

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2021年11月25日(25.11.2021)



(10) 国際公開番号

WO 2021/235549 A1

(51) 国際特許分類:

C07D 491/048 (2006.01) *C07D 519/00* (2006.01)
C09K 11/06 (2006.01) *H01L 51/50* (2006.01)
C07D 487/04 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2021/019431

(22) 国際出願日: 2021年5月21日(21.05.2021)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:

特願 2020-090095 2020年5月22日(22.05.2020) JP
特願 2020-147167 2020年9月1日(01.09.2020) JP
特願 2020-188657 2020年11月12日(12.11.2020) JP
特願 2021-074492 2021年4月26日(26.04.2021) JP

(71) 出願人: 株式会社 K y u l u x (KYULUX, INC.) [JP/JP]; 〒8190388 福岡県福岡市西区九大新町4番地1 Fukuoka (JP).

(72) 発明者: 山下 正貴 (YAMASHITA Masataka); 〒8190388 福岡県福岡市西区九大新町4番地1 株式会社 K y u l u x 内 Fukuoka (JP). 鄭 碩賢 (CHENG Shuo-Hsien); 〒8190388 福岡県福岡市西区九大新町4番地1 株式会社 K y u l u x 内 Fukuoka (JP). バリジャパリ ウママヘシユ (BALIJAPALLI Umamahesh); 〒8190388 福岡県福岡市西区九大新町4番地1 株式会社 K y u l u x 内 Fukuoka (JP). ヤン ユソク (YANG YuSeok); 〒8190388 福岡

県福岡市西区九大新町4番地1 株式会社 K y u l u x 内 Fukuoka (JP).

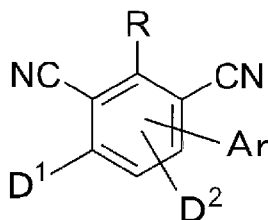
(74) 代理人: 特許業務法人特許事務所サイクス (SIKS & CO.); 〒1040031 東京都中央区京橋一丁目8番7号 京橋日殖ビル8階 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, IT, JO, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

(54) Title: COMPOUND, LIGHT-EMITTING MATERIAL, AND LIGHT-EMITTING ELEMENT

(54) 発明の名称: 化合物、発光材料および発光素子



(57) Abstract: To provide an exceptional light-emitting material. A compound represented by the general formula is used as a light-emitting material. R is a heteroaryl group bonded with a hydrogen atom, a deuterium atom, an aryl group, or a carbon atom, Ar is a heteroaryl group bonded with an aryl group or a carbon atom, and D¹ and D² are donor groups of which at least one is a hetero ring-fused carbazol-9-yl group.

(57) 要約: 優れた発光材料を提供すること。下記一般式で表される化合物を発光材料として用いる。Rは水素原子、重水素原子、アリール基または炭素原子で結合するヘテロアリール基、Arはアリール基または炭素原子で結合するヘテロアリール基、D¹およびD²はドナー性基で、少なくとも1つはヘテロ環縮合カルバゾール-9-イル基である。

[続葉有]



WO 2021/235549 A1

添付公開書類：

一 国際調査報告（条約第21条(3)）

明 細 書

発明の名称：化合物、発光材料および発光素子

技術分野

[0001] 本発明は、発光材料として有用な化合物とそれを用いた発光素子に関する。

背景技術

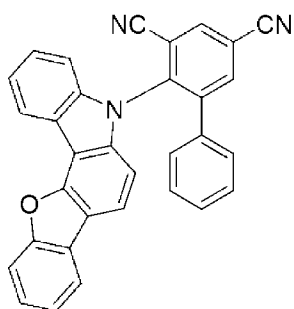
[0002] 有機エレクトロルミネッセンス素子（有機EL素子）などの発光素子の発光効率を高める研究が盛んに行われている。特に、有機エレクトロルミネッセンス素子を構成する電子輸送材料、ホール輸送材料、発光材料などを新たに開発して組み合わせることにより、発光効率を高める工夫が種々なされてきている。その中には、遅延蛍光材料を利用した有機エレクトロルミネッセンス素子に関する研究も見受けられる。

[0003] 遅延蛍光材料は、励起状態において、励起三重項状態から励起一重項状態への逆項間交差を生じた後、その励起一重項状態から基底状態へ戻る際に蛍光を放射する材料である。こうした経路による蛍光は、基底状態から直接生じた励起一重項状態からの蛍光（通常の蛍光）よりも遅れて観測されるため、遅延蛍光と称されている。ここで、例えば、発光性化合物をキャリアの注入により励起した場合、励起一重項状態と励起三重項状態の発生確率は統計的に25%：75%であるため、直接生じた励起一重項状態からの蛍光のみでは、発光効率の向上に限界がある。一方、遅延蛍光材料では、励起一重項状態のみならず、励起三重項状態も上記の逆項間交差を介した経路により蛍光発光に利用することができるため、通常の蛍光材料に比べて高い発光効率を得られることになる。

[0004] このような原理が明らかにされて以降、様々な研究により種々の遅延蛍光材料が発見されるに至っている。しかしながら、遅延蛍光を放射する材料であれば、直ちに発光材料として有用である訳ではない。遅延蛍光材料の中には、逆項間交差が比較的生じにくいものもあり、遅延蛍光の寿命が長いもの

もある。また、高電流密度領域で励起子が蓄積して発光効率が低下してしまったり、長時間駆動を続けると急速に劣化してしまったりするものもある。したがって、実用性の点で改善の余地がある遅延蛍光材料が極めて多いのが実情である。このため、遅延蛍光材料として知られているベンゾニトリル系化合物においても、課題があることが指摘されている。例えば、下記の構造を有する化合物は遅延蛍光を放射する材料であるものの（特許文献1参照）、遅延蛍光の寿命が長いうえ、素子耐久性が不十分であるという課題を抱えている。

[0005] [化1]



先行技術文献

非特許文献

[0006] 特許文献1：WO2014/208698A1

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] このような課題を抱えていることが指摘されているにもかかわらず、遅延蛍光材料の化学構造と特性との関係については十分な解明がなされているとは言いがたい。このため、発光材料として有用な化合物の化学構造を一般化するのは現状では困難であり、不明な点が多い。

[0008] このような状況下において本発明者らは、発光素子用の発光材料としてより有用な化合物を提供することを目的として研究を重ねた。そして、発光材料としてより有用な化合物の一般式を導きだして一般化することを目的として鋭意検討を進めた。

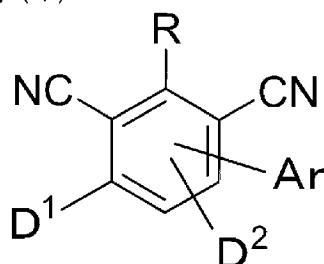
課題を解決するための手段

[0009] 上記の目的を達成するために鋭意検討を進めた結果、本発明者らは、イソフタロニトリル誘導体のうち、特定の条件を満たす構造を持つ化合物が発光材料として有用であることを見いだした。本発明は、こうした知見に基づいて提案されたものであり、具体的に、以下の構成を有する。

[0010] [1] 下記一般式(1)で表される化合物。

[化2]

一般式(1)



[一般式(1)において、

Rは、水素原子、重水素原子、置換もしくは無置換のアリール基、または炭素原子で結合する置換もしくは無置換のヘテロアリール基であり、

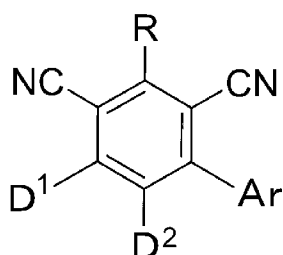
Arは、置換もしくは無置換のアリール基、または炭素原子で結合する置換もしくは無置換のヘテロアリール基であり、

D¹およびD²は、各々独立にドナー性基を表すが、そのうちの少なくとも1つはヘテロ環縮合カルバゾール-9-イル基（前記ヘテロ環と前記カルバゾールは置換されていてもよい）である。]

[2] 前記化合物が下記一般式(2)で表される、[1]に記載の化合物。

[化3]

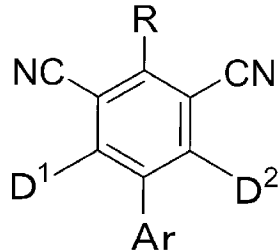
一般式(2)



[3] 前記化合物が下記一般式(3)で表される、[1]に記載の化合物。

[化4]

一般式(3)



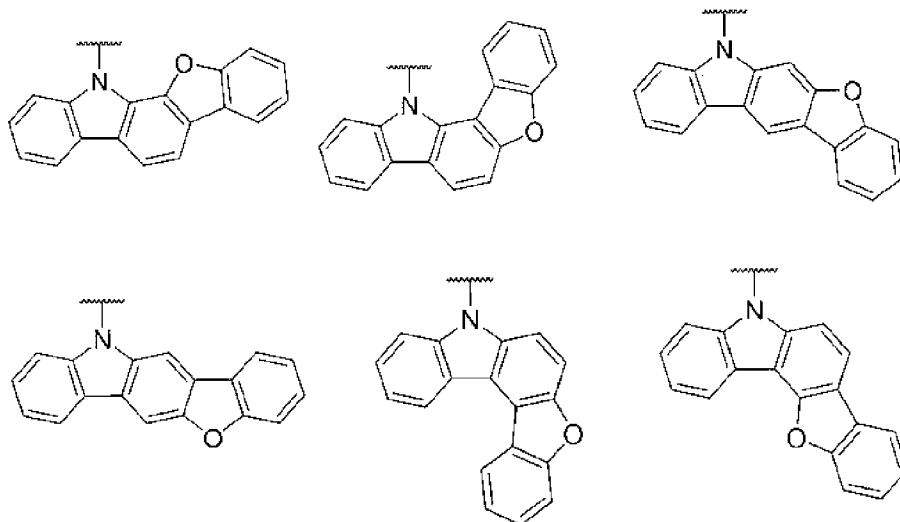
[4] D^1 と D^2 が同一である、[1]～[3]のいずれか1つに記載の化合物。

[5] D^1 と D^2 が異なる、[1]～[3]のいずれか1つに記載の化合物。

[6] 前記ヘテロ環縮合カルバゾールー9-イル基のカルバゾールー9-イル基に縮合しているヘテロ環が、置換もしくは無置換のフラン環、置換もしくは無置換のチオフェン環、または置換もしくは無置換のピロール環であって、前記フラン環、前記チオフェン環および前記ピロール環にはさらに他の環が縮合していてもよい、[1]～[5]のいずれか1つに記載の化合物。

[7] 前記ヘテロ環縮合カルバゾールー9-イル基が下記のいずれかの構造を有する、[1]～[6]のいずれか1つに記載の化合物。

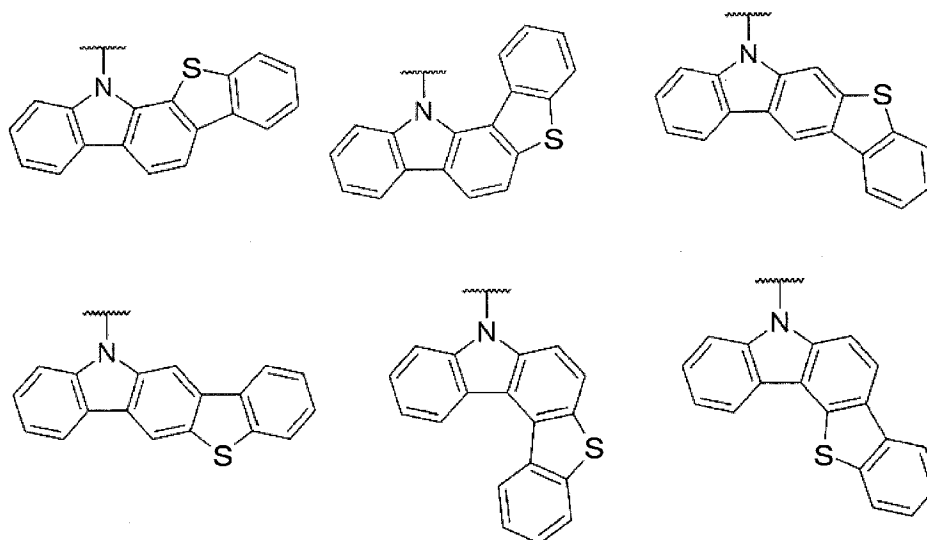
[化5]



[上記の各構造において、水素原子は置換されていてもよいが、さらにヘテロ環が縮合していることはない。]

[8] 前記ヘテロ環縮合カルバゾールー9-イル基が下記のいずれかの構造を有する、[1]～[6]のいずれか1つに記載の化合物。

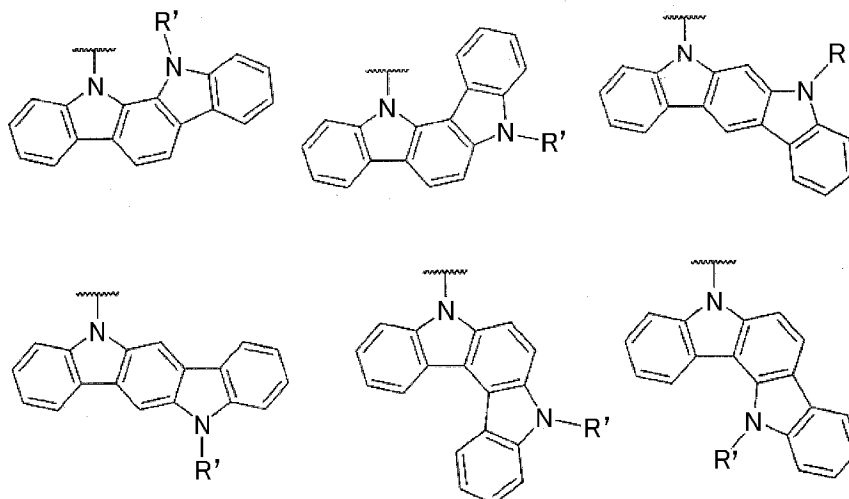
[化6]



[上記の各構造において、水素原子は置換されていてもよいが、さらにヘテロ環が縮合していることはない。]

[9] 前記ヘテロ環縮合カルバゾールー9-イル基が下記のいずれかの構造を有する、[1]～[6]のいずれか1つに記載の化合物。

[化7]



[上記の各構造において、水素原子は置換されていてもよいが、さらにヘテロ環が縮合していることはない。R' は水素原子、重水素原子または置換基を表す。]

[10] 前記ヘテロ環縮合カルバゾール-9-イル基のカルバゾール-9-イル基に、置換もしくは無置換のフラン環、置換もしくは無置換のチオフェン環、および置換もしくは無置換のピロール環（前記フラン環、前記チオフェン環および前記ピロール環にはさらに他の環が縮合していてもよい）からなる群より選択される2つのヘテロ環が縮合している、[1]～[9]のいずれか1つに記載の化合物。

[11] 前記ヘテロ環縮合カルバゾール-9-イル基が、カルバゾール環の1, 2位にヘテロ環が縮合した構造を有する、[1]～[10]のいずれか1つに記載の化合物。

[12] 前記ヘテロ環縮合カルバゾール-9-イル基が、カルバゾール環の2, 3位にヘテロ環が縮合した構造を有する、[1]～[10]のいずれか1つに記載の化合物。

[13] 前記ヘテロ環縮合カルバゾール-9-イル基が、カルバゾール環の3, 4位にヘテロ環が縮合した構造を有する、[1]～[10]のいずれか1つに記載の化合物。

[14] RとArが異なる、[1]～[13]のいずれか1つに記載の化

合物。

[15] Rが水素原子または重水素原子である、[1]～[13]のいずれか1つに記載の化合物。

[16] Arが置換もしくは無置換のフェニル基、または置換もしくは無置換のピリジル基である、[1]～[15]のいずれか1つに記載の化合物。

[17] 炭素原子、水素原子、重水素原子、窒素原子、酸素原子および硫黄原子からなる群より選択される原子からなる、[1]～[16]のいずれか1つに記載の化合物。

[18] [1]～[17]のいずれか1つに記載の化合物からなる発光材料。

[19] [1]～[17]のいずれか1つに記載の化合物を含むことを特徴とする発光素子。

[20] 前記発光素子が発光層を有しており、前記発光層が前記化合物とホスト材料を含む、[19]に記載の発光素子。

[21] 前記発光素子が発光層を有しており、前記発光層が前記化合物と発光材料を含み、前記発光材料から主として発光する、[20]に記載の発光素子。

発明の効果

[0011] 本発明の化合物は、発光材料として有用である。また、本発明の化合物の中には遅延蛍光寿命が短い化合物が含まれる。さらに、本発明の化合物を用いた有機発光素子は、素子耐久性が高く有用である。

図面の簡単な説明

[0012] [図1]有機エレクトロルミネッセンス素子の層構成例を示す概略断面図である。

発明を実施するための形態

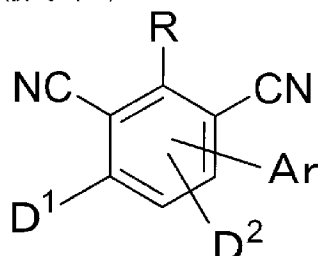
[0013] 以下において、本発明の内容について詳細に説明する。以下に記載する構成要件の説明は、本発明の代表的な実施態様や具体例に基づいてなされるこ

とがあるが、本発明はそのような実施態様や具体例に限定されるものではない。なお、本明細書において「～」を用いて表される数値範囲は、「～」の前後に記載される数値を下限値および上限値として含む範囲を意味する。また、本発明に用いられる化合物の分子内に存在する水素原子の一部または全部は重水素原子（ ^2H 、デューテリウムD）に置換することができる。本明細書の化学構造式では、水素原子はHと表示しているか、その表示を省略している。例えばベンゼン環の環骨格構成炭素原子に結合する原子の表示が省略されているとき、表示が省略されている箇所ではHが環骨格構成炭素原子に結合しているものとする。本明細書の化学構造式では、重水素原子はDと表示している。

[0014] [一般式（1）で表される化合物]

[化8]

一般式（1）



[0015] 一般式（1）における D^1 および D^2 の少なくとも1つは、ヘテロ環縮合カルバゾール-9-イル基を表す。ヘテロ環縮合カルバゾール-9-イル基を構成するヘテロ環とカルバゾール環は、それぞれ置換されていてもよい、置換されていなくてもよい。

カルバゾール-9-イル基に縮合しているヘテロ環の数は1つ以上であり、1つまたは2つであることが好ましく、1つであることがより好ましい。2つ以上のヘテロ環が縮合しているとき、それらのヘテロ環は同一であってもよい、異なってもよい。本発明の一態様では、ヘテロ環はカルバゾール-9-イル基の1, 2位に縮合している。本発明の別の態様では、ヘテロ環はカルバゾール-9-イル基の2, 3位に縮合している。本発明のさらに別の態様では、ヘテロ環はカルバゾール-9-イル基の3, 4位に縮

合している。

カルバゾールー９－イル基に縮合しているヘテロ環は、ヘテロ原子を含む環である。ヘテロ原子は、酸素原子、硫黄原子、窒素原子およびケイ素原子から選択されることが好ましく、酸素原子、硫黄原子および窒素原子から選択されることがより好ましい。好ましい一態様では、ヘテロ原子は酸素原子である。別の好ましい一態様では、ヘテロ原子は硫黄原子である。さらに別の好ましい一態様では、ヘテロ原子は窒素原子である。ヘテロ環の環骨格構成原子として含まれているヘテロ原子の数は１つ以上であり、１～３つが好ましく、１または２つがより好ましい。好ましい一態様ではヘテロ原子の数は１つである。ヘテロ原子の数が２つ以上であるとき、それらは同一種のヘテロ原子であることが好ましいが、異種のヘテロ原子で構成されていてもよい。例えば、２つ以上のヘテロ原子がすべて窒素原子であってもよい。ヘテロ原子以外の環骨格構成原子は炭素原子である。

カルバゾールー９－イル基に縮合しているヘテロ環を構成する環骨格構成原子数は、４～８であることが好ましく、５～７であることがより好ましく、５または６であることがさらに好ましい。好ましい一態様では、ヘテロ環を構成する環骨格構成原子数は５である。ヘテロ環には共役二重結合が２つ以上存在していることが好ましく、ヘテロ環が縮合することにより、カルバゾール環の共役系が拡張するものであることが好ましい（芳香族性を有することが好ましい）。ヘテロ環の好ましい例として、フラン環、チオフェン環、ピロール環をあげることができる。

カルバゾールー９－イル基に縮合しているヘテロ環には、さらに他の環が縮合していてもよい。また、縮合する環は単環であっても縮合環であってもよい。縮合する環としては、芳香族炭化水素環、芳香族複素環、脂肪族炭化水素環、脂肪族複素環を挙げることができる。芳香族炭化水素環としてはベンゼン環を挙げることができる。芳香族複素環としては、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、トリアジン環、ピロール環、ピラゾール環、イミダゾール環を挙げることができる。脂肪族炭化水素環としては

、シクロペンタン環、シクロヘキサン環、シクロヘプタン環を挙げることができる。脂肪族複素環としては、ピペリジン環、ピロリジン環、イミダゾリン環を挙げることができる。縮合環の具体例として、ナフタレン環、アントラセン環、フェナントレン環、ピラン環、テトラセン環、インドール環、イソインドール環、ベンゾイミダゾール環、ベンゾトリアゾール環、キノリン環、イソキノリン環、キナゾリン環、キノキサリン環、シンノリン環を挙げることができる。

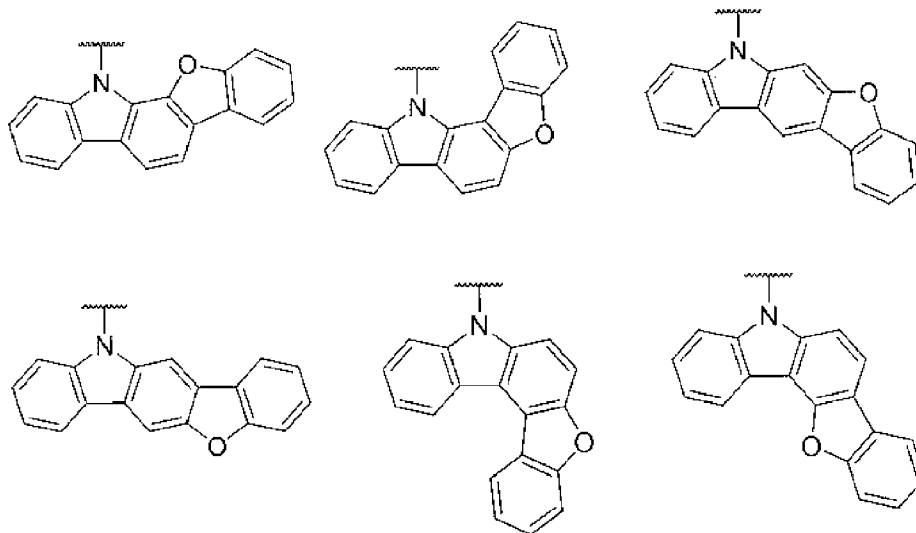
[0016] 本発明の好ましい一態様では、ヘテロ環縮合カルバゾールー9-イル基は、ベンゾフラン縮合カルバゾールー9-イル基、ベンゾチオフェン縮合カルバゾールー9-イル基、インドール縮合カルバゾールー9-イル基、またはシラインデン縮合カルバゾールー9-イル基である。本発明のより好ましい一態様では、ヘテロ環縮合カルバゾールー9-イル基は、ベンゾフラン縮合カルバゾールー9-イル基、ベンゾチオフェン縮合カルバゾールー9-イル基、またはインドール縮合カルバゾールー9-イル基である。

[0017] 本発明では、ベンゾフラン縮合カルバゾールー9-イル基として、置換もしくは無置換のベンゾフロ[2, 3-a]カルバゾールー9-イル基を採用することができる。また、置換もしくは無置換のベンゾフロ[3, 2-a]カルバゾールー9-イル基を採用することもできる。また、置換もしくは無置換のベンゾフロ[2, 3-b]カルバゾールー9-イル基を採用することもできる。また、置換もしくは無置換のベンゾフロ[3, 2-b]カルバゾールー9-イル基を採用することもできる。また、置換もしくは無置換のベンゾフロ[2, 3-c]カルバゾールー9-イル基を採用することもできる。また、置換もしくは無置換のベンゾフロ[3, 2-c]カルバゾールー9-イル基を採用することもできる。

好ましいベンゾフラン縮合カルバゾールー9-イル基は、ベンゾフラン環が2, 3位で1つだけ縮合し、その他にヘテロ環が縮合していないカルバゾールー9-イル基である（ベンゼン環は縮合していてもよい）。具体的には、下記のいずれかの構造を有する基であり、下記構造中の水素原子は置換さ

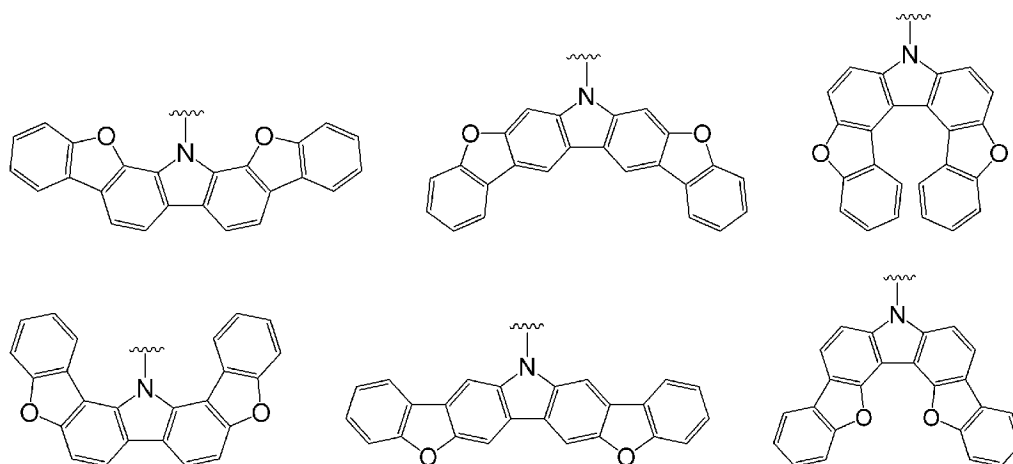
れていてもよい。例えば、下記構造中の水素原子の一部が重水素原子で置換されているものや、下記構造中の水素原子の全部が重水素原子で置換されているものを好ましく例示することができる。無置換であるものも好ましく採用することができる。

[化9]



[0018] ベンゾフラン環が2，3位で2つ縮合し、その他にヘテロ環が縮合していないカルバゾール-9-イル基も好ましい（ベンゼン環は縮合していてもよい）。具体的には、下記のいずれかの構造を有する基であり、下記構造中の水素原子は置換されていてもよい。例えば、下記構造中の水素原子の一部が重水素原子で置換されているものや、下記構造中の水素原子の全部が重水素原子で置換されているものを好ましく例示することができる。無置換であるものも好ましく採用することができる。

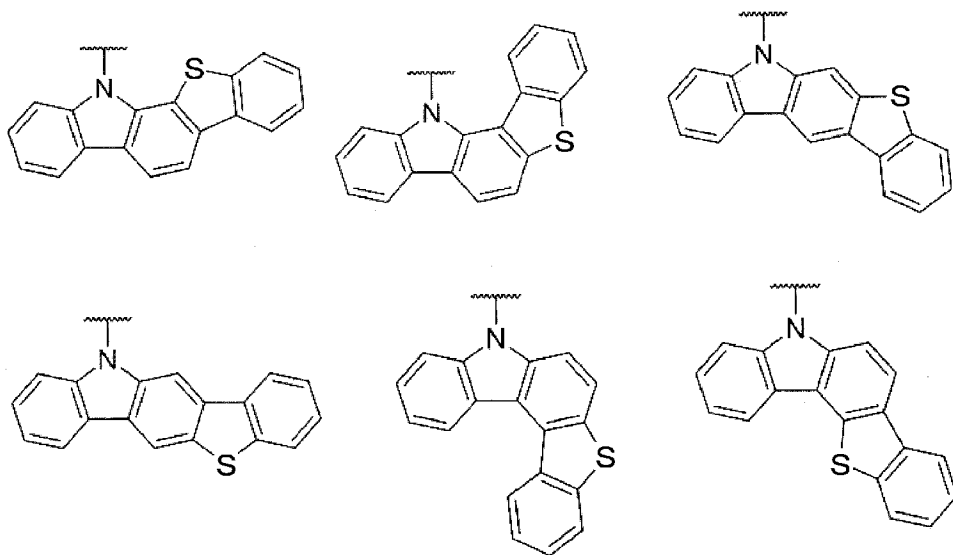
[化10]



[0019] 本発明では、ベンゾチオフエン縮合カルバゾールー9-イル基として、置換もしくは無置換のベンゾチエノ〔2, 3-a〕カルバゾールー9-イル基を採用することができる。また、置換もしくは無置換のベンゾチエノ〔3, 2-a〕カルバゾールー9-イル基を採用することもできる。また、置換もしくは無置換のベンゾチエノ〔2, 3-b〕カルバゾールー9-イル基を採用することもできる。また、置換もしくは無置換のベンゾチエノ〔3, 2-b〕カルバゾールー9-イル基を採用することもできる。また、置換もしくは無置換のベンゾチエノ〔2, 3-c〕カルバゾールー9-イル基を採用することもできる。また、置換もしくは無置換のベンゾチエノ〔3, 2-c〕カルバゾールー9-イル基を採用することもできる。

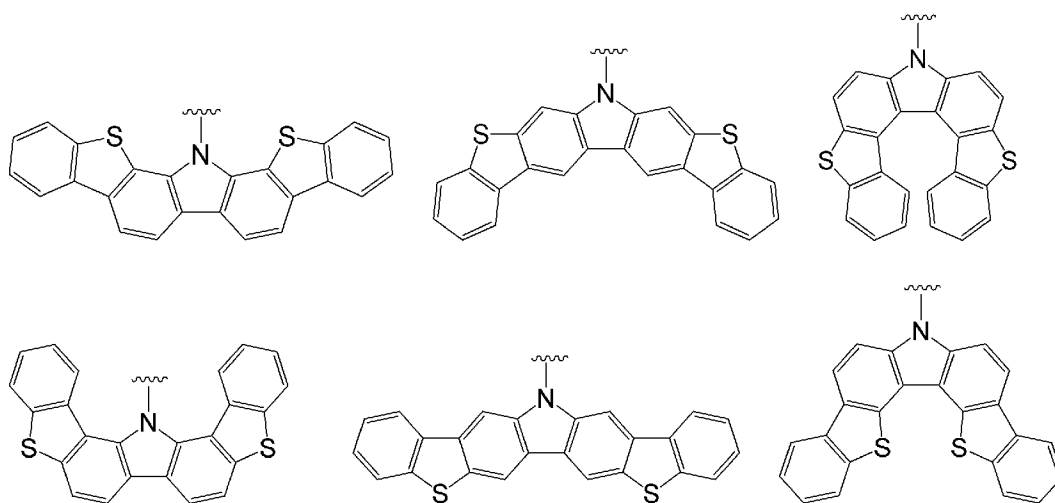
好ましいベンゾチオフエン縮合カルバゾールー9-イル基は、ベンゾチオフエン環が2, 3位で1つだけ縮合し、その他にヘテロ環が縮合していないカルバゾールー9-イル基である（ベンゼン環は縮合していてもよい）。具体的には、下記のいずれかの構造を有する基であり、下記構造中の水素原子は置換されていてもよい。例えば、下記構造中の水素原子の一部が重水素原子で置換されているものや、下記構造中の水素原子の全部が重水素原子で置換されているものを好ましく例示することができる。無置換であるものも好ましく採用することができる。

[化11]



[0020] ベンゾチオフェン環が2, 3位で2つ縮合し、その他にヘテロ環が縮合していないカルバゾール-9-イル基も好ましい（ベンゼン環は縮合していてもよい）。具体的には、下記のいずれかの構造を有する基であり、下記構造中の水素原子は置換されていてもよい。例えば、下記構造中の水素原子の一部が重水素原子で置換されているものや、下記構造中の水素原子の全部が重水素原子で置換されているものを好ましく例示することができる。無置換であるものも好ましく採用することができる。

[化12]

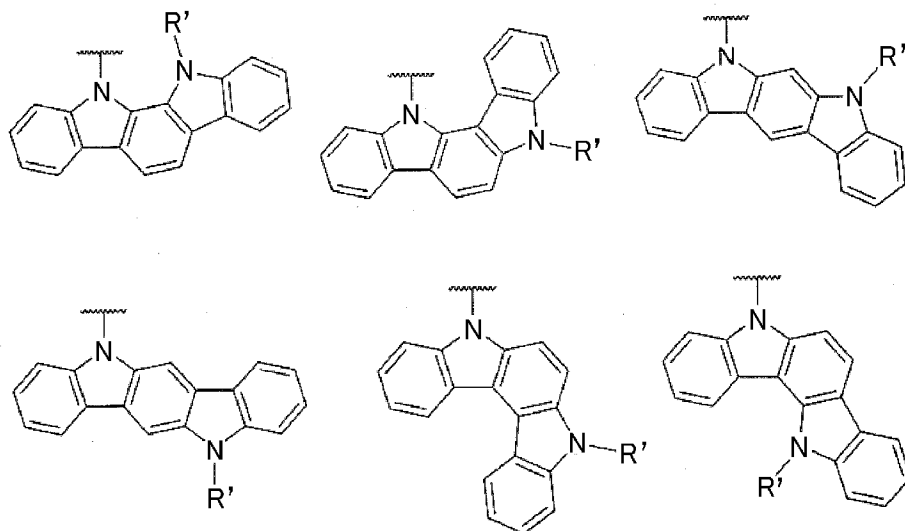


[0021] 本発明では、インドール縮合カルバゾール-9-イル基として、置換もし

くは無置換のインドロ [2, 3-a] カルバゾール-9-イル基を採用することができる。また、置換もしくは無置換のインドロ [3, 2-a] カルバゾール-9-イル基を採用することもできる。また、置換もしくは無置換のインドロ [2, 3-b] カルバゾール-9-イル基を採用することもできる。また、置換もしくは無置換のインドロ [3, 2-b] カルバゾール-9-イル基を採用することもできる。また、置換もしくは無置換のインドロ [2, 3-c] カルバゾール-9-イル基を採用することもできる。また、置換もしくは無置換のインドロ [3, 2-c] カルバゾール-9-イル基を採用することもできる。

好ましいインドール縮合カルバゾール-9-イル基は、インドール環が2, 3位で1つだけ縮合し、その他にヘテロ環が縮合していないカルバゾール-9-イル基である（ベンゼン環は縮合していてもよい）。具体的には、下記のいずれかの構造を有する基であり、下記構造中のR' は水素原子、重水素原子または置換基（好ましくはR' は置換基）を表す。R' は置換もしくは無置換のアリール基であることが好ましい。下記構造中の水素原子は置換されていてもよい。例えば、下記構造中の水素原子の一部が重水素原子で置換されているものや、下記構造中の水素原子の全部が重水素原子で置換されているものを好ましく例示することができる。無置換であるものも好ましく採用することができる。

[化13]



[0022] ヘテロ環縮合カルバゾールー9ーイル基を構成するヘテロ環とカルバゾール環は、それぞれ置換されていてもよい。置換されている場合は、重水素原子で置換されていてもよいし、それ以外の置換基で置換されていてもよい。ここでいう置換基としては、アルキル基、アルケニル基、アリール基、ヘテロアリール基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリールオキシ基、アリールチオ基、ヘテロアリールオキシ基、ヘテロアリールチオ基、シアノ基を挙げることができる。これらの置換基は、さらに別の置換基で置換されていてもよい。例えば、重水素原子、アルキル基、アリール基、アルコキシ基、アルキルチオ基で置換されている態様を挙げることができる。

ここでいう「アルキル基」は、直鎖状、分枝状、環状のいずれであってもよい。また、直鎖部分と環状部分と分枝部分のうちの2種以上が混在していてもよい。アルキル基の炭素数は、例えば1以上、2以上、4以上とすることができる。また、炭素数は30以下、20以下、10以下、6以下、4以下とすることができる。アルキル基の具体例として、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、イソブチル基、*tert*-ブチル基、*n*-ペンチル基、イソペンチル基、*n*-ヘキシル基、イソヘキシル基、2-エチルヘキシル基、*n*-ヘプチル基、イソヘプチル基、*n*-オクチル基、イソオクチル基、*n*-ノニル基、イソノニル基、*n*-デカニル基、イ

ソデカニル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基を挙げることができる。置換基たるアルキル基は、さらに重水素原子、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子で置換されていてもよい。

「アルケニル基」は、直鎖状、分枝状、環状のいずれであってもよい。また、直鎖部分と環状部分と分枝部分のうちの2種以上が混在していてもよい。アルケニル基の炭素数は、例えば2以上、4以上とすることができる。また、炭素数は30以下、20以下、10以下、6以下、4以下とすることができる。アルケニル基の具体例として、エテニル基、*n*-プロペニル基、イソプロペニル基、*n*-ブテニル基、イソブテニル基、*n*-ペンテニル基、イソペンテニル基、*n*-ヘキセニル基、イソヘキセニル基、2-エチルヘキセニル基を挙げることができる。置換基たるアルケニル基は、さらに置換されていてもよい。

「アリール基」および「ヘテロアリール基」は、単環であってもよいし、2つ以上の環が縮合した縮合環であってもよい。縮合環である場合、縮合している環の数は2～6であることが好ましく、例えば2～4の中から選択することができる。環の具体例として、ベンゼン環、ピリジン環、ピリミジン環、トリアジン環、ナフタレン環、アントラセン環、フェナントレン環、トリフェニレン環、キノリン環、ピラジン環、キノキサリン環、ナフチリジン環を挙げることができる。アリーレン基またはヘテロアリーレン基の具体例として、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントラセニル基、2-アントラセニル基、9-アントラセニル基、2-ピリジル基、3-ピリジル基、4-ピリジル基を挙げることができる。

