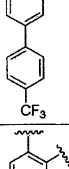
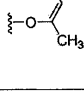
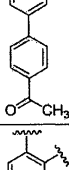
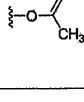


10

20

30

【表 3】

表1の続き

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

【 0 1 4 0 】

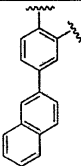

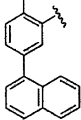

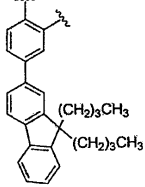

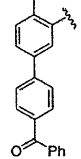

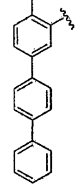

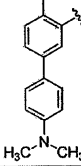

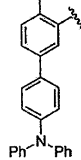

10

20

30

【表 4】

表1の続き

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

【 0 1 4 1 】

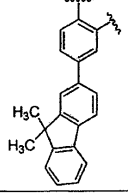
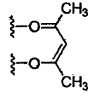
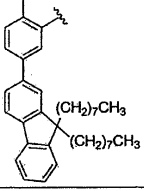
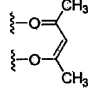
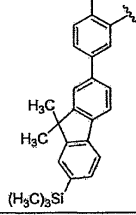
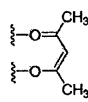
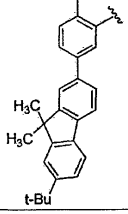
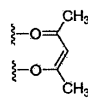
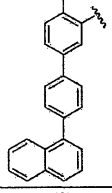
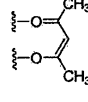
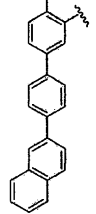
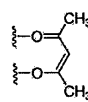
10

20

30

【表 5】

表1の続き

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

【 0 1 4 2 】

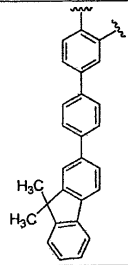

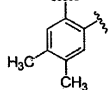

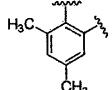



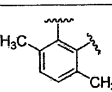

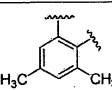











10

20

30

【表 6】

表1の続き

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

【 0 1 4 3 】



















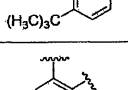







10

20

30

【表 7】

表1の続き

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

【 0 1 4 4 】

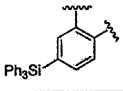

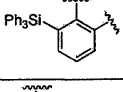

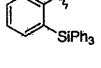

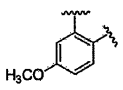

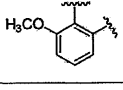

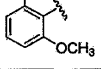

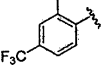

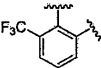

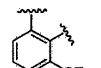

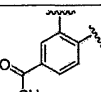

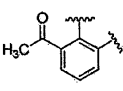

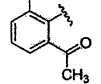

10

20

30

【表 8】

表1の続き

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

【 0 1 4 5 】

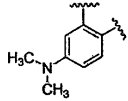
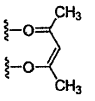
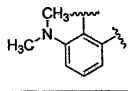

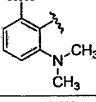
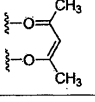
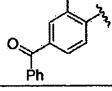

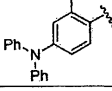

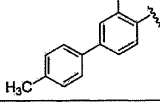
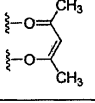
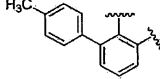

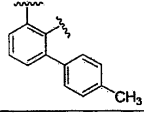
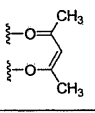
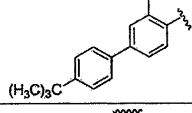
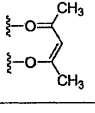
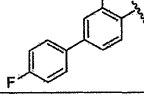
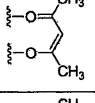
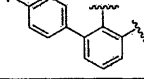

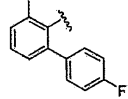

10

20

30

【表 9】

表1の続き

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

【 0 1 4 6 】

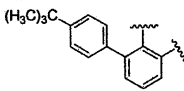
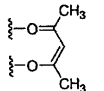
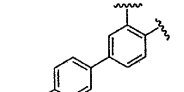
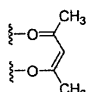
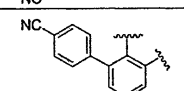
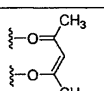
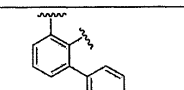
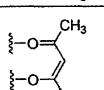
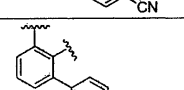
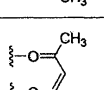
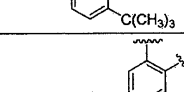
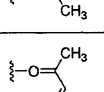
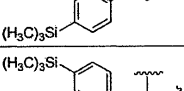
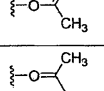
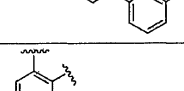
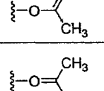
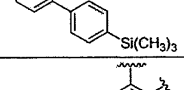
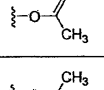
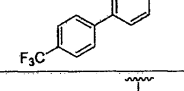
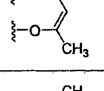
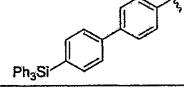
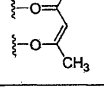
10

20

30

【表 10】

表1の続き

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

【 0 1 4 7 】

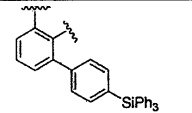
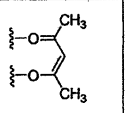
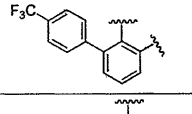
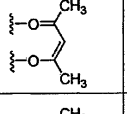
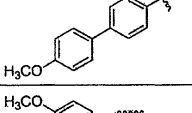
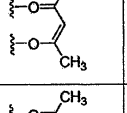
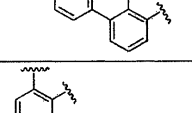
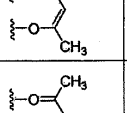
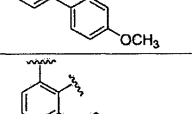
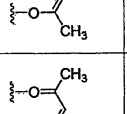
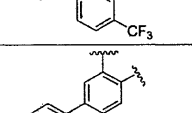
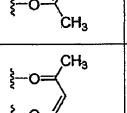
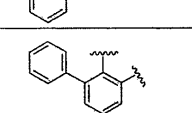
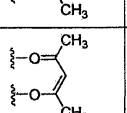
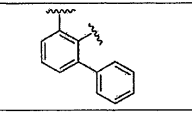
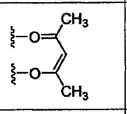
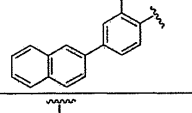
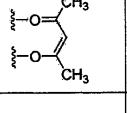
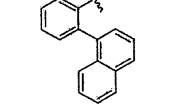
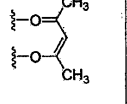


10

20

30

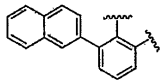

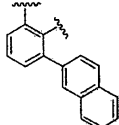

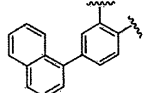

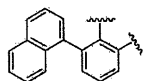

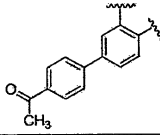

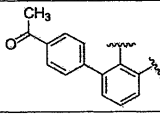

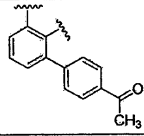

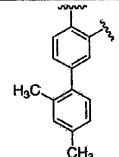

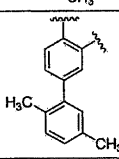

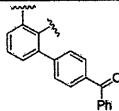

【表 1 1】

表1の続き

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

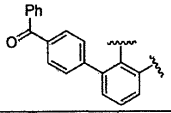
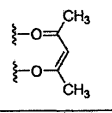
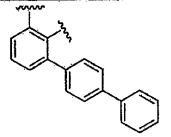
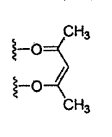
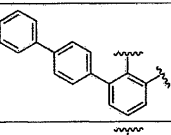
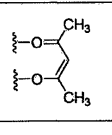
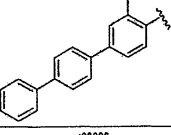
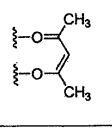
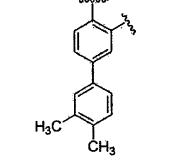
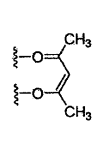
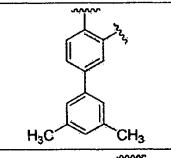
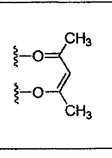
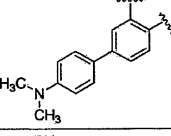
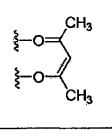
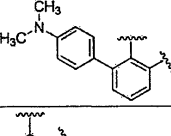
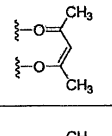
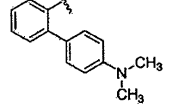
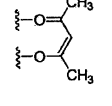
【表 1 2】

表1の続き

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

【表 13】

表1の続き

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

【 0 1 5 0 】

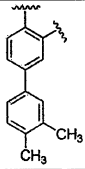
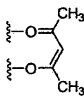
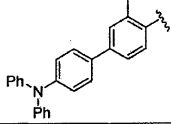
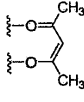
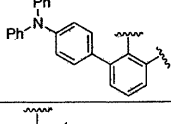
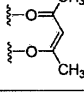
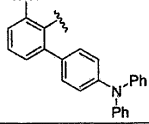
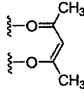
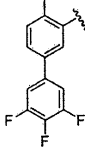
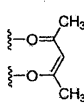
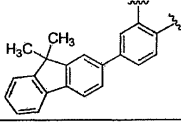
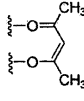
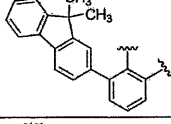
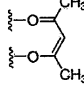
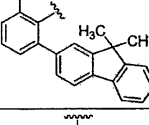
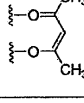
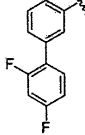
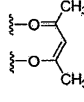
10

20

30

【表 1 4】

表1の続き

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

【 0 1 5 1 】

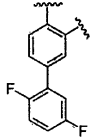

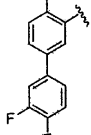

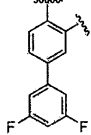

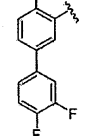

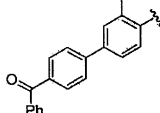

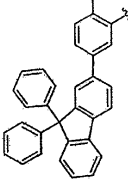

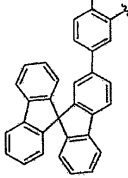

10

20

30

【表 1 5】

表1の続き

137	H	H	H	H	H	H			2
138	H	H	H	H	H	H			2
139	H	H	H	H	H	H			2
140	H	H	H	H	H	H			2
141	H	H	H	H	H	H			2
142	H	H	H	H	H	H			2
143	H	H	H	H	H	H			2

【 0 1 5 2 】

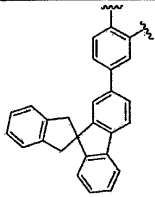

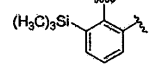

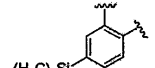

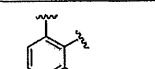

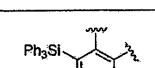

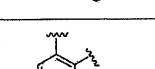

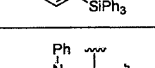

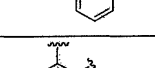

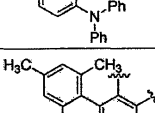

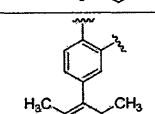

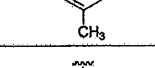

10

20

30

【表 16】

表1の続き

144	H	H	H	H	H	H			2
145	H	H	H	H	H	H			2
146	H	H	H	H	H	H			2
147	H	H	H	H	H	H			2
148	H	H	H	H	H	H			2
149	H	H	H	H	H	H			2
150	H	H	H	H	H	H			2
151	H	H	H	H	H	H			2
152	H	H	H	H	H	H			2
153	H	H	H	H	H	H			2
154	H	H	H	H	H	H			2

【 0 1 5 3 】

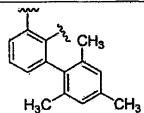
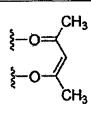
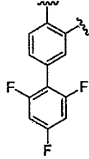
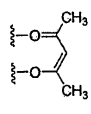
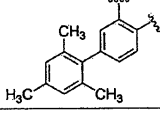
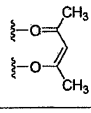
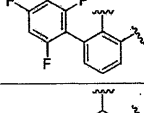
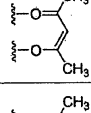
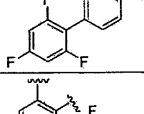
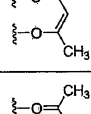
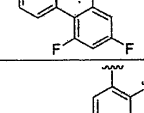
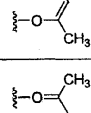
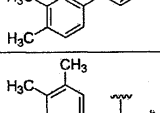
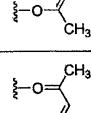
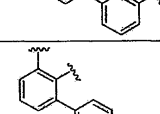
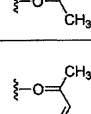
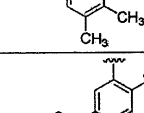
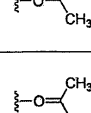
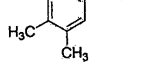

10

20

30

【表 17】

表1の続き

155	H	H	H	H	H	H			2
156	H	H	H	H	H	H			2
157	H	H	H	H	H	H			2
158	H	H	H	H	H	H			2
159	H	H	H	H	H	H			2
160	H	H	H	H	H	H			2
161	H	H	H	H	H	H			2
162	H	H	H	H	H	H			2
163	H	H	H	H	H	H			2
164	H	H	H	H	H	H			2

【 0 1 5 4 】

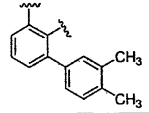

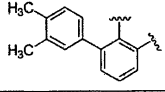

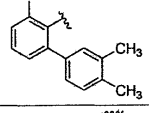

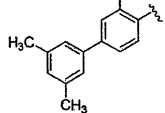

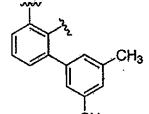

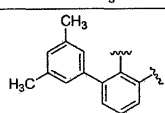

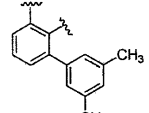

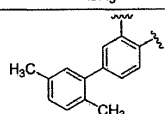

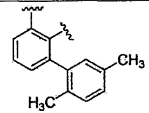

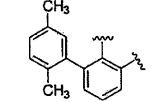

10

20

30

【表 18】

表1の続き

165	H	H	H	H	H	H			2
166	H	H	H	H	H	H			2
167	H	H	H	H	H	H			2
168	H	H	H	H	H	H			2
169	H	H	H	H	H	H			2
170	H	H	H	H	H	H			2
171	H	H	H	H	H	H			2
172	H	H	H	H	H	H			2
173	H	H	H	H	H	H			2
174	H	H	H	H	H	H			2

10

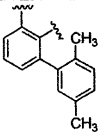

















20

30

【 0 1 5 5 】

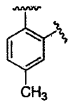
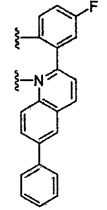
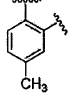
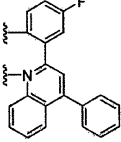
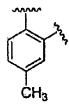
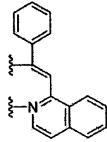
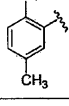
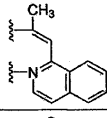
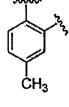
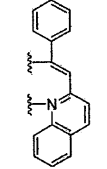
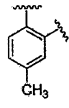
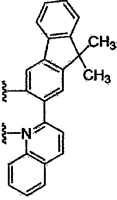
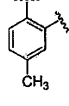
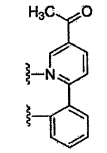
【表 19】

表1の続き

175	H	H	H	H	H	H			2
176	H	H	H	H	H	H			2
177	H	H	H	H	H	H			2
178	H	H	H	H	H	H			2
179	H	H	H	H	H	H			2
180	H	H	H	H	H	H			2
181	H	H	H	H	H	H			2
182	H	H	H	H	H	H			2
183	H	H	H	H	H	H			2

【表 20】

表1の続き

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

【 0 1 5 7 】

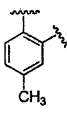
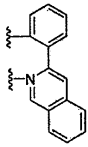
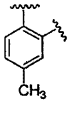
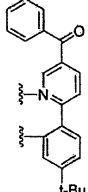
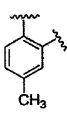
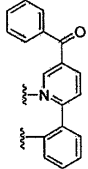
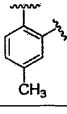
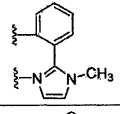
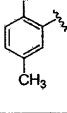
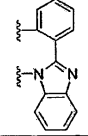
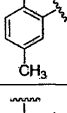
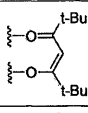
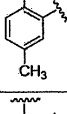
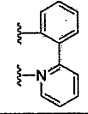
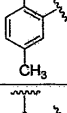


10

20

30

【表 2 1】

表1の続き

191	H	H	H	H	H	H			2
192	H	H	H	H	H	H			2
193	H	H	H	H	H	H			2
194	H	H	H	H	H	H			2
195	H	H	H	H	H	H			2
196	H	H	H	H	H	H			2
197	H	H	H	H	H	H			1
198	H	H	H	H	H	H		—	3
199	H	H	H	H	H	F			2

【 0 1 5 8 】



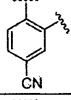
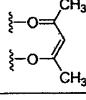






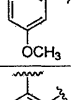
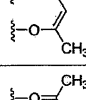






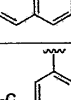
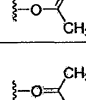




10

20

30

【表 2 2】

表1の続き

200	H	H	H	H	H	F			2
201	H	H	H	H	H	F			2
202	H	H	H	H	H	F			2
203	H	H	H	H	H	F			2
204	H	H	H	H	H	F			2
205	H	H	H	H	H	F			2
206	H	H	H	H	H	F			2
207	H	H	H	H	H	F			2
208	H	H	H	H	H	F			2
209	H	H	H	H	H	F			2
210	H	H	H	H	H	F			2
211	H	H	H	H	H	F			2

【 0 1 5 9 】

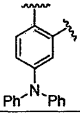
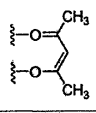
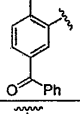
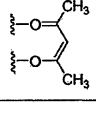
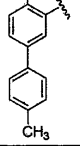
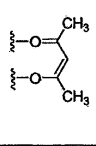
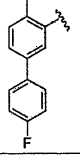
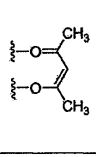
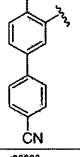
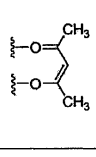
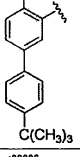
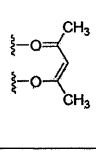
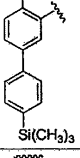
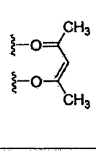
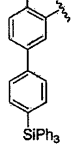
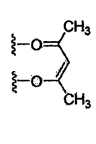
10

20

30

【表 2 3】

表1の続き

212	H	H	H	H	H	F			2
213	H	H	H	H	H	F			2
214	H	H	H	H	H	F			2
215	H	H	H	H	H	F			2
216	H	H	H	H	H	F			2
217	H	H	H	H	H	F			2
218	H	H	H	H	H	F			2
219	H	H	H	H	H	F			2

10

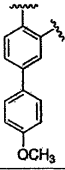
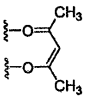
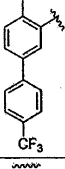
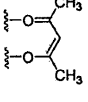
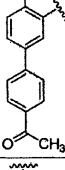
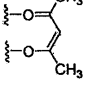
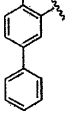
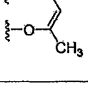
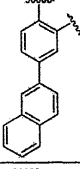
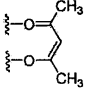
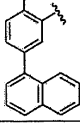
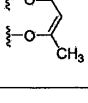
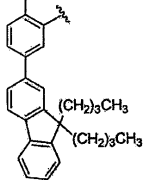
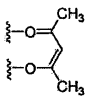
20

30

【 0 1 6 0 】

【表 2 4】

表1の続き

220	H	H	H	H	H	F			2
221	H	H	H	H	H	F			2
222	H	H	H	H	H	F			2
223	H	H	H	H	H	F			2
224	H	H	H	H	H	F			2
225	H	H	H	H	H	F			2
226	H	H	H	H	H	F			2

【 0 1 6 1 】

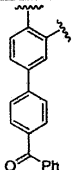
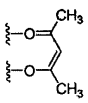
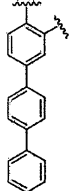
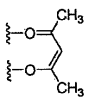
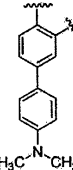
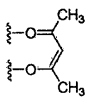
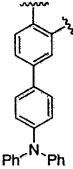
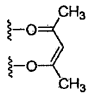
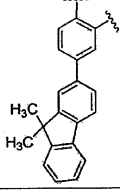
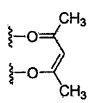
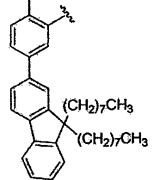
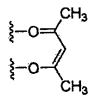
10

20

30

【表 2 5】

表1の続き

227	H	H	H	H	H	F			2
228	H	H	H	H	H	F			2
229	H	H	H	H	H	F			2
230	H	H	H	H	H	F			2
231	H	H	H	H	H	F			2
232	H	H	H	H	H	F			2

10

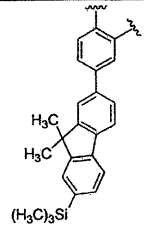
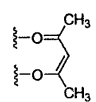
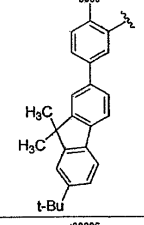
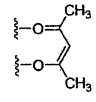
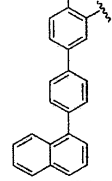
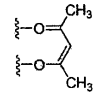
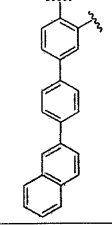
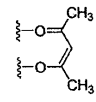
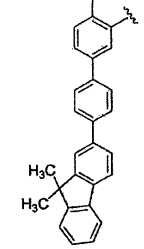
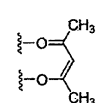
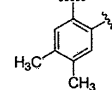
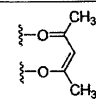
20

30

【 0 1 6 2 】

【表 2 6】

表1の続き

233	H	H	H	H	H	F			2
234	H	H	H	H	H	F			2
235	H	H	H	H	H	F			2
236	H	H	H	H	H	F			2
237	H	H	H	H	H	F			2
238	H	H	H	H	H	F			2

【 0 1 6 3 】

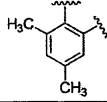
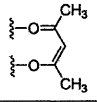
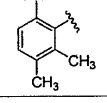
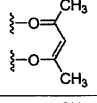
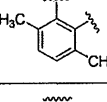
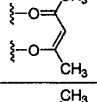
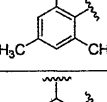
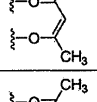
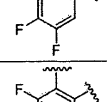
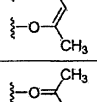
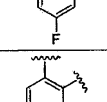
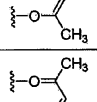
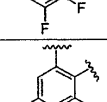
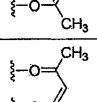
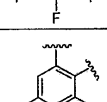
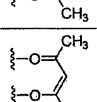
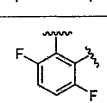
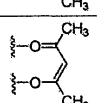
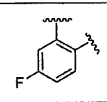
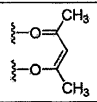
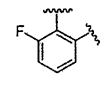



10

20

30

【表 27】

表1の続き

239	H	H	H	H	H	F			2
240	H	H	H	H	H	F			2
241	H	H	H	H	H	F			2
242	H	H	H	H	H	F			2
243	H	H	H	H	H	F			2
244	H	H	H	H	H	F			2
245	H	H	H	H	H	F			2
246	H	H	H	H	H	F			2
247	H	H	H	H	H	F			2
248	H	H	H	H	H	F			2
249	H	H	H	H	H	F			2
250	H	H	H	H	H	F			2



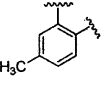



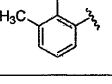

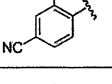



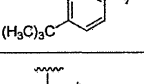



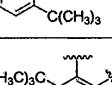

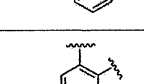

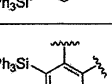



10

20

30

























【表 28】

表1の続き

251	H	H	H	H	H	F			2
252	H	H	H	H	H	F			2
253	H	H	H	H	H	F			2
254	H	H	H	H	H	F			2
255	H	H	H	H	H	F			2
256	H	H	H	H	H	F			2
257	H	H	H	H	H	F			2
258	H	H	H	H	H	F			2
259	H	H	H	H	H	F			2
260	H	H	H	H	H	F			2
261	H	H	H	H	H	F			2
262	H	H	H	H	H	F			2

【表 29】

表1の続き

263	H	H	H	H	H	F			2
264	H	H	H	H	H	F			2
265	H	H	H	H	H	F			2
266	H	H	H	H	H	F			2
267	H	H	H	H	H	F			2
268	H	H	H	H	H	F			2
269	H	H	H	H	H	F			2
270	H	H	H	H	H	F			2
271	H	H	H	H	H	F			2
272	H	H	H	H	H	F			2
273	H	H	H	H	H	F			2
274	H	H	H	H	H	F			2

【 0 1 6 6 】

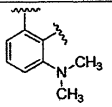
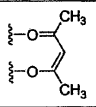
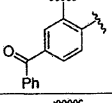
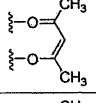
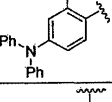
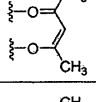
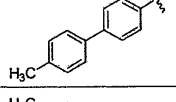
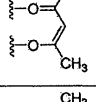
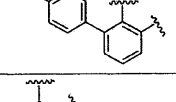
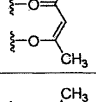
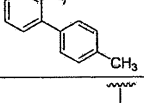
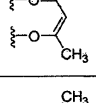
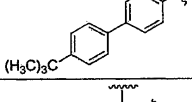
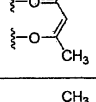
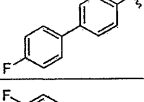
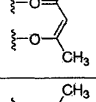
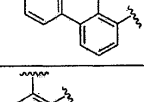
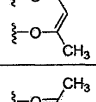
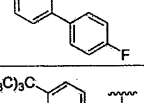
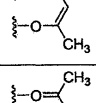
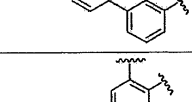
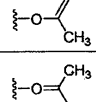
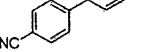

10

20

30

【表 3 0】

表1の続き

275	H	H	H	H	H	F			2
276	H	H	H	H	H	F			2
277	H	H	H	H	H	F			2
278	H	H	H	H	H	F			2
279	H	H	H	H	H	F			2
280	H	H	H	H	H	F			2
281	H	H	H	H	H	F			2
282	H	H	H	H	H	F			2
283	H	H	H	H	H	F			2
284	H	H	H	H	H	F			2
285	H	H	H	H	H	F			2
286	H	H	H	H	H	F			2

【 0 1 6 7 】

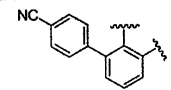

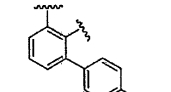

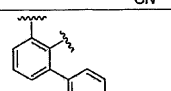

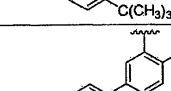

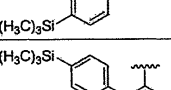

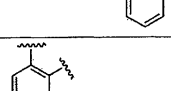

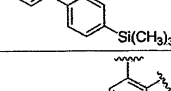

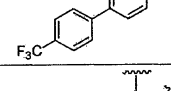

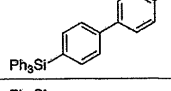

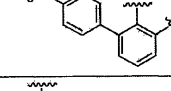

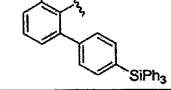

10

20

30

【表 3 1】

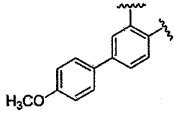
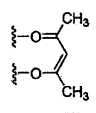
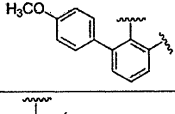
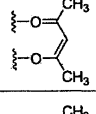
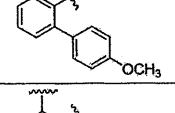
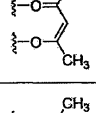
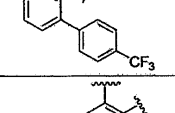
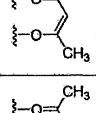
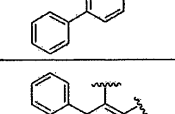
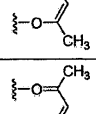
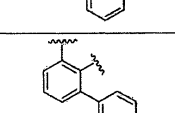
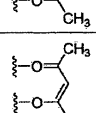
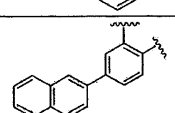
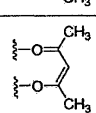
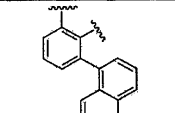
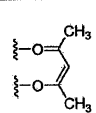
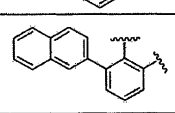
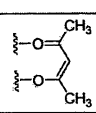
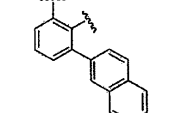
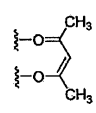
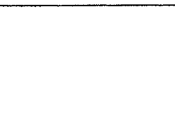

表1の続き

287	H	H	H	H	H	F			2
288	H	H	H	H	H	F			2
289	H	H	H	H	H	F			2
290	H	H	H	H	H	F			2
291	H	H	H	H	H	F			2
292	H	H	H	H	H	F			2
293	H	H	H	H	H	F			2
294	H	H	H	H	H	F			2
295	H	H	H	H	H	F			2
296	H	H	H	H	H	F			2
297	H	H	H	H	H	F			2

【 0 1 6 8 】

【表 3 2】

表1の続き

298	H	H	H	H	H	F			2
299	H	H	H	H	H	F			2
300	H	H	H	H	H	F			2
301	H	H	H	H	H	F			2
302	H	H	H	H	H	F			2
303	H	H	H	H	H	F			2
304	H	H	H	H	H	F			2
305	H	H	H	H	H	F			2
306	H	H	H	H	H	F			2
307	H	H	H	H	H	F			2
308	H	H	H	H	H	F			2