「アルコキシ基」および「アルキルチオ基」のアルキル部分については、上記のアルキル基の説明と具体例を参照することができる。「アリールオキシ基」および「アリールチオ基」のアリール部分については、上記のアリール基の説明と具体例を参照することができる。「ヘテロアリールオキシ基」および「ヘテロアリールチオ基」のヘテロアリール部分については、上記の

ヘテロアリール基の説明と具体例を参照することができる。

ヘテロ環縮合カルバゾールー９－イル基は、水素原子および重水素原子以外の原子数が１６以上であることが好ましく、２０以上であることがより好ましく、例えば１６以上とすることもできる。また、８０以下であることが好ましく、５０以下であることがより好ましく、３０以下であることがさらに好ましい。

[0023] 一般式（１）において、ヘテロ環縮合カルバゾールー９－イル基は、 D^1 だけでもよいし、 D^2 だけでもよい。本発明の好ましい一態様では、 D^1 と D^2 がともにヘテロ環縮合カルバゾールー９－イル基である。このとき、 D^1 と D^2 は同一構造であってもよいし、互いに異なるヘテロ環縮合カルバゾールー９－イル基であってもよい。

D^1 と D^2 の一方だけがヘテロ環縮合カルバゾールー９－イル基であるとき、他方はヘテロ環縮合カルバゾールー９－イル基以外のドナー性基（以下「他のドナー性基」と称する）である。ここでいう他のドナー性基は、ハメットの σ_p 値が負の基である。ここで、「ハメットの σ_p 値」は、L. P. ハメットにより提唱されたものであり、パラ置換ベンゼン誘導体の反応速度または平衡に及ぼす置換基の影響を定量化したものである。具体的には、パラ置換ベンゼン誘導体における置換基と反応速度定数または平衡定数の間に成立する下記式：

$$\log (k / k_0) = \rho \sigma_p$$

または

$$\log (K / K_0) = \rho \sigma_p$$

における置換基に特有な定数（ σ_p ）である。上式において、 k は置換基を持たないベンゼン誘導体の速度定数、 k_0 は置換基で置換されたベンゼン誘導体の速度定数、 K は置換基を持たないベンゼン誘導体の平衡定数、 K_0 は置換基で置換されたベンゼン誘導体の平衡定数、 ρ は反応の種類と条件によって決まる反応定数を表す。本発明における「ハメットの σ_p 値」に関する説明と各置換基の数値については、Hansch, C. et. al., Chem. Rev., 91, 165-195 (1991)

)の σ_p 値に関する記載を参照することができる。ハメットの σ_p 値が負の基は電子供与性（ドナー性）を示し、ハメットの σ_p 値が正の基は電子求引性（アクセプター性）を示す傾向がある。

[0024] 本発明における他のドナー性基は、置換アミノ基を含む基であることが好ましい。アミノ基の窒素原子に結合する置換基は、置換もしくは無置換のアルキル基、置換もしくは無置換のアルケニル基、置換もしくは無置換のアリール基、または置換もしくは無置換のヘテロアリール基であることが好ましく、置換もしくは無置換のアリール基、または置換もしくは無置換のヘテロアリール基であることがより好ましい。置換アミノ基は、特に、置換もしくは無置換のジアリールアミノ基、または置換もしくは無置換のジヘテロアリールアミノ基であることが好ましい。本発明におけるドナー性基は、置換アミノ基の窒素原子で結合する基であってもよいし、置換アミノ基が結合した基で結合する基であってもよい。置換アミノ基が結合する基は、 π 共役基であることが好ましい。より好ましいのは、置換アミノ基の窒素原子で結合する基である。ここでいう置換基たるアルキル基、アルケニル基、アリール基およびヘテロアリール基については、芳香族炭化水素環基と芳香族複素環基の置換基に関する上記の対応する記載を参照することができる。

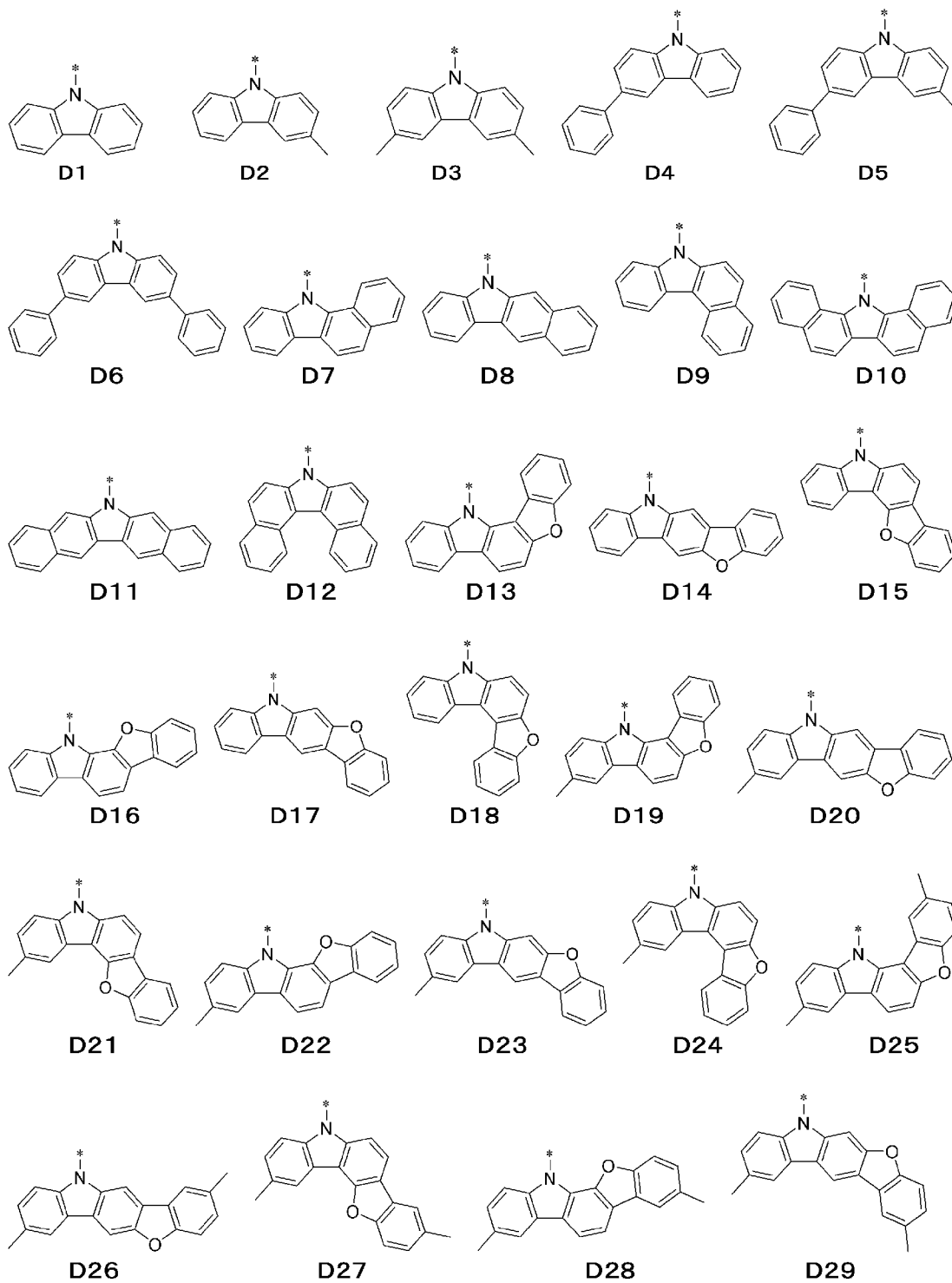
本発明における他のドナー性基として特に好ましいのは、置換もしくは無置換のカルバゾール-9-イル基である。カルバゾール-9-イル基には、ベンゼン環やヘテロ環（ただし、ベンゾフラン環、ベンゾチオフェン環、インドール環、インデン環、シラインデン環を除く）がさらに縮合していてもよい。カルバゾール-9-イル基の置換基としては、アルキル基、アルケニル基、アリール基、ヘテロアリール基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリールオキシ基、アリールチオ基、ヘテロアリールオキシ基、ヘテロアリールチオ基、置換アミノ基を挙げることができ、好ましい置換基として、アルキル基、アリール基、置換アミノ基を挙げることができる。置換アミノ基の説明については、1つ前の段落の記載を参照することができる。また、ここでいう置換アミノ基には置換もしくは無置換のカルバゾリル基が含まれ、例

例えば置換もしくは無置換のカルバゾール-3-イル基や置換もしくは無置換のカルバゾール-9-イル基が含まれる。

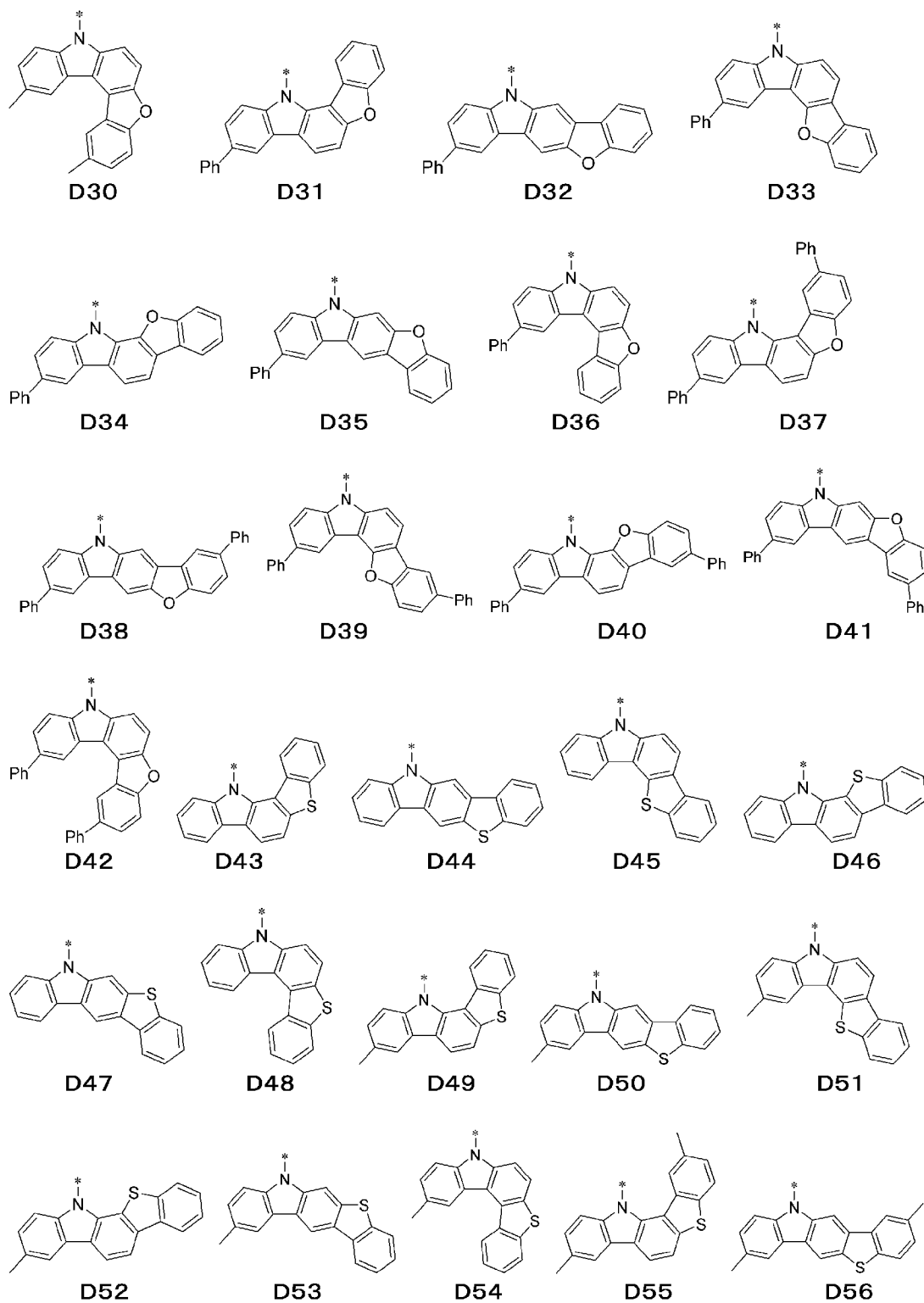
本発明における他のドナー性基は、水素原子および重水素原子以外の原子数が8以上であることが好ましく、12以上であることがより好ましく、例えば16以上とすることもできる。また、80以下であることが好ましく、60以下であることがより好ましく、40以下であることがさらに好ましい。

[0025] 以下において、一般式(1)の D^1 と D^2 が採ることができるドナー性基の具体例を示す。 $D_{13} \sim D_{78}$ 、 $D_{84} \sim D_{119}$ 、 $D_{150} \sim D_{161}$ 、 $D_{168} \sim D_{209}$ 、 $D_{215} \sim D_{268}$ 、 $D_{270} \sim D_{324}$ がヘテロ環縮合カルバゾール-9-イル基の具体例であり、 $D_1 \sim D_{12}$ 、 $D_{79} \sim 83$ 、 $D_{120} \sim 149$ 、 $D_{162} \sim D_{167}$ 、 $D_{210} \sim D_{214}$ 、 D_{269} が他のドナー性基の具体例である。以下の構造式において、Phはフェニル基を表し、*は結合位置を表す。

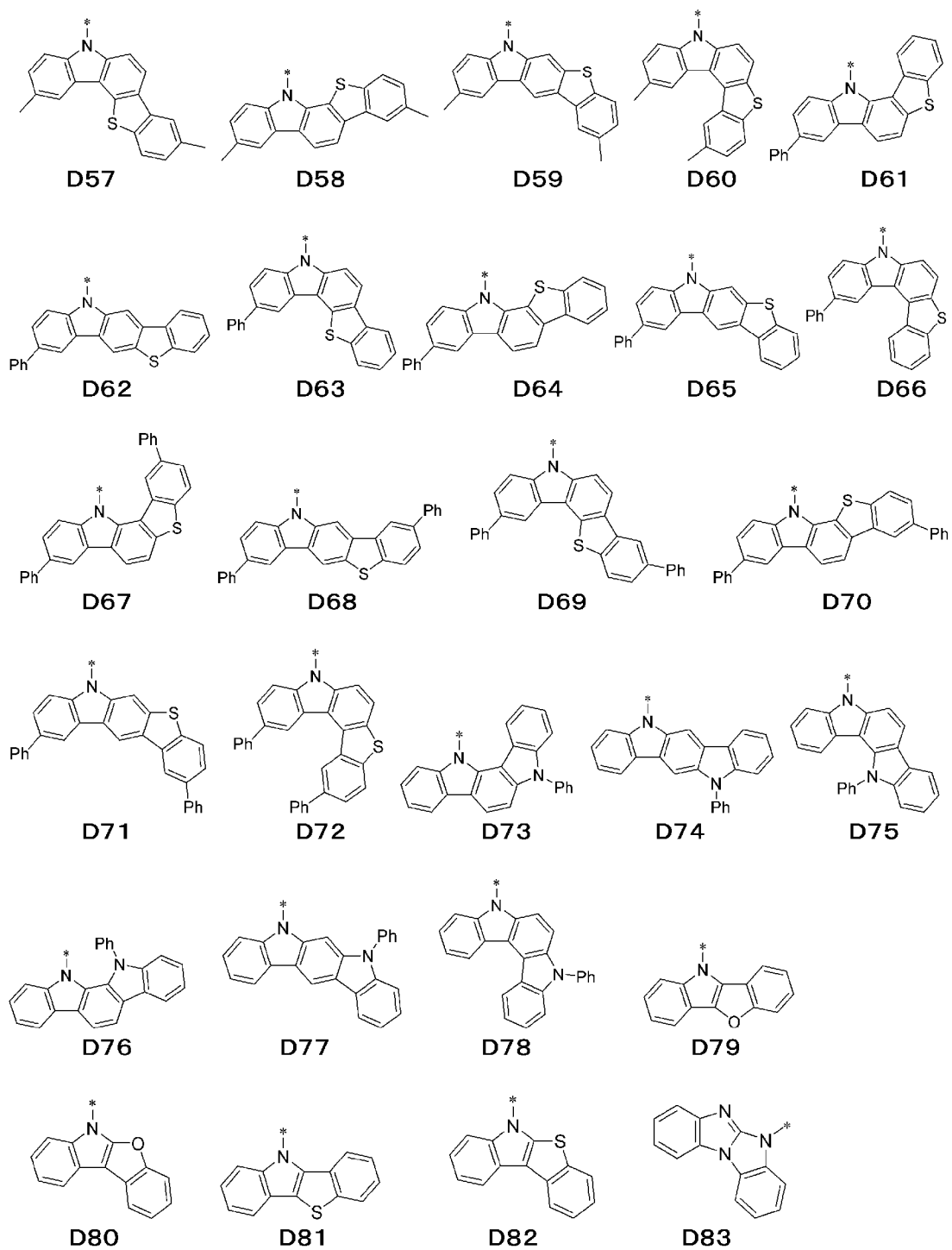
[化14-1]



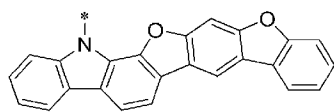
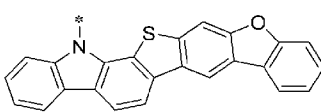
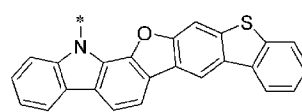
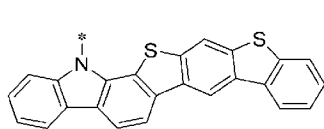
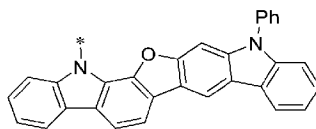
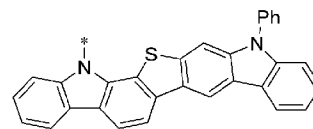
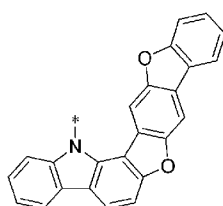
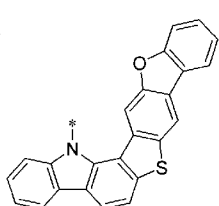
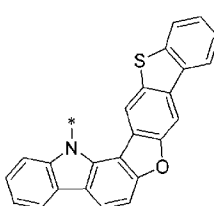
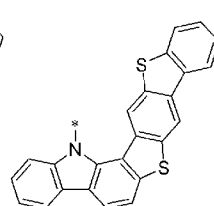
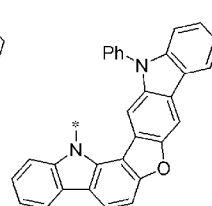
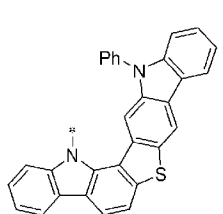
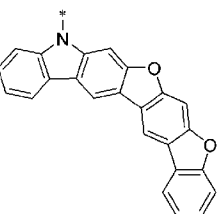
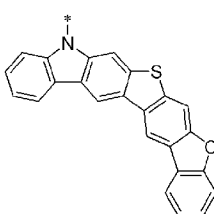
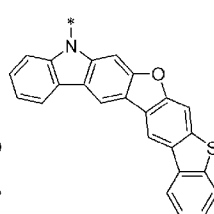
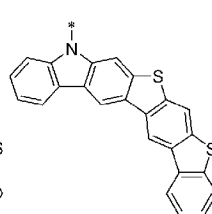
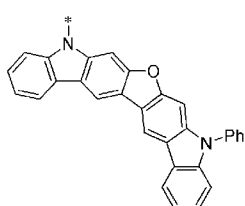
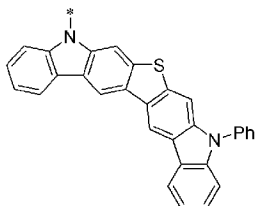
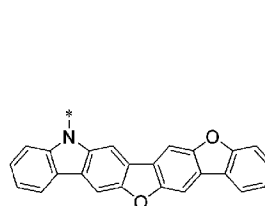
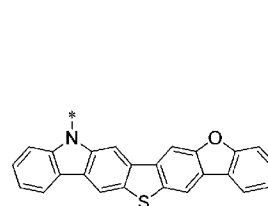
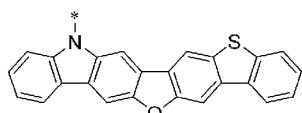
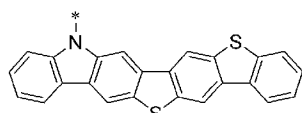
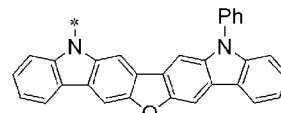
[化14-2]



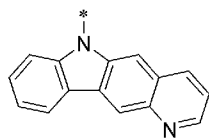
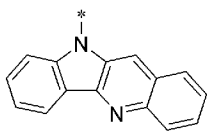
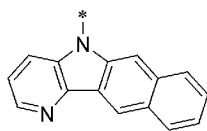
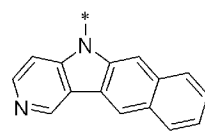
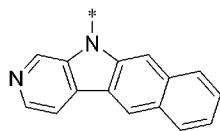
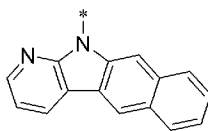
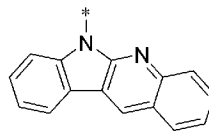
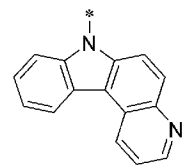
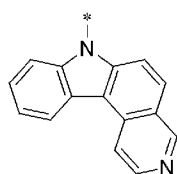
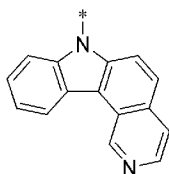
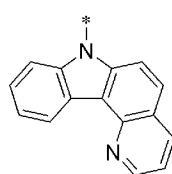
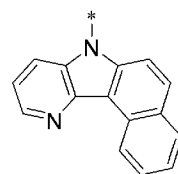
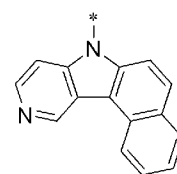
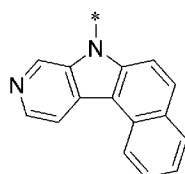
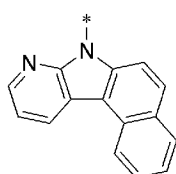
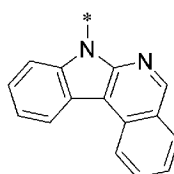
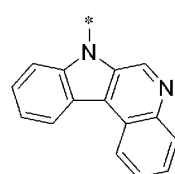
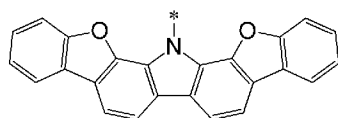
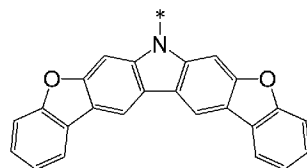
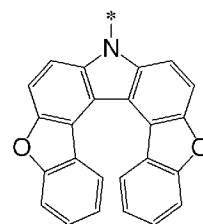
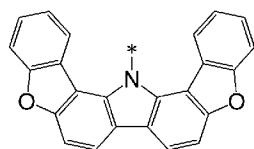
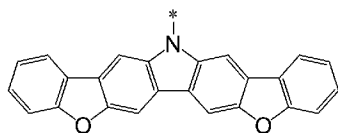
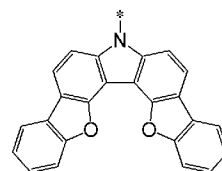
[化14-3]



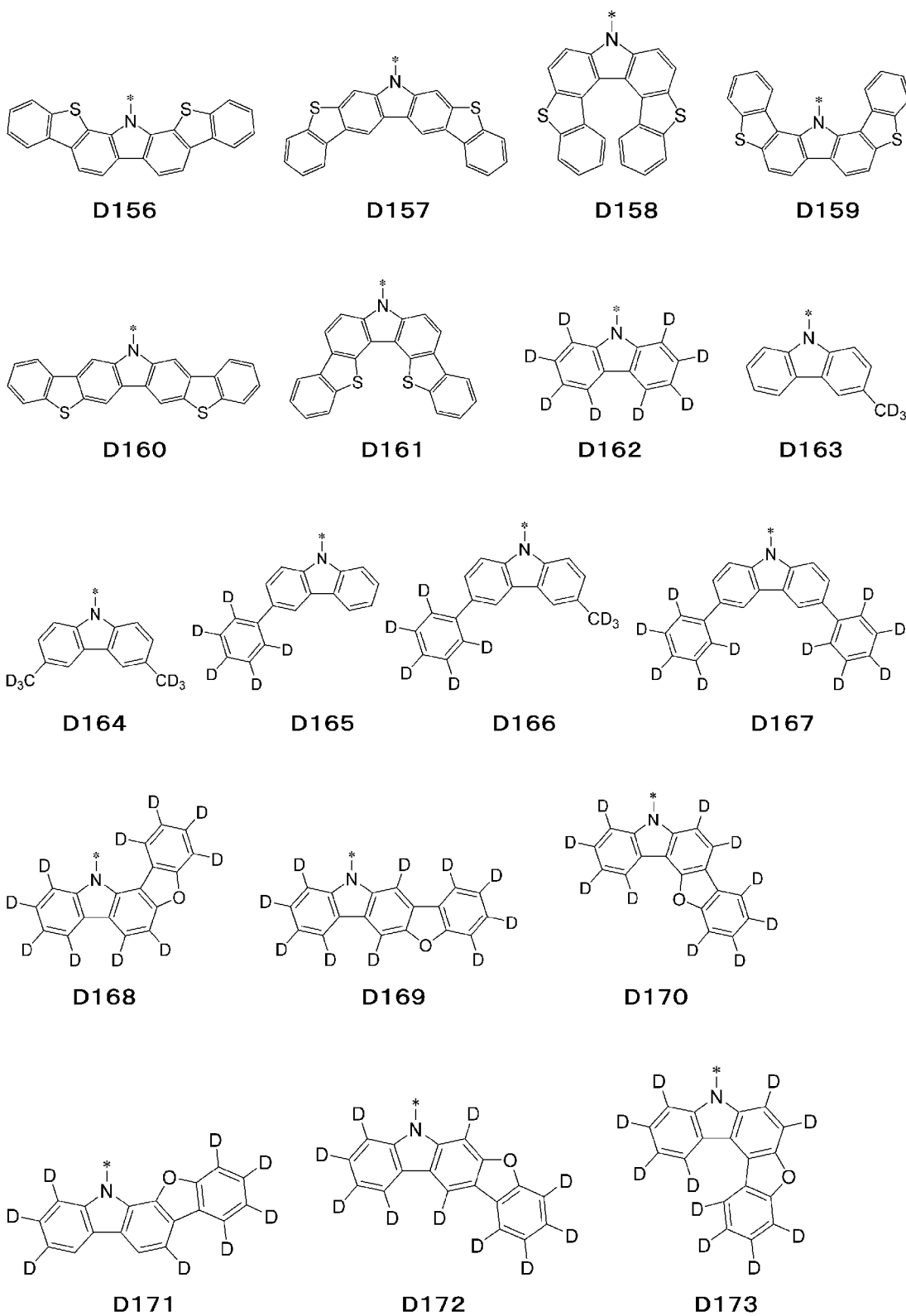
[化14-4]

**D84****D85****D86****D87****D88****D89****D90****D91****D92****D93****D94****D95****D96****D97****D98****D99****D100****D101****D102****D103****D104****D105****D106**

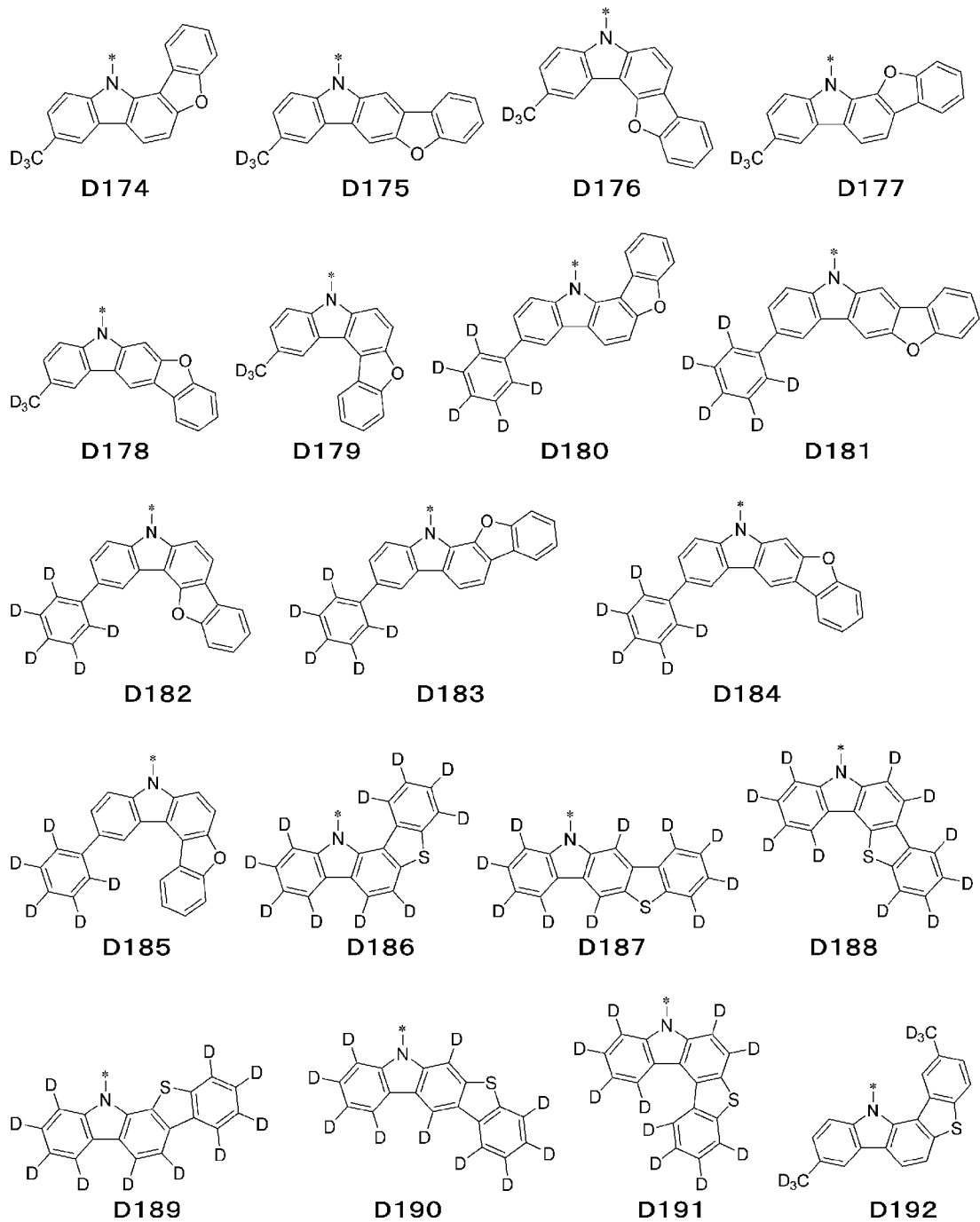
[化14-6]

**D133****D134****D135****D136****D137****D138****D139****D140****D141****D142****D143****D144****D145****D146****D147****D148****D149****D150****D151****D152****D153****D154****D155**

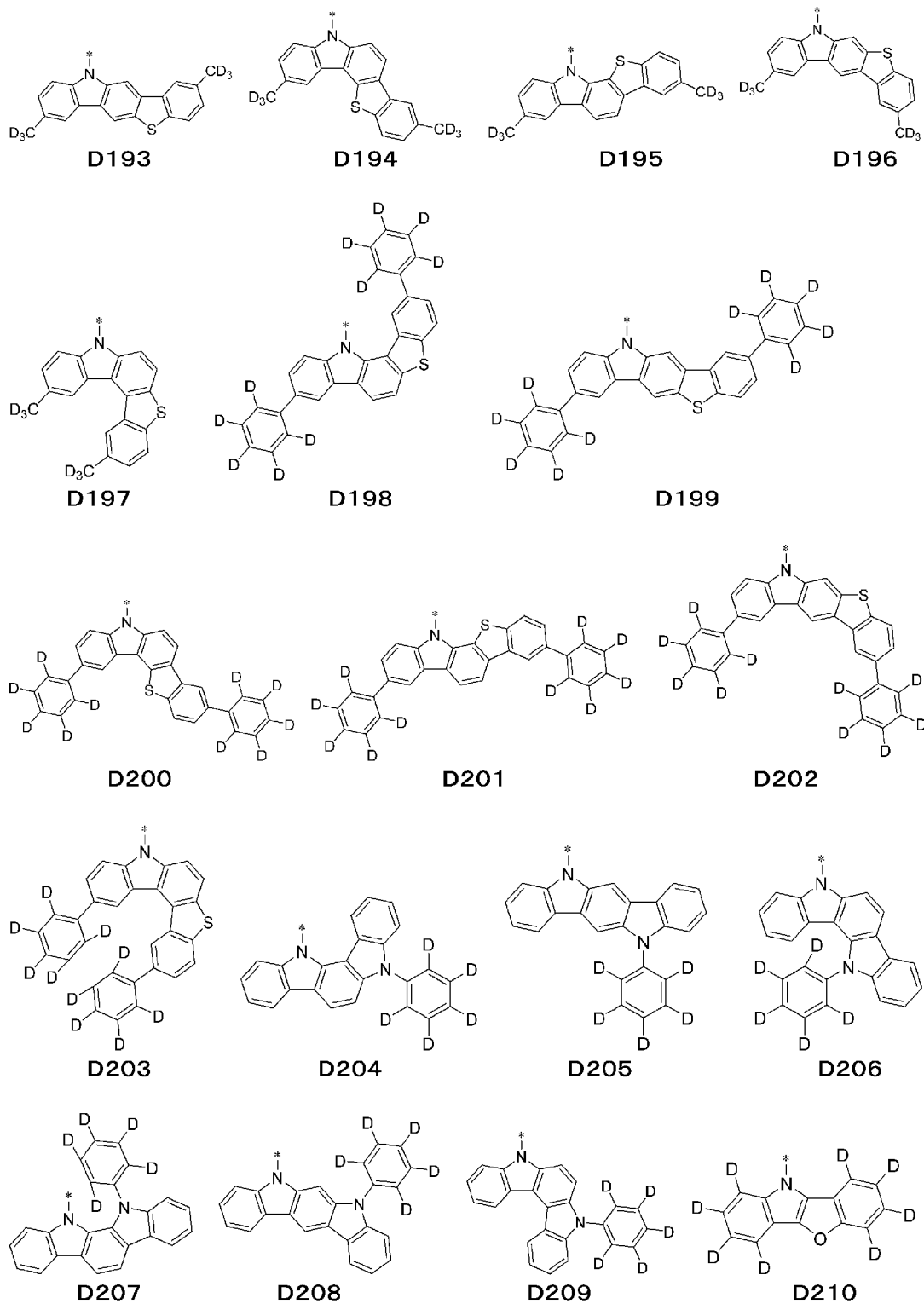
[化14-7]



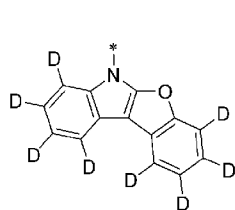
[化14-8]



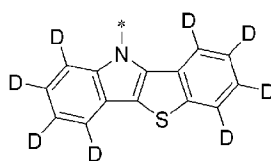
[化14-9]



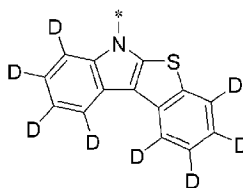
[化14-10]