【 0 1 6 9 】

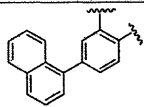
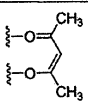
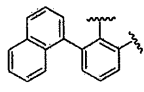

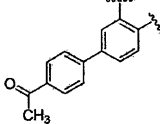
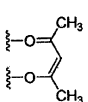
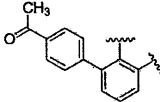
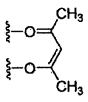
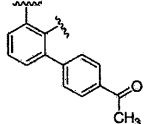
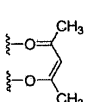
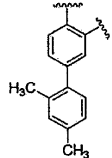
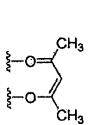
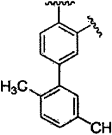
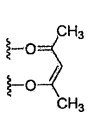
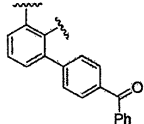
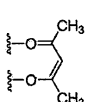
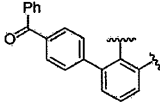
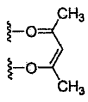
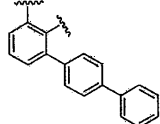
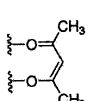
10

20

30

【表 3 3】

表1の続き

309	H	H	H	H	H	F			2
310	H	H	H	H	H	F			2
311	H	H	H	H	H	F			2
312	H	H	H	H	H	F			2
313	H	H	H	H	H	F			2
314	H	H	H	H	H	F			2
315	H	H	H	H	H	F			2
316	H	H	H	H	H	F			2
317	H	H	H	H	H	F			2
318	H	H	H	H	H	F			2

【 0 1 7 0 】

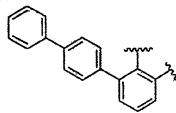
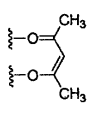
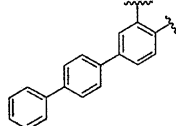
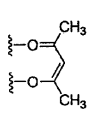
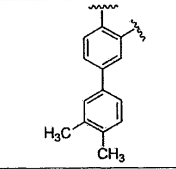
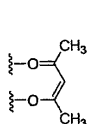
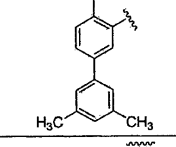
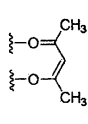
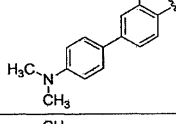
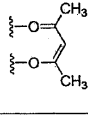
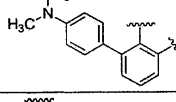
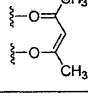
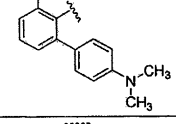
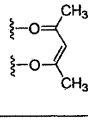
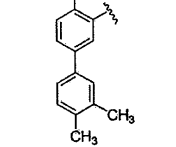
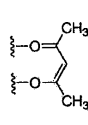
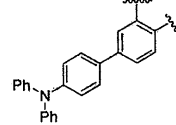
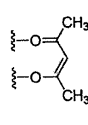
10

20

30

【表 3 4】

表1の続き

319	H	H	H	H	H	F			2
320	H	H	H	H	H	F			2
321	H	H	H	H	H	F			2
322	H	H	H	H	H	F			2
323	H	H	H	H	H	F			2
324	H	H	H	H	H	F			2
325	H	H	H	H	H	F			2
326	H	H	H	H	H	F			2
327	H	H	H	H	H	F			2

【 0 1 7 1 】

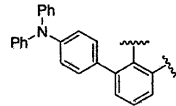
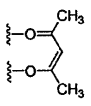
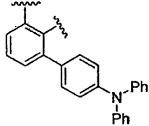
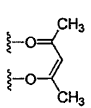
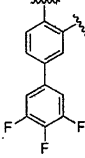
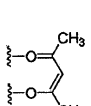
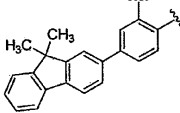
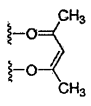
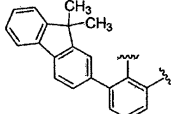
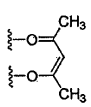
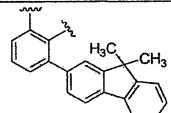
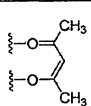
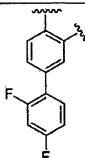
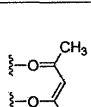
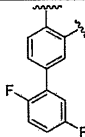
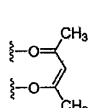
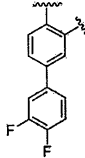
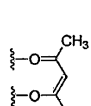
10

20

30

【表 3 5】

表1の続き

328	H	H	H	H	H	F			2
329	H	H	H	H	H	F			2
330	H	H	H	H	H	F			2
331	H	H	H	H	H	F			2
332	H	H	H	H	H	F			2
333	H	H	H	H	H	F			2
334	H	H	H	H	H	F			2
335	H	H	H	H	H	F			2
336	H	H	H	H	H	F			2

【 0 1 7 2 】

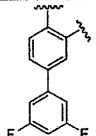
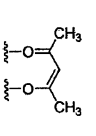
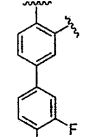
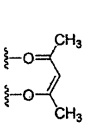
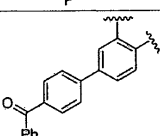
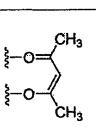
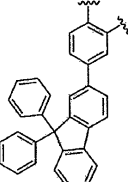
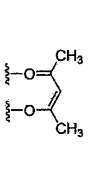
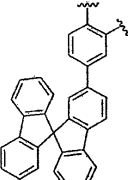
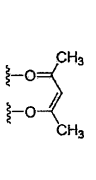
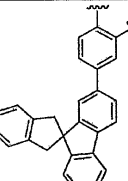
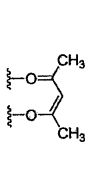
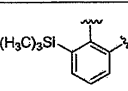

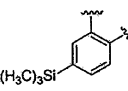

10

20

30

【表 3 6】

表1の続き

337	H	H	H	H	H	F			2
338	H	H	H	H	H	F			2
339	H	H	H	H	H	F			2
340	H	H	H	H	H	F			2
341	H	H	H	H	H	F			2
342	H	H	H	H	H	F			2
343	H	H	H	H	H	F			2
344	H	H	H	H	H	F			2

【 0 1 7 3 】

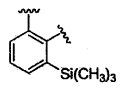
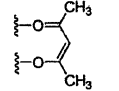
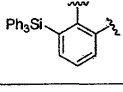
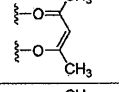
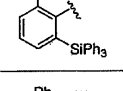
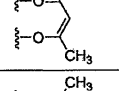
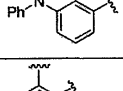
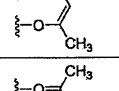
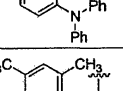
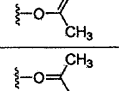
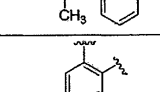
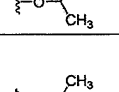
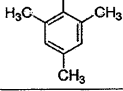
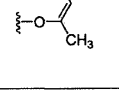
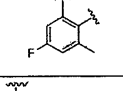
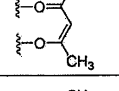
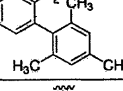
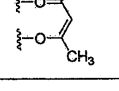
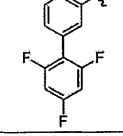
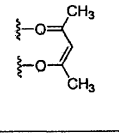
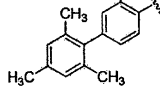
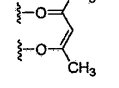
10

20

30

【表 3 7】

表1の続き

345	H	H	H	H	H	F			2
346	H	H	H	H	H	F			2
347	H	H	H	H	H	F			2
348	H	H	H	H	H	F			2
349	H	H	H	H	H	F			2
350	H	H	H	H	H	F			2
351	H	H	H	H	H	F			2
352	H	H	H	H	H	F			2
353	H	H	H	H	H	F			2
354	H	H	H	H	H	F			2
355	H	H	H	H	H	F			2

【 0 1 7 4 】

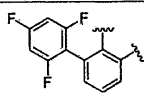

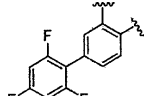

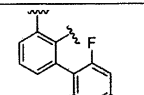

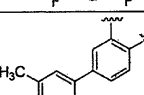

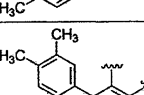

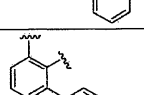

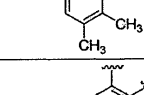

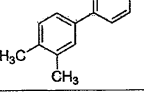

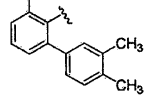

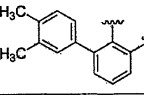

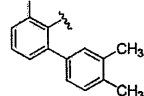

10

20

30

【表 3 8】

表1の続き

356	H	H	H	H	H	F			2
357	H	H	H	H	H	F			2
358	H	H	H	H	H	F			2
359	H	H	H	H	H	F			2
360	H	H	H	H	H	F			2
361	H	H	H	H	H	F			2
362	H	H	H	H	H	F			2
363	H	H	H	H	H	F			2
364	H	H	H	H	H	F			2
365	H	H	H	H	H	F			2
366	H	H	H	H	H	F			2

【 0 1 7 5 】

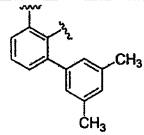
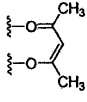
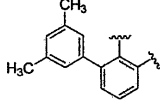
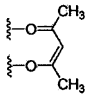
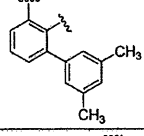
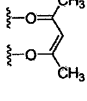
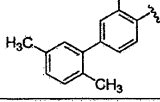
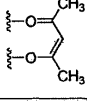
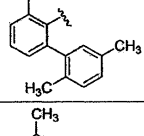
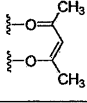
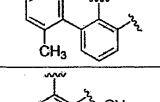
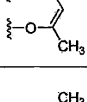
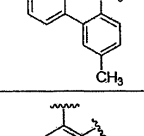
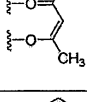
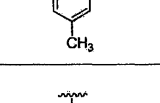
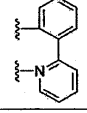
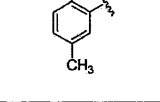
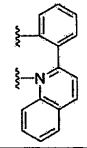
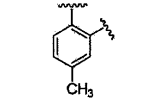
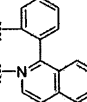
10

20

30

【表 3 9】

表1の続き

367	H	H	H	H	H	F			2
368	H	H	H	H	H	F			2
369	H	H	H	H	H	F			2
370	H	H	H	H	H	F			2
371	H	H	H	H	H	F			2
372	H	H	H	H	H	F			2
373	H	H	H	H	H	F			2
374	H	H	H	H	H	F			2
375	H	H	H	H	H	F			2
376	H	H	H	H	H	F			2

10

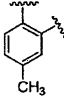
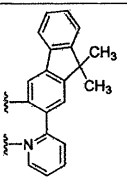
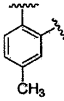
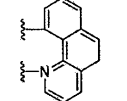
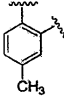
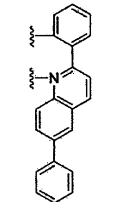
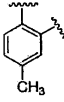
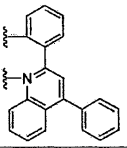
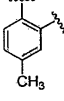
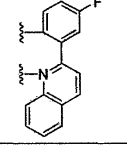
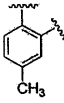
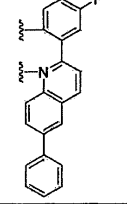
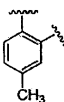
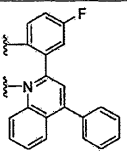
20

30

【 0 1 7 6 】

【表 4 0】

表1の続き

377	H	H	H	H	H	F			2
378	H	H	H	H	H	F			2
379	H	H	H	H	H	F			2
380	H	H	H	H	H	F			2
381	H	H	H	H	H	F			2
382	H	H	H	H	H	F			2
383	H	H	H	H	H	F			2

【 0 1 7 7 】

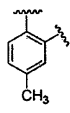
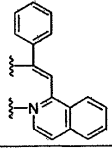
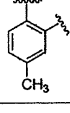
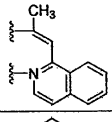
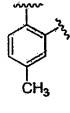
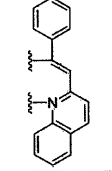
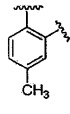
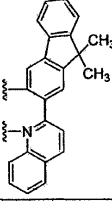
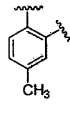
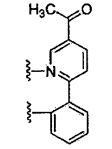
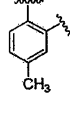
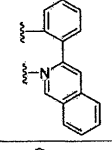
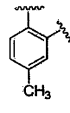
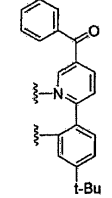
10

20

30

【表 4 1】

表1の続き

384	H	H	H	H	H	F			2
385	H	H	H	H	H	F			2
386	H	H	H	H	H	F			2
387	H	H	H	H	H	F			2
388	H	H	H	H	H	F			2
389	H	H	H	H	H	F			2
390	H	H	H	H	H	F			2

【 0 1 7 8 】

【表 4 2】

表1の続き

391	H	H	H	H	H	F			2
392	H	H	H	H	H	F			2
393	H	H	H	H	H	F			2
394	H	H	H	H	H	F			2
395	H	H	H	H	H	F			1
396	H	H	H	H	H	F		—	3
397	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
398	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
399	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
400	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
401	H	H	H	H	H	-CH ₃			2

【 0 1 7 9 】

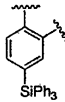
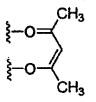
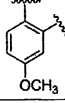
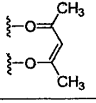
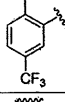
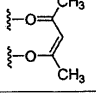
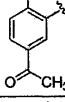
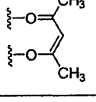
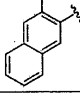
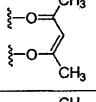
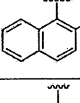
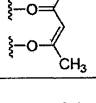
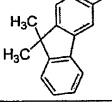
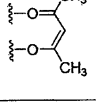
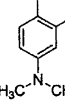
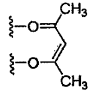
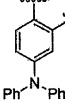
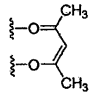
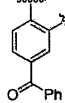
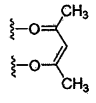
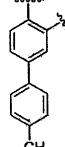
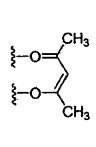
10

20

30

【表 4 3】

表1の続き

402	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
403	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
404	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
405	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
406	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
407	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
408	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
409	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
410	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
411	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
412	H	H	H	H	H	-CH ₃			2

【 0 1 8 0 】

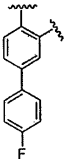

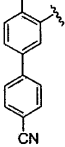

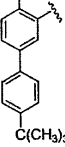

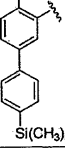

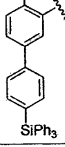

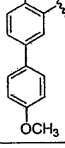

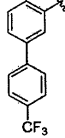

10

20

30

【表 4 4】

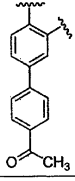
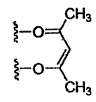
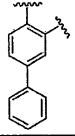
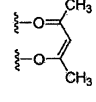
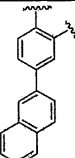
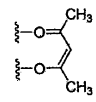
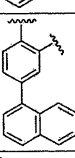
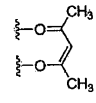
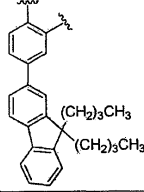
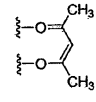
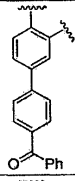
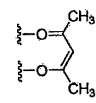
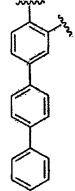
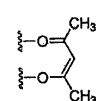
表1の続き