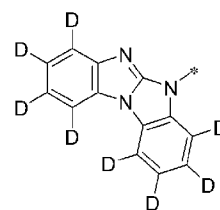
D211



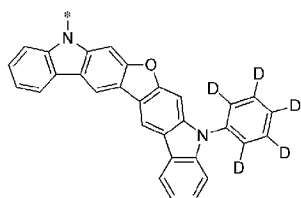
D212



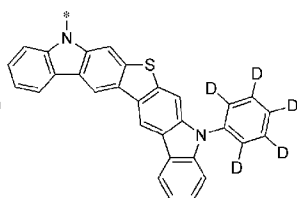
D213



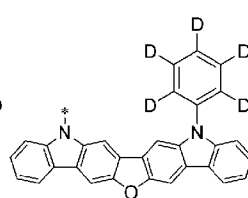
D214



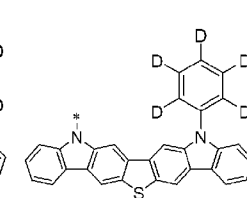
D215



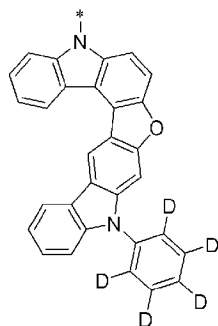
D216



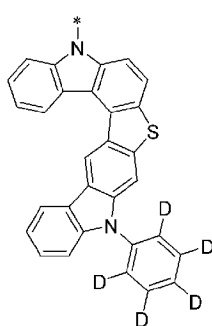
D217



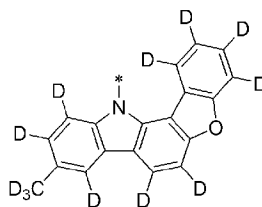
D218



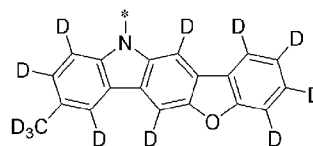
D219



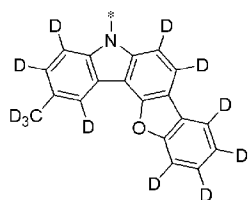
D220



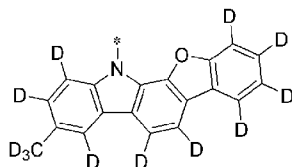
D221



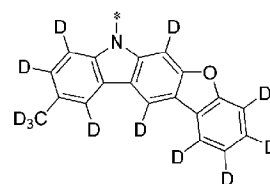
D222



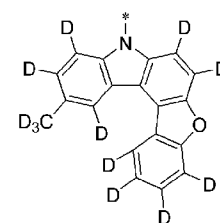
D223



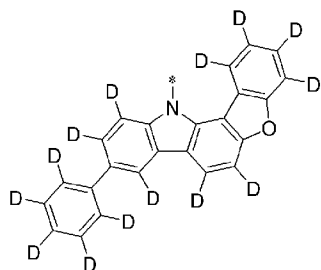
D224



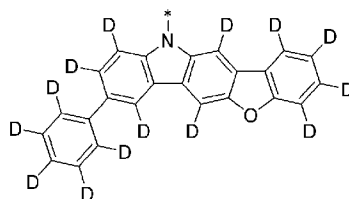
D225



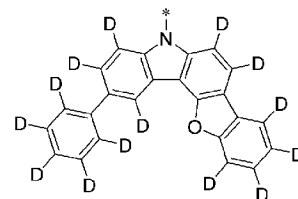
D226



D227

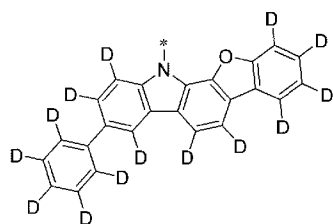
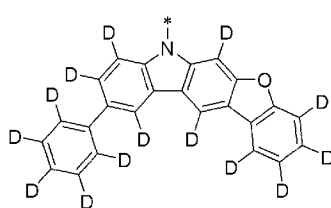
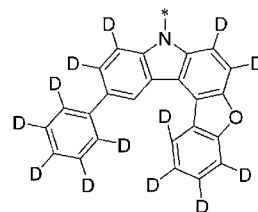
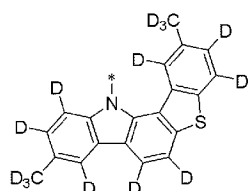
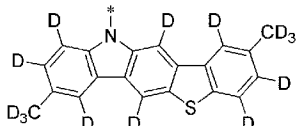
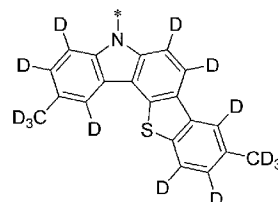
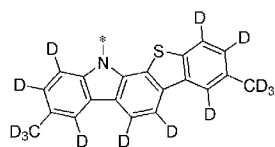
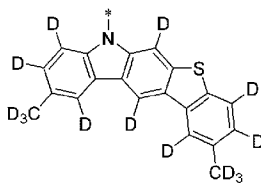
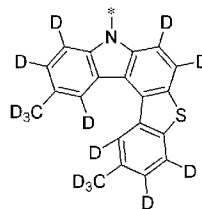
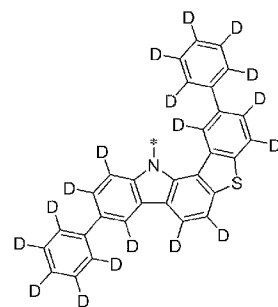
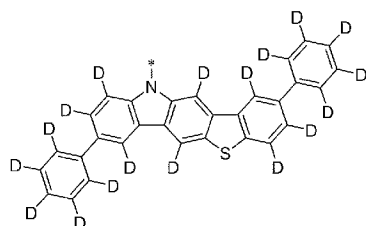
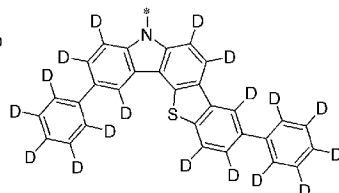
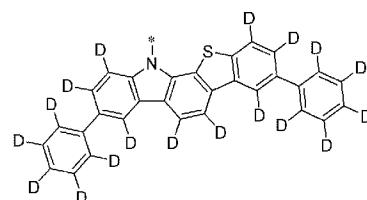
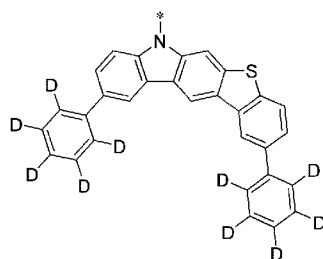
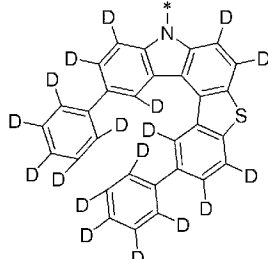
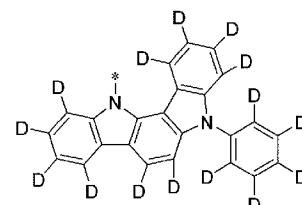


D228

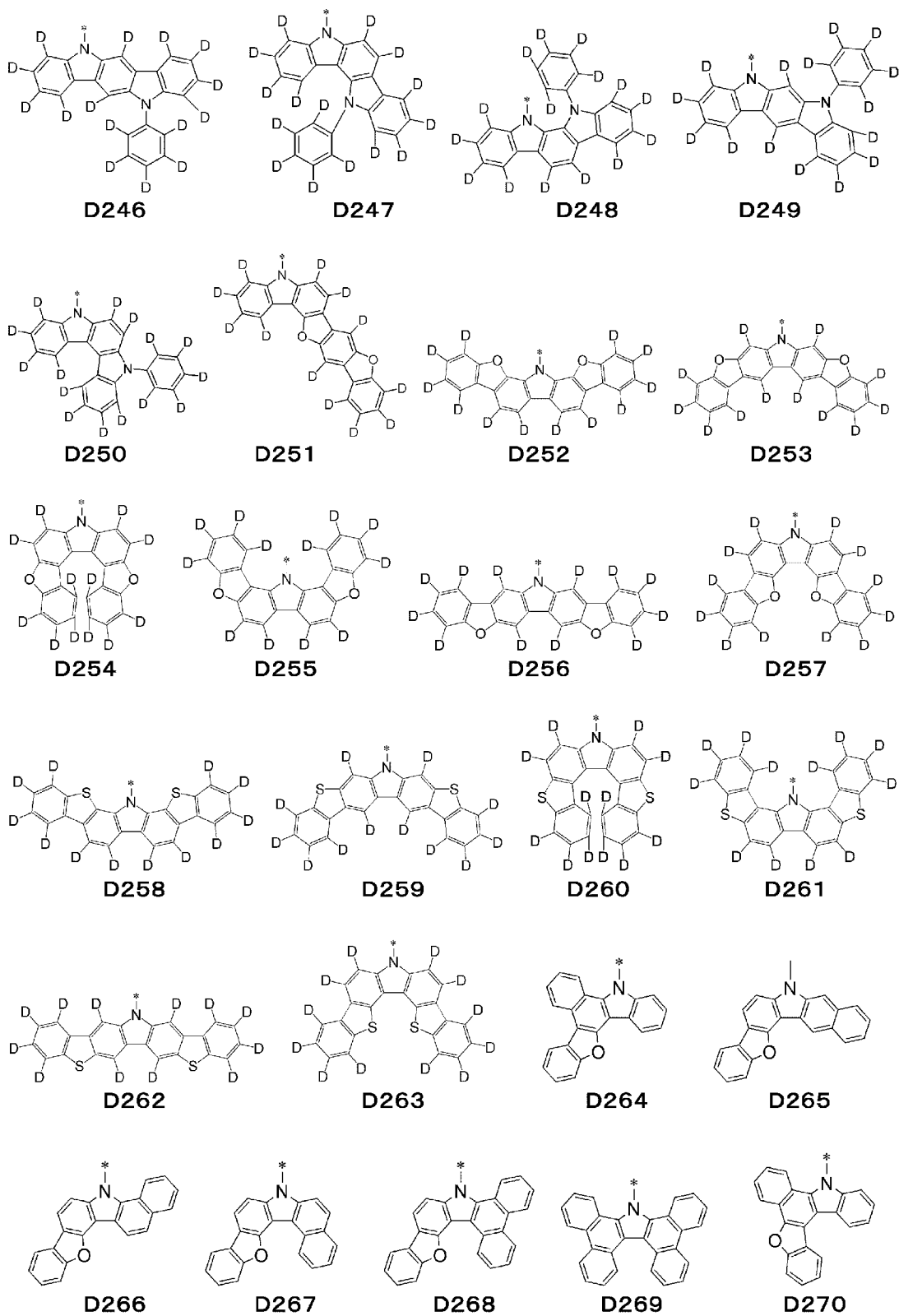


D229

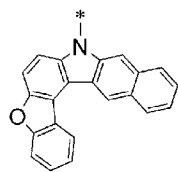
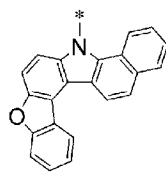
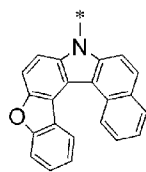
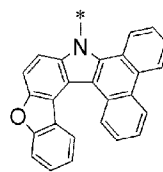
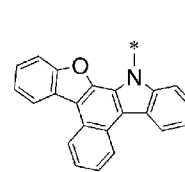
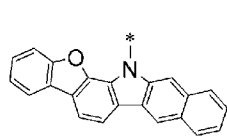
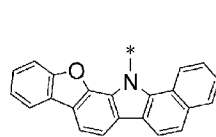
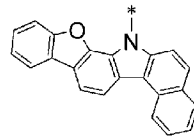
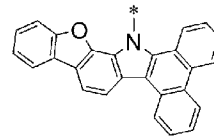
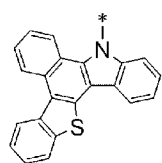
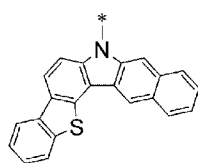
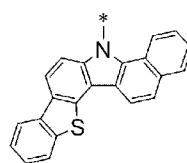
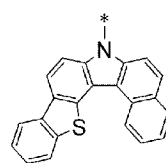
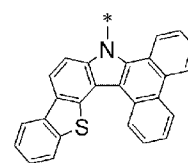
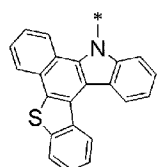
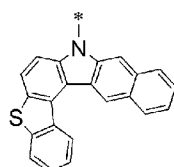
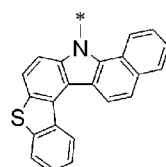
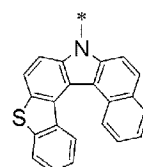
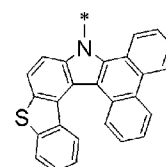
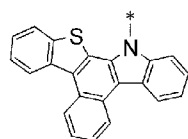
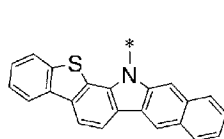
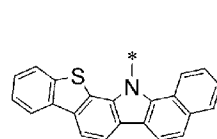
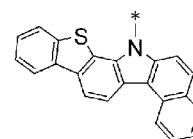
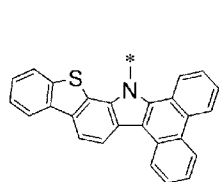
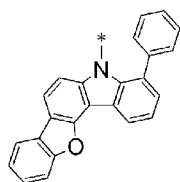
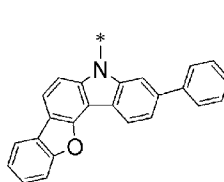
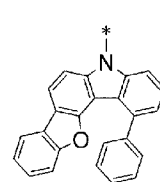
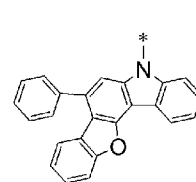
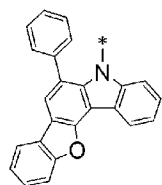
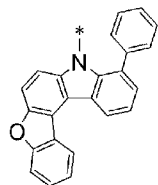
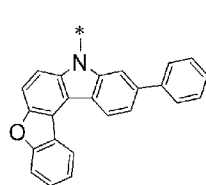
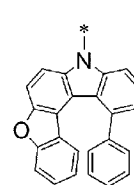
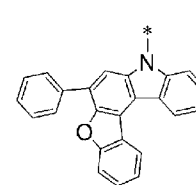
[化14-11]

**D230****D231****D232****D233****D234****D235****D236****D237****D238****D239****D240****D241****D242****D243****D244****D245**

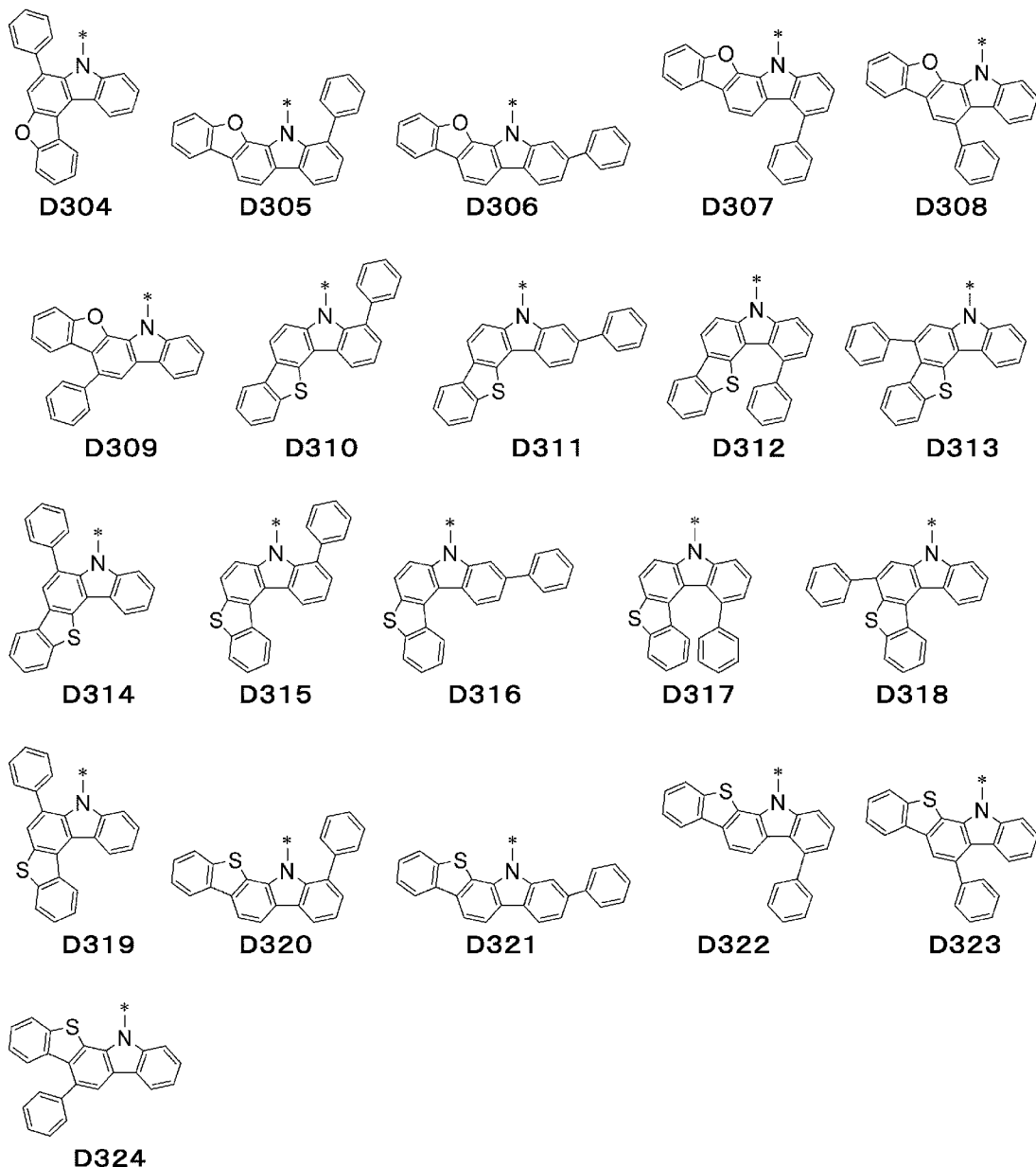
[化14-12]



[化14-13]

**D271****D272****D273****D274****D275****D276****D277****D278****D279****D280****D281****D282****D283****D284****D285****D286****D287****D288****D289****D290****D291****D292****D293****D294****D295****D296****D297****D298****D299****D300****D301****D302****D303**

[化14-14]



[0026] 一般式(1)におけるRは、水素原子、重水素原子、置換もしくは無置換のアリール基、または炭素原子で結合する置換もしくは無置換のヘテロアリール基である。本発明の好ましい態様では、Rは水素原子または重水素原子である。ただし、Rが置換もしくは無置換のアリール基である態様や、Rが炭素原子で結合する置換もしくは無置換のヘテロアリール基である態様も採用しうる。Rがアリール基である場合は置換アリール基であることが好ましい。また、Rがヘテロアリール基である場合は置換ヘテロアリール基であ

ることが好ましい。

一般式(1)におけるA_rは、置換もしくは無置換のアリール基、または炭素原子で結合する置換もしくは無置換のヘテロアリール基である。本発明の好ましい一態様では、A_rは置換もしくは無置換のアリール基である。ただし、A_rが置換もしくは無置換のヘテロアリール基である態様も採用する。

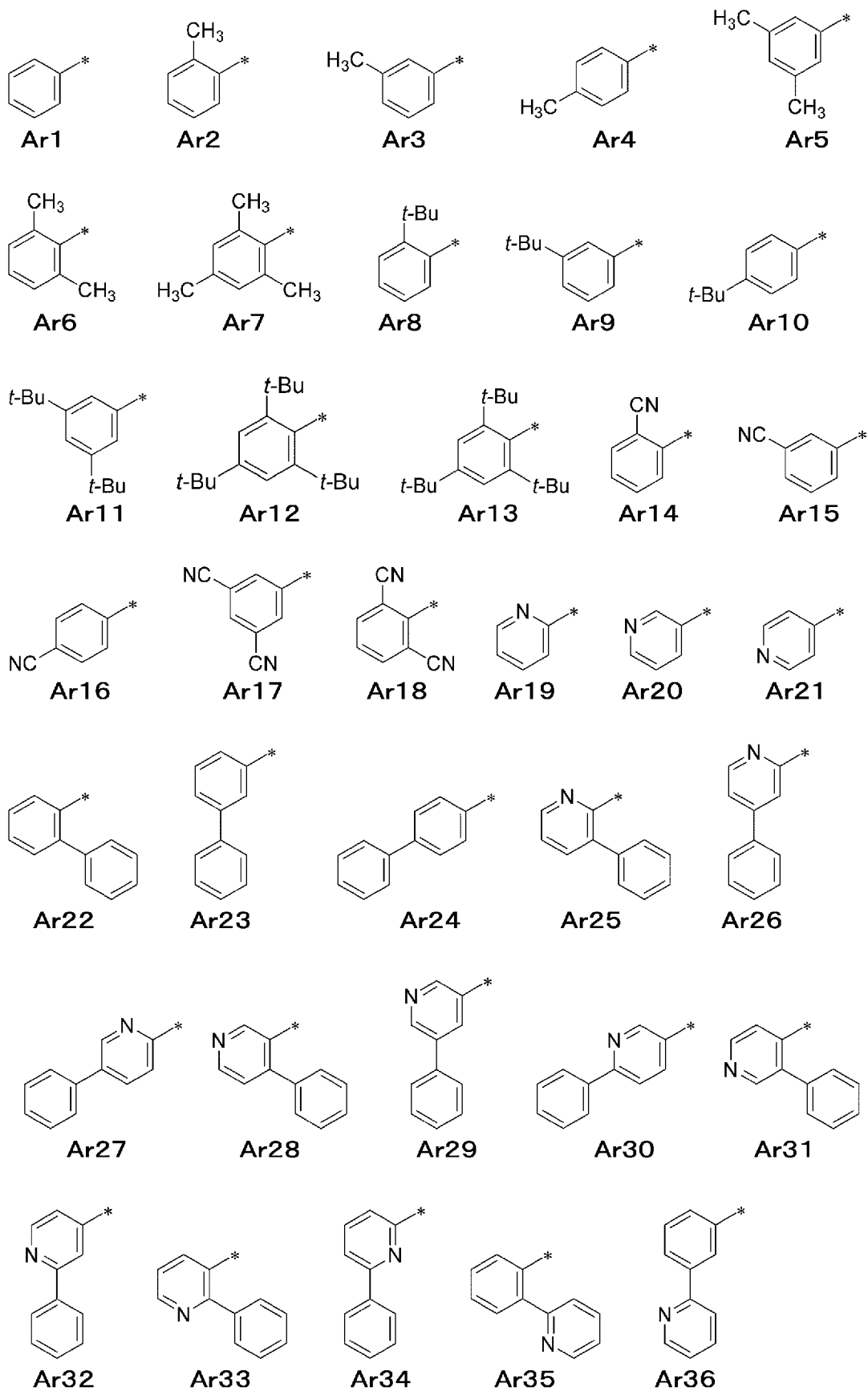
[0027] RとA_rが採りうるアリール基とヘテロアリール基の説明と好ましい範囲については、ヘテロ環縮合カルバゾール-9-イル基の置換基におけるアリール基とヘテロアリール基の記載を参照することができる。ただし、ヘテロアリール基は、炭素原子で結合するヘテロアリール基である。アリール基の置換基とヘテロアリール基の置換基としては、アルキル基、アルケニル基、アリール基、ヘテロアリール基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリールオキシ基、アリールチオ基、ヘテロアリールオキシ基、ヘテロアリールチオ基、シアノ基を挙げることができる。これらの置換基は、さらに別の置換基で置換されていてもよい。好ましい置換基の群として、アルキル基、アリール基、アルコキシ基、アルキルチオ基、シアノ基を挙げることができる。

[0028] 本発明の好ましい一態様では、Rが水素原子または重水素原子で、A_rが置換もしくは無置換のフェニル基（フェニル基には、ベンゼン環、ピリジン環、フラン環、チオフェン環およびピロール環から選択される1以上の環が縮合していてもよい）である。本発明の別の好ましい一態様では、Rが水素原子または重水素原子で、A_rが置換もしくは無置換のピリジル基（ピリジル基には、ベンゼン環、ピリジン環、フラン環、チオフェン環およびピロール環から選択される1以上の環が縮合していてもよい）である。本発明の別の好ましい一態様では、Rが水素原子または重水素原子で、A_rが置換フェニル基（フェニル基には、置換もしくは無置換のフェニル基、および置換もしくは無置換のピリジル基から選択される1以上の基が置換している）である。本発明の別の好ましい一態様では、Rが水素原子または重水素原子で、A_rが置換ピリジル基（ピリジル基には、置換もしくは無置換のフェニル基

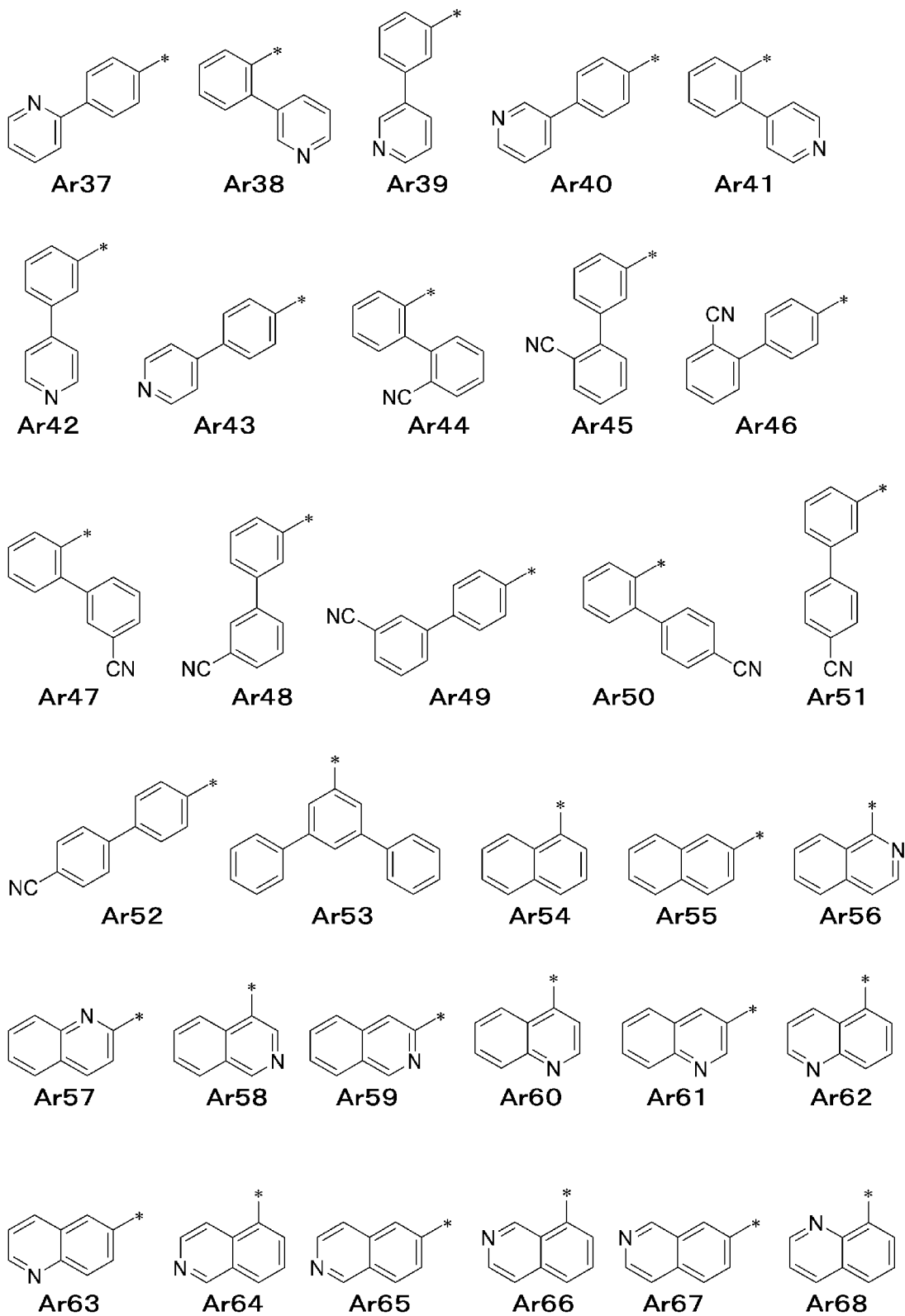
、および置換もしくは無置換のピリジル基から選択される 1 以上の基が置換している)である。

[0029] 以下において、一般式 (1) の R と A_r が採ることができる置換もしくは無置換のアリール基、および炭素原子で結合する置換もしくは無置換のヘテロアリール基の具体例を示す。以下の構造式において、*は結合位置を表す。

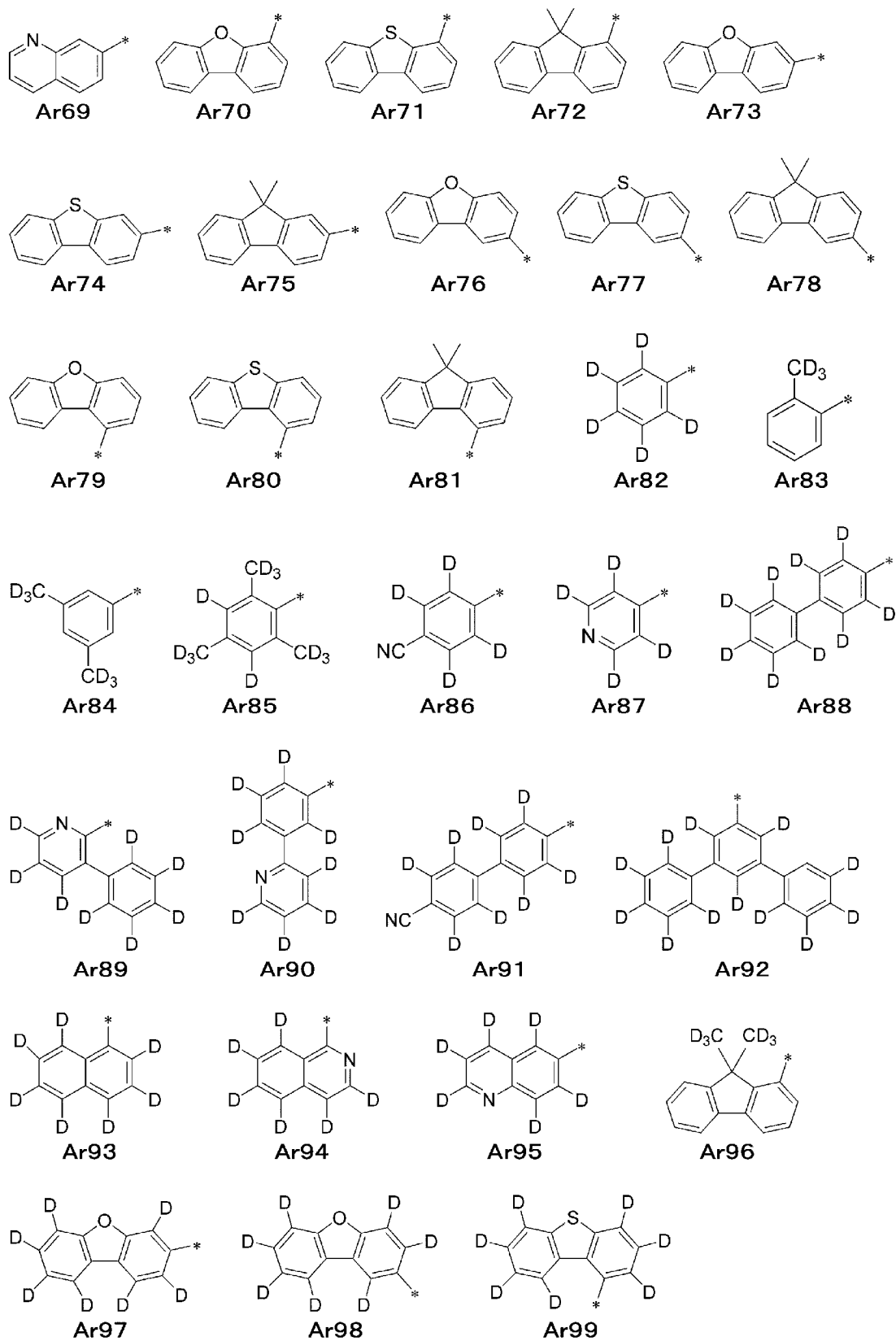
[化15-1]



[化15-2]



[化15-3]



[0030] 一般式(1)で表される化合物は、炭素原子、水素原子、重水素原子、窒

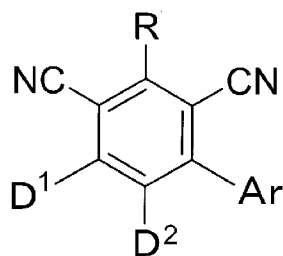
素原子、酸素原子および硫黄原子からなる群より選択される原子だけで構成される化合物であってもよい。本発明の好ましい一態様では、一般式（１）で表される化合物は、炭素原子、水素原子、重水素原子、窒素原子および酸素原子からなる群より選択される原子だけで構成される。また、一般式（１）で表される化合物は、炭素原子、水素原子、重水素原子、窒素原子および硫黄原子からなる群より選択される原子だけで構成される化合物であってもよい。一般式（１）で表される化合物は、炭素原子、水素原子および窒素原子からなる群より選択される原子だけで構成される化合物であってもよい。さらに、一般式（１）で表される化合物は水素原子を含まず、重水素原子を含む化合物であってもよい。例えば、一般式（１）で表される化合物は、炭素原子、重水素原子、窒素原子、酸素原子および硫黄原子からなる群より選択される原子だけで構成される化合物であってもよい。

本発明の一態様では、一般式（１）で表される化合物は対称構造を有する。

[0031] 本発明の好ましい一態様では、一般式（１）で表される化合物は、下記一般式（２）で表される構造を有する。

[化16]

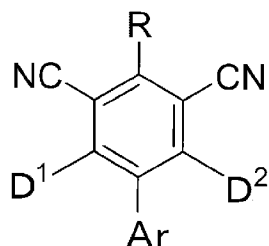
一般式（２）



[0032] 本発明の好ましい一態様では、一般式（１）で表される化合物は、下記一般式（３）で表される構造を有する。

[化17]

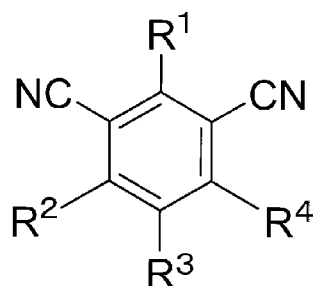
一般式 (3)



[0033] 一般式 (2) および一般式 (3) における R、A r、D¹ および D² の定義と説明については、一般式 (1) の対応する記載を参照することができる。

[0034] 以下において、一般式 (1) で表される化合物の具体例を示す。具体例は、化合物ごとに下記一般式の R¹ ~ R⁴ を特定することにより示している。一般式 (1) の R は下記一般式の R¹ に相当し、一般式 (1) の D¹ は下記一般式の R² に相当する。なお、以下の化合物のうち回転異性体が存在する場合は、回転異性体の混合物と、分離した各回転異性体も、本明細書に開示されているものとする。

[化18]



[表1-1]

No.	R ¹ = H								
	R ²	R ³	R ⁴						
1	D15	D15	Ar1						
2	D16								
3	D18								
4	D21								
5	D33								
6	D34								
7	D36								
8	D45								
9	D46								
10	D48								
11	D63								
12	D64								
13	D66								
14	D73								
15	D74								
16	D75								
17	D76								
18	D78								
19	D155	D18							
20	D182								
21	D183								
22	D185								
23	D246								
24	D265								
25	D266								
26	D267								
27	D268								
28	D269								
29	D296								
30	D298								
31	D15	D33							
32	D16								
33	D18								
34	D21								
35	D33								
36	D34								
37	D36								
38	D45								
39	D46								
40	D48								
41	D63								
42	D64								
43	D66								
44	D73								
45	D74								
46	D75								
47	D76								
48	D78								
49	D155	D36							
50	D182								
51	D183								
52	D185								
53	D246								
54	D265								
55	D266								
56	D267								
57	D268								
58	D269								
59	D296								
60	D298								
61	D15	D18	Ar1						
62	D16								
63	D18								
64	D21								
65	D33								
66	D34								
67	D36								
68	D45								
69	D46								
70	D48								
71	D63								
72	D64								
73	D66								
74	D73								
75	D74								
76	D75								
77	D76								
78	D78								
79	D155	D21							
80	D182								
81	D183								
82	D185								
83	D246								
84	D265								
85	D266								
86	D267								
87	D268								
88	D269								
89	D296								
90	D298								
91	D15	D34							
92	D16								
93	D18								
94	D21								
95	D33								
96	D34								
97	D36								
98	D45								
99	D46								
100	D48								
101	D63								
102	D64								
103	D66								
104	D73								
105	D74								
106	D75								
107	D76								
108	D78								
109	D155	D45							
110	D182								
111	D183								
112	D185								
113	D246								
114	D265								
115	D266								
116	D267								
117	D268								
118	D269								
119	D296								
120	D298								
121	D15	D33	Ar1						
122	D16								
123	D18								
124	D21								
125	D33								
126	D34								
127	D36								
128	D45								
129	D46								
130	D48								
131	D63								
132	D64								
133	D66								
134	D73								
135	D74								
136	D75								
137	D76								
138	D78								
139	D155	D36							
140	D182								
141	D183								
142	D185								
143	D246								
144	D265								
145	D266								
146	D267								
147	D268								
148	D269								
149	D296								
150	D298								
151	D15	D33							
152	D16								
153	D18								
154	D21								
155	D33								
156	D34								
157	D36								
158	D45								
159	D46								
160	D48								
161	D63								
162	D64								
163	D66								
164	D73								
165	D74								
166	D75								
167	D76								
168	D78								
169	D155	D36							
170	D182								
171	D183								
172	D185								
173	D246								
174	D265								
175	D266								
176	D267								
177	D268								
178	D269								
179	D296								
180	D298								
181	D15	D36	Ar1						
182	D16								
183	D18								
184	D21								
185	D33								
186	D34								
187	D36								
188	D45								
189	D46								
190	D48								
191	D63								
192	D64								
193	D66								
194	D73								
195	D74								
196	D75								
197	D76								
198	D78								
199	D155	D36							
200	D182								
201	D183								
202	D185								
203	D246								
204	D265								
205	D266								
206	D267								
207	D268								
208	D269								
209	D296								
210	D298								
211	D15	D33							
212	D16								
213	D18								
214	D21								
215	D33								
216	D34								
217	D36								
218	D45								
219	D46								
220	D48								
221	D63								
222	D64								
223	D66								
224	D73								
225	D74								
226	D75								
227	D76								
228	D78								
229	D155	D36							
230	D182								
231	D183								
232	D185								
233	D246								
234	D265								
235	D266								
236	D267								
237	D268								
238	D269								
239	D296								
240	D298								

[表1-2]

No.	R ¹ = H				
	R ²	R ³	R ⁴		
241	D15	D46			
242	D16				
243	D18				
244	D21				
245	D33				
246	D34				
247	D36				
248	D45				
249	D46				
250	D48				
251	D63				
252	D64				
253	D66				
254	D73				
255	D74				
256	D75				
257	D76				
258	D78				
259	D155				
260	D182				
261	D183				
262	D185	D48			
263	D246				
264	D265				
265	D266				
266	D267				
267	D268				
268	D269				
269	D296				
270	D298				
271	D15				
272	D16				
273	D18				
274	D21				
275	D33				
276	D34				
277	D36				
278	D45				
279	D46				
280	D48				
281	D63				
282	D64				
283	D66				
284	D73				
285	D74				
286	D75				
287	D76				
288	D78				
289	D155				
290	D182				
291	D183				
292	D185				
293	D246				
294	D265				
295	D266				
296	D267				
297	D268				
298	D269				
299	D296				
300	D298				