413	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
414	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
415	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
416	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
417	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
418	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
419	H	H	H	H	H	-CH ₃			2

【 0 1 8 1 】

【表 4 5】

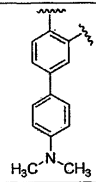

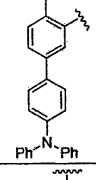

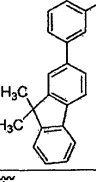

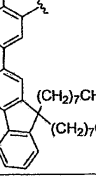

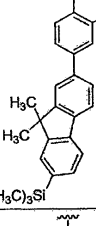

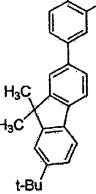

表1の続き

420	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
421	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
422	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
423	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
424	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
425	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
426	H	H	H	H	H	-CH ₃			2

【 0 1 8 2 】

【表 4 6】

表1の続き

427	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
428	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
429	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
430	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
431	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
432	H	H	H	H	H	-CH ₃			2

10

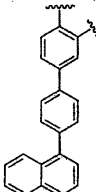

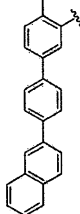

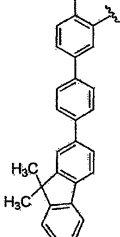

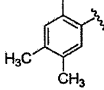

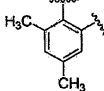



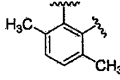

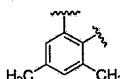

20

30

【 0 1 8 3 】

【表 47】

表1の続き

433	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
434	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
435	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
436	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
437	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
438	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
439	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
440	H	H	H	H	H	-CH ₃			2

【 0 1 8 4 】

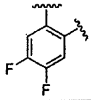
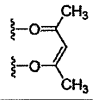
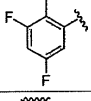
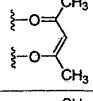
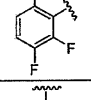
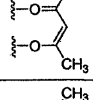
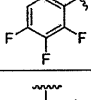
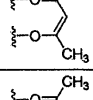
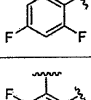
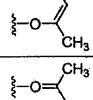
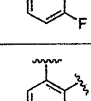
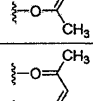
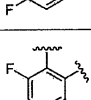
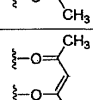
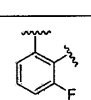
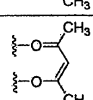
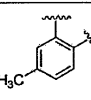
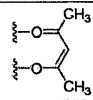
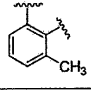
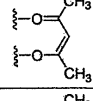
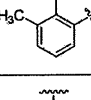
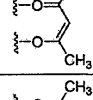




10

20

30

【表 48】

表1の続き

441	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
442	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
443	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
444	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
445	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
446	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
447	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
448	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
449	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
450	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
451	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
452	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
453	H	H	H	H	H	-CH ₃			2

【 0 1 8 5 】

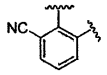

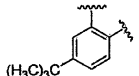

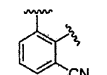

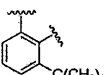

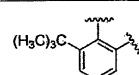

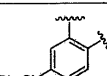

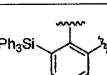

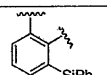

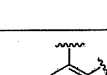

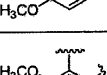

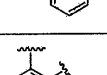

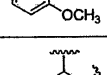

10

20

30

【表 4 9】

表1の続き

454	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
455	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
456	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
457	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
458	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
459	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
460	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
461	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
462	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
463	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
464	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
465	H	H	H	H	H	-CH ₃			2

【 0 1 8 6 】

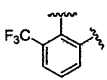



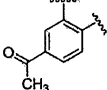

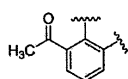



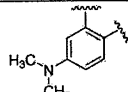

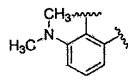

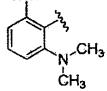

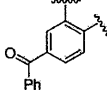

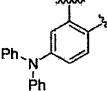

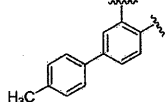
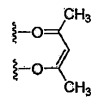
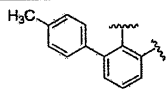

10

20

30

【表 50】

表1の続き

466	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
467	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
468	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
469	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
470	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
471	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
472	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
473	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
474	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
475	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
476	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
477	H	H	H	H	H	-CH ₃			2

【 0 1 8 7 】

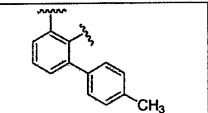
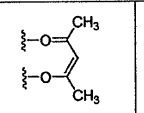
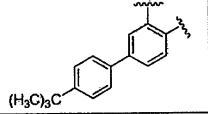
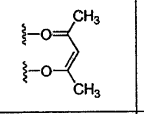
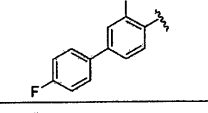
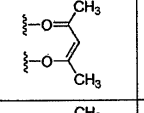
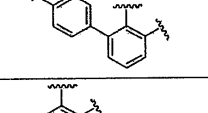
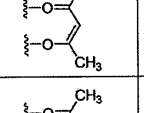
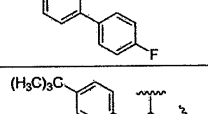
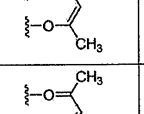
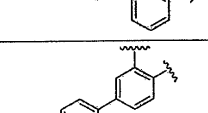
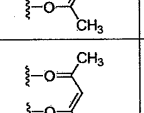
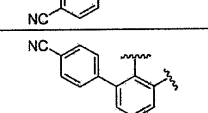
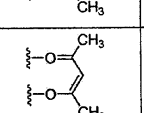
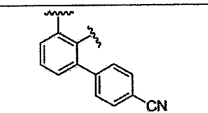
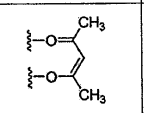
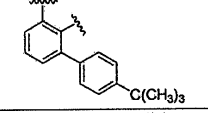
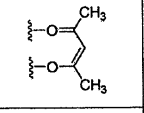
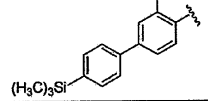
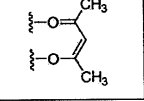


10

20

30

【表 5 1】

表1の続き

478	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
479	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
480	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
481	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
482	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
483	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
484	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
485	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
486	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
487	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
488	H	H	H	H	H	-CH ₃			2

【 0 1 8 8 】

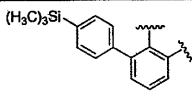

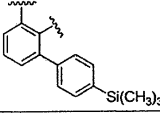
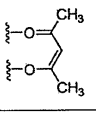
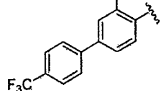

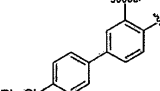

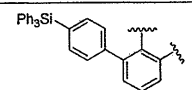

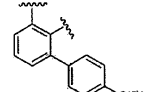

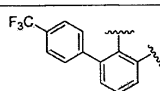

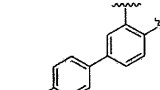

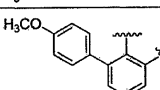

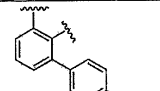

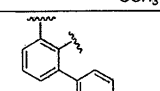

10

20

30

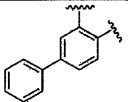
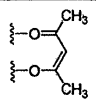
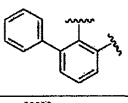
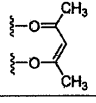
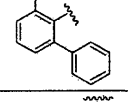
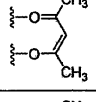
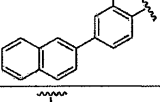
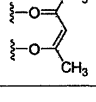
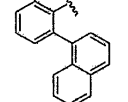
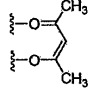
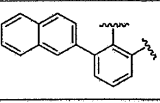
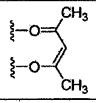
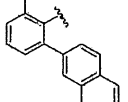
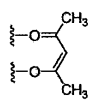
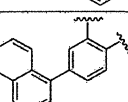
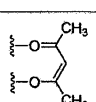
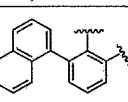
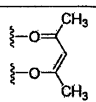
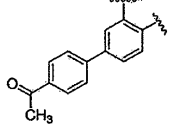
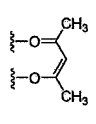
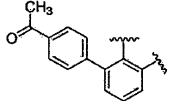
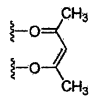
【表 5 2】

表1の続き

489	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
490	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
491	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
492	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
493	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
494	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
495	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
496	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
497	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
498	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
499	H	H	H	H	H	-CH ₃			2

【表 5 3】

表1の続き

500	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
501	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
502	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
503	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
504	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
505	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
506	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
507	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
508	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
509	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
510	H	H	H	H	H	-CH ₃			2

【 0 1 9 0 】

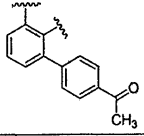
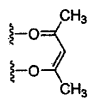
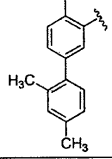
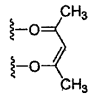
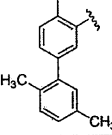
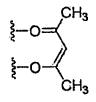
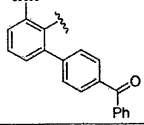
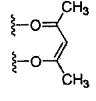
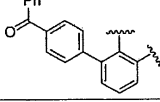
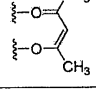
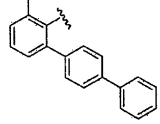
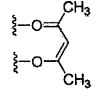
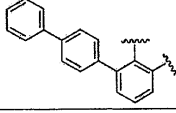
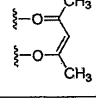
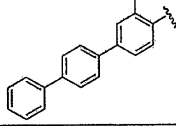
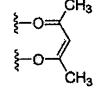
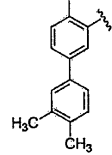
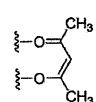
10

20

30

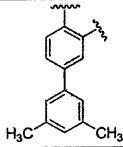
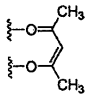
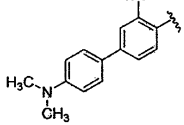
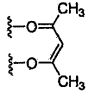
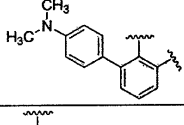
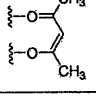
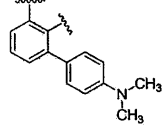
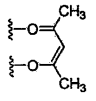
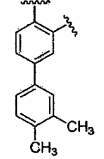
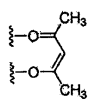
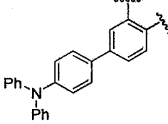
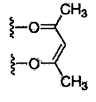
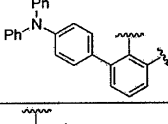
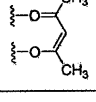
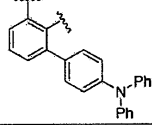
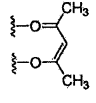
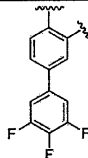
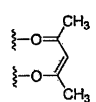
【表 5 4】

表1の続き

511	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
512	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
513	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
514	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
515	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
516	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
517	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
518	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
519	H	H	H	H	H	-CH ₃			2

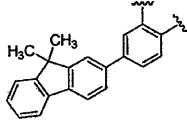
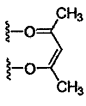
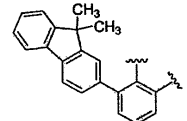
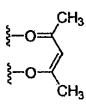
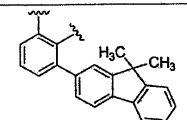
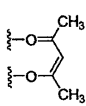
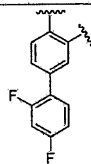
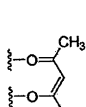
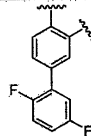
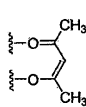
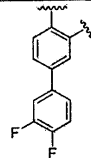
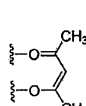
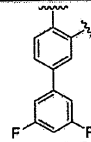
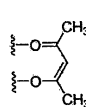
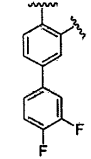
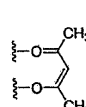
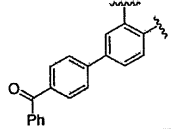
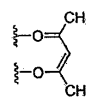
【表 5 5】

表1の続き

520	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
521	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
522	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
523	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
524	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
525	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
526	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
527	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
528	H	H	H	H	H	-CH ₃			2

【表 5 6】

表1の続き

529	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
530	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
531	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
532	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
533	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
534	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
535	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
536	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
537	H	H	H	H	H	-CH ₃			2

【 0 1 9 3 】

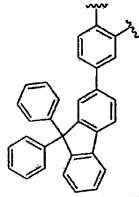
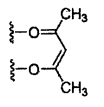
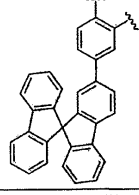
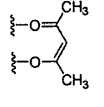
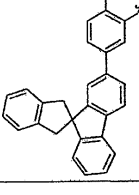
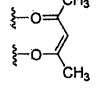
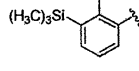
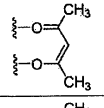
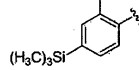
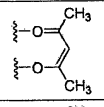
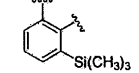
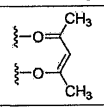
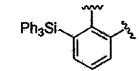
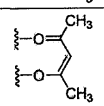
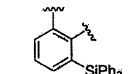
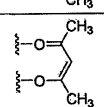
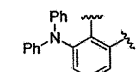
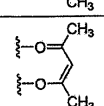
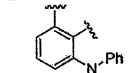
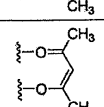
10

20

30

【表 5 7】

表1の続き

538	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
539	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
540	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
541	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
542	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
543	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
544	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
545	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
546	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
547	H	H	H	H	-CH ₃	-CH ₃			2

【 0 1 9 4 】

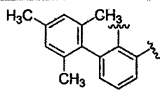

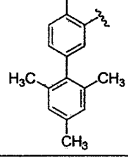



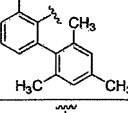

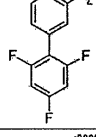

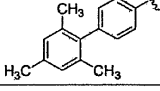

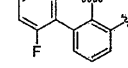

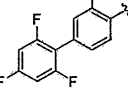

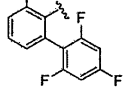

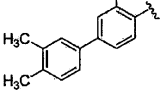

10

20

30

【表 5 8】

表1の続き

548	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
549	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
550	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
551	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
552	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
553	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
554	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
555	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
557	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
558	H	H	H	H	H	-CH ₃			2

【 0 1 9 5 】

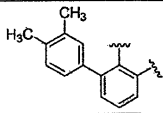
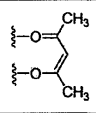
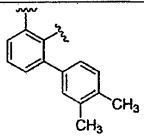
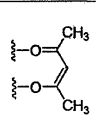
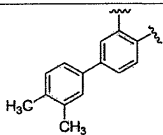
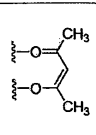
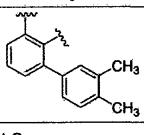
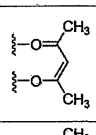
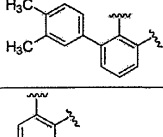
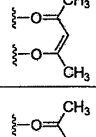
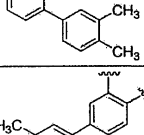
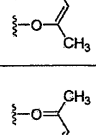
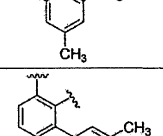
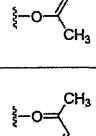
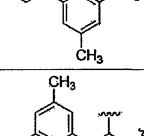
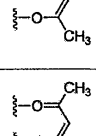
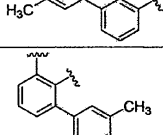
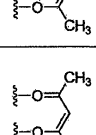
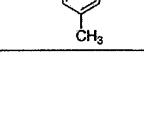
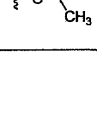
10

20

30

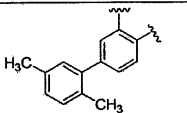
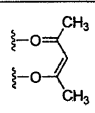
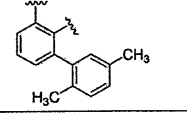
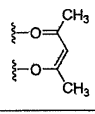
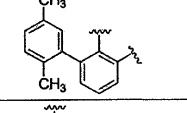
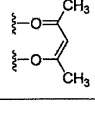
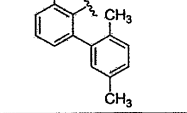
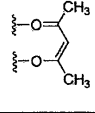
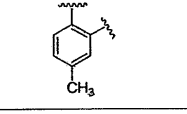
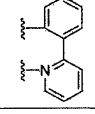
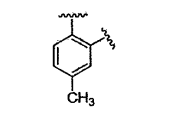
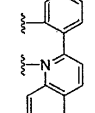
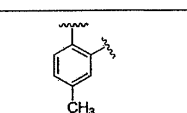
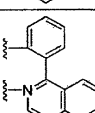
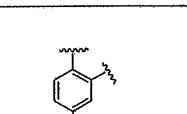
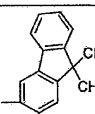
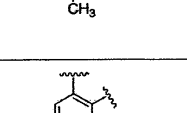
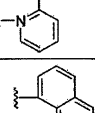
【表 5 9】

表1の続き

559	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
560	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
561	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
562	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
563	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
564	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
565	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
566	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
567	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
568	H	H	H	H	H	-CH ₃			2

【表 6 0】

表1の続き

569	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
570	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
571	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
572	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
573	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
574	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
575	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
576	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
577	H	H	H	H	H	-CH ₃			2


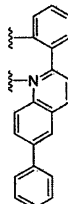

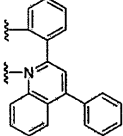

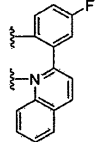

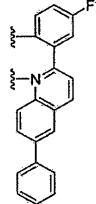

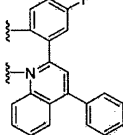

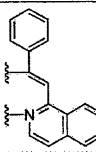

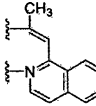
10

20

30

【表 6 1】

表1の続き

578	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
579	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
580	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
581	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
582	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
583	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
584	H	H	H	H	H	-CH ₃			2

【 0 1 9 8 】

10

20

30

【表 6 2】


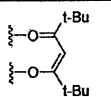




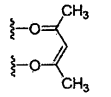

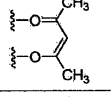

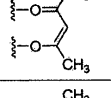

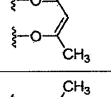

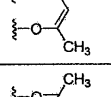

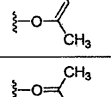

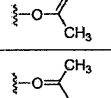

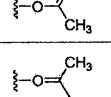

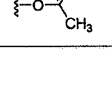
表1の続き

585	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
586	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
587	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
588	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
589	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
590	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
591	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
592	H	H	H	H	H	-CH ₃			2

【 0 1 9 9 】

【表 6 3】

表1の続き

593	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
594	H	H	H	H	H	-CH ₃			1
595	H	H	H	H	H	-CH ₃		-	3
596	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
597	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
598	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
599	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
600	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
601	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
602	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
603	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
604	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2

【 0 2 0 0 】

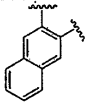
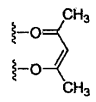


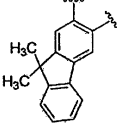
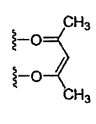
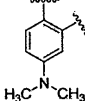
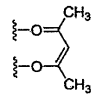
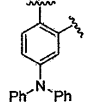
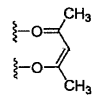
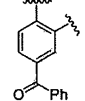
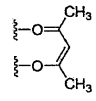
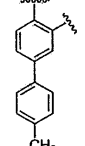
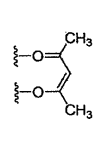
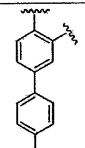
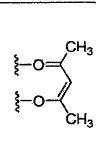
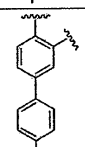
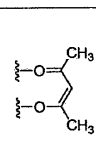
10

20

30

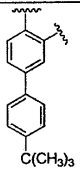
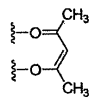
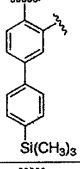
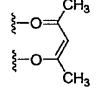
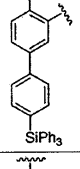
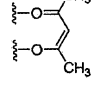
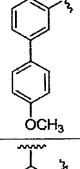
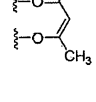
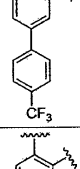
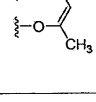
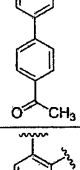
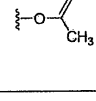

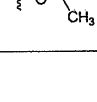
【表 6 4】

表1の続き

605	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
606	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
607	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
608	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
609	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
610	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
611	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
612	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
613	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2

【表 6 5】

表1の続き

614	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
615	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
616	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
617	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
618	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
619	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
620	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2

【 0 2 0 2 】

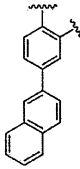
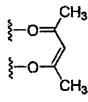
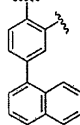
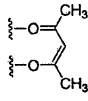
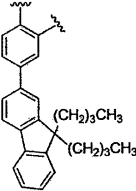
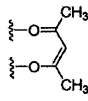
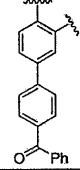
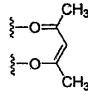
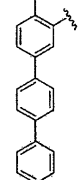
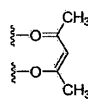
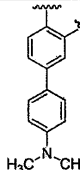
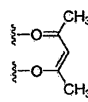
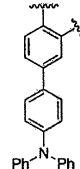
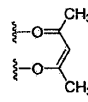
10

20

30

【表 6 6】

表1の続き

621	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
622	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
623	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
624	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
625	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
626	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
627	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2

【 0 2 0 3 】

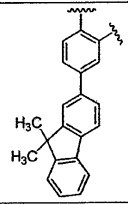
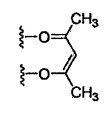
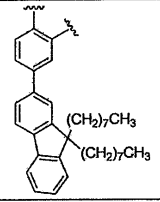
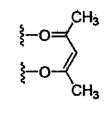
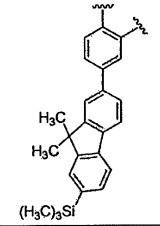
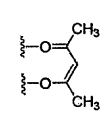
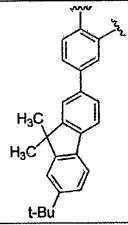
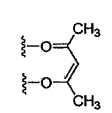
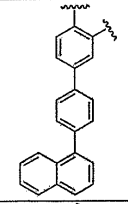
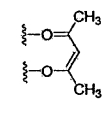
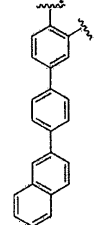
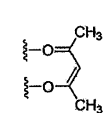
10

20

30

【表 6 7】

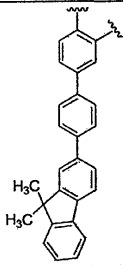
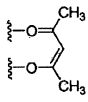
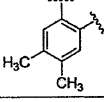
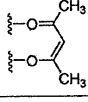
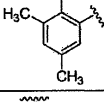
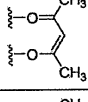
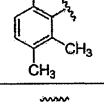
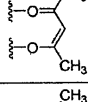
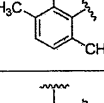
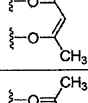
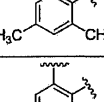
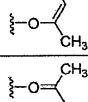
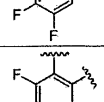
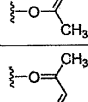
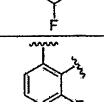
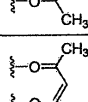
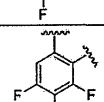
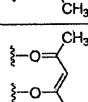
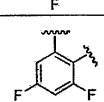
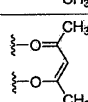
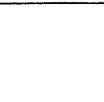

表1の続き

628	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
629	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
630	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
631	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
632	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
633	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2

【 0 2 0 4 】

【表 6 8】

表1の続き

634	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
635	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
636	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
637	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
638	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
639	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
640	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
641	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
642	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
643	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
644	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2

【 0 2 0 5 】


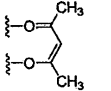

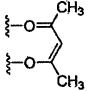

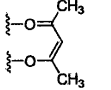

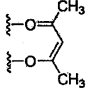

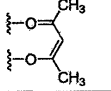

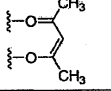

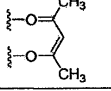

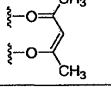

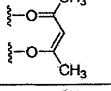

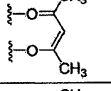

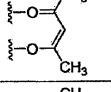

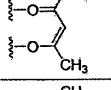

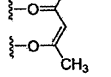
10

20

30

【表 6 9】

表1の続き

645	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
646	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
647	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
648	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
649	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
650	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
651	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
652	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
653	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
654	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
655	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
656	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
657	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2

【 0 2 0 6 】

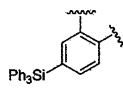
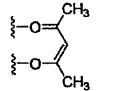
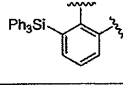
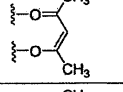
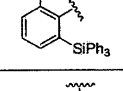
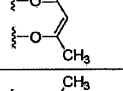
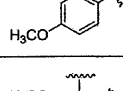
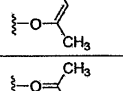
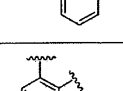
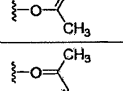
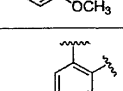
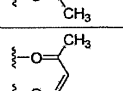
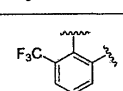
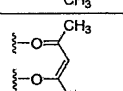
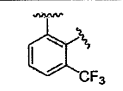
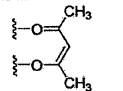
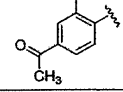
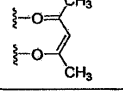
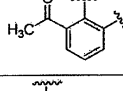
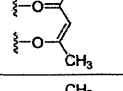
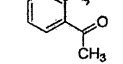
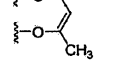


10

20

30

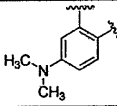
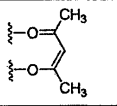
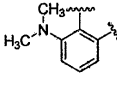
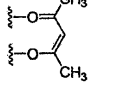
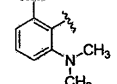
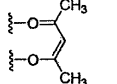
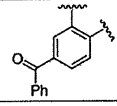
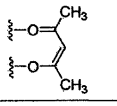
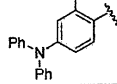
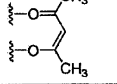
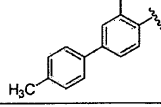
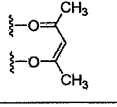
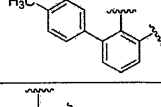
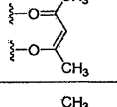
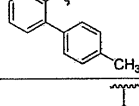
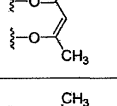
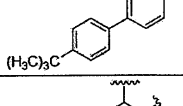
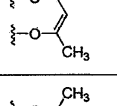
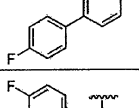
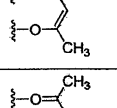
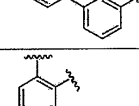
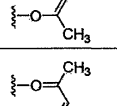
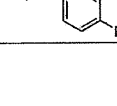
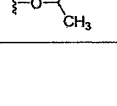
【表 70】

表1の続き

658	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
659	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
660	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
661	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
662	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
663	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
664	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
665	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
666	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
667	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
668	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
669	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2

【表 7 1】

表1の続き

670	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
671	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
672	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
673	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
674	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
675	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
676	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
677	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
678	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
679	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
680	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
681	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2

【 0 2 0 8 】

10

20

30

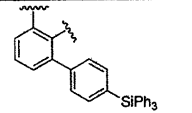
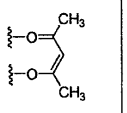
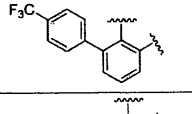
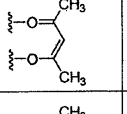
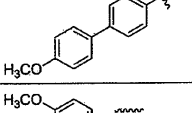
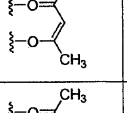
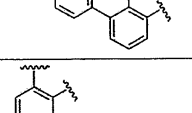
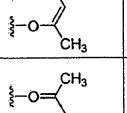
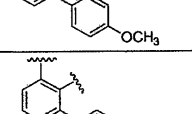
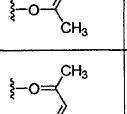
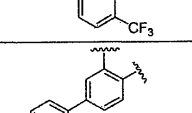
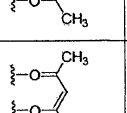
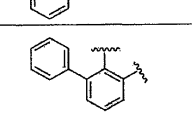
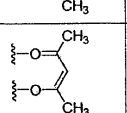
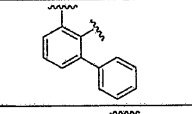
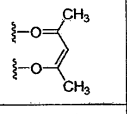
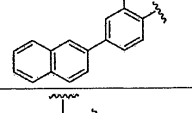
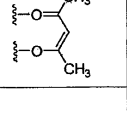
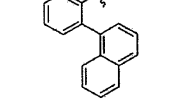
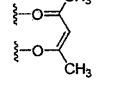


【表 7 2】

表1の続き

682	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
683	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
684	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
685	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
686	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
687	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
688	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
689	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
690	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
691	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
692	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2

【表 7 3】

表1の続き

693	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
694	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
695	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
696	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
697	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
698	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
699	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
700	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
701	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
702	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
703	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2

【 0 2 1 0 】

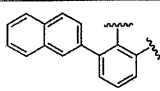

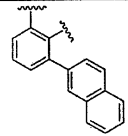

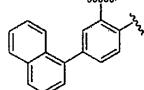

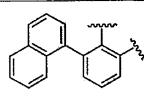

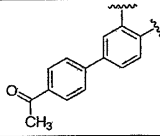

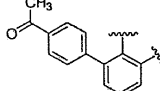

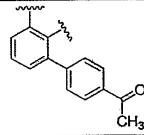

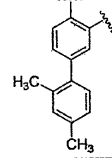

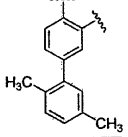

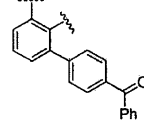

10

20

30

【表 7 4】

表1の続き

704	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
705	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
706	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
707	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
708	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
709	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
710	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
711	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
712	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
713	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2