No.	R ¹ = H				
	R ²	R ³	R ⁴		
301	D15	D63			
302	D16				
303	D18				
304	D21				
305	D33				
306	D34				
307	D36				
308	D45				
309	D46				
310	D48				
311	D63				
312	D64				
313	D66				
314	D73				
315	D74				
316	D75				
317	D76				
318	D78				
319	D155				
320	D182				
321	D183				
322	D185	D64			
323	D246				
324	D265				
325	D266				
326	D267				
327	D268				
328	D269				
329	D296				
330	D298				
331	D15				
332	D16				
333	D18				
334	D21				
335	D33				
336	D34				
337	D36				
338	D45				
339	D46				
340	D48				
341	D63				
342	D64				
343	D66				
344	D73				
345	D74				
346	D75				
347	D76				
348	D78				
349	D155				
350	D182				
351	D183	D73			
352	D185				
353	D246				
354	D265				
355	D266				
356	D267				
357	D268				
358	D269				
359	D296				
360	D298				
361	D15				
362	D16				
363	D18				
364	D21				
365	D33				
366	D34				
367	D36				
368	D45				
369	D46				
370	D48				
371	D63				
372	D64				
373	D66				
374	D73				
375	D74				
376	D75				
377	D76				
378	D78				
379	D155				
380	D182				
381	D183	D66			
382	D185				
383	D246				
384	D265				
385	D266				
386	D267				
387	D268				
388	D269				
389	D296				
390	D298				
391	D15				
392	D16				
393	D18				
394	D21				
395	D33				
396	D34				
397	D36				
398	D45				
399	D46				
400	D48				
401	D63				
402	D64				
403	D66				
404	D73				
405	D74				
406	D75				
407	D76				
408	D78				
409	D155				
410	D182				
411	D183	D74			
412	D185				
413	D246				
414	D265				
415	D266				
416	D267				
417	D268				
418	D269				
419	D296				
420	D298				
421	D15				
422	D16				
423	D18				
424	D21				
425	D33				
426	D34				
427	D36				
428	D45				
429	D46				
430	D48				
431	D63				
432	D64				
433	D66				
434	D73				
435	D74				
436	D75				
437	D76				
438	D78				
439	D155				
440	D182				
441	D183	D75			
442	D185				
443	D246				
444	D265				
445	D266				
446	D267				
447	D268				
448	D269				
449	D296				
450	D298				
451	D15				
452	D16				
453	D18				
454	D21				
455	D33				
456	D34				
457	D36				
458	D45				
459	D46				
460	D48				
461	D63				
462	D64				

[表1-3]

No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H		
	R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴
481	D15	D76	Ar1	541	D15	D155	Ar1	601	D15	D183	Ar1	661	D15	D246	Ar1
482	D16			542	D16			602	D16			662	D16		
483	D18			543	D18			603	D18			663	D18		
484	D21			544	D21			604	D21			664	D21		
485	D33			545	D33			605	D33			665	D33		
486	D34			546	D34			606	D34			666	D34		
487	D36			547	D36			607	D36			667	D36		
488	D45			548	D45			608	D45			668	D45		
489	D46			549	D46			609	D46			669	D46		
490	D48			550	D48			610	D48			670	D48		
491	D63			551	D63			611	D63			671	D63		
492	D64			552	D64			612	D64			672	D64		
493	D66			553	D66			613	D66			673	D66		
494	D73			554	D73			614	D73			674	D73		
495	D74			555	D74			615	D74			675	D74		
496	D75			556	D75			616	D75			676	D75		
497	D76			557	D76			617	D76			677	D76		
498	D78			558	D78			618	D78			678	D78		
499	D155			559	D155			619	D155			679	D155		
500	D182			560	D182			620	D182			680	D182		
501	D183			561	D183			621	D183			681	D183		
502	D185			562	D185			622	D185			682	D185		
503	D246			563	D246			623	D246			683	D246		
504	D265			564	D265			624	D265			684	D265		
505	D266			565	D266			625	D266			685	D266		
506	D267			566	D267			626	D267			686	D267		
507	D268			567	D268			627	D268			687	D268		
508	D269			568	D269			628	D269			688	D269		
509	D296			569	D296			629	D296			689	D296		
510	D298			570	D298			630	D298			690	D298		
511	D15	D78	Ar1	571	D15	D182	Ar1	631	D15	D185	Ar1	691	D15	D265	Ar1
512	D16			572	D16			632	D16			692	D16		
513	D18			573	D18			633	D18			693	D18		
514	D21			574	D21			634	D21			694	D21		
515	D33			575	D33			635	D33			695	D33		
516	D34			576	D34			636	D34			696	D34		
517	D36			577	D36			637	D36			697	D36		
518	D45			578	D45			638	D45			698	D45		
519	D46			579	D46			639	D46			699	D46		
520	D48			580	D48			640	D48			700	D48		
521	D63			581	D63			641	D63			701	D63		
522	D64			582	D64			642	D64			702	D64		
523	D66			583	D66			643	D66			703	D66		
524	D73			584	D73			644	D73			704	D73		
525	D74			585	D74			645	D74			705	D74		
526	D75			586	D75			646	D75			706	D75		
527	D76			587	D76			647	D76			707	D76		
528	D78			588	D78			648	D78			708	D78		
529	D155			589	D155			649	D155			709	D155		
530	D182			590	D182			650	D182			710	D182		
531	D183			591	D183			651	D183			711	D183		
532	D185			592	D185			652	D185			712	D185		
533	D246			593	D246			653	D246			713	D246		
534	D265			594	D265			654	D265			714	D265		
535	D266			595	D266			655	D266			715	D266		
536	D267			596	D267			656	D267			716	D267		
537	D268			597	D268			657	D268			717	D268		
538	D269			598	D269			658	D269			718	D269		
539	D296			599	D296			659	D296			719	D296		
540	D298			600	D298			660	D298			720	D298		

[表1-4]

No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H		
	R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴
721	D15	D266		781	D15	D268		841	D15	D296		901	D15	D15	
722	D16			782	D16			842	D16			902	D16		
723	D18			783	D18			843	D18			903	D18		
724	D21			784	D21			844	D21			904	D21		
725	D33			785	D33			845	D33			905	D33		
726	D34			786	D34			846	D34			906	D34		
727	D36			787	D36			847	D36			907	D36		
728	D45			788	D45			848	D45			908	D45		
729	D46			789	D46			849	D46			909	D46		
730	D48			790	D48			850	D48			910	D48		
731	D63			791	D63			851	D63			911	D63		
732	D64			792	D64			852	D64			912	D64		
733	D66			793	D66			853	D66			913	D66		
734	D73			794	D73			854	D73			914	D73		
735	D74			795	D74			855	D74			915	D74		
736	D75			796	D75			856	D75			916	D75		
737	D76			797	D76			857	D76			917	D76		
738	D78			798	D78			858	D78			918	D78		
739	D155			799	D155			859	D155			919	D155		
740	D182			800	D182			860	D182			920	D182		
741	D183	801	D183	861	D183	921	D183								
742	D185	802	D185	862	D185	922	D185								
743	D246	803	D246	863	D246	923	D246								
744	D265	804	D265	864	D265	924	D265								
745	D266	805	D266	865	D266	925	D266								
746	D267	806	D267	866	D267	926	D267								
747	D268	807	D268	867	D268	927	D268								
748	D269	808	D269	868	D269	928	D269								
749	D296	809	D296	869	D296	929	D296								
750	D298	810	D298	870	D298	930	D298								
751	D15	811	D15	871	D15	931	D15								
752	D16	812	D16	872	D16	932	D16								
753	D18	813	D18	873	D18	933	D18								
754	D21	814	D21	874	D21	934	D21								
755	D33	815	D33	875	D33	935	D33								
756	D34	816	D34	876	D34	936	D34								
757	D36	817	D36	877	D36	937	D36								
758	D45	818	D45	878	D45	938	D45								
759	D46	819	D46	879	D46	939	D46								
760	D48	820	D48	880	D48	940	D48								
761	D63	821	D63	881	D63	941	D63								
762	D64	822	D64	882	D64	942	D64								
763	D66	823	D66	883	D66	943	D66								
764	D73	824	D73	884	D73	944	D73								
765	D74	825	D74	885	D74	945	D74								
766	D75	826	D75	886	D75	946	D75								
767	D76	827	D76	887	D76	947	D76								
768	D78	828	D78	888	D78	948	D78								
769	D155	829	D155	889	D155	949	D155								
770	D182	830	D182	890	D182	950	D182								
771	D183	831	D183	891	D183	951	D183								
772	D185	832	D185	892	D185	952	D185								
773	D246	833	D246	893	D246	953	D246								
774	D265	834	D265	894	D265	954	D265								
775	D266	835	D266	895	D266	955	D266								
776	D267	836	D267	896	D267	956	D267								
777	D268	837	D268	897	D268	957	D268								
778	D269	838	D269	898	D269	958	D269								
779	D296	839	D296	899	D296	959	D296								
780	D298	840	D298	900	D298	960	D298								

[表1-5]

No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H		
	R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴
961	D15	D18	Ar16	1021	D15	D33	Ar16	1081	D15	D36	Ar16	1141	D15	D46	Ar16
962	D16			1022	D16			1082	D16			1142	D16		
963	D18			1023	D18			1083	D18			1143	D18		
964	D21			1024	D21			1084	D21			1144	D21		
965	D33			1025	D33			1085	D33			1145	D33		
966	D34			1026	D34			1086	D34			1146	D34		
967	D36			1027	D36			1087	D36			1147	D36		
968	D45			1028	D45			1088	D45			1148	D45		
969	D46			1029	D46			1089	D46			1149	D46		
970	D48			1030	D48			1090	D48			1150	D48		
971	D63			1031	D63			1091	D63			1151	D63		
972	D64			1032	D64			1092	D64			1152	D64		
973	D66			1033	D66			1093	D66			1153	D66		
974	D73			1034	D73			1094	D73			1154	D73		
975	D74			1035	D74			1095	D74			1155	D74		
976	D75			1036	D75			1096	D75			1156	D75		
977	D76			1037	D76			1097	D76			1157	D76		
978	D78			1038	D78			1098	D78			1158	D78		
979	D155			1039	D155			1099	D155			1159	D155		
980	D182			1040	D182			1100	D182			1160	D182		
981	D183			1041	D183			1101	D183			1161	D183		
982	D185			1042	D185			1102	D185			1162	D185		
983	D246			1043	D246			1103	D246			1163	D246		
984	D265			1044	D265			1104	D265			1164	D265		
985	D266			1045	D266			1105	D266			1165	D266		
986	D267			1046	D267			1106	D267			1166	D267		
987	D268			1047	D268			1107	D268			1167	D268		
988	D269			1048	D269			1108	D269			1168	D269		
989	D296			1049	D296			1109	D296			1169	D296		
990	D298			1050	D298			1110	D298			1170	D298		
991	D15	D21	Ar16	1051	D15	D34	Ar16	1111	D15	D45	Ar16	1171	D15	D48	Ar16
992	D16			1052	D16			1112	D16			1172	D16		
993	D18			1053	D18			1113	D18			1173	D18		
994	D21			1054	D21			1114	D21			1174	D21		
995	D33			1055	D33			1115	D33			1175	D33		
996	D34			1056	D34			1116	D34			1176	D34		
997	D36			1057	D36			1117	D36			1177	D36		
998	D45			1058	D45			1118	D45			1178	D45		
999	D46			1059	D46			1119	D46			1179	D46		
1000	D48			1060	D48			1120	D48			1180	D48		
1001	D63			1061	D63			1121	D63			1181	D63		
1002	D64			1062	D64			1122	D64			1182	D64		
1003	D66			1063	D66			1123	D66			1183	D66		
1004	D73			1064	D73			1124	D73			1184	D73		
1005	D74			1065	D74			1125	D74			1185	D74		
1006	D75			1066	D75			1126	D75			1186	D75		
1007	D76			1067	D76			1127	D76			1187	D76		
1008	D78			1068	D78			1128	D78			1188	D78		
1009	D155			1069	D155			1129	D155			1189	D155		
1010	D182			1070	D182			1130	D182			1190	D182		
1011	D183			1071	D183			1131	D183			1191	D183		
1012	D185			1072	D185			1132	D185			1192	D185		
1013	D246			1073	D246			1133	D246			1193	D246		
1014	D265			1074	D265			1134	D265			1194	D265		
1015	D266			1075	D266			1135	D266			1195	D266		
1016	D267			1076	D267			1136	D267			1196	D267		
1017	D268			1077	D268			1137	D268			1197	D268		
1018	D269			1078	D269			1138	D269			1198	D269		
1019	D296			1079	D296			1139	D296			1199	D296		
1020	D298			1080	D298			1140	D298			1200	D298		

[表1-6]

No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H		
	R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴
1201	D15	D63	Ar16	1261	D15	D66	Ar16	1321	D15	D74	Ar16	1381	D15	D76	Ar16
1202	D16			1262	D16			1322	D16			1382	D16		
1203	D18			1263	D18			1323	D18			1383	D18		
1204	D21			1264	D21			1324	D21			1384	D21		
1205	D33			1265	D33			1325	D33			1385	D33		
1206	D34			1266	D34			1326	D34			1386	D34		
1207	D36			1267	D36			1327	D36			1387	D36		
1208	D45			1268	D45			1328	D45			1388	D45		
1209	D46			1269	D46			1329	D46			1389	D46		
1210	D48			1270	D48			1330	D48			1390	D48		
1211	D63			1271	D63			1331	D63			1391	D63		
1212	D64			1272	D64			1332	D64			1392	D64		
1213	D66			1273	D66			1333	D66			1393	D66		
1214	D73			1274	D73			1334	D73			1394	D73		
1215	D74			1275	D74			1335	D74			1395	D74		
1216	D75			1276	D75			1336	D75			1396	D75		
1217	D76			1277	D76			1337	D76			1397	D76		
1218	D78			1278	D78			1338	D78			1398	D78		
1219	D155			1279	D155			1339	D155			1399	D155		
1220	D182			1280	D182			1340	D182			1400	D182		
1221	D183	1281		D183	1341	D183		1401	D183						
1222	D185	1282		D185	1342	D185		1402	D185						
1223	D246	1283		D246	1343	D246		1403	D246						
1224	D265	1284		D265	1344	D265		1404	D265						
1225	D266	1285		D266	1345	D266		1405	D266						
1226	D267	1286		D267	1346	D267		1406	D267						
1227	D268	1287		D268	1347	D268		1407	D268						
1228	D269	1288		D269	1348	D269		1408	D269						
1229	D296	1289		D296	1349	D296		1409	D296						
1230	D298	1290		D298	1350	D298		1410	D298						
1231	D15	1291		D15	1351	D15		1411	D15						
1232	D16	1292		D16	1352	D16		1412	D16						
1233	D18	1293		D18	1353	D18		1413	D18						
1234	D21	1294		D21	1354	D21		1414	D21						
1235	D33	1295		D33	1355	D33		1415	D33						
1236	D34	1296		D34	1356	D34		1416	D34						
1237	D36	1297		D36	1357	D36		1417	D36						
1238	D45	1298		D45	1358	D45		1418	D45						
1239	D46	1299		D46	1359	D46		1419	D46						
1240	D48	1300		D48	1360	D48		1420	D48						
1241	D63	1301	D63	1361	D63	1421	D63								
1242	D64	1302	D64	1362	D64	1422	D64								
1243	D66	1303	D66	1363	D66	1423	D66								
1244	D73	1304	D73	1364	D73	1424	D73								
1245	D74	1305	D74	1365	D74	1425	D74								
1246	D75	1306	D75	1366	D75	1426	D75								
1247	D76	1307	D76	1367	D76	1427	D76								
1248	D78	1308	D78	1368	D78	1428	D78								
1249	D155	1309	D155	1369	D155	1429	D155								
1250	D182	1310	D182	1370	D182	1430	D182								
1251	D183	1311	D183	1371	D183	1431	D183								
1252	D185	1312	D185	1372	D185	1432	D185								
1253	D246	1313	D246	1373	D246	1433	D246								
1254	D265	1314	D265	1374	D265	1434	D265								
1255	D266	1315	D266	1375	D266	1435	D266								
1256	D267	1316	D267	1376	D267	1436	D267								
1257	D268	1317	D268	1377	D268	1437	D268								
1258	D269	1318	D269	1378	D269	1438	D269								
1259	D296	1319	D296	1379	D296	1439	D296								
1260	D298	1320	D298	1380	D298	1440	D298								

[表1-7]

No.	R ¹ = H			
	R ²	R ³	R ⁴	
1441	D15	D155	Ar16	
1442	D16			
1443	D18			
1444	D21			
1445	D33			
1446	D34			
1447	D36			
1448	D45			
1449	D46			
1450	D48			
1451	D63			
1452	D64			
1453	D66			
1454	D73			
1455	D74			
1456	D75			
1457	D76			
1458	D78			
1459	D155	D182	Ar16	
1460	D182			
1461	D183			
1462	D185			
1463	D246			
1464	D265			
1465	D266			
1466	D267			
1467	D268			
1468	D269			
1469	D296			
1470	D298			
1471	D15			
1472	D16			
1473	D18			
1474	D21			
1475	D33			
1476	D34			
1477	D36			
1478	D45			
1479	D46			
1480	D48			
1481	D63			
1482	D64			
1483	D66			
1484	D73			
1485	D74			
1486	D75			
1487	D76			
1488	D78			
1489	D155	D183	Ar16	
1490	D182			
1491	D183			
1492	D185			
1493	D246			
1494	D265			
1495	D266			
1496	D267			
1497	D268			
1498	D269			
1499	D296			
1500	D298			
1501	D15			
1502	D16			
1503	D18			
1504	D21			
1505	D33			
1506	D34			
1507	D36			
1508	D45			
1509	D46			
1510	D48			
1511	D63			
1512	D64			
1513	D66			
1514	D73			
1515	D74			
1516	D75			
1517	D76			
1518	D78			
1519	D155	D246	Ar16	
1520	D182			
1521	D183			
1522	D185			
1523	D246			
1524	D265			
1525	D266			
1526	D267			
1527	D268			
1528	D269			
1529	D296			
1530	D298			
1531	D15			
1532	D16			
1533	D18			
1534	D21			
1535	D33			
1536	D34			
1537	D36			
1538	D45			
1539	D46			
1540	D48			
1541	D63			
1542	D64			
1543	D66			
1544	D73			
1545	D74			
1546	D75			
1547	D76			
1548	D78			
1549	D155	D265	Ar16	
1550	D182			
1551	D183			
1552	D185			
1553	D246			
1554	D265			
1555	D266			
1556	D267			
1557	D268			
1558	D269			
1559	D296			
1560	D298			
1561	D15			
1562	D16			
1563	D18			
1564	D21			
1565	D33			
1566	D34			
1567	D36			
1568	D45			
1569	D46			
1570	D48			
1571	D63			
1572	D64			
1573	D66			
1574	D73			
1575	D74			
1576	D75			
1577	D76			
1578	D78			
1579	D155	D266	Ar16	
1580	D182			
1581	D183			
1582	D185			
1583	D246			
1584	D265			
1585	D266			
1586	D267			
1587	D268			
1588	D269			
1589	D296			
1590	D298			
1591	D15			
1592	D16			
1593	D18			
1594	D21			
1595	D33			
1596	D34			
1597	D36			
1598	D45			
1599	D46			
1600	D48			
1601	D63			
1602	D64			
1603	D66			
1604	D73			
1605	D74			
1606	D75			
1607	D76			
1608	D78			
1609	D155	D267	Ar16	
1610	D182			
1611	D183			
1612	D185			
1613	D246			
1614	D265			
1615	D266			
1616	D267			
1617	D268			
1618	D269			
1619	D296			
1620	D298			
1621	D15			
1622	D16			
1623	D18			
1624	D21			
1625	D33			
1626	D34			
1627	D36			
1628	D45			
1629	D46			
1630	D48			
1631	D63			
1632	D64			
1633	D66			
1634	D73			
1635	D74			
1636	D75			
1637	D76			
1638	D78			
1639	D155	D268	Ar16	
1640	D182			
1641	D183			
1642	D185			
1643	D246			
1644	D265			
1645	D266			
1646	D267			
1647	D268			
1648	D269			
1649	D296			
1650	D298			
1651	D15			
1652	D16			
1653	D18			
1654	D21			
1655	D33			
1656	D34			
1657	D36			
1658	D45			
1659	D46			
1660	D48			
1661	D63			
1662	D64			
1663	D66			
1664	D73			
1665	D74			
1666	D75			
1667	D76			
1668	D78			
1669	D155	D269	Ar16	
1670	D182			
1671	D183			
1672	D185			
1673	D246			
1674	D265			
1675	D266			
1676	D267			
1677	D268			
1678	D269			
1679	D296			
1680	D298			

[表1-8]

No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H		
	R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴
1681	D15	D268		1741	D15	D296		1801	D15	D15		1861	D15	D18	
1682	D16			1742	D16			1802	D16			1862	D16		
1683	D18			1743	D18			1803	D18			1863	D18		
1684	D21			1744	D21			1804	D21			1864	D21		
1685	D33			1745	D33			1805	D33			1865	D33		
1686	D34			1746	D34			1806	D34			1866	D34		
1687	D36			1747	D36			1807	D36			1867	D36		
1688	D45			1748	D45			1808	D45			1868	D45		
1689	D46			1749	D46			1809	D46			1869	D46		
1690	D48			1750	D48			1810	D48			1870	D48		
1691	D63			1751	D63			1811	D63			1871	D63		
1692	D64			1752	D64			1812	D64			1872	D64		
1693	D66			1753	D66			1813	D66			1873	D66		
1694	D73			1754	D73			1814	D73			1874	D73		
1695	D74			1755	D74			1815	D74			1875	D74		
1696	D75			1756	D75			1816	D75			1876	D75		
1697	D76			1757	D76			1817	D76			1877	D76		
1698	D78			1758	D78			1818	D78			1878	D78		
1699	D155			1759	D155			1819	D155			1879	D155		
1700	D182			1760	D182			1820	D182			1880	D182		
1701	D183			1761	D183			1821	D183			1881	D183		
1702	D185			1762	D185			1822	D185			1882	D185		
1703	D246			1763	D246			1823	D246			1883	D246		
1704	D265			1764	D265			1824	D265			1884	D265		
1705	D266			1765	D266			1825	D266			1885	D266		
1706	D267			1766	D267			1826	D267			1886	D267		
1707	D268			1767	D268			1827	D268			1887	D268		
1708	D269			1768	D269			1828	D269			1888	D269		
1709	D296			1769	D296			1829	D296			1889	D296		
1710	D298			1770	D298			1830	D298			1890	D298		
1711	D15	D269	Ar16	1771	D15	D298	Ar16	1831	D15	D16		1891	D15	D21	Ar21
1712	D16			1772	D16			1832	D16			1892	D16		
1713	D18			1773	D18			1833	D18			1893	D18		
1714	D21			1774	D21			1834	D21			1894	D21		
1715	D33			1775	D33			1835	D33			1895	D33		
1716	D34			1776	D34			1836	D34			1896	D34		
1717	D36			1777	D36			1837	D36			1897	D36		
1718	D45			1778	D45			1838	D45			1898	D45		
1719	D46			1779	D46			1839	D46			1899	D46		
1720	D48			1780	D48			1840	D48			1900	D48		
1721	D63			1781	D63			1841	D63			1901	D63		
1722	D64			1782	D64			1842	D64			1902	D64		
1723	D66			1783	D66			1843	D66			1903	D66		
1724	D73			1784	D73			1844	D73			1904	D73		
1725	D74			1785	D74			1845	D74			1905	D74		
1726	D75			1786	D75			1846	D75			1906	D75		
1727	D76			1787	D76			1847	D76			1907	D76		
1728	D78			1788	D78			1848	D78			1908	D78		
1729	D155			1789	D155			1849	D155			1909	D155		
1730	D182			1790	D182			1850	D182			1910	D182		
1731	D183			1791	D183			1851	D183			1911	D183		
1732	D185			1792	D185			1852	D185			1912	D185		
1733	D246			1793	D246			1853	D246			1913	D246		
1734	D265			1794	D265			1854	D265			1914	D265		
1735	D266			1795	D266			1855	D266			1915	D266		
1736	D267			1796	D267			1856	D267			1916	D267		
1737	D268			1797	D268			1857	D268			1917	D268		
1738	D269			1798	D269			1858	D269			1918	D269		
1739	D296			1799	D296			1859	D296			1919	D296		
1740	D298			1800	D298			1860	D298			1920	D298		

[表1-9]

No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H		
	R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴
1921	D15	D33	Ar21	1981	D15	D36	Ar21	2041	D15	D46	Ar21	2101	D15	D63	Ar21
1922	D16			1982	D16			2042	D16			2102	D16		
1923	D18			1983	D18			2043	D18			2103	D18		
1924	D21			1984	D21			2044	D21			2104	D21		
1925	D33			1985	D33			2045	D33			2105	D33		
1926	D34			1986	D34			2046	D34			2106	D34		
1927	D36			1987	D36			2047	D36			2107	D36		
1928	D45			1988	D45			2048	D45			2108	D45		
1929	D46			1989	D46			2049	D46			2109	D46		
1930	D48			1990	D48			2050	D48			2110	D48		
1931	D63			1991	D63			2051	D63			2111	D63		
1932	D64			1992	D64			2052	D64			2112	D64		
1933	D66			1993	D66			2053	D66			2113	D66		
1934	D73			1994	D73			2054	D73			2114	D73		
1935	D74			1995	D74			2055	D74			2115	D74		
1936	D75			1996	D75			2056	D75			2116	D75		
1937	D76			1997	D76			2057	D76			2117	D76		
1938	D78			1998	D78			2058	D78			2118	D78		
1939	D155			1999	D155			2059	D155			2119	D155		
1940	D182			2000	D182			2060	D182			2120	D182		
1941	D183	2001		D183	2061	D183		2121	D183						
1942	D185	2002		D185	2062	D185		2122	D185						
1943	D246	2003		D246	2063	D246		2123	D246						
1944	D265	2004		D265	2064	D265		2124	D265						
1945	D266	2005		D266	2065	D266		2125	D266						
1946	D267	2006		D267	2066	D267		2126	D267						
1947	D268	2007		D268	2067	D268		2127	D268						
1948	D269	2008		D269	2068	D269		2128	D269						
1949	D296	2009		D296	2069	D296		2129	D296						
1950	D298	2010		D298	2070	D298		2130	D298						
1951	D15	2011		D15	2071	D15		2131	D15						
1952	D16	2012		D16	2072	D16		2132	D16						
1953	D18	2013		D18	2073	D18		2133	D18						
1954	D21	2014		D21	2074	D21		2134	D21						
1955	D33	2015		D33	2075	D33		2135	D33						
1956	D34	2016		D34	2076	D34		2136	D34						
1957	D36	2017		D36	2077	D36		2137	D36						
1958	D45	2018		D45	2078	D45		2138	D45						
1959	D46	2019		D46	2079	D46		2139	D46						
1960	D48	2020		D48	2080	D48		2140	D48						
1961	D63	2021		D63	2081	D63		2141	D63						
1962	D64	2022		D64	2082	D64		2142	D64						
1963	D66	2023		D66	2083	D66		2143	D66						
1964	D73	2024		D73	2084	D73		2144	D73						
1965	D74	2025		D74	2085	D74		2145	D74						
1966	D75	2026		D75	2086	D75		2146	D75						
1967	D76	2027		D76	2087	D76		2147	D76						
1968	D78	2028		D78	2088	D78		2148	D78						
1969	D155	2029		D155	2089	D155		2149	D155						
1970	D182	2030		D182	2090	D182		2150	D182						
1971	D183	2031		D183	2091	D183		2151	D183						
1972	D185	2032		D185	2092	D185		2152	D185						
1973	D246	2033		D246	2093	D246		2153	D246						
1974	D265	2034		D265	2094	D265		2154	D265						
1975	D266	2035		D266	2095	D266		2155	D266						
1976	D267	2036		D267	2096	D267		2156	D267						
1977	D268	2037		D268	2097	D268		2157	D268						
1978	D269	2038		D269	2098	D269		2158	D269						
1979	D296	2039		D296	2099	D296		2159	D296						
1980	D298	2040		D298	2100	D298		2160	D298						

[表1-10]

No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H		
	R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴
2161	D15	D66	Ar21	2221	D15	D74	Ar21	2281	D15	D76	Ar21	2341	D15	D155	Ar21
2162	D16			2222	D16			2282	D16			2342	D16		
2163	D18			2223	D18			2283	D18			2343	D18		
2164	D21			2224	D21			2284	D21			2344	D21		
2165	D33			2225	D33			2285	D33			2345	D33		
2166	D34			2226	D34			2286	D34			2346	D34		
2167	D36			2227	D36			2287	D36			2347	D36		
2168	D45			2228	D45			2288	D45			2348	D45		
2169	D46			2229	D46			2289	D46			2349	D46		
2170	D48			2230	D48			2290	D48			2350	D48		
2171	D63			2231	D63			2291	D63			2351	D63		
2172	D64			2232	D64			2292	D64			2352	D64		
2173	D66			2233	D66			2293	D66			2353	D66		
2174	D73			2234	D73			2294	D73			2354	D73		
2175	D74			2235	D74			2295	D74			2355	D74		
2176	D75			2236	D75			2296	D75			2356	D75		
2177	D76			2237	D76			2297	D76			2357	D76		
2178	D78			2238	D78			2298	D78			2358	D78		
2179	D155			2239	D155			2299	D155			2359	D155		
2180	D182			2240	D182			2300	D182			2360	D182		
2181	D183			2241	D183			2301	D183			2361	D183		
2182	D185			2242	D185			2302	D185			2362	D185		
2183	D246			2243	D246			2303	D246			2363	D246		
2184	D265			2244	D265			2304	D265			2364	D265		
2185	D266			2245	D266			2305	D266			2365	D266		
2186	D267			2246	D267			2306	D267			2366	D267		
2187	D268			2247	D268			2307	D268			2367	D268		
2188	D269			2248	D269			2308	D269			2368	D269		
2189	D296			2249	D296			2309	D296			2369	D296		
2190	D298			2250	D298			2310	D298			2370	D298		
2191	D15	2251		D15	2311	D15		2371	D15						
2192	D16	2252		D16	2312	D16		2372	D16						
2193	D18	2253		D18	2313	D18		2373	D18						
2194	D21	2254		D21	2314	D21		2374	D21						
2195	D33	2255		D33	2315	D33		2375	D33						
2196	D34	2256		D34	2316	D34		2376	D34						
2197	D36	2257		D36	2317	D36		2377	D36						
2198	D45	2258		D45	2318	D45		2378	D45						
2199	D46	2259		D46	2319	D46		2379	D46						
2200	D48	2260		D48	2320	D48		2380	D48						
2201	D63	2261		D63	2321	D63		2381	D63						
2202	D64	2262		D64	2322	D64		2382	D64						
2203	D66	2263		D66	2323	D66		2383	D66						
2204	D73	2264		D73	2324	D73		2384	D73						
2205	D74	2265		D74	2325	D74		2385	D74						
2206	D75	2266		D75	2326	D75		2386	D75						
2207	D76	2267		D76	2327	D76		2387	D76						
2208	D78	2268		D78	2328	D78		2388	D78						
2209	D155	2269		D155	2329	D155		2389	D155						
2210	D182	2270		D182	2330	D182		2390	D182						
2211	D183	2271		D183	2331	D183		2391	D183						
2212	D185	2272		D185	2332	D185		2392	D185						
2213	D246	2273		D246	2333	D246		2393	D246						
2214	D265	2274		D265	2334	D265		2394	D265						
2215	D266	2275		D266	2335	D266		2395	D266						
2216	D267	2276		D267	2336	D267		2396	D267						
2217	D268	2277		D268	2337	D268		2397	D268						
2218	D269	2278		D269	2338	D269		2398	D269						
2219	D296	2279		D296	2339	D296		2399	D296						
2220	D298	2280		D298	2340	D298		2400	D298						

[表1-11]

No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H		
	R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴
2401	D15	D183	Ar21	2461	D15	D246	Ar21	2521	D15	D266	Ar21	2581	D15	D268	Ar21
2402	D16			2462	D16			2522	D16			2582	D16		
2403	D18			2463	D18			2523	D18			2583	D18		
2404	D21			2464	D21			2524	D21			2584	D21		
2405	D33			2465	D33			2525	D33			2585	D33		
2406	D34			2466	D34			2526	D34			2586	D34		
2407	D36			2467	D36			2527	D36			2587	D36		
2408	D45			2468	D45			2528	D45			2588	D45		
2409	D46			2469	D46			2529	D46			2589	D46		
2410	D48			2470	D48			2530	D48			2590	D48		
2411	D63			2471	D63			2531	D63			2591	D63		
2412	D64			2472	D64			2532	D64			2592	D64		
2413	D66			2473	D66			2533	D66			2593	D66		
2414	D73			2474	D73			2534	D73			2594	D73		
2415	D74			2475	D74			2535	D74			2595	D74		
2416	D75			2476	D75			2536	D75			2596	D75		
2417	D76			2477	D76			2537	D76			2597	D76		
2418	D78			2478	D78			2538	D78			2598	D78		
2419	D155			2479	D155			2539	D155			2599	D155		
2420	D182			2480	D182			2540	D182			2600	D182		
2421	D183			2481	D183			2541	D183			2601	D183		
2422	D185			2482	D185			2542	D185			2602	D185		
2423	D246			2483	D246			2543	D246			2603	D246		
2424	D265			2484	D265			2544	D265			2604	D265		
2425	D266			2485	D266			2545	D266			2605	D266		
2426	D267			2486	D267			2546	D267			2606	D267		
2427	D268			2487	D268			2547	D268			2607	D268		
2428	D269			2488	D269			2548	D269			2608	D269		
2429	D296			2489	D296			2549	D296			2609	D296		
2430	D298			2490	D298			2550	D298			2610	D298		
2431	D15	D185	Ar21	2491	D15	D265	Ar21	2551	D15	D267	Ar21	2611	D15	D269	Ar21
2432	D16			2492	D16			2552	D16			2612	D16		
2433	D18			2493	D18			2553	D18			2613	D18		
2434	D21			2494	D21			2554	D21			2614	D21		
2435	D33			2495	D33			2555	D33			2615	D33		
2436	D34			2496	D34			2556	D34			2616	D34		
2437	D36			2497	D36			2557	D36			2617	D36		
2438	D45			2498	D45			2558	D45			2618	D45		
2439	D46			2499	D46			2559	D46			2619	D46		
2440	D48			2500	D48			2560	D48			2620	D48		
2441	D63			2501	D63			2561	D63			2621	D63		
2442	D64			2502	D64			2562	D64			2622	D64		
2443	D66			2503	D66			2563	D66			2623	D66		
2444	D73			2504	D73			2564	D73			2624	D73		
2445	D74			2505	D74			2565	D74			2625	D74		
2446	D75			2506	D75			2566	D75			2626	D75		
2447	D76			2507	D76			2567	D76			2627	D76		
2448	D78			2508	D78			2568	D78			2628	D78		
2449	D155			2509	D155			2569	D155			2629	D155		
2450	D182			2510	D182			2570	D182			2630	D182		
2451	D183			2511	D183			2571	D183			2631	D183		
2452	D185			2512	D185			2572	D185			2632	D185		
2453	D246			2513	D246			2573	D246			2633	D246		
2454	D265			2514	D265			2574	D265			2634	D265		
2455	D266			2515	D266			2575	D266			2635	D266		
2456	D267			2516	D267			2576	D267			2636	D267		
2457	D268			2517	D268			2577	D268			2637	D268		
2458	D269			2518	D269			2578	D269			2638	D269		
2459	D296			2519	D296			2579	D296			2639	D296		
2460	D298			2520	D298			2580	D298			2640	D298		

[表1-12]

No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H		
	R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴
2641	D15	D296		2701	D15	D15		2761	D15	D18		2821	D15	D33	
2642	D16			2702	D16			2762	D16			2822	D16		
2643	D18			2703	D18			2763	D18			2823	D18		
2644	D21			2704	D21			2764	D21			2824	D21		
2645	D33			2705	D33			2765	D33			2825	D33		
2646	D34			2706	D34			2766	D34			2826	D34		
2647	D36			2707	D36			2767	D36			2827	D36		
2648	D45			2708	D45			2768	D45			2828	D45		
2649	D46			2709	D46			2769	D46			2829	D46		
2650	D48			2710	D48			2770	D48			2830	D48		
2651	D63			2711	D63			2771	D63			2831	D63		
2652	D64			2712	D64			2772	D64			2832	D64		
2653	D66			2713	D66			2773	D66			2833	D66		
2654	D73			2714	D73			2774	D73			2834	D73		
2655	D74			2715	D74			2775	D74			2835	D74		
2656	D75			2716	D75			2776	D75			2836	D75		
2657	D76			2717	D76			2777	D76			2837	D76		
2658	D78			2718	D78			2778	D78			2838	D78		
2659	D155	Ar21		2719	D155	Ar24		2779	D155	Ar24		2839	D155	Ar24	
2660	D182			2720	D182			2780	D182			2840	D182		
2661	D183			2721	D183			2781	D183			2841	D183		
2662	D185			2722	D185			2782	D185			2842	D185		
2663	D246			2723	D246			2783	D246			2843	D246		
2664	D265			2724	D265			2784	D265			2844	D265		
2665	D266			2725	D266			2785	D266			2845	D266		
2666	D267			2726	D267			2786	D267			2846	D267		
2667	D268			2727	D268			2787	D268			2847	D268		
2668	D269			2728	D269			2788	D269			2848	D269		
2669	D296			2729	D296			2789	D296			2849	D296		
2670	D298			2730	D298			2790	D298			2850	D298		
2671	D15	D298		2731	D15	D16		2791	D15	D21		2851	D15	D34	
2672	D16			2732	D16			2792	D16			2852	D16		
2673	D18			2733	D18			2793	D18			2853	D18		
2674	D21			2734	D21			2794	D21			2854	D21		
2675	D33			2735	D33			2795	D33			2855	D33		
2676	D34			2736	D34			2796	D34			2856	D34		
2677	D36			2737	D36			2797	D36			2857	D36		
2678	D45			2738	D45			2798	D45			2858	D45		
2679	D46			2739	D46			2799	D46			2859	D46		
2680	D48			2740	D48			2800	D48			2860	D48		
2681	D63			2741	D63			2801	D63			2861	D63		
2682	D64			2742	D64			2802	D64			2862	D64		
2683	D66			2743	D66			2803	D66			2863	D66		
2684	D73			2744	D73			2804	D73			2864	D73		
2685	D74			2745	D74			2805	D74			2865	D74		
2686	D75			2746	D75			2806	D75			2866	D75		
2687	D76			2747	D76			2807	D76			2867	D76		
2688	D78			2748	D78			2808	D78			2868	D78		
2689	D155			2749	D155			2809	D155			2869	D155		
2690	D182			2750	D182			2810	D182			2870	D182		
2691	D183			2751	D183			2811	D183			2871	D183		
2692	D185			2752	D185			2812	D185			2872	D185		
2693	D246			2753	D246			2813	D246			2873	D246		
2694	D265			2754	D265			2814	D265			2874	D265		
2695	D266			2755	D266			2815	D266			2875	D266		
2696	D267			2756	D267			2816	D267			2876	D267		
2697	D268			2757	D268			2817	D268			2877	D268		
2698	D269			2758	D269			2818	D269			2878	D269		
2699	D296			2759	D296			2819	D296			2879	D296		
2700	D298			2760	D298			2820	D298			2880	D298		

[表1-13]

No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H		
	R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴
2881	D15	D36	Ar24	2941	D15	D46	Ar24	3001	D15	D63	Ar24	3061	D15	D66	Ar24
2882	D16			2942	D16			3002	D16			3062	D16		
2883	D18			2943	D18			3003	D18			3063	D18		
2884	D21			2944	D21			3004	D21			3064	D21		
2885	D33			2945	D33			3005	D33			3065	D33		
2886	D34			2946	D34			3006	D34			3066	D34		
2887	D36			2947	D36			3007	D36			3067	D36		
2888	D45			2948	D45			3008	D45			3068	D45		
2889	D46			2949	D46			3009	D46			3069	D46		
2890	D48			2950	D48			3010	D48			3070	D48		
2891	D63			2951	D63			3011	D63			3071	D63		
2892	D64			2952	D64			3012	D64			3072	D64		
2893	D66			2953	D66			3013	D66			3073	D66		
2894	D73			2954	D73			3014	D73			3074	D73		
2895	D74			2955	D74			3015	D74			3075	D74		
2896	D75			2956	D75			3016	D75			3076	D75		
2897	D76			2957	D76			3017	D76			3077	D76		
2898	D78			2958	D78			3018	D78			3078	D78		
2899	D155			2959	D155			3019	D155			3079	D155		
2900	D182			2960	D182			3020	D182			3080	D182		
2901	D183	2961		D183	3021	D183		3081	D183						
2902	D185	2962		D185	3022	D185		3082	D185						
2903	D246	2963		D246	3023	D246		3083	D246						
2904	D265	2964		D265	3024	D265		3084	D265						
2905	D266	2965		D266	3025	D266		3085	D266						
2906	D267	2966		D267	3026	D267		3086	D267						
2907	D268	2967		D268	3027	D268		3087	D268						
2908	D269	2968		D269	3028	D269		3088	D269						
2909	D296	2969		D296	3029	D296		3089	D296						
2910	D298	2970		D298	3030	D298		3090	D298						
2911	D15	2971		D15	3031	D15		3091	D15						
2912	D16	2972		D16	3032	D16		3092	D16						
2913	D18	2973		D18	3033	D18		3093	D18						
2914	D21	2974		D21	3034	D21		3094	D21						
2915	D33	2975		D33	3035	D33		3095	D33						
2916	D34	2976		D34	3036	D34		3096	D34						
2917	D36	2977		D36	3037	D36		3097	D36						
2918	D45	2978		D45	3038	D45		3098	D45						
2919	D46	2979		D46	3039	D46		3099	D46						
2920	D48	2980		D48	3040	D48		3100	D48						
2921	D63	2981		D63	3041	D63		3101	D63						
2922	D64	2982		D64	3042	D64		3102	D64						
2923	D66	2983		D66	3043	D66		3103	D66						
2924	D73	2984		D73	3044	D73		3104	D73						
2925	D74	2985		D74	3045	D74		3105	D74						
2926	D75	2986		D75	3046	D75		3106	D75						
2927	D76	2987		D76	3047	D76		3107	D76						
2928	D78	2988		D78	3048	D78		3108	D78						
2929	D155	2989		D155	3049	D155		3109	D155						
2930	D182	2990		D182	3050	D182		3110	D182						
2931	D183	2991		D183	3051	D183		3111	D183						
2932	D185	2992		D185	3052	D185		3112	D185						
2933	D246	2993		D246	3053	D246		3113	D246						
2934	D265	2994		D265	3054	D265		3114	D265						
2935	D266	2995		D266	3055	D266		3115	D266						
2936	D267	2996		D267	3056	D267		3116	D267						
2937	D268	2997		D268	3057	D268		3117	D268						
2938	D269	2998		D269	3058	D269		3118	D269						
2939	D296	2999		D296	3059	D296		3119	D296						
2940	D298	3000		D298	3060	D298		3120	D298						

[表1-14]

No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H		
	R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴
3121	D15	D74	Ar24	3181	D15	D76	Ar24	3241	D15	D155	Ar24	3301	D15	D183	Ar24
3122	D16			3182	D16			3242	D16			3302	D16		
3123	D18			3183	D18			3243	D18			3303	D18		
3124	D21			3184	D21			3244	D21			3304	D21		
3125	D33			3185	D33			3245	D33			3305	D33		
3126	D34			3186	D34			3246	D34			3306	D34		
3127	D36			3187	D36			3247	D36			3307	D36		
3128	D45			3188	D45			3248	D45			3308	D45		
3129	D46			3189	D46			3249	D46			3309	D46		
3130	D48			3190	D48			3250	D48			3310	D48		
3131	D63			3191	D63			3251	D63			3311	D63		
3132	D64			3192	D64			3252	D64			3312	D64		
3133	D66			3193	D66			3253	D66			3313	D66		
3134	D73			3194	D73			3254	D73			3314	D73		
3135	D74			3195	D74			3255	D74			3315	D74		
3136	D75			3196	D75			3256	D75			3316	D75		
3137	D76			3197	D76			3257	D76			3317	D76		
3138	D78			3198	D78			3258	D78			3318	D78		
3139	D155			3199	D155			3259	D155			3319	D155		
3140	D182			3200	D182			3260	D182			3320	D182		
3141	D183			3201	D183			3261	D183			3321	D183		
3142	D185			3202	D185			3262	D185			3322	D185		
3143	D246			3203	D246			3263	D246			3323	D246		
3144	D265			3204	D265			3264	D265			3324	D265		
3145	D266			3205	D266			3265	D266			3325	D266		
3146	D267			3206	D267			3266	D267			3326	D267		
3147	D268			3207	D268			3267	D268			3327	D268		
3148	D269			3208	D269			3268	D269			3328	D269		
3149	D296			3209	D296			3269	D296			3329	D296		
3150	D298			3210	D298			3270	D298			3330	D298		
3151	D15	D75	Ar24	3211	D15	D78	Ar24	3271	D15	D182	Ar24	3331	D15	D185	Ar24
3152	D16			3212	D16			3272	D16			3332	D16		
3153	D18			3213	D18			3273	D18			3333	D18		
3154	D21			3214	D21			3274	D21			3334	D21		
3155	D33			3215	D33			3275	D33			3335	D33		
3156	D34			3216	D34			3276	D34			3336	D34		
3157	D36			3217	D36			3277	D36			3337	D36		
3158	D45			3218	D45			3278	D45			3338	D45		
3159	D46			3219	D46			3279	D46			3339	D46		
3160	D48			3220	D48			3280	D48			3340	D48		
3161	D63			3221	D63			3281	D63			3341	D63		
3162	D64			3222	D64			3282	D64			3342	D64		
3163	D66			3223	D66			3283	D66			3343	D66		
3164	D73			3224	D73			3284	D73			3344	D73		
3165	D74			3225	D74			3285	D74			3345	D74		
3166	D75			3226	D75			3286	D75			3346	D75		
3167	D76			3227	D76			3287	D76			3347	D76		
3168	D78			3228	D78			3288	D78			3348	D78		
3169	D155			3229	D155			3289	D155			3349	D155		
3170	D182			3230	D182			3290	D182			3350	D182		
3171	D183			3231	D183			3291	D183			3351	D183		
3172	D185			3232	D185			3292	D185			3352	D185		
3173	D246			3233	D246			3293	D246			3353	D246		
3174	D265			3234	D265			3294	D265			3354	D265		
3175	D266			3235	D266			3295	D266			3355	D266		
3176	D267			3236	D267			3296	D267			3356	D267		
3177	D268			3237	D268			3297	D268			3357	D268		
3178	D269			3238	D269			3298	D269			3358	D269		
3179	D296			3239	D296			3299	D296			3359	D296		
3180	D298			3240	D298			3300	D298			3360	D298		

[表1-15]

No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H		
	R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴
3361	D15	D246		3421	D15	D266		3481	D15	D268		3541	D15	D296	
3362	D16			3422	D16			3482	D16			3542	D16		
3363	D18			3423	D18			3483	D18			3543	D18		
3364	D21			3424	D21			3484	D21			3544	D21		
3365	D33			3425	D33			3485	D33			3545	D33		
3366	D34			3426	D34			3486	D34			3546	D34		
3367	D36			3427	D36			3487	D36			3547	D36		
3368	D45			3428	D45			3488	D45			3548	D45		
3369	D46			3429	D46			3489	D46			3549	D46		
3370	D48			3430	D48			3490	D48			3550	D48		
3371	D63			3431	D63			3491	D63			3551	D63		
3372	D64			3432	D64			3492	D64			3552	D64		
3373	D66			3433	D66			3493	D66			3553	D66		
3374	D73			3434	D73			3494	D73			3554	D73		
3375	D74			3435	D74			3495	D74			3555	D74		
3376	D75			3436	D75			3496	D75			3556	D75		
3377	D76			3437	D76			3497	D76			3557	D76		
3378	D78			3438	D78			3498	D78			3558	D78		
3379	D155			3439	D155			3499	D155			3559	D155		
3380	D182			3440	D182			3500	D182			3560	D182		
3381	D183	3441	D183	3501	D183	3561	D183								
3382	D185	3442	D185	3502	D185	3562	D185								
3383	D246	3443	D246	3503	D246	3563	D246								
3384	D265	3444	D265	3504	D265	3564	D265								
3385	D266	3445	D266	3505	D266	3565	D266								
3386	D267	3446	D267	3506	D267	3566	D267								
3387	D268	3447	D268	3507	D268	3567	D268								
3388	D269	3448	D269	3508	D269	3568	D269								
3389	D296	3449	D296	3509	D296	3569	D296								
3390	D298	3450	D298	3510	D298	3570	D298								
3391	D15	Ar24		3451	D15	Ar24		3511	D15	Ar24		3571	D15	Ar24	
3392	D16			3452	D16			3512	D16			3572	D16		
3393	D18			3453	D18			3513	D18			3573	D18		
3394	D21			3454	D21			3514	D21			3574	D21		
3395	D33			3455	D33			3515	D33			3575	D33		
3396	D34			3456	D34			3516	D34			3576	D34		
3397	D36			3457	D36			3517	D36			3577	D36		
3398	D45			3458	D45			3518	D45			3578	D45		
3399	D46			3459	D46			3519	D46			3579	D46		
3400	D48			3460	D48			3520	D48			3580	D48		
3401	D63			3461	D63			3521	D63			3581	D63		
3402	D64			3462	D64			3522	D64			3582	D64		
3403	D66			3463	D66			3523	D66			3583	D66		
3404	D73			3464	D73			3524	D73			3584	D73		
3405	D74			3465	D74			3525	D74			3585	D74		
3406	D75			3466	D75			3526	D75			3586	D75		
3407	D76			3467	D76			3527	D76			3587	D76		
3408	D78			3468	D78			3528	D78			3588	D78		
3409	D155			3469	D155			3529	D155			3589	D155		
3410	D182			3470	D182			3530	D182			3590	D182		
3411	D183	3471	D183	3531	D183	3591	D183								
3412	D185	3472	D185	3532	D185	3592	D185								
3413	D246	3473	D246	3533	D246	3593	D246								
3414	D265	3474	D265	3534	D265	3594	D265								
3415	D266	3475	D266	3535	D266	3595	D266								
3416	D267	3476	D267	3536	D267	3596	D267								
3417	D268	3477	D268	3537	D268	3597	D268								
3418	D269	3478	D269	3538	D269	3598	D269								
3419	D296	3479	D296	3539	D296	3599	D296								
3420	D298	3480	D298	3540	D298	3600	D298								

[表1-16]

No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H		
	R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴
3601	D15	D15	Ar82	3661	D15	D18	Ar82	3721	D15	D33	Ar82	3781	D15	D36	Ar82
3602	D16			3662	D16			3722	D16			3782	D16		
3603	D18			3663	D18			3723	D18			3783	D18		
3604	D21			3664	D21			3724	D21			3784	D21		
3605	D33			3665	D33			3725	D33			3785	D33		
3606	D34			3666	D34			3726	D34			3786	D34		
3607	D36			3667	D36			3727	D36			3787	D36		
3608	D45			3668	D45			3728	D45			3788	D45		
3609	D46			3669	D46			3729	D46			3789	D46		
3610	D48			3670	D48			3730	D48			3790	D48		
3611	D63			3671	D63			3731	D63			3791	D63		
3612	D64			3672	D64			3732	D64			3792	D64		
3613	D66			3673	D66			3733	D66			3793	D66		
3614	D73			3674	D73			3734	D73			3794	D73		
3615	D74			3675	D74			3735	D74			3795	D74		
3616	D75			3676	D75			3736	D75			3796	D75		
3617	D76			3677	D76			3737	D76			3797	D76		
3618	D78			3678	D78			3738	D78			3798	D78		
3619	D155			3679	D155			3739	D155			3799	D155		
3620	D182			3680	D182			3740	D182			3800	D182		
3621	D183			3681	D183			3741	D183			3801	D183		
3622	D185			3682	D185			3742	D185			3802	D185		
3623	D246			3683	D246			3743	D246			3803	D246		
3624	D265			3684	D265			3744	D265			3804	D265		
3625	D266			3685	D266			3745	D266			3805	D266		
3626	D267			3686	D267			3746	D267			3806	D267		
3627	D268			3687	D268			3747	D268			3807	D268		
3628	D269			3688	D269			3748	D269			3808	D269		
3629	D296			3689	D296			3749	D296			3809	D296		
3630	D298			3690	D298			3750	D298			3810	D298		
3631	D15	D16	Ar82	3691	D15	D21	Ar82	3751	D15	D34	Ar82	3811	D15	D45	Ar82
3632	D16			3692	D16			3752	D16			3812	D16		
3633	D18			3693	D18			3753	D18			3813	D18		
3634	D21			3694	D21			3754	D21			3814	D21		
3635	D33			3695	D33			3755	D33			3815	D33		
3636	D34			3696	D34			3756	D34			3816	D34		
3637	D36			3697	D36			3757	D36			3817	D36		
3638	D45			3698	D45			3758	D45			3818	D45		
3639	D46			3699	D46			3759	D46			3819	D46		
3640	D48			3700	D48			3760	D48			3820	D48		
3641	D63			3701	D63			3761	D63			3821	D63		
3642	D64			3702	D64			3762	D64			3822	D64		
3643	D66			3703	D66			3763	D66			3823	D66		
3644	D73			3704	D73			3764	D73			3824	D73		
3645	D74			3705	D74			3765	D74			3825	D74		
3646	D75			3706	D75			3766	D75			3826	D75		
3647	D76			3707	D76			3767	D76			3827	D76		
3648	D78			3708	D78			3768	D78			3828	D78		
3649	D155			3709	D155			3769	D155			3829	D155		
3650	D182			3710	D182			3770	D182			3830	D182		
3651	D183			3711	D183			3771	D183			3831	D183		
3652	D185			3712	D185			3772	D185			3832	D185		
3653	D246			3713	D246			3773	D246			3833	D246		
3654	D265			3714	D265			3774	D265			3834	D265		
3655	D266			3715	D266			3775	D266			3835	D266		
3656	D267			3716	D267			3776	D267			3836	D267		
3657	D268			3717	D268			3777	D268			3837	D268		
3658	D269			3718	D269			3778	D269			3838	D269		
3659	D296			3719	D296			3779	D296			3839	D296		
3660	D298			3720	D298			3780	D298			3840	D298		

[表1-17]

No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H		
	R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴
3841	D15	D46	Ar82	3901	D15	D63	Ar82	3961	D15	D66	Ar82	4021	D15	D74	Ar82
3842	D16			3902	D16			3962	D16			4022	D16		
3843	D18			3903	D18			3963	D18			4023	D18		
3844	D21			3904	D21			3964	D21			4024	D21		
3845	D33			3905	D33			3965	D33			4025	D33		
3846	D34			3906	D34			3966	D34			4026	D34		
3847	D36			3907	D36			3967	D36			4027	D36		
3848	D45			3908	D45			3968	D45			4028	D45		
3849	D46			3909	D46			3969	D46			4029	D46		
3850	D48			3910	D48			3970	D48			4030	D48		
3851	D63			3911	D63			3971	D63			4031	D63		
3852	D64			3912	D64			3972	D64			4032	D64		
3853	D66			3913	D66			3973	D66			4033	D66		
3854	D73			3914	D73			3974	D73			4034	D73		
3855	D74			3915	D74			3975	D74			4035	D74		
3856	D75			3916	D75			3976	D75			4036	D75		
3857	D76			3917	D76			3977	D76			4037	D76		
3858	D78			3918	D78			3978	D78			4038	D78		
3859	D155			3919	D155			3979	D155			4039	D155		
3860	D182			3920	D182			3980	D182			4040	D182		
3861	D183			3921	D183			3981	D183			4041	D183		
3862	D185			3922	D185			3982	D185			4042	D185		
3863	D246			3923	D246			3983	D246			4043	D246		
3864	D265			3924	D265			3984	D265			4044	D265		
3865	D266			3925	D266			3985	D266			4045	D266		
3866	D267			3926	D267			3986	D267			4046	D267		
3867	D268			3927	D268			3987	D268			4047	D268		
3868	D269			3928	D269			3988	D269			4048	D269		
3869	D296			3929	D296			3989	D296			4049	D296		
3870	D298			3930	D298			3990	D298			4050	D298		
3871	D15	3931		D15	3991	D15		4051	D15						
3872	D16	3932		D16	3992	D16		4052	D16						
3873	D18	3933		D18	3993	D18		4053	D18						
3874	D21	3934		D21	3994	D21		4054	D21						
3875	D33	3935		D33	3995	D33		4055	D33						
3876	D34	3936		D34	3996	D34		4056	D34						
3877	D36	3937		D36	3997	D36		4057	D36						
3878	D45	3938		D45	3998	D45		4058	D45						
3879	D46	3939		D46	3999	D46		4059	D46						
3880	D48	3940		D48	4000	D48		4060	D48						
3881	D63	3941		D63	4001	D63		4061	D63						
3882	D64	3942		D64	4002	D64		4062	D64						
3883	D66	3943		D66	4003	D66		4063	D66						
3884	D73	3944		D73	4004	D73		4064	D73						
3885	D74	3945		D74	4005	D74		4065	D74						
3886	D75	3946		D75	4006	D75		4066	D75						
3887	D76	3947		D76	4007	D76		4067	D76						
3888	D78	3948		D78	4008	D78		4068	D78						
3889	D155	3949		D155	4009	D155		4069	D155						
3890	D182	3950		D182	4010	D182		4070	D182						
3891	D183	3951		D183	4011	D183		4071	D183						
3892	D185	3952		D185	4012	D185		4072	D185						
3893	D246	3953		D246	4013	D246		4073	D246						
3894	D265	3954		D265	4014	D265		4074	D265						
3895	D266	3955		D266	4015	D266		4075	D266						
3896	D267	3956		D267	4016	D267		4076	D267						
3897	D268	3957		D268	4017	D268		4077	D268						
3898	D269	3958		D269	4018	D269		4078	D269						
3899	D296	3959		D296	4019	D296		4079	D296						
3900	D298	3960		D298	4020	D298		4080	D298						

[表1-18]

No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H						
	R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴				
4081	D15	D76	Ar82	4141	D15	D155	Ar82	4201	D15	D183	Ar82	4261	D15	D246	Ar82				
4082	D16			4142	D16			4202	D16			4262	D16						
4083	D18			4143	D18			4203	D18			4263	D18						
4084	D21			4144	D21			4204	D21			4264	D21						
4085	D33			4145	D33			4205	D33			4265	D33						
4086	D34			4146	D34			4206	D34			4266	D34						
4087	D36			4147	D36			4207	D36			4267	D36						
4088	D45			4148	D45			4208	D45			4268	D45						
4089	D46			4149	D46			4209	D46			4269	D46						
4090	D48			4150	D48			4210	D48			4270	D48						
4091	D63			4151	D63			4211	D63			4271	D63						
4092	D64			4152	D64			4212	D64			4272	D64						
4093	D66			4153	D66			4213	D66			4273	D66						
4094	D73			4154	D73			4214	D73			4274	D73						
4095	D74			4155	D74			4215	D74			4275	D74						
4096	D75			4156	D75			4216	D75			4276	D75						
4097	D76			4157	D76			4217	D76			4277	D76						
4098	D78			4158	D78			4218	D78			4278	D78						
4099	D155			4159	D155			4219	D155			4279	D155						
4100	D182			4160	D182			4220	D182			4280	D182						
4101	D183			4161	D183			4221	D183			4281	D183						
4102	D185			4162	D185			4222	D185			4282	D185						
4103	D246			4163	D246			4223	D246			4283	D246						
4104	D265			4164	D265			4224	D265			4284	D265						
4105	D266			4165	D266			4225	D266			4285	D266						
4106	D267			4166	D267			4226	D267			4286	D267						
4107	D268			4167	D268			4227	D268			4287	D268						
4108	D269			4168	D269			4228	D269			4288	D269						
4109	D296			4169	D296			4229	D296			4289	D296						
4110	D298			4170	D298			4230	D298			4290	D298						
4111	D15	D78		Ar82	4171	D15		D182	Ar82	4231		D15	D185	Ar82		4291	D15	D265	Ar82
4112	D16				4172	D16				4232		D16				4292	D16		
4113	D18				4173	D18				4233		D18				4293	D18		
4114	D21				4174	D21				4234		D21				4294	D21		
4115	D33				4175	D33				4235		D33				4295	D33		
4116	D34				4176	D34				4236		D34				4296	D34		
4117	D36				4177	D36				4237		D36				4297	D36		
4118	D45				4178	D45				4238		D45				4298	D45		
4119	D46				4179	D46				4239		D46				4299	D46		
4120	D48				4180	D48				4240		D48				4300	D48		
4121	D63				4181	D63				4241		D63				4301	D63		
4122	D64				4182	D64				4242		D64				4302	D64		
4123	D66				4183	D66				4243		D66				4303	D66		
4124	D73				4184	D73				4244		D73				4304	D73		
4125	D74				4185	D74				4245		D74				4305	D74		
4126	D75				4186	D75				4246		D75				4306	D75		
4127	D76				4187	D76				4247		D76				4307	D76		
4128	D78				4188	D78				4248		D78				4308	D78		
4129	D155				4189	D155				4249		D155				4309	D155		
4130	D182				4190	D182				4250		D182				4310	D182		
4131	D183				4191	D183				4251		D183				4311	D183		
4132	D185				4192	D185				4252		D185				4312	D185		
4133	D246				4193	D246				4253		D246				4313	D246		
4134	D265				4194	D265				4254		D265				4314	D265		
4135	D266				4195	D266				4255		D266				4315	D266		
4136	D267				4196	D267				4256		D267				4316	D267		
4137	D268				4197	D268				4257		D268				4317	D268		
4138	D269				4198	D269				4258		D269				4318	D269		
4139	D296				4199	D296				4259		D296				4319	D296		
4140	D298				4200	D298				4260		D298				4320	D298		

[表1-19]

No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H		
	R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴
4321	D15	D266	Ar82	4381	D15	D268	Ar82	4441	D15	D296	Ar82	4501	D15	D15	Ar87
4322	D16			4382	D16			4442	D16			4502	D16		
4323	D18			4383	D18			4443	D18			4503	D18		
4324	D21			4384	D21			4444	D21			4504	D21		
4325	D33			4385	D33			4445	D33			4505	D33		
4326	D34			4386	D34			4446	D34			4506	D34		
4327	D36			4387	D36			4447	D36			4507	D36		
4328	D45			4388	D45			4448	D45			4508	D45		
4329	D46			4389	D46			4449	D46			4509	D46		
4330	D48			4390	D48			4450	D48			4510	D48		
4331	D63			4391	D63			4451	D63			4511	D63		
4332	D64			4392	D64			4452	D64			4512	D64		
4333	D66			4393	D66			4453	D66			4513	D66		
4334	D73			4394	D73			4454	D73			4514	D73		
4335	D74			4395	D74			4455	D74			4515	D74		
4336	D75			4396	D75			4456	D75			4516	D75		
4337	D76			4397	D76			4457	D76			4517	D76		
4338	D78			4398	D78			4458	D78			4518	D78		
4339	D155			4399	D155			4459	D155			4519	D155		
4340	D182			4400	D182			4460	D182			4520	D182		
4341	D183			4401	D183			4461	D183			4521	D183		
4342	D185			4402	D185			4462	D185			4522	D185		
4343	D246			4403	D246			4463	D246			4523	D246		
4344	D265			4404	D265			4464	D265			4524	D265		
4345	D266			4405	D266			4465	D266			4525	D266		
4346	D267			4406	D267			4466	D267			4526	D267		
4347	D268			4407	D268			4467	D268			4527	D268		
4348	D269			4408	D269			4468	D269			4528	D269		
4349	D296			4409	D296			4469	D296			4529	D296		
4350	D298			4410	D298			4470	D298			4530	D298		
4351	D15	D267	Ar82	4411	D15	D269	Ar82	4471	D15	D298	Ar82	4531	D15	D16	Ar87
4352	D16			4412	D16			4472	D16			4532	D16		
4353	D18			4413	D18			4473	D18			4533	D18		
4354	D21			4414	D21			4474	D21			4534	D21		
4355	D33			4415	D33			4475	D33			4535	D33		
4356	D34			4416	D34			4476	D34			4536	D34		
4357	D36			4417	D36			4477	D36			4537	D36		
4358	D45			4418	D45			4478	D45			4538	D45		
4359	D46			4419	D46			4479	D46			4539	D46		
4360	D48			4420	D48			4480	D48			4540	D48		
4361	D63			4421	D63			4481	D63			4541	D63		
4362	D64			4422	D64			4482	D64			4542	D64		
4363	D66			4423	D66			4483	D66			4543	D66		
4364	D73			4424	D73			4484	D73			4544	D73		
4365	D74			4425	D74			4485	D74			4545	D74		
4366	D75			4426	D75			4486	D75			4546	D75		
4367	D76			4427	D76			4487	D76			4547	D76		
4368	D78			4428	D78			4488	D78			4548	D78		
4369	D155			4429	D155			4489	D155			4549	D155		
4370	D182			4430	D182			4490	D182			4550	D182		
4371	D183			4431	D183			4491	D183			4551	D183		
4372	D185			4432	D185			4492	D185			4552	D185		
4373	D246			4433	D246			4493	D246			4553	D246		
4374	D265			4434	D265			4494	D265			4554	D265		
4375	D266			4435	D266			4495	D266			4555	D266		
4376	D267			4436	D267			4496	D267			4556	D267		
4377	D268			4437	D268			4497	D268			4557	D268		
4378	D269			4438	D269			4498	D269			4558	D269		
4379	D296			4439	D296			4499	D296			4559	D296		
4380	D298			4440	D298			4500	D298			4560	D298		

[表1-20]

No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H						
	R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴				
4561	D15	D18	Ar87	4621	D15	D33	Ar87	4681	D15	D36	Ar87	4741	D15	D46	Ar87				
4562	D16			4622	D16			4682	D16			4742	D16						
4563	D18			4623	D18			4683	D18			4743	D18						
4564	D21			4624	D21			4684	D21			4744	D21						
4565	D33			4625	D33			4685	D33			4745	D33						
4566	D34			4626	D34			4686	D34			4746	D34						
4567	D36			4627	D36			4687	D36			4747	D36						
4568	D45			4628	D45			4688	D45			4748	D45						
4569	D46			4629	D46			4689	D46			4749	D46						
4570	D48			4630	D48			4690	D48			4750	D48						
4571	D63			4631	D63			4691	D63			4751	D63						
4572	D64			4632	D64			4692	D64			4752	D64						
4573	D66			4633	D66			4693	D66			4753	D66						
4574	D73			4634	D73			4694	D73			4754	D73						
4575	D74			4635	D74			4695	D74			4755	D74						
4576	D75			4636	D75			4696	D75			4756	D75						
4577	D76			4637	D76			4697	D76			4757	D76						
4578	D78			4638	D78			4698	D78			4758	D78						
4579	D155			4639	D155			4699	D155			4759	D155						
4580	D182			4640	D182			4700	D182			4760	D182						
4581	D183			4641	D183			4701	D183			4761	D183						
4582	D185			4642	D185			4702	D185			4762	D185						
4583	D246			4643	D246			4703	D246			4763	D246						
4584	D265			4644	D265			4704	D265			4764	D265						
4585	D266			4645	D266			4705	D266			4765	D266						
4586	D267			4646	D267			4706	D267			4766	D267						
4587	D268			4647	D268			4707	D268			4767	D268						
4588	D269			4648	D269			4708	D269			4768	D269						
4589	D296			4649	D296			4709	D296			4769	D296						
4590	D298			4650	D298			4710	D298			4770	D298						
4591	D15	D21		Ar87	4651	D15		D34	Ar87	4711		D15	D45	Ar87		4771	D15	D48	Ar87
4592	D16				4652	D16				4712		D16				4772	D16		
4593	D18				4653	D18				4713		D18				4773	D18		
4594	D21				4654	D21				4714		D21				4774	D21		
4595	D33				4655	D33				4715		D33				4775	D33		
4596	D34				4656	D34				4716		D34				4776	D34		
4597	D36				4657	D36				4717		D36				4777	D36		
4598	D45				4658	D45				4718		D45				4778	D45		
4599	D46				4659	D46				4719		D46				4779	D46		
4600	D48				4660	D48				4720		D48				4780	D48		
4601	D63				4661	D63				4721		D63				4781	D63		
4602	D64				4662	D64				4722		D64				4782	D64		
4603	D66				4663	D66				4723		D66				4783	D66		
4604	D73				4664	D73				4724		D73				4784	D73		
4605	D74				4665	D74				4725		D74				4785	D74		
4606	D75				4666	D75				4726		D75				4786	D75		
4607	D76				4667	D76				4727		D76				4787	D76		
4608	D78				4668	D78				4728		D78				4788	D78		
4609	D155				4669	D155				4729		D155				4789	D155		
4610	D182				4670	D182				4730		D182				4790	D182		
4611	D183				4671	D183				4731		D183				4791	D183		
4612	D185				4672	D185				4732		D185				4792	D185		
4613	D246				4673	D246				4733		D246				4793	D246		
4614	D265				4674	D265				4734		D265				4794	D265		
4615	D266				4675	D266				4735		D266				4795	D266		
4616	D267				4676	D267				4736		D267				4796	D267		
4617	D268				4677	D268				4737		D268				4797	D268		
4618	D269				4678	D269				4738		D269				4798	D269		
4619	D296				4679	D296				4739		D296				4799	D296		
4620	D298				4680	D298				4740		D298				4800	D298		

[表1-21]

No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H		
	R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴
4801	D15	D63		4861	D15	D66		4921	D15	D74		4981	D15	D76	
4802	D16			4862	D16			4922	D16			4982	D16		
4803	D18			4863	D18			4923	D18			4983	D18		
4804	D21			4864	D21			4924	D21			4984	D21		
4805	D33			4865	D33			4925	D33			4985	D33		
4806	D34			4866	D34			4926	D34			4986	D34		
4807	D36			4867	D36			4927	D36			4987	D36		
4808	D45			4868	D45			4928	D45			4988	D45		
4809	D46			4869	D46			4929	D46			4989	D46		
4810	D48			4870	D48			4930	D48			4990	D48		
4811	D63			4871	D63			4931	D63			4991	D63		
4812	D64			4872	D64			4932	D64			4992	D64		
4813	D66			4873	D66			4933	D66			4993	D66		
4814	D73			4874	D73			4934	D73			4994	D73		
4815	D74			4875	D74			4935	D74			4995	D74		
4816	D75			4876	D75			4936	D75			4996	D75		
4817	D76			4877	D76			4937	D76			4997	D76		
4818	D78			4878	D78			4938	D78			4998	D78		
4819	D155			4879	D155			4939	D155			4999	D155		
4820	D182			4880	D182			4940	D182			5000	D182		
4821	D183			4881	D183			4941	D183			5001	D183		
4822	D185			4882	D185			4942	D185			5002	D185		
4823	D246			4883	D246			4943	D246			5003	D246		
4824	D265			4884	D265			4944	D265			5004	D265		
4825	D266			4885	D266			4945	D266			5005	D266		
4826	D267			4886	D267			4946	D267			5006	D267		
4827	D268			4887	D268			4947	D268			5007	D268		
4828	D269			4888	D269			4948	D269			5008	D269		
4829	D296			4889	D296			4949	D296			5009	D296		
4830	D298			4890	D298			4950	D298			5010	D298		
4831	D15	D64	Ar87	4891	D15	D73	Ar87	4951	D15	D75	Ar87	5011	D15	D78	Ar87
4832	D16			4892	D16			4952	D16			5012	D16		
4833	D18			4893	D18			4953	D18			5013	D18		
4834	D21			4894	D21			4954	D21			5014	D21		
4835	D33			4895	D33			4955	D33			5015	D33		
4836	D34			4896	D34			4956	D34			5016	D34		
4837	D36			4897	D36			4957	D36			5017	D36		
4838	D45			4898	D45			4958	D45			5018	D45		
4839	D46			4899	D46			4959	D46			5019	D46		
4840	D48			4900	D48			4960	D48			5020	D48		
4841	D63			4901	D63			4961	D63			5021	D63		
4842	D64			4902	D64			4962	D64			5022	D64		
4843	D66			4903	D66			4963	D66			5023	D66		
4844	D73			4904	D73			4964	D73			5024	D73		
4845	D74			4905	D74			4965	D74			5025	D74		
4846	D75			4906	D75			4966	D75			5026	D75		
4847	D76			4907	D76			4967	D76			5027	D76		
4848	D78			4908	D78			4968	D78			5028	D78		
4849	D155			4909	D155			4969	D155			5029	D155		
4850	D182			4910	D182			4970	D182			5030	D182		
4851	D183			4911	D183			4971	D183			5031	D183		
4852	D185			4912	D185			4972	D185			5032	D185		
4853	D246			4913	D246			4973	D246			5033	D246		
4854	D265			4914	D265			4974	D265			5034	D265		
4855	D266			4915	D266			4975	D266			5035	D266		
4856	D267			4916	D267			4976	D267			5036	D267		
4857	D268			4917	D268			4977	D268			5037	D268		
4858	D269			4918	D269			4978	D269			5038	D269		
4859	D296			4919	D296			4979	D296			5039	D296		
4860	D298			4920	D298			4980	D298			5040	D298		

[表1-22]