【 0 2 1 1 】

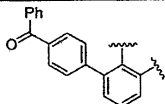
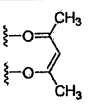
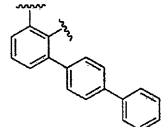
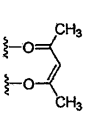
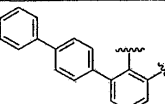
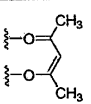
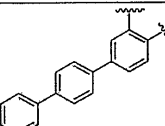
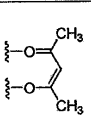
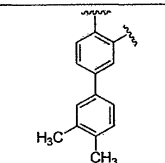
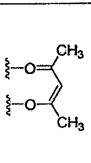
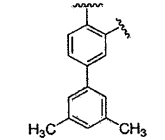
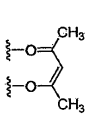
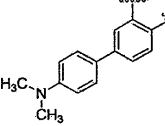
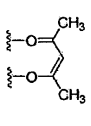
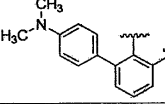
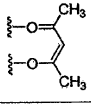
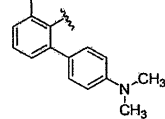
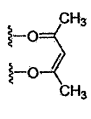
10

20

30

【表 7 5】

表1の続き

714	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
715	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
716	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
717	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
718	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
719	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
720	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
721	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
722	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2

【 0 2 1 2 】

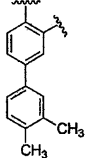
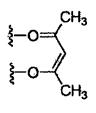
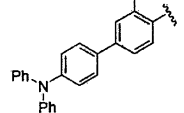
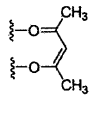
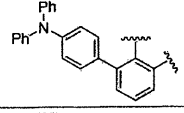
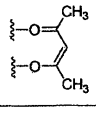
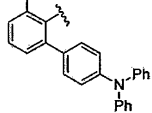
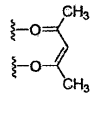
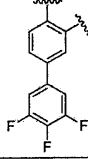
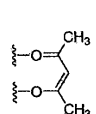
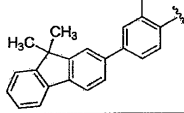
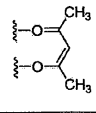
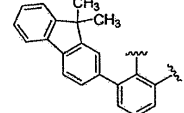
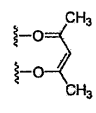
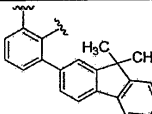
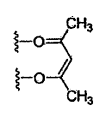
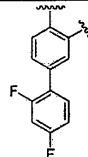
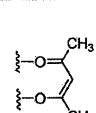
10

20

30

【表 7 6】

表1の続き

723	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
724	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
725	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
726	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
727	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
728	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
729	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
730	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
731	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2

【 0 2 1 3 】

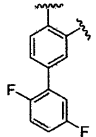

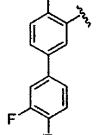

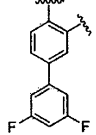

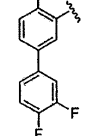

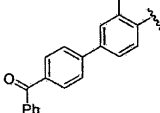

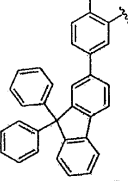

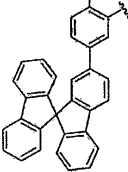

10

20

30

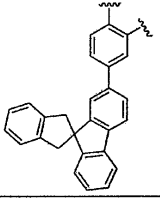
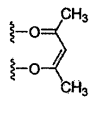
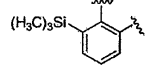
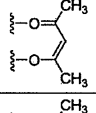
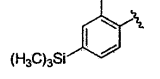
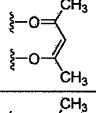
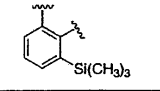
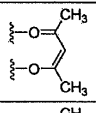
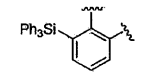
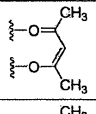
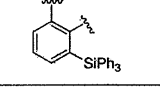
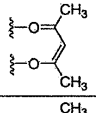
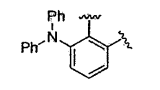
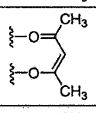
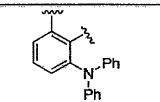
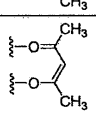
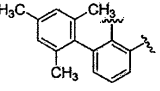
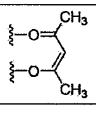
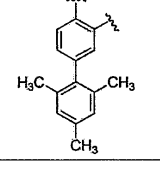
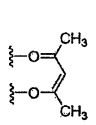
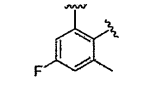

【表 7 7】

表1の続き

732	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
733	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
734	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
735	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
736	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
737	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
738	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2

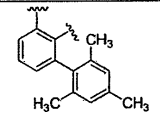
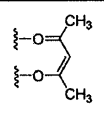
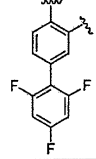
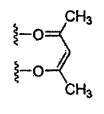
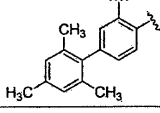
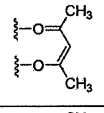
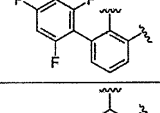
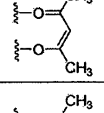
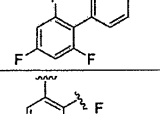
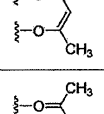
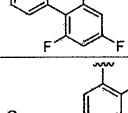
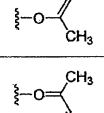
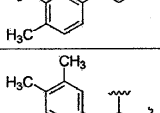
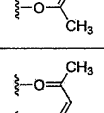
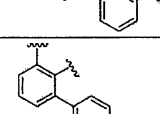
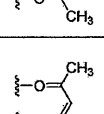
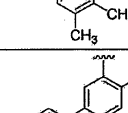
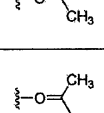
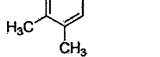
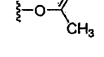
【表 7 8】

表1の続き

739	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
740	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
741	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
742	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
743	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
744	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
745	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
746	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
747	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
748	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
749	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2

【表 7 9】

表1の続き

750	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
751	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
752	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
753	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
754	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
755	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
756	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
757	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
758	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
759	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2

【 0 2 1 6 】

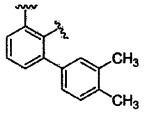
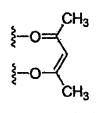
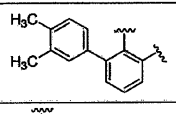
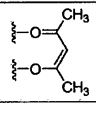
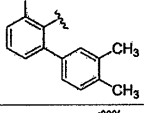
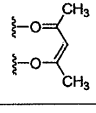
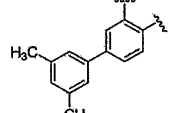
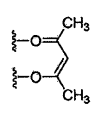
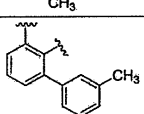
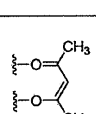
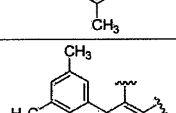
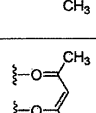
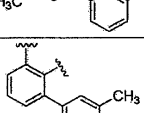
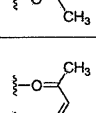
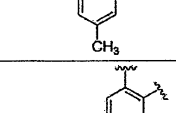
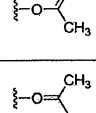
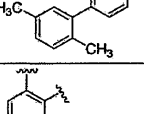
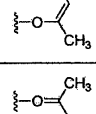
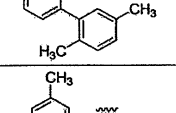
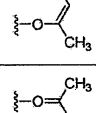
10

20

30

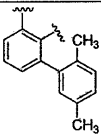

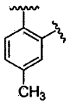
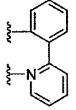
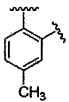
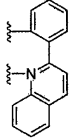
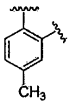
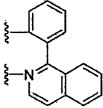
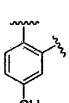
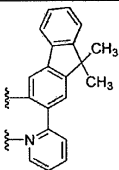
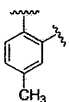
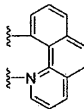
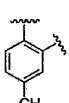
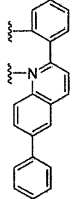
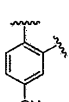
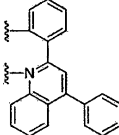
【表 80】

表1の続き

760	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
761	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
762	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
763	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
764	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
765	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
766	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
767	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
768	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
769	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2

【表 8 1】

表1の続き

770	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
771	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
772	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
773	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
774	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
775	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
776	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2
777	H	H	H	H	H	$-\text{C}(\text{CH}_3)_3$			2

【 0 2 1 8 】

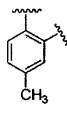
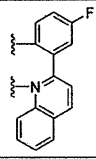
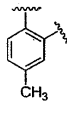
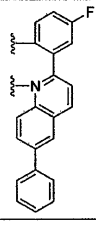
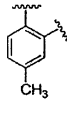
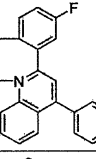
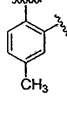
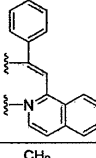
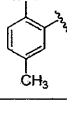
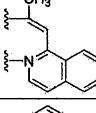
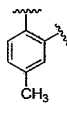
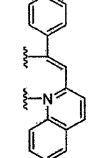
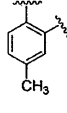
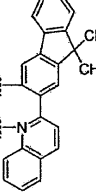
10

20

30

【表 8 2】

表1の続き

778	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
779	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
780	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
781	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
782	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
783	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
784	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2

10

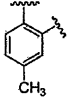
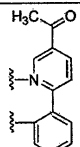
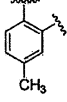
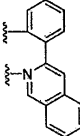
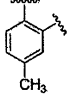
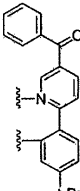
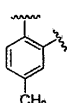
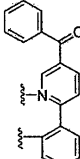
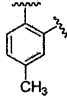

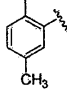
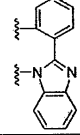
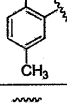

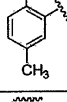
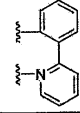

20

30

【 0 2 1 9 】

【表 8 3】

表1の続き

785	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
786	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
787	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
788	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
789	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
790	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
791	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
792	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			1
793	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃		-	3

【 0 2 2 0 】





































10

20

30

【表 8 4】

表1の続き

794	H	H	H	H	H				2
795	H	H	H	H	H				2
796	H	H	H	H	H				2
797	H	H	H	H	H				2
798	H	H	H	H	H				2
799	H	H	H	H	H				2
800	H	H	H	H	H				2
801	H	H	H	H	H				2
802	H	H	H	H	H				2
803	H	H	H	H	H				2
804	H	H	H	H	H				2
805	H	H	H	H	H				2

【 0 2 2 1 】


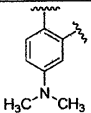


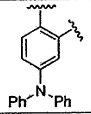


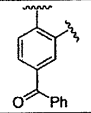


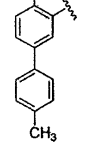


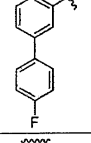


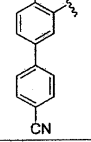


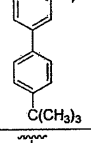


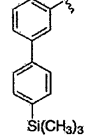

10

20

30

【表 8 5】

表1の続き

806	H	H	H	H	H				2
807	H	H	H	H	H				2
808	H	H	H	H	H				2
809	H	H	H	H	H				2
810	H	H	H	H	H				2
811	H	H	H	H	H				2
812	H	H	H	H	H				2
813	H	H	H	H	H				2

10


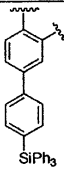
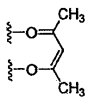

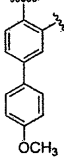
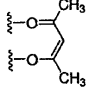

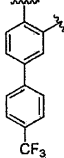
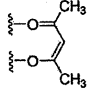

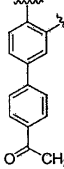
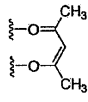

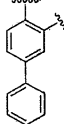
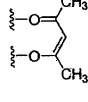

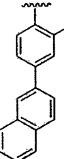
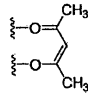

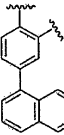
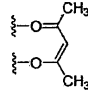
20

30

【 0 2 2 2 】


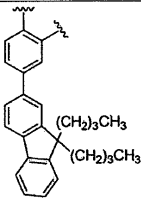


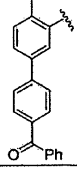


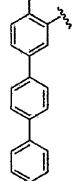


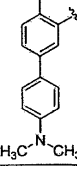


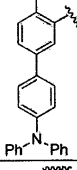


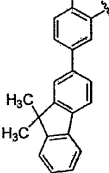

【表 8 6】

表1の続き

814	H	H	H	H	H				2
815	H	H	H	H	H				2
816	H	H	H	H	H				2
817	H	H	H	H	H				2
818	H	H	H	H	H				2
819	H	H	H	H	H				2
820	H	H	H	H	H				2

【表 8 7】

表1の続き

821	H	H	H	H	H				2
822	H	H	H	H	H				2
823	H	H	H	H	H				2
824	H	H	H	H	H				2
825	H	H	H	H	H				2
826	H	H	H	H	H				2

【 0 2 2 4 】


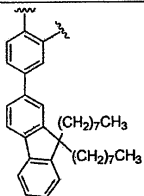


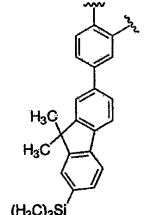


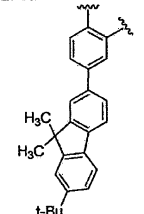


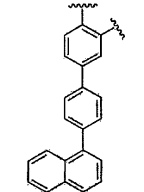


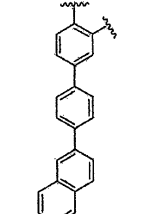

10

20

30

【表 8 8】


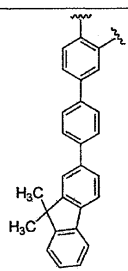































表1の続き

827	H	H	H	H	H				2
828	H	H	H	H	H				2
829	H	H	H	H	H				2
830	H	H	H	H	H				2
831	H	H	H	H	H				2

【 0 2 2 5 】

【表 8 9】

表1の続き

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

【 0 2 2 6 】



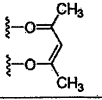


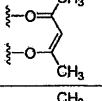


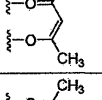


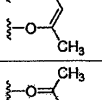

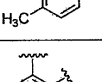
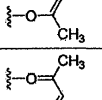


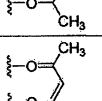

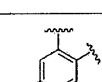
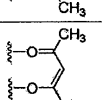

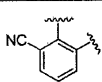
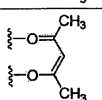

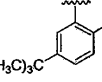
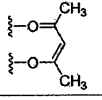

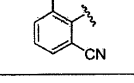
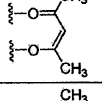


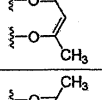

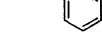
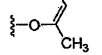



10

20

30

【表 90】

表1の続き

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

【 0 2 2 7 】


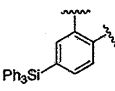


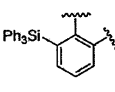





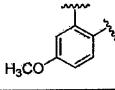


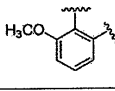





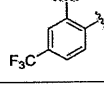


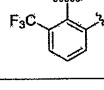





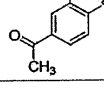


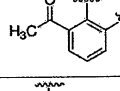




10

20

30

【表 9 1】

表1の続き

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

【 0 2 2 8 】


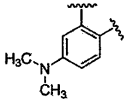
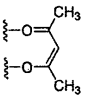