No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H		
	R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴
5041	D15			5101	D15			5161	D15			5221	D15		
5042	D16			5102	D16			5162	D16			5222	D16		
5043	D18			5103	D18			5163	D18			5223	D18		
5044	D21			5104	D21			5164	D21			5224	D21		
5045	D33			5105	D33			5165	D33			5225	D33		
5046	D34			5106	D34			5166	D34			5226	D34		
5047	D36			5107	D36			5167	D36			5227	D36		
5048	D45			5108	D45			5168	D45			5228	D45		
5049	D46			5109	D46			5169	D46			5229	D46		
5050	D48			5110	D48			5170	D48			5230	D48		
5051	D63			5111	D63			5171	D63			5231	D63		
5052	D64			5112	D64			5172	D64			5232	D64		
5053	D66			5113	D66			5173	D66			5233	D66		
5054	D73			5114	D73			5174	D73			5234	D73		
5055	D74			5115	D74			5175	D74			5235	D74		
5056	D75			5116	D75			5176	D75			5236	D75		
5057	D76			5117	D76			5177	D76			5237	D76		
5058	D78			5118	D78			5178	D78			5238	D78		
5059	D155			5119	D155			5179	D155			5239	D155		
5060	D182			5120	D182			5180	D182			5240	D182		
5061	D183			5121	D183			5181	D183			5241	D183		
5062	D185			5122	D185			5182	D185			5242	D185		
5063	D246			5123	D246			5183	D246			5243	D246		
5064	D265			5124	D265			5184	D265			5244	D265		
5065	D266			5125	D266			5185	D266			5245	D266		
5066	D267			5126	D267			5186	D267			5246	D267		
5067	D268			5127	D268			5187	D268			5247	D268		
5068	D269			5128	D269			5188	D269			5248	D269		
5069	D296			5129	D296			5189	D296			5249	D296		
5070	D298			5130	D298			5190	D298			5250	D298		
5071	D15			5131	D15			5191	D15			5251	D15		
5072	D16			5132	D16			5192	D16			5252	D16		
5073	D18			5133	D18			5193	D18			5253	D18		
5074	D21			5134	D21			5194	D21			5254	D21		
5075	D33			5135	D33			5195	D33			5255	D33		
5076	D34			5136	D34			5196	D34			5256	D34		
5077	D36			5137	D36			5197	D36			5257	D36		
5078	D45			5138	D45			5198	D45			5258	D45		
5079	D46			5139	D46			5199	D46			5259	D46		
5080	D48			5140	D48			5200	D48			5260	D48		
5081	D63			5141	D63			5201	D63			5261	D63		
5082	D64			5142	D64			5202	D64			5262	D64		
5083	D66			5143	D66			5203	D66			5263	D66		
5084	D73			5144	D73			5204	D73			5264	D73		
5085	D74			5145	D74			5205	D74			5265	D74		
5086	D75			5146	D75			5206	D75			5266	D75		
5087	D76			5147	D76			5207	D76			5267	D76		
5088	D78			5148	D78			5208	D78			5268	D78		
5089	D155			5149	D155			5209	D155			5269	D155		
5090	D182			5150	D182			5210	D182			5270	D182		
5091	D183			5151	D183			5211	D183			5271	D183		
5092	D185			5152	D185			5212	D185			5272	D185		
5093	D246			5153	D246			5213	D246			5273	D246		
5094	D265			5154	D265			5214	D265			5274	D265		
5095	D266			5155	D266			5215	D266			5275	D266		
5096	D267			5156	D267			5216	D267			5276	D267		
5097	D268			5157	D268			5217	D268			5277	D268		
5098	D269			5158	D269			5218	D269			5278	D269		
5099	D296			5159	D296			5219	D296			5279	D296		
5100	D298			5160	D298			5220	D298			5280	D298		

[表1-23]

No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H		
	R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴
5281	D15	D268	Ar87	5341	D15	D296	Ar87	5401	D15	D15	Ar88	5461	D15	D18	Ar88
5282	D16			5342	D16			5402	D16			5462	D16		
5283	D18			5343	D18			5403	D18			5463	D18		
5284	D21			5344	D21			5404	D21			5464	D21		
5285	D33			5345	D33			5405	D33			5465	D33		
5286	D34			5346	D34			5406	D34			5466	D34		
5287	D36			5347	D36			5407	D36			5467	D36		
5288	D45			5348	D45			5408	D45			5468	D45		
5289	D46			5349	D46			5409	D46			5469	D46		
5290	D48			5350	D48			5410	D48			5470	D48		
5291	D63			5351	D63			5411	D63			5471	D63		
5292	D64			5352	D64			5412	D64			5472	D64		
5293	D66			5353	D66			5413	D66			5473	D66		
5294	D73			5354	D73			5414	D73			5474	D73		
5295	D74			5355	D74			5415	D74			5475	D74		
5296	D75			5356	D75			5416	D75			5476	D75		
5297	D76			5357	D76			5417	D76			5477	D76		
5298	D78			5358	D78			5418	D78			5478	D78		
5299	D155			5359	D155			5419	D155			5479	D155		
5300	D182			5360	D182			5420	D182			5480	D182		
5301	D183			5361	D183			5421	D183			5481	D183		
5302	D185			5362	D185			5422	D185			5482	D185		
5303	D246			5363	D246			5423	D246			5483	D246		
5304	D265			5364	D265			5424	D265			5484	D265		
5305	D266			5365	D266			5425	D266			5485	D266		
5306	D267			5366	D267			5426	D267			5486	D267		
5307	D268			5367	D268			5427	D268			5487	D268		
5308	D269			5368	D269			5428	D269			5488	D269		
5309	D296			5369	D296			5429	D296			5489	D296		
5310	D298			5370	D298			5430	D298			5490	D298		
5311	D15	5371		D15	5431	D15		5491	D15						
5312	D16	5372		D16	5432	D16		5492	D16						
5313	D18	5373		D18	5433	D18		5493	D18						
5314	D21	5374		D21	5434	D21		5494	D21						
5315	D33	5375		D33	5435	D33		5495	D33						
5316	D34	5376		D34	5436	D34		5496	D34						
5317	D36	5377		D36	5437	D36		5497	D36						
5318	D45	5378		D45	5438	D45		5498	D45						
5319	D46	5379		D46	5439	D46		5499	D46						
5320	D48	5380		D48	5440	D48		5500	D48						
5321	D63	5381		D63	5441	D63		5501	D63						
5322	D64	5382		D64	5442	D64		5502	D64						
5323	D66	5383		D66	5443	D66		5503	D66						
5324	D73	5384		D73	5444	D73		5504	D73						
5325	D74	5385		D74	5445	D74		5505	D74						
5326	D75	5386		D75	5446	D75		5506	D75						
5327	D76	5387		D76	5447	D76		5507	D76						
5328	D78	5388		D78	5448	D78		5508	D78						
5329	D155	5389		D155	5449	D155		5509	D155						
5330	D182	5390		D182	5450	D182		5510	D182						
5331	D183	5391		D183	5451	D183		5511	D183						
5332	D185	5392		D185	5452	D185		5512	D185						
5333	D246	5393		D246	5453	D246		5513	D246						
5334	D265	5394		D265	5454	D265		5514	D265						
5335	D266	5395		D266	5455	D266		5515	D266						
5336	D267	5396		D267	5456	D267		5516	D267						
5337	D268	5397		D268	5457	D268		5517	D268						
5338	D269	5398		D269	5458	D269		5518	D269						
5339	D296	5399		D296	5459	D296		5519	D296						
5340	D298	5400		D298	5460	D298		5520	D298						

[表1-24]

No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H		
	R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴
5521	D15	D33	Ar88	5581	D15	D36	Ar88	5641	D15	D46	Ar88	5701	D15	D63	Ar88
5522	D16			5582	D16			5642	D16			5702	D16		
5523	D18			5583	D18			5643	D18			5703	D18		
5524	D21			5584	D21			5644	D21			5704	D21		
5525	D33			5585	D33			5645	D33			5705	D33		
5526	D34			5586	D34			5646	D34			5706	D34		
5527	D36			5587	D36			5647	D36			5707	D36		
5528	D45			5588	D45			5648	D45			5708	D45		
5529	D46			5589	D46			5649	D46			5709	D46		
5530	D48			5590	D48			5650	D48			5710	D48		
5531	D63			5591	D63			5651	D63			5711	D63		
5532	D64			5592	D64			5652	D64			5712	D64		
5533	D66			5593	D66			5653	D66			5713	D66		
5534	D73			5594	D73			5654	D73			5714	D73		
5535	D74			5595	D74			5655	D74			5715	D74		
5536	D75			5596	D75			5656	D75			5716	D75		
5537	D76			5597	D76			5657	D76			5717	D76		
5538	D78			5598	D78			5658	D78			5718	D78		
5539	D155			5599	D155			5659	D155			5719	D155		
5540	D182			5600	D182			5660	D182			5720	D182		
5541	D183	D34	Ar88	5601	D183	D45	Ar88	5661	D183	D48	Ar88	5721	D183	D64	Ar88
5542	D185			5602	D185			5662	D185			5722	D185		
5543	D246			5603	D246			5663	D246			5723	D246		
5544	D265			5604	D265			5664	D265			5724	D265		
5545	D266			5605	D266			5665	D266			5725	D266		
5546	D267			5606	D267			5666	D267			5726	D267		
5547	D268			5607	D268			5667	D268			5727	D268		
5548	D269			5608	D269			5668	D269			5728	D269		
5549	D296			5609	D296			5669	D296			5729	D296		
5550	D298			5610	D298			5670	D298			5730	D298		
5551	D15			5611	D15			5671	D15			5731	D15		
5552	D16			5612	D16			5672	D16			5732	D16		
5553	D18			5613	D18			5673	D18			5733	D18		
5554	D21			5614	D21			5674	D21			5734	D21		
5555	D33			5615	D33			5675	D33			5735	D33		
5556	D34			5616	D34			5676	D34			5736	D34		
5557	D36			5617	D36			5677	D36			5737	D36		
5558	D45			5618	D45			5678	D45			5738	D45		
5559	D46			5619	D46			5679	D46			5739	D46		
5560	D48			5620	D48			5680	D48			5740	D48		
5561	D63			5621	D63			5681	D63			5741	D63		
5562	D64			5622	D64			5682	D64			5742	D64		
5563	D66			5623	D66			5683	D66			5743	D66		
5564	D73			5624	D73			5684	D73			5744	D73		
5565	D74			5625	D74			5685	D74			5745	D74		
5566	D75			5626	D75			5686	D75			5746	D75		
5567	D76			5627	D76			5687	D76			5747	D76		
5568	D78			5628	D78			5688	D78			5748	D78		
5569	D155			5629	D155			5689	D155			5749	D155		
5570	D182			5630	D182			5690	D182			5750	D182		
5571	D183			5631	D183			5691	D183			5751	D183		
5572	D185			5632	D185			5692	D185			5752	D185		
5573	D246			5633	D246			5693	D246			5753	D246		
5574	D265			5634	D265			5694	D265			5754	D265		
5575	D266			5635	D266			5695	D266			5755	D266		
5576	D267			5636	D267			5696	D267			5756	D267		
5577	D268			5637	D268			5697	D268			5757	D268		
5578	D269			5638	D269			5698	D269			5758	D269		
5579	D296			5639	D296			5699	D296			5759	D296		
5580	D298			5640	D298			5700	D298			5760	D298		

[表1-25]

No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H		
	R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴
5761	D15	D66	Ar88	5821	D15	D74	Ar88	5881	D15	D76	Ar88	5941	D15	D155	Ar88
5762	D16			5822	D16			5882	D16			5942	D16		
5763	D18			5823	D18			5883	D18			5943	D18		
5764	D21			5824	D21			5884	D21			5944	D21		
5765	D33			5825	D33			5885	D33			5945	D33		
5766	D34			5826	D34			5886	D34			5946	D34		
5767	D36			5827	D36			5887	D36			5947	D36		
5768	D45			5828	D45			5888	D45			5948	D45		
5769	D46			5829	D46			5889	D46			5949	D46		
5770	D48			5830	D48			5890	D48			5950	D48		
5771	D63			5831	D63			5891	D63			5951	D63		
5772	D64			5832	D64			5892	D64			5952	D64		
5773	D66			5833	D66			5893	D66			5953	D66		
5774	D73			5834	D73			5894	D73			5954	D73		
5775	D74			5835	D74			5895	D74			5955	D74		
5776	D75			5836	D75			5896	D75			5956	D75		
5777	D76			5837	D76			5897	D76			5957	D76		
5778	D78			5838	D78			5898	D78			5958	D78		
5779	D155			5839	D155			5899	D155			5959	D155		
5780	D182			5840	D182			5900	D182			5960	D182		
5781	D183	5841		D183	5901	D183		5961	D183						
5782	D185	5842		D185	5902	D185		5962	D185						
5783	D246	5843		D246	5903	D246		5963	D246						
5784	D265	5844		D265	5904	D265		5964	D265						
5785	D266	5845		D266	5905	D266		5965	D266						
5786	D267	5846		D267	5906	D267		5966	D267						
5787	D268	5847		D268	5907	D268		5967	D268						
5788	D269	5848		D269	5908	D269		5968	D269						
5789	D296	5849		D296	5909	D296		5969	D296						
5790	D298	5850		D298	5910	D298		5970	D298						
5791	D15	5851		D15	5911	D15		5971	D15						
5792	D16	5852		D16	5912	D16		5972	D16						
5793	D18	5853		D18	5913	D18		5973	D18						
5794	D21	5854		D21	5914	D21		5974	D21						
5795	D33	5855		D33	5915	D33		5975	D33						
5796	D34	5856		D34	5916	D34		5976	D34						
5797	D36	5857		D36	5917	D36		5977	D36						
5798	D45	5858		D45	5918	D45		5978	D45						
5799	D46	5859		D46	5919	D46		5979	D46						
5800	D48	5860		D48	5920	D48		5980	D48						
5801	D63	5861		D63	5921	D63		5981	D63						
5802	D64	5862		D64	5922	D64		5982	D64						
5803	D66	5863		D66	5923	D66		5983	D66						
5804	D73	5864		D73	5924	D73		5984	D73						
5805	D74	5865		D74	5925	D74		5985	D74						
5806	D75	5866		D75	5926	D75		5986	D75						
5807	D76	5867		D76	5927	D76		5987	D76						
5808	D78	5868		D78	5928	D78		5988	D78						
5809	D155	5869		D155	5929	D155		5989	D155						
5810	D182	5870		D182	5930	D182		5990	D182						
5811	D183	5871		D183	5931	D183		5991	D183						
5812	D185	5872		D185	5932	D185		5992	D185						
5813	D246	5873		D246	5933	D246		5993	D246						
5814	D265	5874		D265	5934	D265		5994	D265						
5815	D266	5875		D266	5935	D266		5995	D266						
5816	D267	5876		D267	5936	D267		5996	D267						
5817	D268	5877		D268	5937	D268		5997	D268						
5818	D269	5878		D269	5938	D269		5998	D269						
5819	D296	5879		D296	5939	D296		5999	D296						
5820	D298	5880		D298	5940	D298		6000	D298						

[表1-26]

No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H			No.	R ¹ = H		
	R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴		R ²	R ³	R ⁴
6001	D15	D183	Ar88	6061	D15	D246	Ar88	6121	D15	D266	Ar88	6181	D15	D268	Ar88
6002	D16			6062	D16			6122	D16			6182	D16		
6003	D18			6063	D18			6123	D18			6183	D18		
6004	D21			6064	D21			6124	D21			6184	D21		
6005	D33			6065	D33			6125	D33			6185	D33		
6006	D34			6066	D34			6126	D34			6186	D34		
6007	D36			6067	D36			6127	D36			6187	D36		
6008	D45			6068	D45			6128	D45			6188	D45		
6009	D46			6069	D46			6129	D46			6189	D46		
6010	D48			6070	D48			6130	D48			6190	D48		
6011	D63			6071	D63			6131	D63			6191	D63		
6012	D64			6072	D64			6132	D64			6192	D64		
6013	D66			6073	D66			6133	D66			6193	D66		
6014	D73			6074	D73			6134	D73			6194	D73		
6015	D74			6075	D74			6135	D74			6195	D74		
6016	D75			6076	D75			6136	D75			6196	D75		
6017	D76			6077	D76			6137	D76			6197	D76		
6018	D78			6078	D78			6138	D78			6198	D78		
6019	D155			6079	D155			6139	D155			6199	D155		
6020	D182			6080	D182			6140	D182			6200	D182		
6021	D183			6081	D183			6141	D183			6201	D183		
6022	D185			6082	D185			6142	D185			6202	D185		
6023	D246			6083	D246			6143	D246			6203	D246		
6024	D265			6084	D265			6144	D265			6204	D265		
6025	D266			6085	D266			6145	D266			6205	D266		
6026	D267			6086	D267			6146	D267			6206	D267		
6027	D268			6087	D268			6147	D268			6207	D268		
6028	D269			6088	D269			6148	D269			6208	D269		
6029	D296			6089	D296			6149	D296			6209	D296		
6030	D298			6090	D298			6150	D298			6210	D298		
6031	D15	D185	Ar88	6091	D15	D265	Ar88	6151	D15	D267	Ar88	6211	D15	D269	Ar88
6032	D16			6092	D16			6152	D16			6212	D16		
6033	D18			6093	D18			6153	D18			6213	D18		
6034	D21			6094	D21			6154	D21			6214	D21		
6035	D33			6095	D33			6155	D33			6215	D33		
6036	D34			6096	D34			6156	D34			6216	D34		
6037	D36			6097	D36			6157	D36			6217	D36		
6038	D45			6098	D45			6158	D45			6218	D45		
6039	D46			6099	D46			6159	D46			6219	D46		
6040	D48			6100	D48			6160	D48			6220	D48		
6041	D63			6101	D63			6161	D63			6221	D63		
6042	D64			6102	D64			6162	D64			6222	D64		
6043	D66			6103	D66			6163	D66			6223	D66		
6044	D73			6104	D73			6164	D73			6224	D73		
6045	D74			6105	D74			6165	D74			6225	D74		
6046	D75			6106	D75			6166	D75			6226	D75		
6047	D76			6107	D76			6167	D76			6227	D76		
6048	D78			6108	D78			6168	D78			6228	D78		
6049	D155			6109	D155			6169	D155			6229	D155		
6050	D182			6110	D182			6170	D182			6230	D182		
6051	D183			6111	D183			6171	D183			6231	D183		
6052	D185			6112	D185			6172	D185			6232	D185		
6053	D246			6113	D246			6173	D246			6233	D246		
6054	D265			6114	D265			6174	D265			6234	D265		
6055	D266			6115	D266			6175	D266			6235	D266		
6056	D267			6116	D267			6176	D267			6236	D267		
6057	D268			6117	D268			6177	D268			6237	D268		
6058	D269			6118	D269			6178	D269			6238	D269		
6059	D296			6119	D296			6179	D296			6239	D296		
6060	D298			6120	D298			6180	D298			6240	D298		

[表1-27]

No.	R ¹ = H		
	R ²	R ³	R ⁴
6241	D15	D296	Ar88
6242	D16		
6243	D18		
6244	D21		
6245	D33		
6246	D34		
6247	D36		
6248	D45		
6249	D46		
6250	D48		
6251	D63		
6252	D64		
6253	D66		
6254	D73		
6255	D74		
6256	D75		
6257	D76		
6258	D78		
6259	D155		
6260	D182		
6261	D183		
6262	D185		
6263	D246		
6264	D265		
6265	D266		
6266	D267		
6267	D268		
6268	D269		
6269	D296		
6270	D298		
6271	D15	D298	
6272	D16		
6273	D18		
6274	D21		
6275	D33		
6276	D34		
6277	D36		
6278	D45		
6279	D46		
6280	D48		
6281	D63		
6282	D64		
6283	D66		
6284	D73		
6285	D74		
6286	D75		
6287	D76		
6288	D78		
6289	D155		
6290	D182		
6291	D183		
6292	D185		
6293	D246		
6294	D265		
6295	D266		
6296	D267		
6297	D268		
6298	D269		
6299	D296		
6300	D298		

[0035] 化合物 1 ～ 6 3 0 0 における R^1 の H を D へ置換した化合物を、順に化合物 6 3 0 1 ～ 1 2 6 0 0 としてここに開示する。化合物 1 ～ 6 3 0 0 における R^1 、 R^4 を入れ替えて R^4 、 R^1 としたものを化合物 1 2 6 0 1 ～ 1 8 9 0 0 としてここに開示する。化合物 1 2 6 0 1 ～ 1 8 9 0 0 における R^2 の H を D へ置換した化合物を、順に化合物 1 8 9 0 1 ～ 2 5 2 0 0 としてここに開示する。化合物 1 ～ 6 3 0 0 における R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 を、順に R^3 、 R^1 、 R^4 、 R^2 としたものを化合物 2 5 2 0 1 ～ 3 1 5 0 0 としてここに開示する。化合物 2 5 2 0 1 ～ 3 1 5 0 0 における R^3 の H を D へ置換した化合物を、順に化合物 3 1 5 0 1 ～ 3 7 8 0 0 としてここに開示する。化合物 1 ～ 6 3 0 0 における R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 を、順に R^4 、 R^1 、 R^2 、 R^3 、としたものを化合物 3 7 8 0 1 ～ 4 4 1 0 0 としてここに開示する。化合物 3 7 8 0 1 ～ 4 4 1 0 0 における R^4 の H を D へ置換した化合物を、順に化合物 4 4 1 0 1 ～ 5 0 4 0 0 としてここに開示する。化合物 1 ～ 6 3 0 0 における R^1 、 R^3 、 R^4 を入れ替えて R^3 、 R^4 、 R^1 としたものを化合物 5 0 4 0 1 ～ 5 6 7 0 0 としてここに開示する。化合物 5 0 4 0 1 ～ 5 6 7 0 0 における R^3 の H を D へ置換した化合物を、順に化合物 5 6 7 0 1 ～ 6 3 0 0 0 としてここに開示する。化合物 1 ～ 6 3 0 0 における R^3 、 R^4 を入れ替えて R^4 、 R^3 としたものを化合物 6 3 0 0 1 ～ 6 9 3 0 0 としてここに開示する。化合物 6 3 0 0 1 ～ 6 9 3 0 0 における R^1 の H を D へ置換した化合物を、順に化合物 6 9 3 0 1 ～ 7 5 6 0 0 としてここに開示する。以上の化合物 9 0 1 ～ 7 5 6 0 0 は各構造が個別に特定されており、本明細書においてそれぞれ具体的な化合物として記載されている。

[0036] 一般式 (1) で表される化合物の分子量は、例えば一般式 (1) で表される化合物を含む有機層を蒸着法により製膜して利用することを意図する場合には、1 5 0 0 以下であることが好ましく、1 2 0 0 以下であることがより好ましく、1 0 0 0 以下であることがさらに好ましく、9 0 0 以下であることがさらに好ましい。分子量の下限値は、一般式 (1) で表される最小化合物の分子量である。好ましくは 6 2 4 以上である。

一般式（１）で表される化合物は、分子量にかかわらず塗布法で成膜してもよい。塗布法を用いれば、分子量が比較的大きな化合物であっても成膜することが可能である。一般式（１）で表される化合物は、シアノベンゼン系化合物の中では有機溶媒に溶解しやすいという利点がある。このため、一般式（１）で表される化合物は塗布法を適用しやすいうえ、精製して純度を高めやすい。

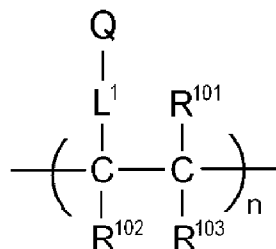
[0037] 本発明を応用して、分子内に一般式（１）で表される構造を複数個含む化合物を、発光材料として用いることも考えられる。

例えば、一般式（１）で表される構造中にあらかじめ重合性基を存在させておいて、その重合性基を重合させることによって得られる重合体を、発光材料として用いることが考えられる。具体的には、一般式（１）の A^r 、 D^1 、 D^2 のいずれかに重合性官能基を含むモノマーを用意して、これを単独で重合させるか、他のモノマーとともに共重合させることにより、繰り返し単位を有する重合体を得て、その重合体を発光材料として用いることが考えられる。あるいは、一般式（１）で表される構造を有する化合物どうしをカップリングさせることにより、二量体や三量体を得て、それらを発光材料として用いることも考えられる。

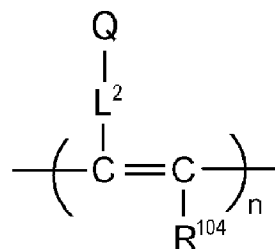
一般式（１）で表される構造を含む繰り返し単位を有する重合体の例として、下記一般式（４）または（５）で表される構造を含む重合体を挙げることができる。

[化19]

一般式（４）



一般式（５）



[0038] 一般式（４）または（５）において、 Q は一般式（１）で表される構造を含む基を表し、 L^1 および L^2 は連結基を表す。連結基の炭素数は、好ましく

は0～20であり、より好ましくは1～15であり、さらに好ましくは2～10である。連結基は $-X^{11}-L^{11}-$ で表される構造を有するものであることが好ましい。ここで、 X^{11} は酸素原子または硫黄原子を表し、酸素原子であることが好ましい。 L^{11} は連結基を表し、置換もしくは無置換のアルキレン基、または置換もしくは無置換のアリーレン基であることが好ましく、炭素数1～10の置換もしくは無置換のアルキレン基、または置換もしくは無置換のフェニレン基であることがより好ましい。

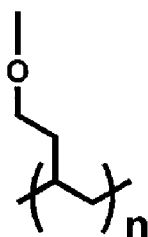
一般式(4)または(5)において、 R^{101} 、 R^{102} 、 R^{103} および R^{104} は、各々独立に置換基を表す。好ましくは、炭素数1～6の置換もしくは無置換のアルキル基、炭素数1～6の置換もしくは無置換のアルコキシ基、ハロゲン原子であり、より好ましくは炭素数1～3の無置換のアルキル基、炭素数1～3の無置換のアルコキシ基、フッ素原子、塩素原子であり、さらに好ましくは炭素数1～3の無置換のアルキル基、炭素数1～3の無置換のアルコキシ基である。

L^1 および L^2 で表される連結基は、Qを構成する一般式(1)の A^r 、 D^1 、 D^2 のいずれかに結合することができる。1つのQに対して連結基が2つ以上連結して架橋構造や網目構造を形成していてもよい。

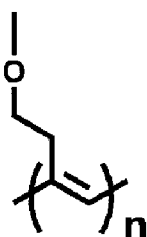
[0039] 繰り返し単位の具体的な構造例として、下記式(6)～(9)で表される構造を挙げることができる。

[化20]

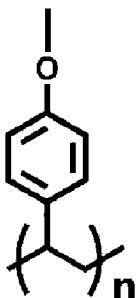
式(6)



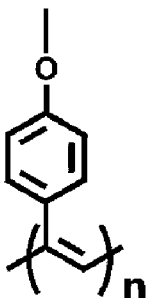
式(7)



式(8)

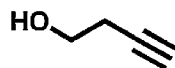
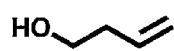


式(9)



[0040] これらの式(6)～(9)を含む繰り返し単位を有する重合体は、一般式(1)のA^r、D¹、D²のいずれかにヒドロキシ基を導入しておき、それをリンカーとして下記化合物を反応させて重合性基を導入し、その重合性基を重合させることにより合成することができる。

[化21]



[0041] 分子内に一般式(1)で表される構造を含む重合体は、一般式(1)で表される構造を有する繰り返し単位のみからなる重合体であってもよいし、それ以外の構造を有する繰り返し単位を含む重合体であってもよい。また、重合体の中に含まれる一般式(1)で表される構造を有する繰り返し単位は、

単一種であってもよいし、2種以上であってもよい。一般式(1)で表される構造を有さない繰り返し単位としては、通常の共重合に用いられるモノマーから誘導されるものを挙げることができる。例えば、エチレン、スチレンなどのエチレン性不飽和結合を有するモノマーから誘導される繰り返し単位を挙げることができる。

[0042] ある実施形態では、一般式(1)で表される化合物は発光材料である。

ある実施形態では、一般式(1)で表される化合物は、遅延蛍光を発することができる化合物である。

本開示のある実施形態では、一般式(1)で表される化合物は、熱的または電子的手段で励起されるとき、UV領域、可視スペクトルのうち青色、緑色、黄色、オレンジ色、赤色領域(例えば約420nm～約500nm、約500nm～約600nmまたは約600nm～約700nm)または近赤外線領域で光を発することができる。

本開示のある実施形態では、一般式(1)で表される化合物は、熱的または電子的手段で励起されるとき、可視スペクトルのうち赤色またはオレンジ色領域(例えば約620nm～約780nm、約650nm)で光を発することができる。

本開示のある実施形態では、一般式(1)で表される化合物は、熱的または電子的手段で励起されるとき、可視スペクトルのうちオレンジ色または黄色領域(例えば約570nm～約620nm、約590nm、約570nm)で光を発することができる。

本開示のある実施形態では、一般式(1)で表される化合物は、熱的または電子的手段で励起されるとき、可視スペクトルのうち緑色領域(例えば約490nm～約575nm、約510nm)で光を発することができる。

本開示のある実施形態では、一般式(1)で表される化合物は、熱的または電子的手段で励起されるとき、可視スペクトルのうち青色領域(例えば約400nm～約490nm、約475nm)で光を発することができる。

本開示のある実施形態では、一般式(1)で表される化合物は、熱的また

は電子的手段で励起されるとき、紫外スペクトル領域（例えば280～400 nm）で光を発することができる。

本開示のある実施形態では、一般式（1）で表される化合物は、熱的または電子的手段で励起されるとき、赤外スペクトル領域（例えば780 nm～2 μm）で光を発することができる。

[0043] 小分子の化学物質ライブラリの電子的特性は、公知の *ab initio* による量子化学計算を用いて算出することができる。例えば、基底として、6-31 G*、およびベッケの3パラメータ、Lee-Yang-Parr ハイブリッド汎関数として知られている関数群を用いた時間依存的な密度汎関数理論を使用してHartree-Fock方程式（TD-DFT/B3LYP/6-31 G*）を解析し、特定の閾値以上のHOMOおよび特定の閾値以下のLUMOを有する分子断片（部分）をスクリーニングすることができる。

それにより、例えば-6.5 eV以上のHOMOエネルギー（例えばイオン化ポテンシャル）があるときは、供与体部分（「D」）が選抜できる。また例えば、-0.5 eV以下のLUMOエネルギー（例えば電子親和力）があるときは、受容体部分（「A」）が選抜できる。ブリッジ部分（「B」）は、例えば受容体と供与体部分を特異的な立体構成に厳しく制限できる強い共役系であることにより、供与体および受容体部分のπ共役系間の重複が生じるのを防止する。

ある実施形態では、化合物ライブラリは、以下の特性のうちの1つ以上を用いて選別される。

1. 特定の波長付近における発光
2. 算出された、特定のエネルギー準位より上の三重項状態
3. 特定値より下の ΔE_{ST} 値
4. 特定値より上の量子収率
5. HOMO準位
6. LUMO準位

ある実施形態では、77 Kにおける最低の一重項励起状態と最低の三重項励起状態との差 (ΔE_{ST}) は、約0.5 eV未満、約0.4 eV未満、約0.3 eV未満、約0.2 eV未満または約0.1 eV未満である。ある実施形態では ΔE_{ST} 値は、約0.09 eV未満、約0.08 eV未満、約0.07 eV未満、約0.06 eV未満、約0.05 eV未満、約0.04 eV未満、約0.03 eV未満、約0.02 eV未満または約0.01 eV未満である。

ある実施形態では、一般式(1)で表される化合物は、25%超の、例えば約30%、約35%、約40%、約45%、約50%、約55%、約60%、約65%、約70%、約75%、約80%、約85%、約90%、約95%またはそれ以上の量子収率を示す。

[0044] [一般式(1)で表される化合物の合成方法]

一般式(1)で表される化合物は、新規化合物である。

一般式(1)で表される化合物は、既知の反応を組み合わせることによって合成することができる。例えば、D¹、D²を導入したい位置がフッ素原子で置換されたジフルオロイソフタロニトリルにD¹-HやD²-Hを水素化ナトリウムの存在下でテトラヒドロフラン中で反応させることにより合成することが可能である。D¹とD²が互いに異なる場合は、D¹-H、D²-Hとの反応を2段階で行ってもよい。反応の具体的な条件や反応手順については、後述の合成例を参考にすることができる。

[0045] [一般式(1)で表される化合物を用いた構成物]

ある実施形態では、一般式(1)で表される化合物と組み合わせ、同化合物を分散させ、同化合物と共有結合し、同化合物をコーティングし、同化合物を担持し、あるいは同化合物と会合する1つ以上の材料（例えば小分子、ポリマー、金属、金属錯体等）と共に用い、固体状のフィルムまたは層を形成させる。例えば、一般式(1)で表される化合物を電気活性材料と組み合わせてフィルムを形成することができる。いくつかの場合、一般式(1)で表される化合物を正孔輸送ポリマーと組み合わせてもよい。いくつかの場合

、一般式（１）で表される化合物を電子輸送ポリマーと組み合わせてもよい。いくつかの場合、一般式（１）で表される化合物を正孔輸送ポリマーおよび電子輸送ポリマーと組み合わせてもよい。いくつかの場合、一般式（１）で表される化合物を、正孔輸送部と電子輸送部との両方を有するコポリマーと組み合わせてもよい。以上のような実施形態により、固体状のフィルムまたは層内に形成される電子および／または正孔を、一般式（１）で表される化合物と相互作用させることができる。

[0046] [フィルムの形成]

ある実施形態では、一般式（１）で表される本発明の化合物を含むフィルムは、湿式工程で形成することができる。湿式工程では、本発明の化合物を含む組成物を溶解した溶液を面に塗布し、溶媒の除去後にフィルムを形成する。湿式工程として、スピンコート法、スリットコート法、インクジェット法（スプレー法）、グラビア印刷法、オフセット印刷法、フレキソ印刷法を挙げることができるが、これらに限定されるものではない。湿式工程では、本発明の化合物を含む組成物を溶解することができる適切な有機溶媒を選択して用いる。ある実施形態では、組成物に含まれる化合物に、有機溶媒に対する溶解性を上げる置換基（例えばアルキル基）を導入することができる。

ある実施形態では、本発明の化合物を含むフィルムは、乾式工程で形成することができる。ある実施形態では、乾式工程として真空蒸着法を採用することができる、これに限定されるものではない。真空蒸着法を採用する場合は、フィルムを構成する化合物を個別の蒸着源から共蒸着させてもよいし、化合物を混合した単一の蒸着源から共蒸着させてもよい。単一の蒸着源を用いる場合は、化合物の粉末を混合した混合粉を用いてもよいし、その混合粉を圧縮した圧縮成形体を用いてもよいし、各化合物を加熱溶解して冷却した混合物を用いてもよい。ある実施形態では、単一の蒸着源に含まれる複数の化合物の蒸着速度（重量減少速度）が一致しないしほぼ一致する条件で共蒸着を行うことにより、蒸着源に含まれる複数の化合物の組成比に対応する組成比のフィルムを形成することができる。形成されるフィルムの組成比と同じ

組成比で複数の化合物を混合して蒸着源とすれば、所望の組成比を有するフィルムを簡便に形成することができる。ある実施形態では、共蒸着される各化合物が同じ重量減少率になる温度を特定して、その温度を共蒸着時の温度として採用することができる。

[0047] [一般式（１）で表される化合物の使用の例]

有機発光ダイオード：

本発明の一態様は、有機発光素子の発光材料としての、本発明の一般式（１）で表される化合物の使用に関する。ある実施形態では、本発明の一般式（１）で表される化合物は、有機発光素子の発光層における発光材料として効果的に使用できる。ある実施形態では、一般式（１）で表される化合物は、遅延蛍光を発する遅延蛍光（遅延蛍光体）を含む。ある実施形態では、本発明は一般式（１）で表される構造を有する遅延蛍光体を提供する。ある実施形態では、本発明は遅延蛍光体としての一般式（１）で表される化合物の使用に関する。ある実施形態では、本発明は一般式（１）で表される化合物は、ホスト材料として使用することができ、かつ、１つ以上の発光材料と共に使用することができ、発光材料は蛍光材料、燐光材料またはＴＡＤＦでよい。ある実施形態では、一般式（１）で表される化合物は、正孔輸送材料として使用することもできる。ある実施形態では、一般式（１）で表される化合物は、電子輸送材料として使用することができる。ある実施形態では、本発明は一般式（１）で表される化合物から遅延蛍光を生じさせる方法に関する。ある実施形態では、化合物を発光材料として含む有機発光素子は、遅延蛍光を発し、高い光放射効率を示す。

ある実施形態では、発光層は一般式（１）で表される化合物を含み、一般式（１）で表される化合物は、基材と平行に配向される。ある実施形態では、基材はフィルム形成表面である。ある実施形態では、フィルム形成表面に対する一般式（１）で表される化合物の配向は、整列させる化合物によって発せられる光の伝播方向に影響を与えるか、あるいは、当該方向を決定づける。ある実施形態では、一般式（１）で表される化合物によって発せられる光

の伝播方向を整列させることで、発光層からの光抽出効率が改善される。

本発明の一態様は、有機発光素子に関する。ある実施形態では、有機発光素子は発光層を含む。ある実施形態では、発光層は発光材料として一般式（１）で表される化合物を含む。ある実施形態では、有機発光素子は有機光ルミネッセンス素子（有機PL素子）である。ある実施形態では、有機発光素子は、有機エレクトロルミネッセンス素子（有機EL素子）である。ある実施形態では、一般式（１）で表される化合物は、発光層に含まれる他の発光材料の光放射を（いわゆるアシストドーパントとして）補助する。ある実施形態では、発光層に含まれる一般式（１）で表される化合物は、その最低の励起一重項エネルギー準位にあり、発光層に含まれるホスト材料の最低励起一重項エネルギー準位と発光層に含まれる他の発光材料の最低励起一重項エネルギー準位との間に含まれる。

ある実施形態では、有機光ルミネッセンス素子は、少なくとも１つの発光層を含む。ある実施形態では、有機エレクトロルミネッセンス素子は、少なくとも陽極、陰極、および前記陽極と前記陰極との間の有機層を含む。ある実施形態では、有機層は、少なくとも発光層を含む。ある実施形態では、有機層は、発光層のみを含む。ある実施形態では、有機層は、発光層に加えて１つ以上の有機層を含む。有機層の例としては、正孔輸送層、正孔注入層、電子障壁層、正孔障壁層、電子注入層、電子輸送層および励起子障壁層が挙げられる。ある実施形態では、正孔輸送層は、正孔注入機能を有する正孔注入輸送層であってもよく、電子輸送層は、電子注入機能を有する電子注入輸送層であってもよい。有機エレクトロルミネッセンス素子の例を図１に示す。

[0048] 発光層：

ある実施形態では、発光層は、陽極および陰極からそれぞれ注入された正孔および電子が再結合して励起子を形成する層である。ある実施形態では、層は光を発する。

ある実施形態では、発光材料のみが発光層として用いられる。ある実施形

態では、発光層は発光材料とホスト材料とを含む。ある実施形態では、発光材料は、一般式（１）の１つ以上の化合物である。ある実施形態では、有機エレクトロルミネッセンス素子および有機光ルミネッセンス素子の光放射効率を向上させるため、発光材料において発生する一重項励起子および三重項励起子を、発光材料内に閉じ込める。ある実施形態では、発光層中に発光材料に加えてホスト材料を用いる。ある実施形態では、ホスト材料は有機化合物である。ある実施形態では、有機化合物は励起一重項エネルギーおよび励起三重項エネルギーを有し、その少なくとも１つは、本発明の発光材料のそれらよりも高い。ある実施形態では、本発明の発光材料中で発生する一重項励起子および三重項励起子は、本発明の発光材料の分子中に閉じ込められる。ある実施形態では、一重項および三重項の励起子は、光放射効率を向上させるために十分に閉じ込められる。ある実施形態では、高い光放射効率が未だ得られるにもかかわらず、一重項励起子および三重項励起子は十分に閉じ込められず、すなわち、高い光放射効率を達成できるホスト材料は、特に限定されることなく本発明で使用されうる。ある実施形態では、本発明の素子の発光層中の発光材料において、光放射が生じる。ある実施形態では、放射光は蛍光および遅延蛍光の両方を含む。ある実施形態では、放射光は、ホスト材料からの放射光を含む。ある実施形態では、放射光は、ホスト材料からの放射光からなる。ある実施形態では、放射光は、一般式（１）で表される化合物からの放射光と、ホスト材料からの放射光とを含む。ある実施形態では、TADF分子とホスト材料とが用いられる。ある実施形態では、TADFはアシストドーパントである。

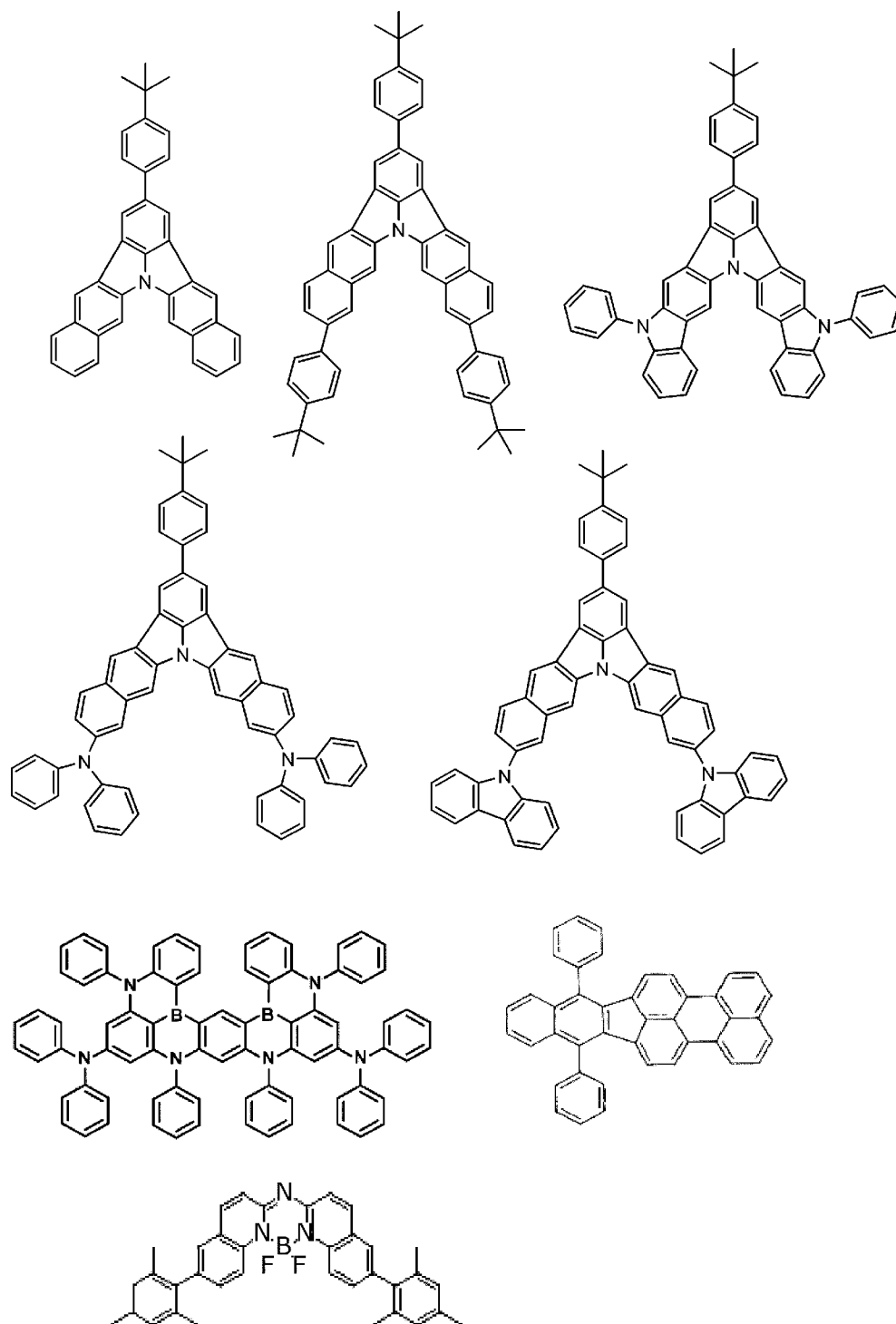
[0049] 一般式（１）で表される化合物をアシストドーパントとして用いるとき、発光材料（好ましくは蛍光材料）として様々な化合物を採用することが可能である。そのような発光材料としては、アントラセン誘導体、テトラセン誘導体、ナフタセン誘導体、ピレン誘導体、ペリレン誘導体、クリセン誘導体、ルブレン誘導体、クマリン誘導体、ピラン誘導体、スチルベン誘導体、フルオレン誘導体、アントリル誘導体、ピロメテン誘導体、ターフェニル誘導

体、ターフェニレン誘導体、フルオランテン誘導体、アミン誘導体、キナクリドン誘導体、オキサジアゾール誘導体、マロノニトリル誘導体、ピラン誘導体、カルバゾール誘導体、ジュロリジン誘導体、チアゾール誘導体、金属（Al，Zn）を有する誘導体等を用いることが可能である。これらの例示骨格には置換基を有してもよいし、置換基を有していなくてもよい。また、これらの例示骨格どうしを組み合わせてもよい。

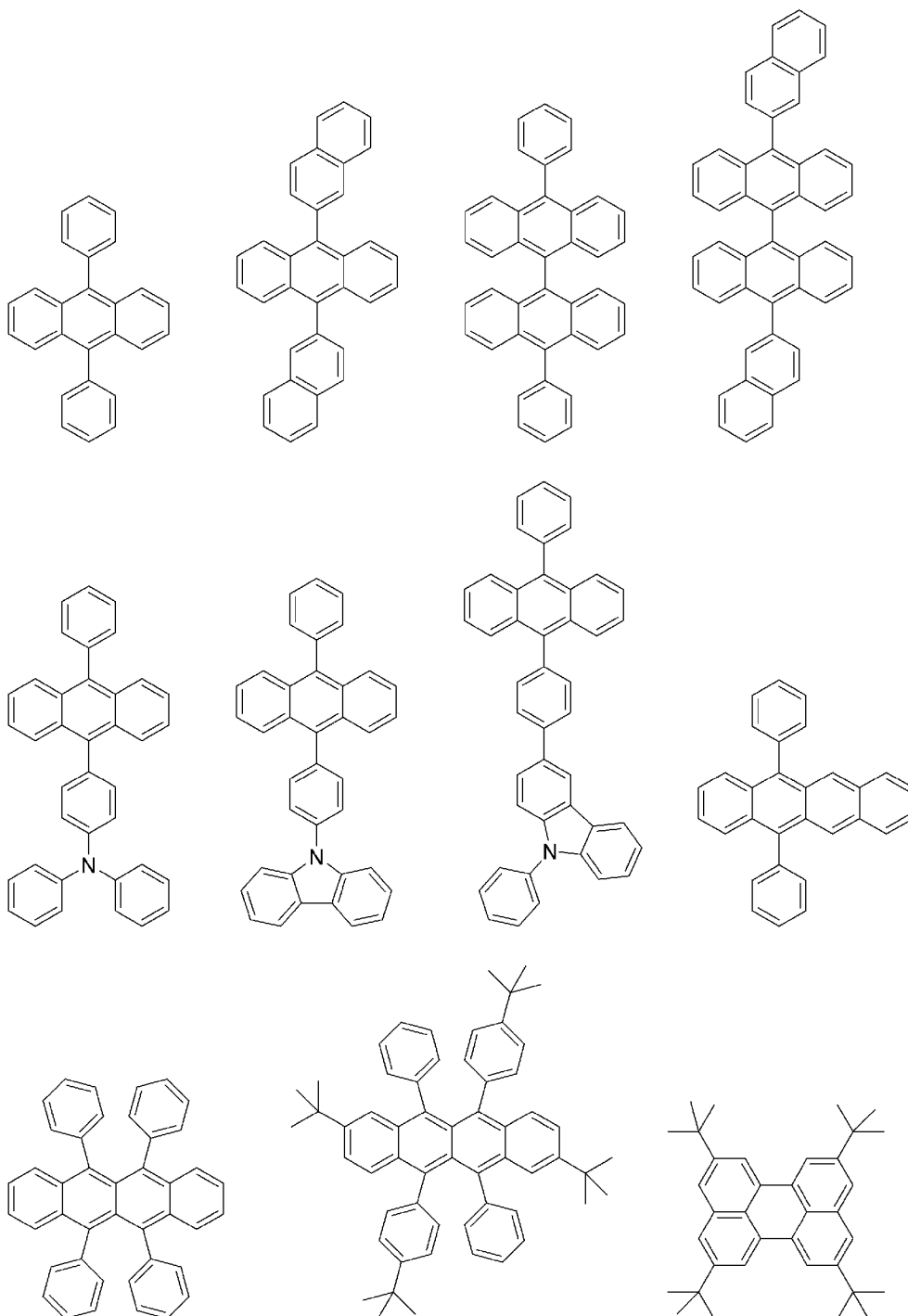
以下において、一般式（1）で表されるアシストドーパントと組み合わせて用いることができる発光材料を例示する。

[0050]

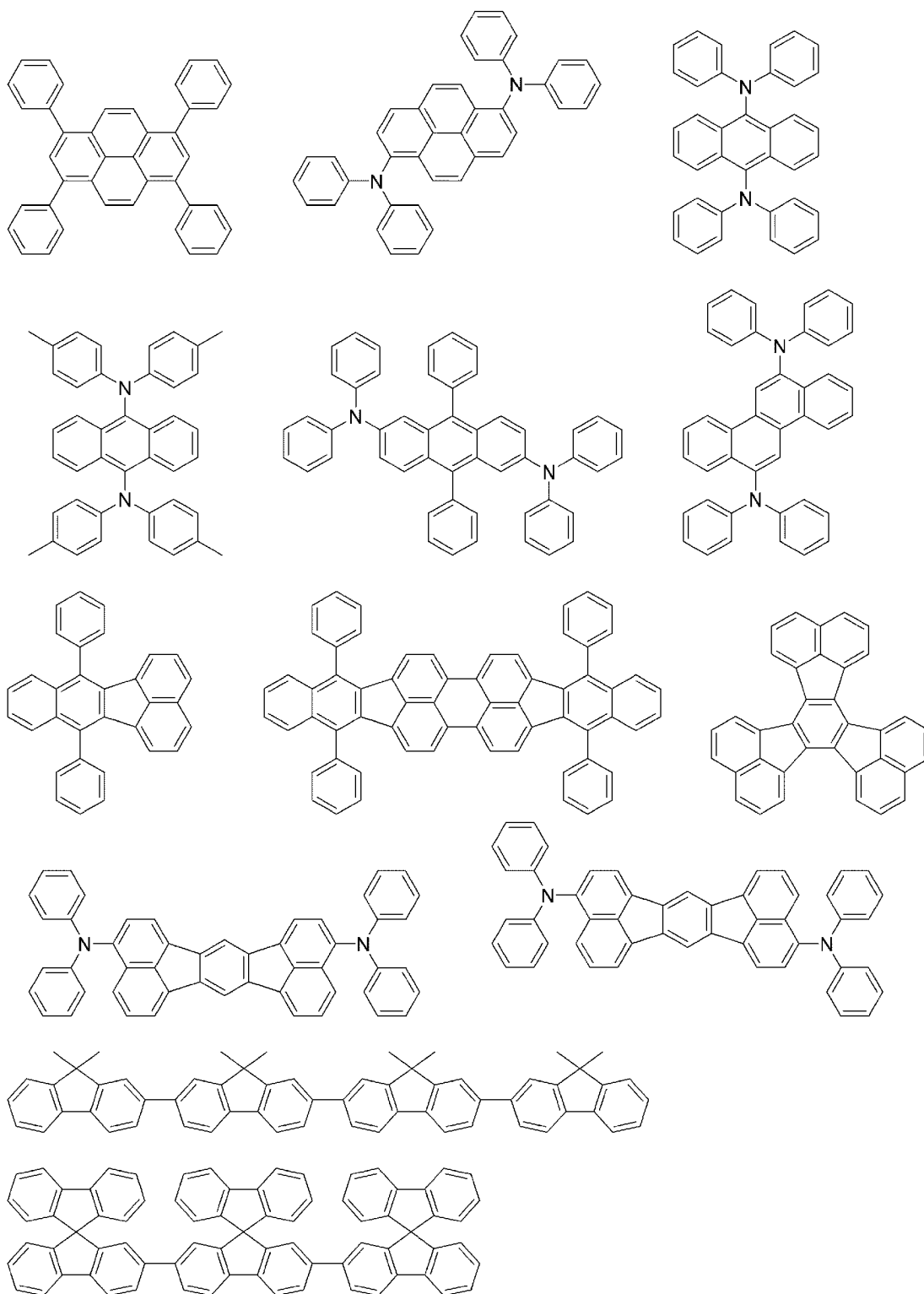
[化22-1]



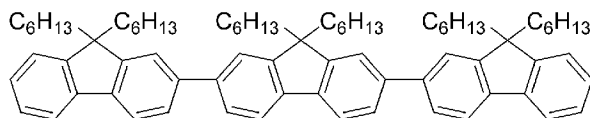
[化22-2]



[化22-3]



[化22-4]



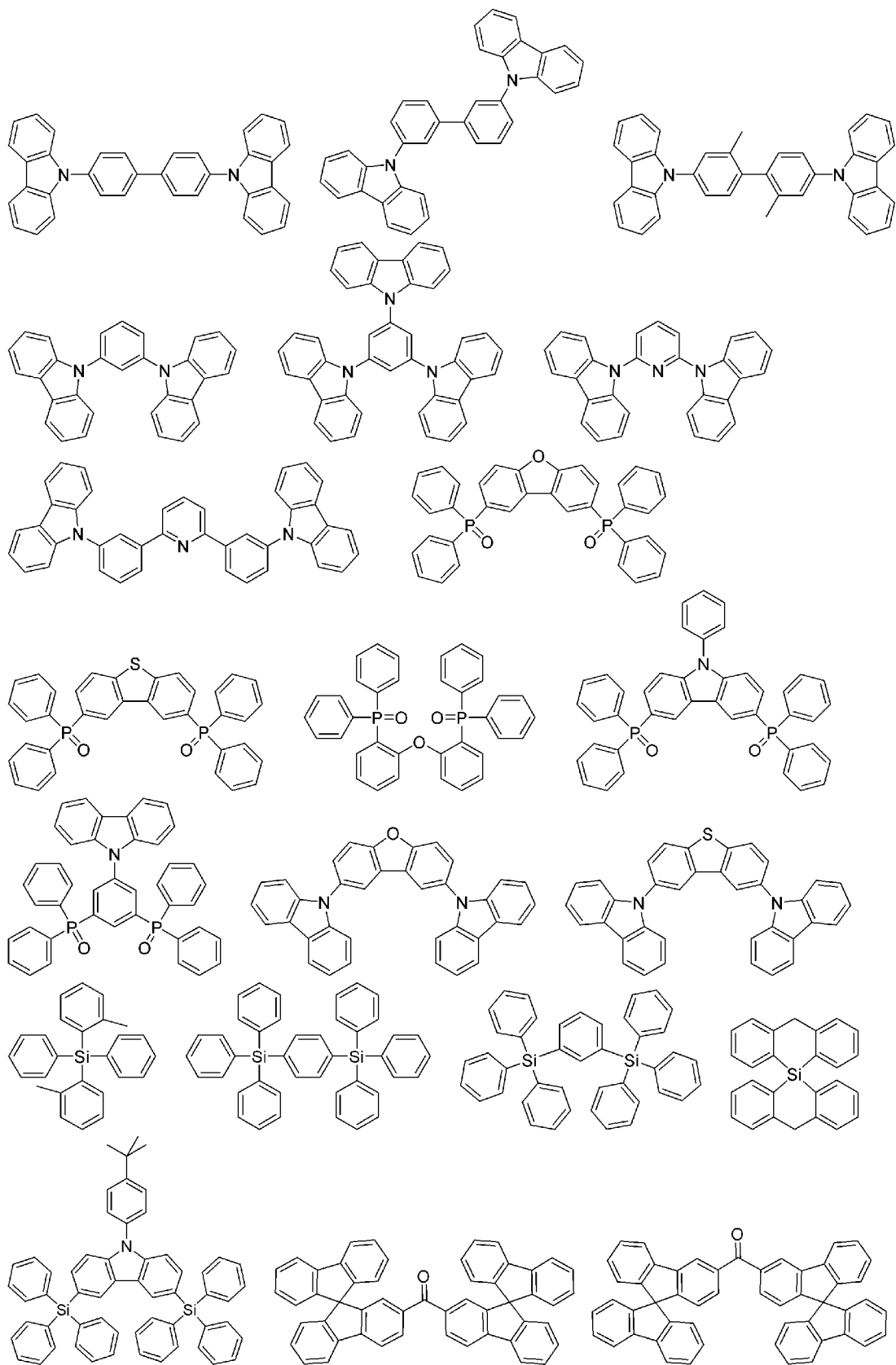
[0051] また、WO 2015 / 022974 号公報の段落 0220～0239 に記載の化合物も、一般式（1）で表されるアシストドーパントとともに用いる発光材料として、特に好ましく採用することができる。

[0052] ある実施形態では、ホスト材料を用いるとき、発光層に含まれる発光材料としての本発明の化合物の量は、0.1 重量%以上である。ある実施形態では、ホスト材料を用いるとき、発光層に含まれる発光材料としての本発明の化合物の量は、1 重量%以上である。ある実施形態では、ホスト材料を用いるとき、発光層に含まれる発光材料としての本発明の化合物の量は、50 重量%以下である。ある実施形態では、ホスト材料を用いるとき、発光層に含まれる発光材料としての本発明の化合物の量は、20 重量%以下である。ある実施形態では、ホスト材料を用いるとき、発光層に含まれる発光材料としての本発明の化合物の量は、10 重量%以下である。

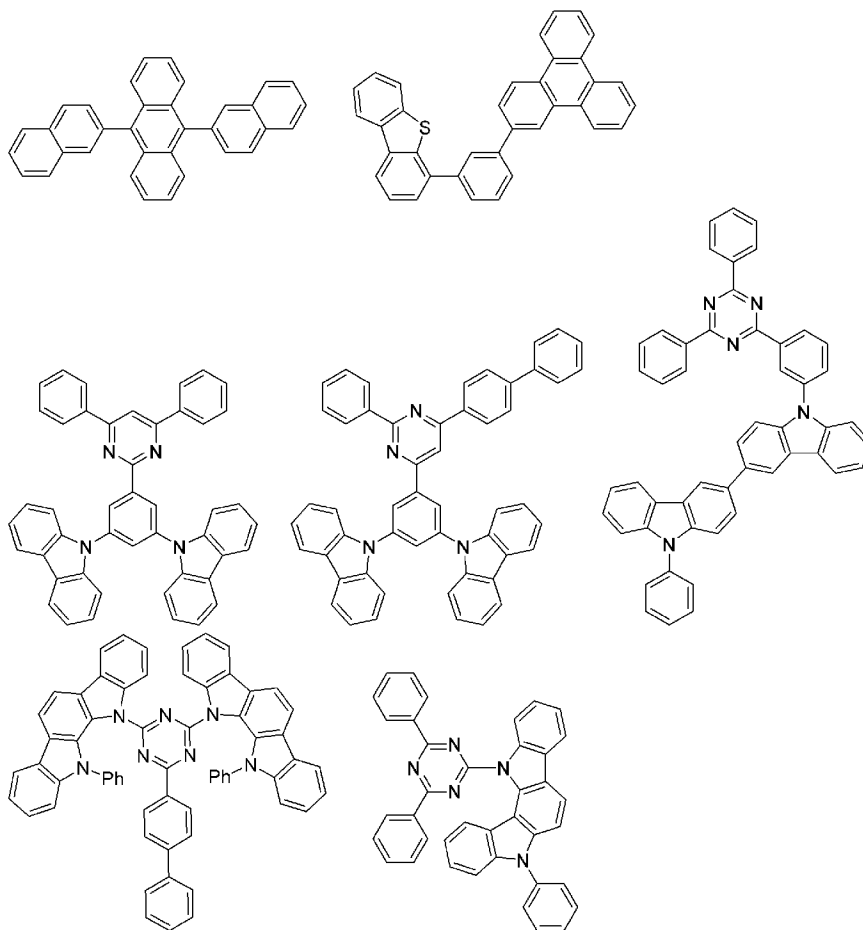
ある実施形態では、発光層のホスト材料は、正孔輸送機能および電子輸送機能を有する有機化合物である。ある実施形態では、発光層のホスト材料は、放射光の波長が増加することを防止する有機化合物である。ある実施形態では、発光層のホスト材料は、高いガラス転移温度を有する有機化合物である。

[0053] いくつかの実施形態では、ホスト材料は以下からなる群から選択される：

[化23-1]



[化23-2]



ある実施形態では、発光層は２種類以上の構造が異なるＴＡＤＦ分子を含む。例えば、励起一重項エネルギー準位がホスト材料、第１ＴＡＤＦ分子、第２ＴＡＤＦ分子の順に高い、これら３種の材料を含む発光層とすることができる。このとき、第１ＴＡＤＦ分子と第２ＴＡＤＦ分子は、ともに最低励起一重項エネルギー準位と７７Ｋの最低励起三重項エネルギー準位の差 ΔE_{ST} が０．３ｅＶ以下であることが好ましく、０．２５ｅＶ以下であることがより好ましく、０．２ｅＶ以下であることがより好ましく、０．１５ｅＶ以下であることがより好ましく、０．１ｅＶ以下であることがさらに好ましく、０．０７ｅＶ以下であることがさらにより好ましく、０．０５ｅＶ以下であることがさらにまた好ましく、０．０３ｅＶ以下であることがさらになお好ましく、０．０１ｅＶ以下であることが特に好ましい。発光層における第１ＴＡＤＦ分子の含有量は、第２ＴＡＤＦ分子の含有量よりも多いことが好ま

しい。また、発光層におけるホスト材料の含有量は、第2 TADF分子の含有量よりも多いことが好ましい。発光層における第1 TADF分子の含有量は、ホスト材料の含有量よりも多くてもよいし、少なくてもよいし、同じであってもよい。ある実施形態では、発光層内の組成を、ホスト材料を10～70重量%、第1 TADF分子を10～80重量%、第2 TADF分子を0.1～30重量%としてもよい。ある実施形態では、発光層内の組成を、ホスト材料を20～45重量%、第1 TADF分子を50～75重量%、第2 TADF分子を5～20重量%としてもよい。ある実施形態では、第1 TADF分子とホスト材料の共蒸着膜（この共蒸着膜における第1 TADF分子の含有率＝A重量%）の光励起による発光量子収率 $\phi_{PL1}(A)$ と、第2 TADF分子とホスト材料の共蒸着膜（この共蒸着膜における第2 TADF分子の含有率＝A重量%）の光励起による発光量子収率 $\phi_{PL2}(A)$ が、 $\phi_{PL1}(A) > \phi_{PL2}(A)$ の関係式を満たす。ある実施形態では、第2 TADF分子とホスト材料の共蒸着膜（この共蒸着膜における第2 TADF分子の含有率＝B重量%）の光励起による発光量子収率 $\phi_{PL2}(B)$ と、第2 TADF分子の単独膜の光励起による発光量子収率 $\phi_{PL2}(100)$ が、 $\phi_{PL2}(B) > \phi_{PL2}(100)$ の関係式を満たす。ある実施形態では、発光層は3種類の構造が異なるTADF分子を含むことができる。本発明の化合物は、発光層に含まれる複数のTADF化合物のいずれであってもよい。

ある実施形態では、発光層は、ホスト材料、アシストドーパント、および発光材料からなる群より選択される材料で構成することができる。ある実施形態では、発光層は金属元素を含まない。ある実施形態では、発光層は炭素原子、水素原子、重水素原子、窒素原子、酸素原子および硫黄原子からなる群より選択される原子のみから構成される材料で構成することができる。あるいは、発光層は、炭素原子、水素原子、重水素原子、窒素原子および酸素原子からなる群より選択される原子のみから構成される材料で構成することもできる。あるいは、発光層は、炭素原子、水素原子、窒素原子および

酸素原子からなる群より選択される原子のみから構成される材料で構成することもできる。

発光層が本発明の化合物以外のTADF材料を含むとき、そのTADF材料は公知の遅延蛍光材料であってよい。好ましい遅延蛍光材料として、WO 2013/154064号公報の段落0008~0048および0095~0133、WO 2013/011954号公報の段落0007~0047および0073~0085、WO 2013/011955号公報の段落0007~0033および0059~0066、WO 2013/081088号公報の段落0008~0071および0118~0133、特開2013-256490号公報の段落0009~0046および0093~0134、特開2013-116975号公報の段落0008~0020および0038~0040、WO 2013/133359号公報の段落0007~0032および0079~0084、WO 2013/161437号公報の段落0008~0054および0101~0121、特開2014-9352号公報の段落0007~0041および0060~0069、特開2014-9224号公報の段落0008~0048および0067~0076、特開2017-119663号公報の段落0013~0025、特開2017-119664号公報の段落0013~0026、特開2017-222623号公報の段落0012~0025、特開2017-226838号公報の段落0010~0050、特開2018-100411号公報の段落0012~0043、WO 2018/047853号公報の段落0016~0044に記載される一般式に包含される化合物、特に例示化合物であって、遅延蛍光を放射しうるものが含まれる。また、ここでは、特開2013-253121号公報、WO 2013/133359号公報、WO 2014/034535号公報、WO 2014/115743号公報、WO 2014/122895号公報、WO 2014/126200号公報、WO 2014/136758号公報、WO 2014/133121号公報、WO 2014/136860号公報、WO 2014/196585号公報、WO 2014/18912

2号公報、WO2014/168101号公報、WO2015/008580号公報、WO2014/203840号公報、WO2015/002213号公報、WO2015/016200号公報、WO2015/019725号公報、WO2015/072470号公報、WO2015/108049号公報、WO2015/080182号公報、WO2015/072537号公報、WO2015/080183号公報、特開2015-129240号公報、WO2015/129714号公報、WO2015/129715号公報、WO2015/133501号公報、WO2015/136880号公報、WO2015/137244号公報、WO2015/137202号公報、WO2015/137136号公報、WO2015/146541号公報、WO2015/159541号公報に記載される発光材料であって、遅延蛍光を放射しうるものを好ましく採用することができる。なお、この段落に記載される上記の公報は、本明細書の一部としてここに引用する。

[0054] 以下において、有機エレクトロルミネッセンス素子の各部材および発光層以外の各層について説明する。

[0055] 基材：

いくつかの実施形態では、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は基材により保持され、当該基材は特に限定されず、有機エレクトロルミネッセンス素子で一般的に用いられる、例えばガラス、透明プラスチック、クォーツおよびシリコンにより形成されたいずれかの材料を用いればよい。

[0056] 陽極：

いくつかの実施形態では、有機エレクトロルミネッセンス装置の陽極は、金属、合金、導電性化合物またはそれらの組み合わせから製造される。いくつかの実施形態では、前記の金属、合金または導電性化合物は高い仕事関数（4 eV以上）を有する。いくつかの実施形態では、前記金属はAuである。いくつかの実施形態では、導電性の透明材料は、CuI、酸化インジウムスズ（ITO）、SnO₂およびZnOから選択される。いくつかの実施形態では、IDIXO（In₂O₃-ZnO）などの、透明な導電性フィルムを形

成できるアモルファス材料を使用する。いくつかの実施形態では、前記陽極は薄膜である。いくつかの実施形態では、前記薄膜は蒸着またはスパッタリングにより作製される。いくつかの実施形態では、前記フィルムはフォトリソグラフィ方法によりパターン化される。いくつかの実施形態では、パターンが高精度である必要がない（例えば約 $100\text{ }\mu\text{m}$ 以上）場合、当該パターンは、電極材料への蒸着またはスパッタリングに好適な形状のマスクを用いて形成してもよい。いくつかの実施形態では、有機導電性化合物などのコーティング材料を塗布しうるとき、プリント法やコーティング法などの湿式フィルム形成方法が用いられる。いくつかの実施形態では、放射光が陽極を通過するとき、陽極は 10% 超の透過度を有し、当該陽極は、単位面積あたり数百オーム以下のシート抵抗を有する。いくつかの実施形態では、陽極の厚みは $10\sim 1,000\text{ nm}$ である。いくつかの実施形態では、陽極の厚みは $10\sim 200\text{ nm}$ である。いくつかの実施形態では、陽極の厚みは用いる材料に応じて変動する。

[0057] 陰極：

いくつかの実施形態では、前記陰極は、低い仕事関数を有する金属（ 4 eV 以下）（電子注入金属と称される）、合金、導電性化合物またはその組み合わせなどの電極材料で作製される。いくつかの実施形態では、前記電極材料は、ナトリウム、ナトリウム－カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム－銅混合物、マグネシウム－銀混合物、マグネシウム－アルミニウム混合物、マグネシウム－インジウム混合物、アルミニウム－酸化アルミニウム（ Al_2O_3 ）混合物、インジウム、リチウム－アルミニウム混合物および希土類元素から選択される。いくつかの実施形態では、電子注入金属と、電子注入金属より高い仕事関数を有する安定な金属である第2の金属との混合物が用いられる。いくつかの実施形態では、前記混合物は、マグネシウム－銀混合物、マグネシウム－アルミニウム混合物、マグネシウム－インジウム混合物、アルミニウム－酸化アルミニウム（ Al_2O_3 ）混合物、リチウム－アルミニウム混合物およびアルミニウムから選択される。いくつかの

実施形態では、前記混合物は電子注入特性および酸化に対する耐性を向上させる。いくつかの実施形態では、陰極は、蒸着またはスパッタリングにより電極材料を薄膜として形成させることによって製造される。いくつかの実施形態では、前記陰極は単位面積当たり数百オーム以下のシート抵抗を有する。いくつかの実施形態では、前記陰極の厚は10 nm～5 μmである。いくつかの実施形態では、前記陰極の厚は50～200 nmである。いくつかの実施形態では、放射光を透過させるため、有機エレクトロルミネッセンス素子の陽極および陰極のいずれか1つは透明または半透明である。いくつかの実施形態では、透明または半透明のエレクトロルミネッセンス素子は光放射輝度を向上させる。

いくつかの実施形態では、前記陰極を、前記陽極に関して前述した導電性の透明な材料で形成されることにより、透明または半透明の陰極が形成される。いくつかの実施形態では、素子は陽極と陰極とを含むが、いずれも透明または半透明である。

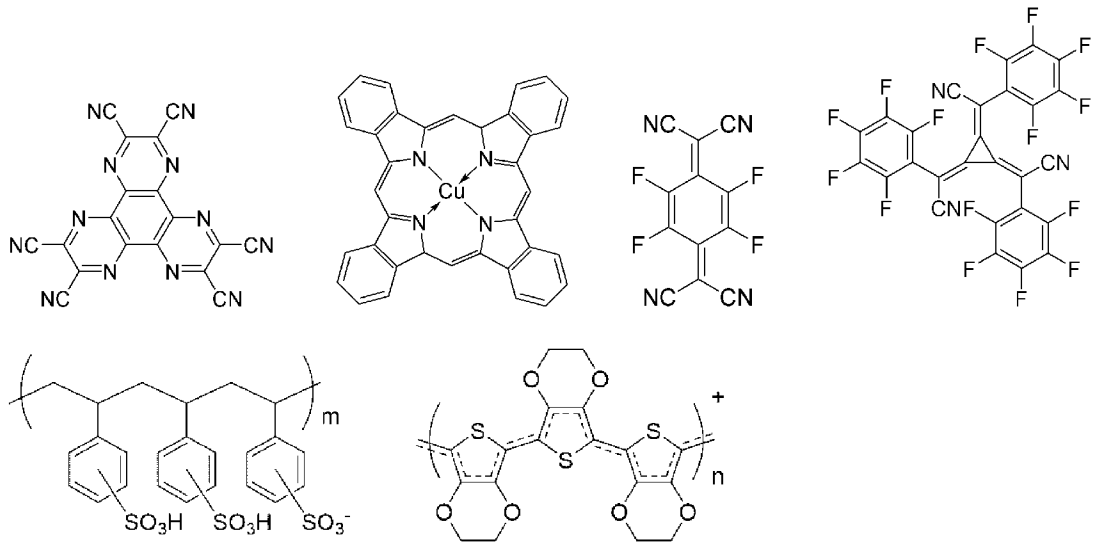
[0058] 注入層：

注入層は、電極と有機層との間の層である。いくつかの実施形態では、前記注入層は駆動電圧を減少させ、光放射輝度を増強する。いくつかの実施形態では、前記注入層は、正孔注入層と電子注入層とを含む。前記注入層は、陽極と発光層または正孔輸送層との間、並びに陰極と発光層または電子輸送層との間に配置することがきる。いくつかの実施形態では、注入層が存在する。いくつかの実施形態では、注入層が存在しない。

以下に、正孔注入材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる。

[0059]

[化24]

 MoO_3 ,

[0060] 次に、電子注入材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる。

[化25]



[0061] 障壁層：

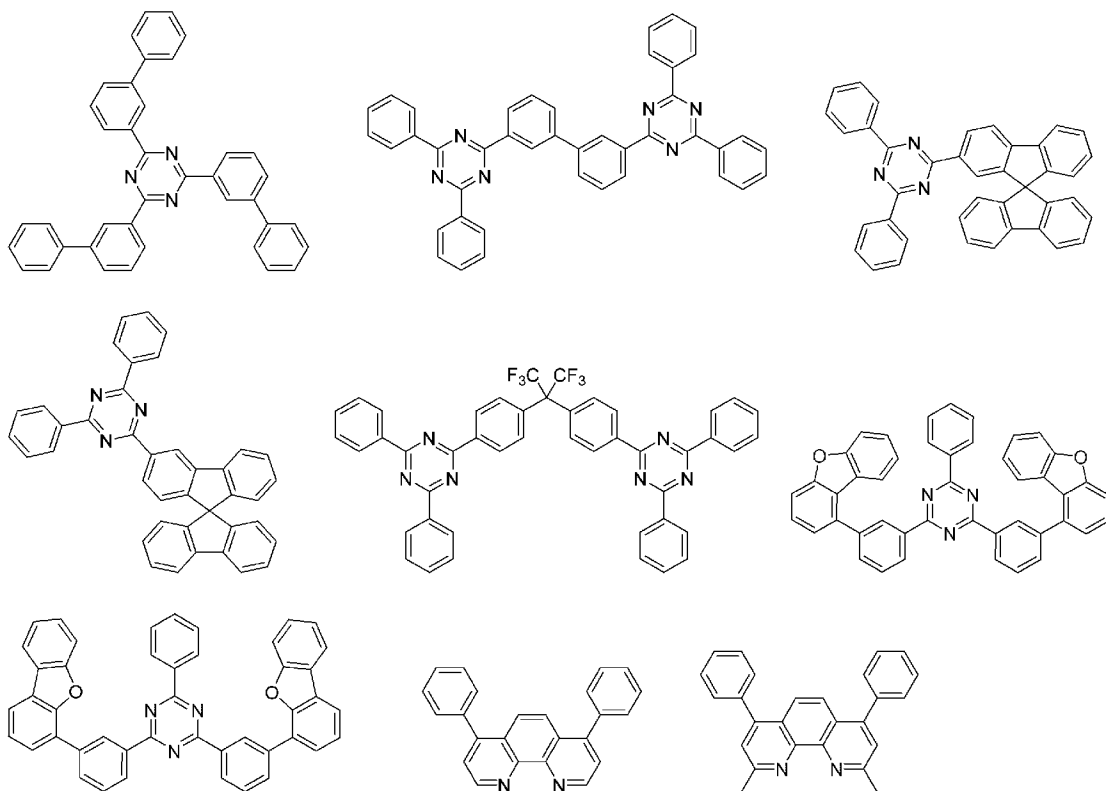
障壁層は、発光層に存在する電荷（電子または正孔）および／または励起子が、発光層の外側に拡散することを阻止できる層である。いくつかの実施形態では、電子障壁層は、発光層と正孔輸送層との間に存在し、電子が発光層を通過して正孔輸送層へ至ることを阻止する。いくつかの実施形態では、正孔障壁層は、発光層と電子輸送層との間に存在し、正孔が発光層を通過して電子輸送層へ至ることを阻止する。いくつかの実施形態では、障壁層は、励起子が発光層の外側に拡散することを阻止する。いくつかの実施形態では、電子障壁層および正孔障壁層は励起子障壁層を構成する。本明細書で用いる用語「電子障壁層」または「励起子障壁層」には、電子障壁層の、および励起子障壁層の機能の両方を有する層が含まれる。

[0062] 正孔障壁層：

正孔障壁層は、電子輸送層として機能する。いくつかの実施形態では、電子の輸送の間、正孔障壁層は正孔が電子輸送層に至ることを阻止する。いくつかの実施形態では、正孔障壁層は、発光層における電子と正孔との再結合の確率を高める。正孔障壁層に用いる材料は、電子輸送層について前述したのと同じ材料であってもよい。