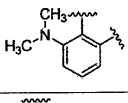
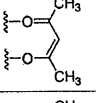

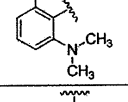
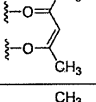

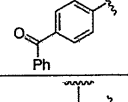
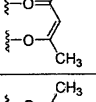

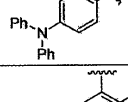
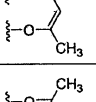

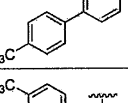
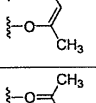

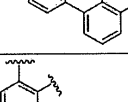
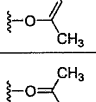

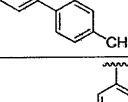
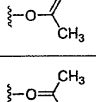

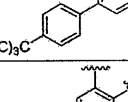
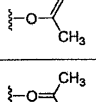

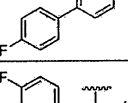
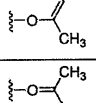

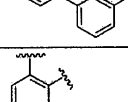
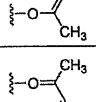

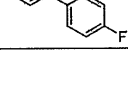
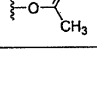
10

20

30

【表 9 2】

表1の続き

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

【 0 2 2 9 】


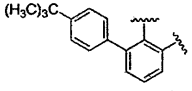
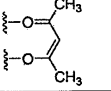

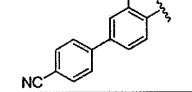
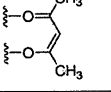

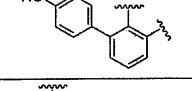
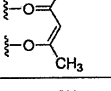

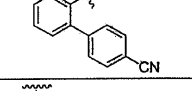
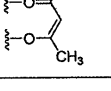

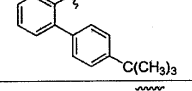
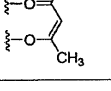

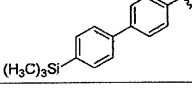
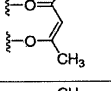

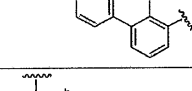
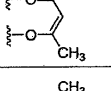

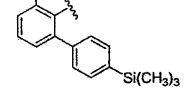
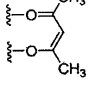

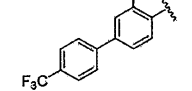
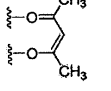

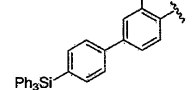
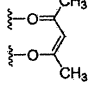

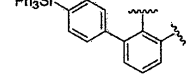
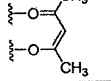
10

20

30

【表 9 3】


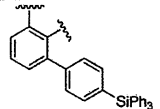
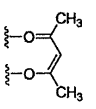

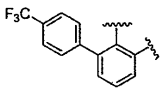


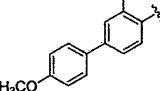


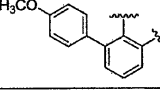


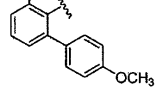


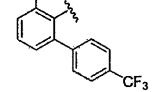


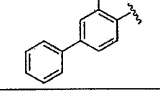


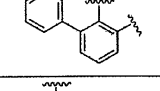


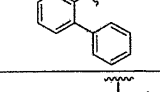


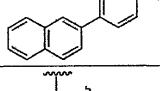


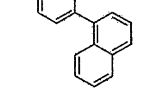

表1の続き

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

【 0 2 3 0 】


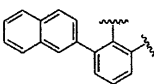


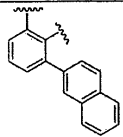


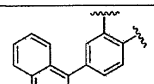


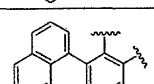


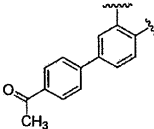


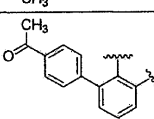


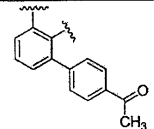


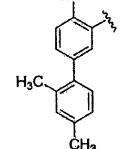


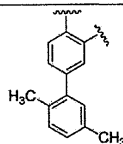


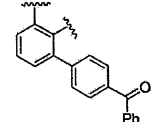

【表 9 4】

表1の続き

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

【表 9 5】

表1の続き

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

【 0 2 3 2 】


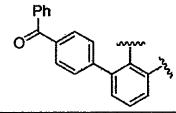
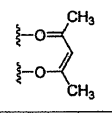

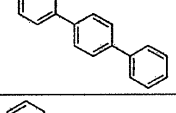
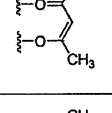

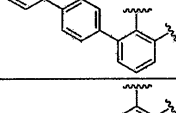
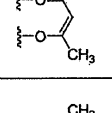

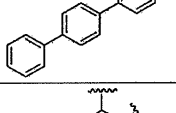
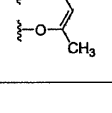

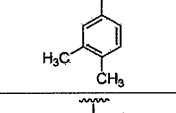
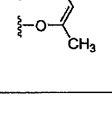

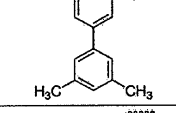
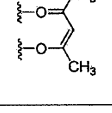

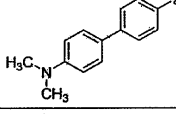
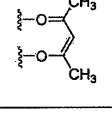

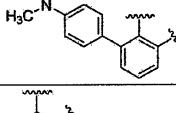
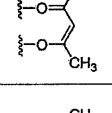

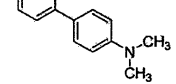
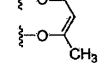
10

20

30

【表 9 6】

表1の続き

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

【 0 2 3 3 】


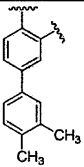


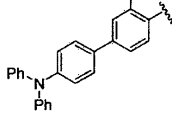


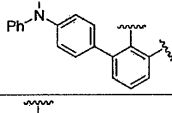


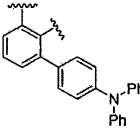


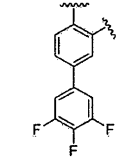


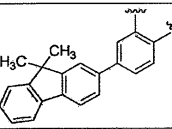


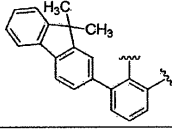


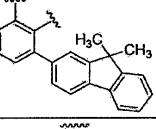


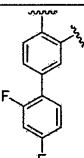

10

20

30

【表 9 7】

表1の続き

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

【 0 2 3 4 】


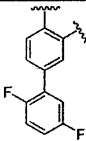


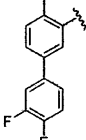


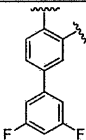


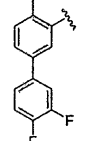


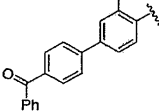


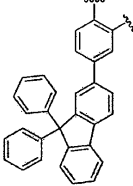


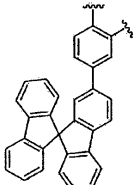

10

20

30

【表 9 8】

表1の続き

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

【 0 2 3 5 】


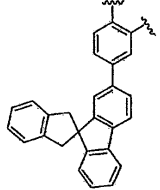


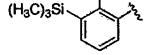
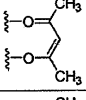

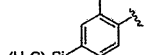
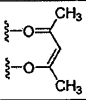

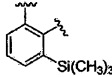


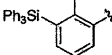
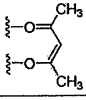

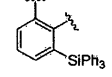
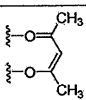

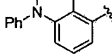
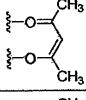

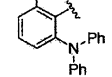


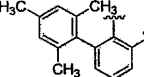


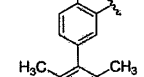


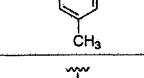
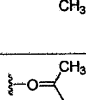
10

20

30

【表 9 9】

表1の続き

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

【 0 2 3 6 】


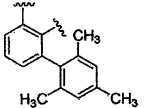
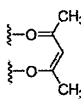

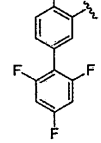
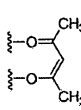

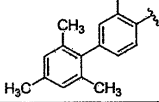
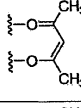

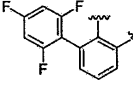
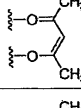

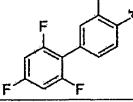
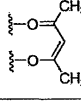

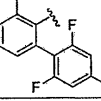
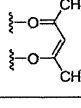

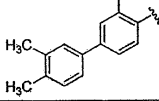
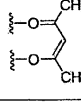

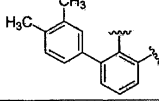
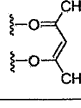

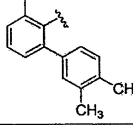
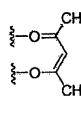

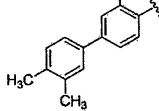
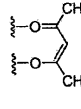
10

20

30

【表 100】

表1の続き

948	H	H	H	H	H				2
949	H	H	H	H	H				2
950	H	H	H	H	H				2
951	H	H	H	H	H				2
952	H	H	H	H	H				2
953	H	H	H	H	H				2
954	H	H	H	H	H				2
955	H	H	H	H	H				2
956	H	H	H	H	H				2
957	H	H	H	H	H				2

【 0 2 3 7 】


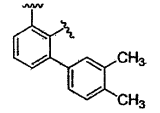
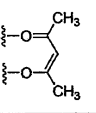

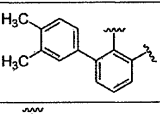
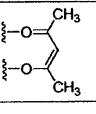

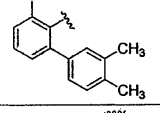
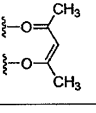

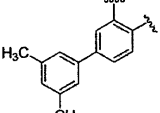
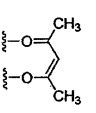

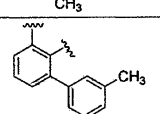
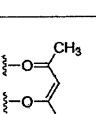

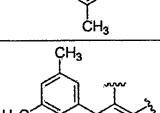
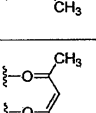

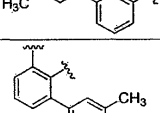
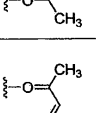

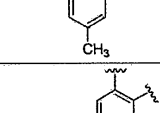
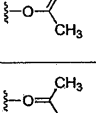

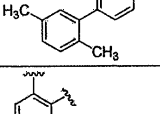
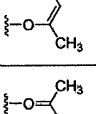

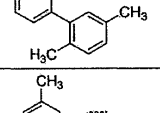
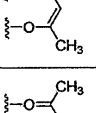
10

20

30

【表 1 0 1】

表1の続き

958	H	H	H	H	H				2
959	H	H	H	H	H				2
960	H	H	H	H	H				2
961	H	H	H	H	H				2
962	H	H	H	H	H				2
963	H	H	H	H	H				2
964	H	H	H	H	H				2
965	H	H	H	H	H				2
966	H	H	H	H	H				2
967	H	H	H	H	H				2

【 0 2 3 8 】


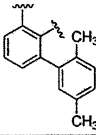


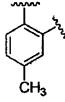
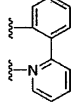

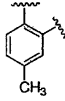
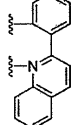

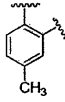
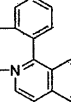

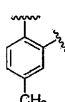
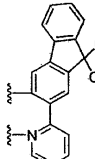

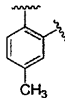
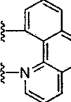

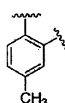
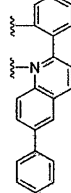

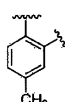
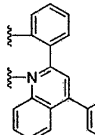
10

20

30

【表 1 0 2】

表1の続き

968	H	H	H	H	H				2
969	H	H	H	H	H				2
970	H	H	H	H	H				2
971	H	H	H	H	H				2
972	H	H	H	H	H				2
973	H	H	H	H	H				2
974	H	H	H	H	H				2
975	H	H	H	H	H				2

【 0 2 3 9】


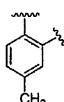
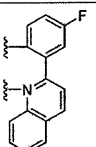

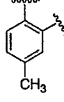
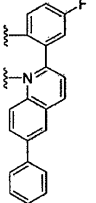

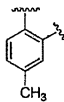
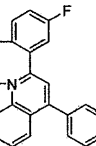

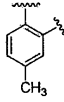
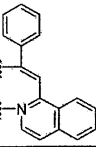

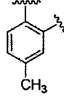
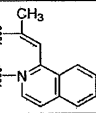

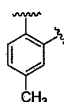
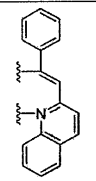

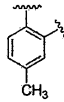
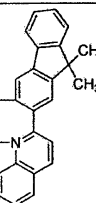
10

20

30

【表 1 0 3】

表1の続き

976	H	H	H	H	H				2
977	H	H	H	H	H				2
978	H	H	H	H	H				2
979	H	H	H	H	H				2
980	H	H	H	H	H				2
981	H	H	H	H	H				2
982	H	H	H	H	H				2

10


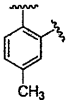
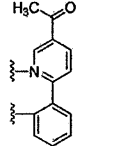

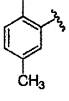
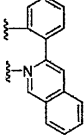

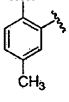
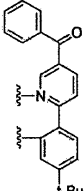

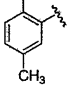
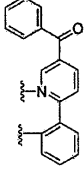

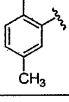
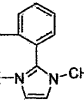

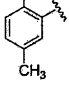
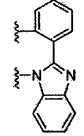

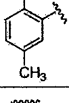
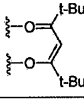

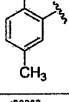
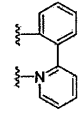


20

30

【 0 2 4 0 】

【表 1 0 4】

表1の続き

983	H	H	H	H	H				2
984	H	H	H	H	H				2
985	H	H	H	H	H				2
986	H	H	H	H	H				2
987	H	H	H	H	H				2
988	H	H	H	H	H				2
989	H	H	H	H	H				2
990	H	H	H	H	H				1
991	H	H	H	H	H			—	3

【 0 2 4 1 】

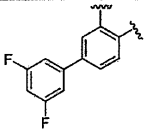

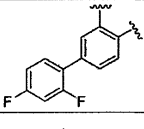














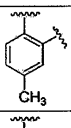

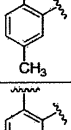

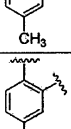



10

20

30

【表 105】

表1の続き

992	H	H	H	H	H	H			2
993	H	H	H	H	H	H			2
994	H	H	H	H	H	H			2
995	H	H	H	H	H	F			2
996	H	H	H	H	H	-CH ₃			2
997	H	H	H	H	H	-C(CH ₃) ₃			2
998	H	H	H	H	H				2
999	H	H	H	H	H	H			2
1000	-CH ₃	H	H	H	H	H			2
1001	H	-CH ₃	H	H	H	H			2
1002	H	H	-CH ₃	H	H	H			2
1003	H	H	H	-CH ₃	H	H			2

【 0 2 4 2 】

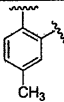
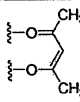
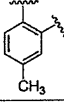
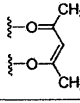
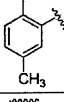
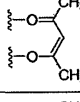
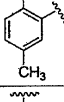
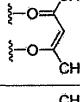
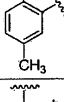
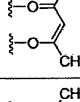
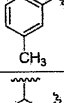
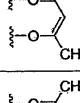
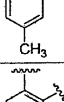
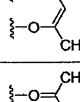
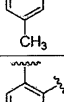
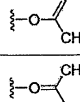
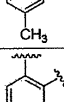
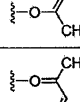
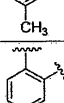
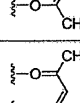
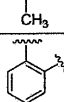
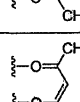



10

20

30

【表 106】

表1の続き

1004	H	H	H	H	-CH ₃	H			2
1005	-CH ₃	H	H	H	H	F			2
1006	H	-CH ₃	H	H	H	F			2
1007	H	H	-CH ₃	H	H	F			2
1008	H	H	H	-CH ₃	H	F			2
1009	H	H	H	H	-CH ₃	F			2
1010	-CH ₃	H	H	H	H	-CH ₃			2
1011	H	-CH ₃	H	H	H	-CH ₃			2
1012	H	H	-CH ₃	H	H	-CH ₃			2
1013	H	H	H	-CH ₃	H	-CH ₃			2
1014	H	H	H	H	-CH ₃	-CH ₃			2
1015	-CH ₃	H	H	H	H				2

【 0 2 4 3 】













10

20

30

【表 107】

表1の続き

1016	H	-CH ₃	H	H	H				2
1017	H	H	-CH ₃	H	H				2
1018	H	H	H	-CH ₃	H				2
1019	H	H	H	H	-CH ₃				2

10

【0244】

【表 108】

表2

化合物番号	¹ H NMR(CDCl ₃ , 200 MHz)	MS/FAB	
		実測値	計算値
11	δ = 8.6(d, 2H), 8.0 (m, 2H), 7.7-7.6 (m, 14H), 7.4-7.3 (m, 14H), 1.71 (s, 3H), 1.31 (s, 3H)	623	624.15
83	δ = 8.2 (s, 2H), 8.1 (d, 2H), 7.7 (m, 10H), 7.4 (m, 20H), 1.71 (s, 3H), 1.33 (s, 9H), 1.31 (s, 3H)	703	704.21
84	δ = 8.2 (s, 2H), 8.0 (m, 2H), 7.7-7.6 (m, 10H), 7.5-7.3 (m, 16H), 7.1 (m, 4H), 1.71 (s, 3H), 1.31 (s, 3H)	667	668.16
104	δ = 8.2 (s, 2H), 8.1 (d, 2H), 7.7 (m, 14H), 7.4 (m, 18H), 1.71 (s, 3H), 1.31 (s, 3H) (m, 2H), 7.03 (m, 4H), 5.7 (s, 1H), 1.71 (s, 3H), 1.31(s, 3H)	647	648.15
133	δ = 8.2 (s, 2H), 8.0 (m, 4H), 7.8-7.4 (m, 32H), 7.3 (m, 2H), 1.71 (s, 3H), 1.67 (s, 6H), 1.31 (s, 3H)	765	766.23
302	δ = 8.2 (s, 2H), 8.0 (m, 2H), 7.7-7.6 (m, 10H), 7.4 (m, 16H), 7.1 (m, 4H), 1.71 (s, 3H), 1.31 (s, 3H)	667	668.16
699	δ = 8.2 (s, 2H), 8.0 (m, 2H), 7.7-7.6 (m, 10H), 7.4-7.3 (m, 20H), 1.71 (s, 3H), 1.33 (s, 9H), 1.31 (s, 3H)	705	706.23
897	δ = 8.2 (s, 2H), 8.0 (m, 2H), 7.7-7.6 (m, 14H), 7.5-7.4 (m, 18H), 7.2 (m, 8H), 1.71 (s, 3H), 1.31 (s, 3H)	725	726.20

20

30

【0245】

実施例 1 O L E D (1) の製造

本発明に従った有機エレクトロルミネセント化合物を使用することによって、O L E D

40

デバイスを製造した。

【0246】

最初に、O L E D用のガラス(サムスン・コーニング社(Samsung Corning)によって調製された)(1)から調製された透明電極ITO薄膜(15 /)(2)を、トリクロロエチレン、アセトン、エタノール及び蒸留水による超音波洗浄に逐次的に付し、使用前にイソプロパノール中に貯蔵した。

【0247】

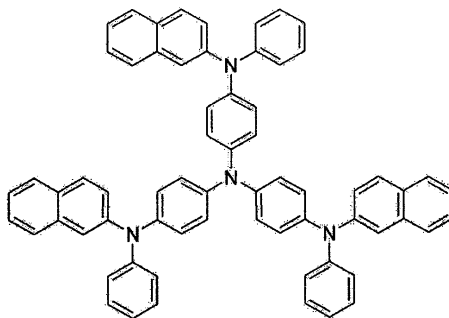
次いで、ITO基体を、真空蒸着装置の基体ホルダー内に装着し、4,4',4"-トリス(N,N-(2-ナフチル)-フェニルアミノ)トリフェニルアミン(2-TNATA)を、真空蒸着装置のセル内に置き、次いで、この装置を、10⁻⁶トールのチャンバ

50

一内の真空まで排気した。電流をセルに適用して、2-TNATAを蒸発させ、それによって、ITO基体の上に、60nmの厚さを有する正孔注入層(3)の蒸着物をもたらした。

【0248】

【化57】



2-TNATA

10

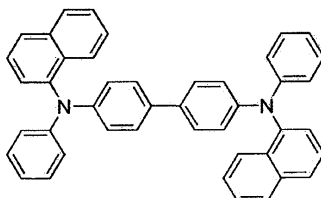
【0249】

次いで、真空蒸着装置の他のセルに、N,N'-ビス(1-ナフチル)-N,N'-ジフェニル-4,4'-ジアミン(NPB)を装入し、電流をこのセルに適用して、NPBを蒸発させ、それによって、正孔注入層の上に、20nmの厚さの正孔輸送層(4)の蒸着物をもたらした。

20

【0250】

【化58】



NPB

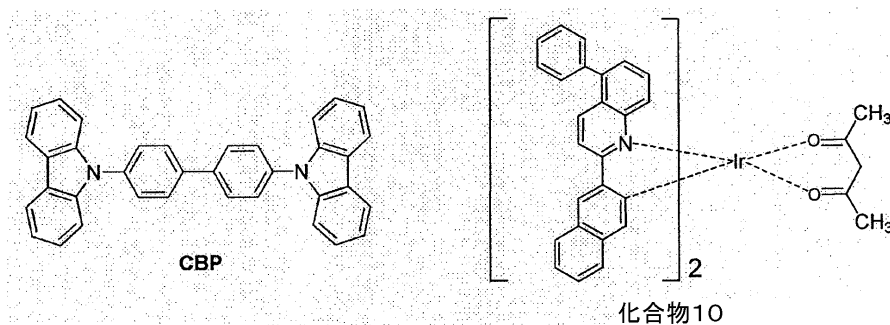
30

【0251】

該真空蒸着装置の他のセル内に、エレクトロルミネセントホスト材料として4,4'-N,N'-ジカルバゾール-ピフェニル(CBP)を装入し、本発明に従った有機エレクトロルミネセント化合物(化合物10)を、更に他のセル内に装入した。この2種の材料を、異なった速度で蒸発させてドーピングを実施して、正孔輸送層の上に30nmの厚さを有するエレクトロルミネセント層(5)を蒸着した。好適なドーピング濃度は、CBP基準で4~10mol%である。

【0252】

【化59】



化合物10

40

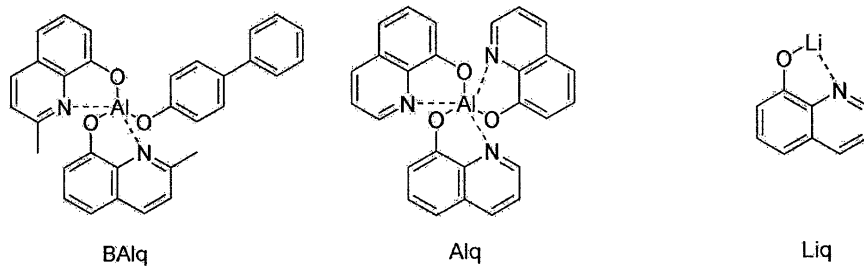
【0253】

50

次いで、エレクトロルミネセント層の上に、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)(BAIq)を、NPBについてと同じ方法で、10nmの厚さで正孔ブロック層として蒸着し、トリス(8-ヒドロキシキノリン)アルミニウム(III)(AIq)を、20nmの厚さで電子輸送層(6)として蒸着し、次いで、リチウムキノラート(Liq)を、1~2nmの厚さで電子注入層(7)として蒸着した。その後、Alカソード(8)を、他の真空蒸着装置を使用することによって、150nmの厚さで蒸着して、OLEDを製造した。

【0254】

【化60】



10

【0255】

実施例2 OLED(2)の製造

【0256】

正孔注入層及び正孔輸送層を、実施例1の手順に従って形成し、エレクトロルミネセント層を下記のようにして蒸着した。該真空蒸着装置の他のセル内に、エレクトロルミネセントホスト材料としてH-2を装入し、本発明に従った有機エレクトロルミネセント化合物(化合物199)を、更に他のセル内に装入した。この2種の材料を、異なった速度で蒸発させてドーピングを実施して、正孔輸送層の上に30nmの厚さを有するエレクトロルミネセント層(5)を蒸着した。好適なドーピング濃度は、ホスト基準で4~10mol%である。次いで、正孔ブロック層、電子輸送層及び電子注入層を、実施例1におけると同じ手順に従って蒸着し、次いで、Alカソードを、他の真空蒸着装置を使用することによって、150nmの厚さで蒸着して、OLEDを製造した。

20

【0257】

実施例3 OLED(3)の製造

正孔注入層、正孔輸送層及びエレクトロルミネセント層を、実施例2におけると同じ手順に従って形成し、次いで、電子輸送層及び電子注入層を蒸着した。その後、Alカソードを、他の真空蒸着装置を使用することによって、150nmの厚さで蒸着して、OLEDを製造した。

30

【0258】

実施例1に従って調製したOLEDの性能を確認するために、これらのOLEDの発光効率を、10mA/cm²で測定した。種々の特性を表3に示す。

【0259】

【表 109】

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 10	CBP	BAlq	赤色	8.1	9.4
	化合物 16	CBP	BAlq	赤色	8.2	9.8
	化合物 44	CBP	BAlq	赤色	8.0	11.3
	化合物 49	CBP	BAlq	赤色	8.2	11.8
	化合物 56	CBP	BAlq	赤色	8.0	10.9
	化合物 79	CBP	BAlq	赤色	8.3	10.6
	化合物 177	CBP	BAlq	赤色	8.1	11.5
	化合物 199	CBP	BAlq	赤色	8.3	10.8
	化合物 208	CBP	BAlq	赤色	8.4	9.9
	化合物 210	CBP	BAlq	赤色	8.2	10.1
	化合物 241	CBP	BAlq	赤色	8.0	11.0
	化合物 348	CBP	BAlq	赤色	8.2	9.9
	化合物 374	CBP	BAlq	赤色	7.9	11.0
	化合物 375	CBP	BAlq	赤色	8.0	10.9
	化合物 585	CBP	BAlq	赤色	7.9	11.8
	化合物 590	CBP	BAlq	赤色	7.8	12.0
	化合物 594	CBP	BAlq	赤色	7.9	11.4
	化合物 648	CBP	BAlq	赤色	8.2	10.4
	化合物 783	CBP	BAlq	赤色	8.0	10.8
	化合物 803	CBP	BAlq	赤色	8.4	9.5
実施例2	化合物 10	H-4	BAlq	赤色	7.9	9.5
	化合物 199	H-2	BAlq	赤色	8.2	10.6
	化合物 375	H-7	BAlq	赤色	8.0	11.0
	化合物 783	H-40	BAlq	赤色	7.8	10.9
実施例3	化合物 49	H-8	-	赤色	6.9	11.6
	化合物 375	H-12	-	赤色	7.1	11.1
	化合物 783	H-40	-	赤色	7.2	10.8
	化合物 980	H-64	-	赤色	6.9	10.4

【0260】

化合物(44)は、メチル基がHOMOレベルに影響を与えたので、改良されたカラー
 コーディネート(color coordinate)及び増強された発光効率の両方を
 示すことが見出された。Fを配位子に適用した化合物(49)は、HOMOレベルに影響
 を与え、従って、Fを適用する前の同じものに対して比較したとき、カラーコーディネ
 ートが低下したけれども、増強された発光効率を示した。化合物(177)、(585)及
 び(590)について、それぞれ、2-フェニルキノリン、2-スチリルキノリン及びフェ
 ニル(6-フェニルピリジン-3-イル)メタノンを、副配位子として組み入れた。こ
 れらは、本発明に従った化合物の中で最も優れた発光効率(それぞれ、11.5cd/A
 、11.8cd/A及び12.0cd/A)を示した。ppy、1-スチリルキノリン、
 2-フェニルキノリン、2-スチリルキノリン又はフェニル(6-フェニルピリジン-3
 -イル)メタノンを副配位子として組み入れた化合物も、高い発光効率を示した。従
 って、副配位子と主配位子との適切な組合せが、化合物の発光効率を増強するため
 に重要な役割を与えたことが見出された。

【0261】

同一のデバイス構造で、ELデバイスにおいてCBPの代わりに本発明に従ったホスト
 を使用することは、効率、カラーコーディネート及び動作電圧において顕著な変化をも
 たらさなかった。従って、これらのホストは、従来のエレクトロルミネセントホスト
 としてのCBPの代わりに、本発明に従ったドーパントと共に使用するとき、りん光
 ホストとして使用することができることが期待される。本発明に従ったホストを、
 正孔ブロッキング層を使用することなく、使用するとき、このデバイスは、従来の
 ホストを使用するものに対して比較したとき、匹敵する又はより高い発光効率を示
 し、少なくとも0.8Vほど低

下した動作電圧に起因する、O L E Dの減少した電力消費をもたらす。本発明をO L E Dの大量生産に応用する場合、大量生産のための時間も短縮させ、その商業化において大きい利益をもたらすことができる。

【図面の簡単な説明】

【 0 2 6 2 】

【図 1】図 1 は、O L E Dの断面図である。

【符号の説明】

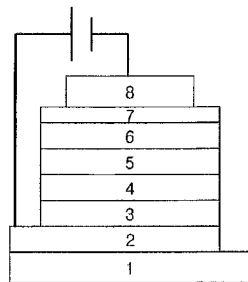
【 0 2 6 3 】

- 1 ガラス
- 2 透明電極
- 3 正孔注入層
- 4 正孔輸送層
- 5 エレクトロルミネセント層
- 6 電子輸送層
- 7 電子注入層
- 8 A l カソード

10

【図 1】

図 1



フロントページの続き

- (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

審査官 上村 直子

- (56)参考文献 特開2006-151888(JP, A)
特開2004-210779(JP, A)
国際公開第2005/003095(WO, A1)
特開2001-345183(JP, A)
特表2005-506361(JP, A)
特表2010-520882(JP, A)
QI, S. et al., Synthesis and Fluorescence Properties of 5,7-Diphenylquinoline and 2,5,7
-Triphenylquinoline Derived from m-Terphenylamine, Molecules, 2007年, 12, 988-996
- (58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
C A p l u s (S T N)
R E G I S T R Y (S T N)