以下に、正孔障壁層に用いることができる好ましい化合物例を挙げる。

[0063] [化26]

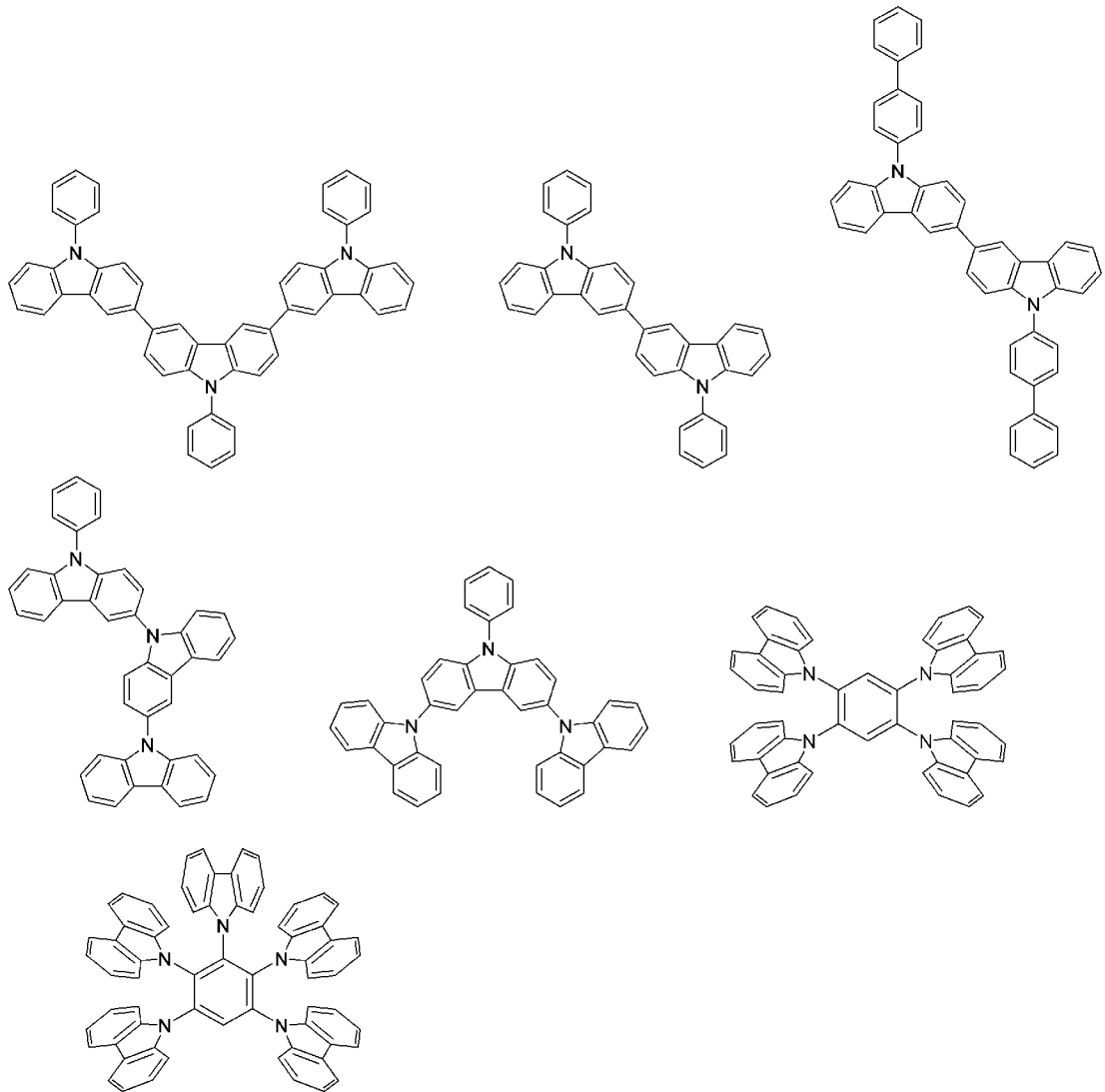


[0064] 電子障壁層：

電子障壁層は、正孔を輸送する。いくつかの実施形態では、正孔の輸送の間、電子障壁層は電子が正孔輸送層に至ることを阻止する。いくつかの実施形態では、電子障壁層は、発光層における電子と正孔との再結合の確率を高める。電子障壁層に用いる材料は、正孔輸送層について前述したのと同じ材料であってもよい。

以下に電子障壁材料として用いることができる好ましい化合物の具体例を挙げる。

[0065] [化27]



[0066] 励起子障壁層：

励起子障壁層は、発光層における正孔と電子との再結合を通じて生じた励起子が電荷輸送層まで拡散することを阻止する。いくつかの実施形態では、励起子障壁層は、発光層における励起子の有効な閉じ込め（confinement）を可能にする。いくつかの実施形態では、装置の光放射効率が向上する。いくつかの実施形態では、励起子障壁層は、陽極の側と陰極の側のいずれかで、およびその両側の発光層に隣接する。いくつかの実施形態では、励起子障壁層が陽極側に存在するとき、当該層は、正孔輸送層と発光層との間に存在し、当該発光層に隣接してもよい。いくつかの実施形態では、励起子障壁層が

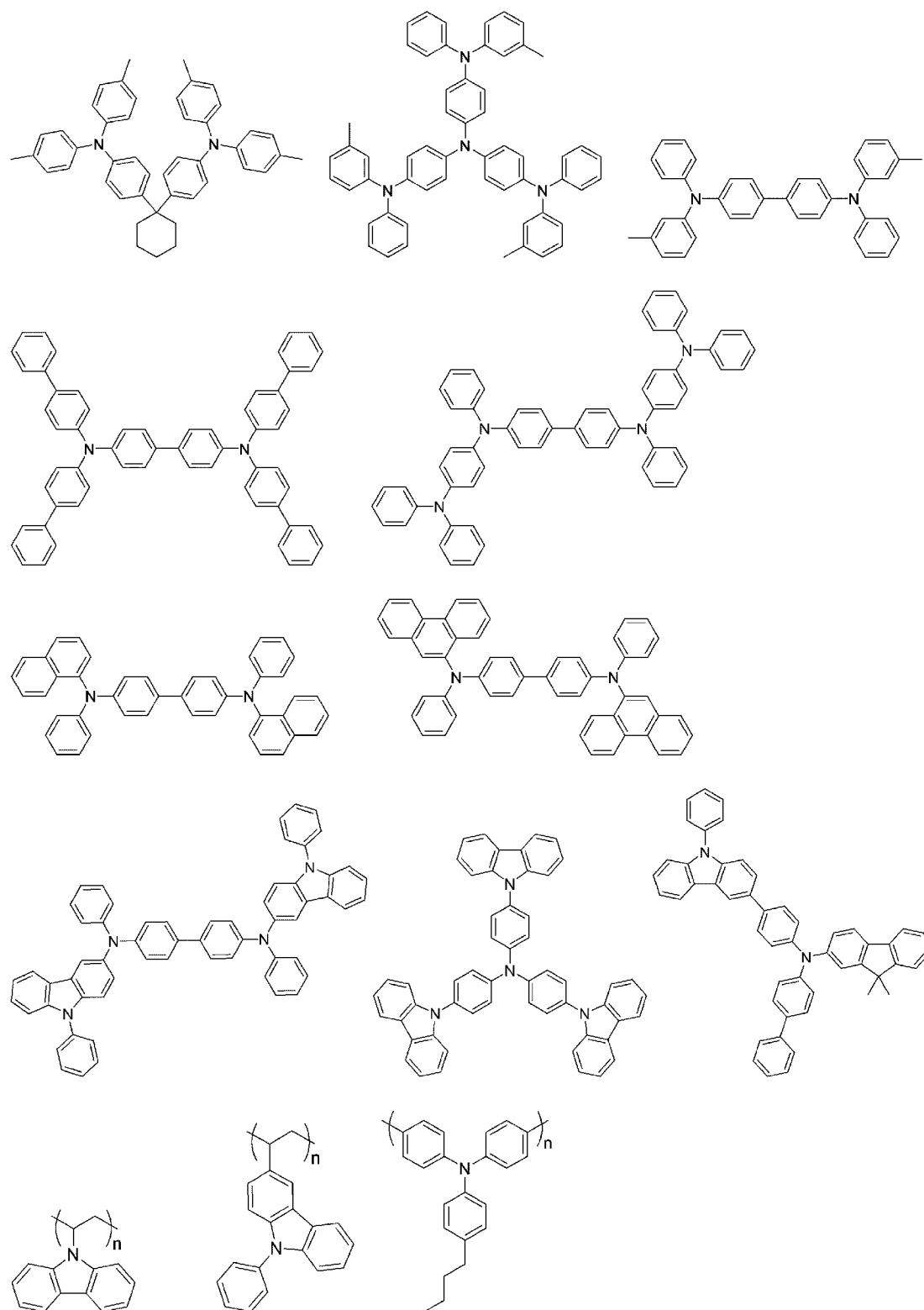
陰極側に存在するとき、当該層は、発光層と陰極との間に存在し、当該発光層に隣接してもよい。いくつかの実施形態では、正孔注入層、電子障壁層または同様の層は、陽極と、陽極側の発光層に隣接する励起子障壁層との間に存在する。いくつかの実施形態では、正孔注入層、電子障壁層、正孔障壁層または同様の層は、陰極と、陰極側の発光層に隣接する励起子障壁層との間に存在する。いくつかの実施形態では、励起子障壁層は、励起一重項エネルギーと励起三重項エネルギーを含み、その少なくとも1つが、それぞれ、発光材料の励起一重項エネルギーと励起三重項エネルギーより高い。

[0067] 正孔輸送層：

正孔輸送層は、正孔輸送材料を含む。いくつかの実施形態では、正孔輸送層は単層である。いくつかの実施形態では、正孔輸送層は複数の層を有する。

いくつかの実施形態では、正孔輸送材料は、正孔の注入または輸送特性および電子の障壁特性のうちの1つの特性を有する。いくつかの実施形態では、正孔輸送材料は有機材料である。いくつかの実施形態では、正孔輸送材料は無機材料である。本発明で利用できる公知の正孔輸送材料の例としては、限定されないが、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導剤、イミダゾール誘導体、カルバゾール誘導体、インドロカルバゾール誘導体、ポリアリーールアルカン誘導剤、ピラゾリン誘導体、ピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリルアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導剤、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、アニリンコポリマーおよび導電性ポリマーオリゴマー（特にチオフェンオリゴマー）、またはその組合せが挙げられる。いくつかの実施形態では、正孔輸送材料はポルフィリン化合物、芳香族三級アミン化合物およびスチリルアミン化合物から選択される。いくつかの実施形態では、正孔輸送材料は芳香族三級アミン化合物である。以下に正孔輸送材料として用いることができる好ましい化合物の具体例を挙げる。

[0068] [化28]



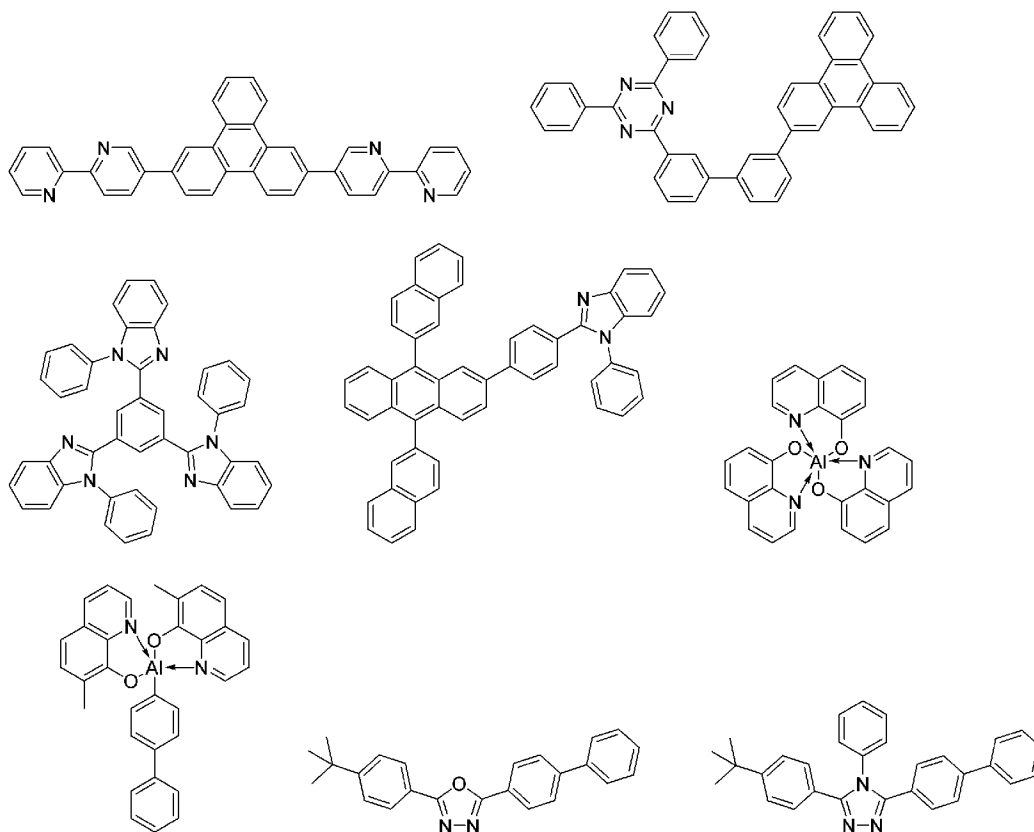
[0069] 電子輸送層：

電子輸送層は、電子輸送材料を含む。いくつかの実施形態では、電子輸送

層は単層である。いくつかの実施形態では、電子輸送層は複数の層を有する。

いくつかの実施形態では、電子輸送材料は、陰極から注入された電子を発光層に輸送する機能さえあればよい。いくつかの実施形態では、電子輸送材料はまた、正孔障壁材料としても機能する。本発明で利用できる電子輸送層の例としては、限定されないが、ニトロ置換フルオレン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド、フルオレニリデンメタン誘導体、アントラキノジメタン、アントロン誘導体、オキサジアゾール誘導体、アゾール誘導体、アジン誘導体またはその組合せ、またはそのポリマーが挙げられる。いくつかの実施形態では、電子輸送材料はチアジアゾール誘導剤またはキノキサリン誘導体である。いくつかの実施形態では、電子輸送材料はポリマー材料である。以下に電子輸送材料として用いることができる好ましい化合物の具体例を挙げる。

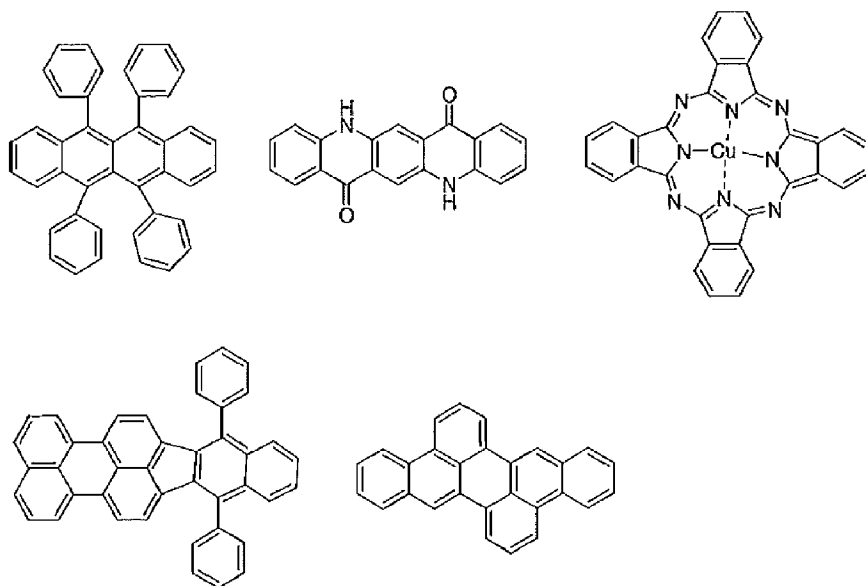
[0070] [化29]



[0071] さらに、各有機層に添加可能な材料として好ましい化合物例を挙げる。例

えば、安定化材料として添加すること等が考えられる。

[0072] [化30]



[0073] 有機エレクトロルミネッセンス素子に用いることができる好ましい材料を具体的に例示したが、本発明において用いることができる材料は、以下の例示化合物によって限定的に解釈されることはない。また、特定の機能を有する材料として例示した化合物であっても、その他の機能を有する材料として転用することも可能である。

[0074] デバイス：

いくつかの実施形態では、発光層はデバイス中に組み込まれる。例えば、デバイスには、OLEDバルブ、OLEDランプ、テレビ用ディスプレイ、コンピューター用モニター、携帯電話およびタブレットが含まれるが、これらに限定されない。

いくつかの実施形態では、電子デバイスは、陽極、陰極、および当該陽極と当該陰極との間の発光層を含む少なくとも1つの有機層を有するOLEDを含む。

いくつかの実施形態では、本願明細書に記載の構成物は、OLEDまたは光電子デバイスなどの、様々な感光性または光活性化デバイスに組み込まれる。いくつかの実施形態では、前記構成物はデバイス内の電荷移動または

エネルギー移動の促進に、および／または正孔輸送材料として有用でありうる。前記デバイスとしては、例えば有機発光ダイオード（O L E D）、有機集積回線（O I C）、有機電界効果トランジスタ（O − F E T）、有機薄膜トランジスタ（O − T F T）、有機発光トランジスタ（O − L E T）、有機太陽電池（O − S C）、有機光学検出装置、有機光受容体、有機磁場クエンチ（f i e l d − q u e n c h）装置（O − F Q D）、発光燃料電池（L E C）または有機レーザダイオード（O − レーザー）が挙げられる。

[0075] バルブまたはランプ：

いくつかの実施形態では、電子デバイスは、陽極、陰極、当該陽極と当該陰極との間の発光層を含む少なくとも1つの有機層を含むO L E Dを含む。

いくつかの実施形態では、デバイスは色彩の異なるO L E Dを含む。いくつかの実施形態では、デバイスはO L E Dの組合せを含むアレイを含む。いくつかの実施形態では、O L E Dの前記組合せは、3色の組合せ（例えばR G B）である。いくつかの実施形態では、O L E Dの前記組合せは、赤色でも緑色でも青色でもない色（例えばオレンジ色および黄緑色）の組合せである。いくつかの実施形態では、O L E Dの前記組合せは、2色、4色またはそれ以上の色の組合せである。

いくつかの実施形態では、デバイスは、

取り付け面を有する第1面とそれと反対の第2面とを有し、少なくとも1つの開口部を画定する回路基板と、

前記取り付け面上の少なくとも1つのO L E Dであって、当該少なくとも1つのO L E Dが、陽極、陰極、および当該陽極と当該陰極との間の発光層を含む少なくとも1つの有機層を含む、発光する構成を有する少なくとも1つのO L E Dと、

回路基板用のハウジングと、

前記ハウジングの端部に配置された少なくとも1つのコネクタであって、前記ハウジングおよび前記コネクタが照明設備への取付けに適するパッケージを画定する、少なくとも1つのコネクタと、を備えるO L E Dライ

トである。

いくつかの実施形態では、前記O L E Dライトは、複数の方向に光が放射されるように回路基板に取り付けられた複数のO L E Dを有する。いくつかの実施形態では、第1方向に発せられた一部の光は偏光されて第2方向に放射される。いくつかの実施形態では、反射器を用いて第1方向に発せられた光を偏光する。

[0076] ディスプレイまたはスクリーン：

いくつかの実施形態では、本発明の発光層はスクリーンまたはディスプレイにおいて使用できる。いくつかの実施形態では、本発明に係る化合物は、限定されないが真空蒸発、堆積、蒸着または化学蒸着（C V D）などの工程を用いて基材上へ堆積させる。いくつかの実施形態では、前記基材は、独特のアスペクト比のピクセルを提供する2面エッチングにおいて有用なフォトリソプレート構造である。前記スクリーン（またマスクとも呼ばれる）は、O L E Dディスプレイの製造工程で用いられる。対応するアートワークパターンの設計により、垂直方向ではピクセルの間の非常に急な狭いタイバーの、並びに水平方向では大きな広範囲の斜角開口部の配置を可能にする。これにより、T F Tバックプレーン上への化学蒸着を最適化しつつ、高解像度ディスプレイに必要とされるピクセルの微細なパターン構成が可能となる。

ピクセルの内部パターンニングにより、水平および垂直方向での様々なアスペクト比の三次元ピクセル開口部を構成することが可能となる。更に、ピクセル領域中の画像化された「ストライプ」またはハーフトーン円の使用は、これらの特定のパターンをアンダーカットし基材から除くまで、特定の領域におけるエッチングが保護される。その時、全てのピクセル領域は同様のエッチング速度で処理されるが、その深さはハーフトーンパターンにより変化する。ハーフトーンパターンのサイズおよび間隔を変更することにより、ピクセル内での保護率が様々な異なるエッチングが可能となり、急な垂直斜角を形成するのに必要な局在化された深いエッチングが可能となる。

蒸着マスク用の好ましい材料はインバーである。インバーは、製鉄所で長

い薄型シート状に冷延された金属合金である。インバーは、ニッケルマスクとしてスピンマンドレル上へ電着することができない。蒸着用マスク内に開口領域を形成するための適切かつ低コストの方法は、湿式化学エッチングによる方法である。

いくつかの実施形態では、スクリーンまたはディスプレイパターンは、基材上のピクセルマトリックスである。いくつかの実施形態では、スクリーンまたはディスプレイパターンは、リソグラフィー（例えばフォトリソグラフィーおよびeビームリソグラフィー）を使用して加工される。いくつかの実施形態では、スクリーンまたはディスプレイパターンは、湿式化学エッチングを使用して加工される。更なる実施形態では、スクリーンまたはディスプレイパターンは、プラズマエッチングを使用して加工される。

[0077] デバイスの製造方法：

OLEDディスプレイは、一般的には、大型のマザーパネルを形成し、次に当該マザーパネルをセルパネル単位で切断することによって製造される。通常は、マザーパネル上の各セルパネルは、ベース基材上に、活性層とソース／ドレイン電極とを有する薄膜トランジスタ（TFT）を形成し、前記TFTに平坦化フィルムを塗布し、ピクセル電極、発光層、対電極およびカプセル化層、を順に経時的に形成し、前記マザーパネルから切断することにより形成される。

OLEDディスプレイは、一般的には、大型のマザーパネルを形成し、次に当該マザーパネルをセルパネル単位で切断することによって製造される。通常は、マザーパネル上の各セルパネルは、ベース基材上に、活性層とソース／ドレイン電極とを有する薄膜トランジスタ（TFT）を形成し、前記TFTに平坦化フィルムを塗布し、ピクセル電極、発光層、対電極およびカプセル化層、を順に経時的に形成し、前記マザーパネルから切断することにより形成される。

[0078] 本発明の他の態様では、有機発光ダイオード（OLED）ディスプレイの製造方法を提供し、当該方法は、

マザーパネルのベース基材上に障壁層を形成する工程と、

前記障壁層上に、セルパネル単位で複数のディスプレイユニットを形成する工程と、

前記セルパネルのディスプレイユニットのそれぞれの上にカプセル化層を形成する工程と、

前記セルパネル間のインタフェース部に有機フィルムを塗布する工程と、を含む。

いくつかの実施形態では、障壁層は、例えば SiN_x で形成された無機フィルムであり、障壁層の端部はポリイミドまたはアクリルで形成された有機フィルムで被覆される。いくつかの実施形態では、有機フィルムは、マザーパネルがセルパネル単位で軟らかく切断されるように補助する。

いくつかの実施形態では、薄膜トランジスタ（TFT）層は、発光層と、ゲート電極と、ソース／ドレイン電極と、を有する。複数のディスプレイユニットの各々は、薄膜トランジスタ（TFT）層と、TFT層上に形成された平坦化フィルムと、平坦化フィルム上に形成された発光ユニットと、を有してもよく、前記インタフェース部に塗布された有機フィルムは、前記平坦化フィルムの材料と同じ材料で形成され、前記平坦化フィルムの形成と同時に形成される。いくつかの実施形態では、前記発光ユニットは、不動態化層と、その間の平坦化フィルムと、発光ユニットを被覆し保護するカプセル化層と、によりTFT層と連結される。前記製造方法のいくつかの実施形態では、前記有機フィルムは、ディスプレイユニットにもカプセル化層にも連結されない。

[0079] 前記有機フィルムと平坦化フィルムの各々は、ポリイミドおよびアクリルのいずれか1つを含んでもよい。いくつかの実施形態では、前記障壁層は無機フィルムであってもよい。いくつかの実施形態では、前記ベース基材はポリイミドで形成されてもよい。前記方法は更に、ポリイミドで形成されたベース基材の1つの表面に障壁層を形成する前に、当該ベース基材のもう1つの表面にガラス材料で形成されたキャリア基材を取り付ける工程と、インタ

フェース部に沿った切断の前に、前記キャリア基材をベース基材から分離する工程と、を含んでもよい。いくつかの実施形態では、前記OLEDディスプレイはフレキシブルなディスプレイである。

いくつかの実施形態では、前記不動態化層は、TFT層の被覆のためにTFT層上に配置された有機フィルムである。いくつかの実施形態では、前記平坦化フィルムは、不動態化層上に形成された有機フィルムである。いくつかの実施形態では、前記平坦化フィルムは、障壁層の端部に形成された有機フィルムと同様、ポリイミドまたはアクリルで形成される。いくつかの実施形態では、OLEDディスプレイの製造の際、前記平坦化フィルムおよび有機フィルムは同時に形成される。いくつかの実施形態では、前記有機フィルムは、障壁層の端部に形成されてもよく、それにより、当該有機フィルムの一部が直接ベース基材と接触し、当該有機フィルムの残りの部分が、障壁層の端部を囲みつつ、障壁層と接触する。

[0080] いくつかの実施形態では、前記発光層は、ピクセル電極と、対電極と、当該ピクセル電極と当該対電極との間に配置された有機発光層と、を有する。いくつかの実施形態では、前記ピクセル電極は、TFT層のソース／ドレイン電極に連結している。

いくつかの実施形態では、TFT層を通じてピクセル電極に電圧が印加されるとき、ピクセル電極と対電極との間に適切な電圧が形成され、それにより有機発光層が光を放射し、それにより画像が形成される。以下、TFT層と発光ユニットとを有する画像形成ユニットを、ディスプレイユニットと称する。

いくつかの実施形態では、ディスプレイユニットを被覆し、外部の水分の浸透を防止するカプセル化層は、有機フィルムと無機フィルムとが交互に積層する薄膜状のカプセル化構造に形成されてもよい。いくつかの実施形態では、前記カプセル化層は、複数の薄膜が積層した薄膜状カプセル化構造を有する。いくつかの実施形態では、インタフェース部に塗布される有機フィルムは、複数のディスプレイユニットの各々と間隔を置いて配置される。いく

つかの実施形態では、前記有機フィルムは、一部の有機フィルムが直接ベース基材と接触し、有機フィルムの残りの部分が障壁層の端部を囲む一方で障壁層と接触する態様で形成される。

[0081] 一実施形態では、OLEDディスプレイはフレキシブルであり、ポリイミドで形成された柔軟なベース基材を使用する。いくつかの実施形態では、前記ベース基材はガラス材料で形成されたキャリア基材上に形成され、次に当該キャリア基材が分離される。

いくつかの実施形態では、障壁層は、キャリア基材の反対側のベース基材の表面に形成される。一実施形態では、前記障壁層は、各セルパネルのサイズに従いパターン化される。例えば、ベース基材がマザーパネルの全ての表面上に形成される一方で、障壁層が各セルパネルのサイズに従い形成され、それにより、セルパネルの障壁層の間のインタフェース部に溝が形成される。各セルパネルは、前記溝に沿って切断できる。

[0082] いくつかの実施形態では、前記の製造方法は、更にインタフェース部に沿って切断する工程を含み、そこでは溝が障壁層に形成され、少なくとも一部の有機フィルムが溝で形成され、当該溝がベース基材に浸透しない。いくつかの実施形態では、各セルパネルのTFT層が形成され、無機フィルムである不動態化層と有機フィルムである平坦化フィルムが、TFT層上に配置され、TFT層を被覆する。例えばポリイミドまたはアクリル製の平坦化フィルムが形成されるのと同時に、インタフェース部の溝は、例えばポリイミドまたはアクリル製の有機フィルムで被覆される。これは、各セルパネルがインタフェース部で溝に沿って切断されるとき、生じた衝撃を有機フィルムに吸収させることによってひびが生じるのを防止する。すなわち、全ての障壁層が有機フィルムなしで完全に露出している場合、各セルパネルがインタフェース部で溝に沿って切断されるとき、生じた衝撃が障壁層に伝達され、それによりひびが生じるリスクが増加する。しかしながら、一実施形態では、障壁層間のインタフェース部の溝が有機フィルムで被覆されて、有機フィルムがなければ障壁層に伝達されうる衝撃を吸収するため、各セルパネルをソ

フトに切断し、障壁層でひびが生じるのを防止してもよい。一実施形態では、インタフェース部の溝を被覆する有機フィルムおよび平坦化フィルムは、互いに間隔を置いて配置される。例えば、有機フィルムおよび平坦化フィルムが1つの層として相互に接続している場合には、平坦化フィルムと有機フィルムが残っている部分とを通じてディスプレイユニットに外部の水分が浸入するおそれがあるため、有機フィルムおよび平坦化フィルムは、有機フィルムがディスプレイユニットから間隔を置いて配置されるように、相互に間隔を置いて配置される。

[0083] いくつかの実施形態では、ディスプレイユニットは、発光ユニットの形成により形成され、カプセル化層は、ディスプレイユニットを被覆するためディスプレイユニット上に配置される。これにより、マザーパネルが完全に製造された後、ベース基材を担持するキャリア基材がベース基材から分離される。いくつかの実施形態では、レーザー光線がキャリア基材へ放射されると、キャリア基材は、キャリア基材とベース基材との間の熱膨張率の相違により、ベース基材から分離される。

いくつかの実施形態では、マザーパネルは、セルパネル単位で切断される。いくつかの実施形態では、マザーパネルは、カッターを用いてセルパネル間のインタフェース部に沿って切断される。いくつかの実施形態では、マザーパネルが沿って切断されるインタフェース部の溝が有機フィルムで被覆されているため、切断の間、当該有機フィルムが衝撃を吸収する。いくつかの実施形態では、切断の間、障壁層でひびが生じるのを防止できる。

いくつかの実施形態では、前記方法は製品の不良率を減少させ、その品質を安定させる。

他の態様は、ベース基材上に形成された障壁層と、障壁層上に形成されたディスプレイユニットと、ディスプレイユニット上に形成されたカプセル化層と、障壁層の端部に塗布された有機フィルムと、を有するOLEDディスプレイである。

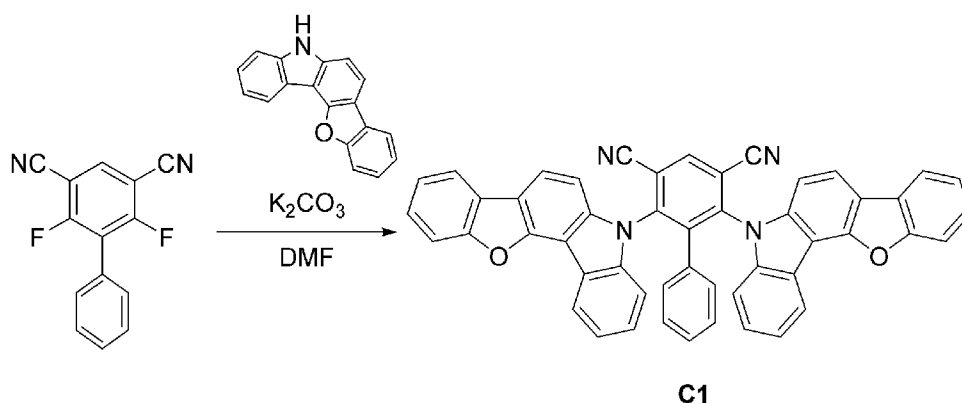
実施例

[0084] 以下に合成例と実施例を挙げて本発明の特徴をさらに具体的に説明する。

以下に示す材料、処理内容、処理手順等は、本発明の趣旨を逸脱しない限り適宜変更することができる。したがって、本発明の範囲は以下に示す具体例により限定的に解釈されるべきものではない。なお、発光特性の評価は、ソースメータ（ケースレー社製：2400シリーズ）、半導体パラメータ・アナライザ（アジレント・テクノロジー社製：E5273A）、光パワーメータ測定装置（ニューポート社製：1930C）、光学分光器（オーシャン光学社製：USB2000）、分光放射計（トプコン社製：SR-3）およびストリークカメラ（浜松ホトニクス（株）製C4334型）を用いて行った。

[0085] （合成例1）化合物C1の合成

[化31]



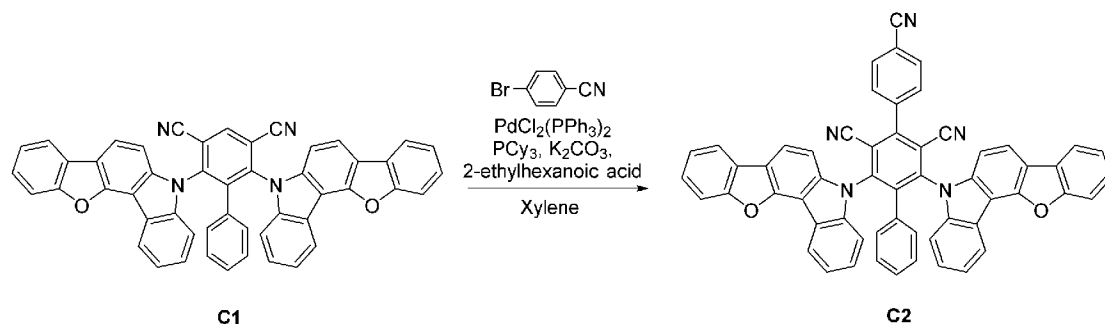
[0086] 窒素気流下で、炭酸カリウム（1.04 g, 7.5 mmol）、ベンゾフロ[2,3-c]カルバゾール（1.61 g, 6.3 mmol）および4,6-ジフルオロ-5-フェニルイソフタロニトリル（0.60 mmol, 2.5 mmol）をジメチルホルムアミド（20 mL）中、100℃で9時間反応した。その後、室温に戻し、水とメタノールを加え反応を停止した。析出した黄色固体をろ過し、ろ物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（トルエン）および再沈殿（トルエン／メタノール）で精製し、黄色固体の化合物C1（1.33 g, 収率76%）を得た。

¹H NMR (400MHz, CDCl₃, δ): 8.49 (s, 1H), 8.43 (d, J = 7.6 Hz, 2H), 7.96-

7.91 (m, 4H), 7.70 (d, $J = 7.6$ Hz, 2H), 7.47–7.36 (m, 8H), 7.14–7.11 (m, 2H), 7.10–7.07 (m, 2H), 6.52–6.46 (m, 3H), 6.37 (t, $J = 7.6$ Hz, 2H).
MS (ASAP): 715.34 ($M+H^+$). Calcd for $C_{50}H_{26}N_4O_2$: 714.21.

[0087] (合成例2) 化合物C 2 の合成

[化32]



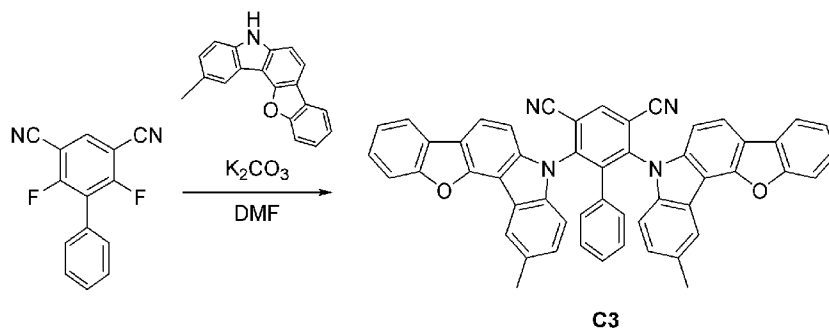
[0088] 化合物C 1 (2.40 g, 3.4 mmol), 4-ブロモベンゾニトリル (1.17 g, 5.0 mmol), 炭酸カリウム (0.93 g, 6.7 mmol), 2-エチルヘキサン酸 (0.10 mg, 0.7 mmol), トリシクロヘキシルホスフィン (0.10 g, 0.5 mmol) およびジクロロビス(トリフェニルホスフィン)パラジウム (0.20 g, 0.3 mmol) を窒素気流下でキシレン (30 mL) に溶解させ、120℃で18時間攪拌した。この混合物を室温に戻し、セライトろ過により難溶物を取り除いた。減圧留去によりろ液を濃縮後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (クロロホルム/ヘキサン = 2/1) および再沈殿 (トルエン/メタノール) にて精製し、白色固体の化合物C 2 (1.90 g, 収率68%) を得た。

^1H NMR (400MHz, CDCl_3 , δ): 8.43 (d, $J = 7.6$ Hz, 2H), 8.00–7.92 (m, 8H), 7.70 (d, $J = 8.0$ Hz, 2H), 7.48–7.36 (m, 8H), 7.19 (d, $J = 8.0$ Hz, 2H), 7.14 (d, $J = 8.0$ Hz, 2H), 6.54–6.50 (m, 3H), 6.40 (t, $J = 7.6$ Hz, 2H).

MS (ASAP): 816.45 ($M+H^+$). Calcd for $C_{57}H_{29}N_5O_2$: 815.23.

[0089] (合成例3) 化合物C 3 の合成

[化33]



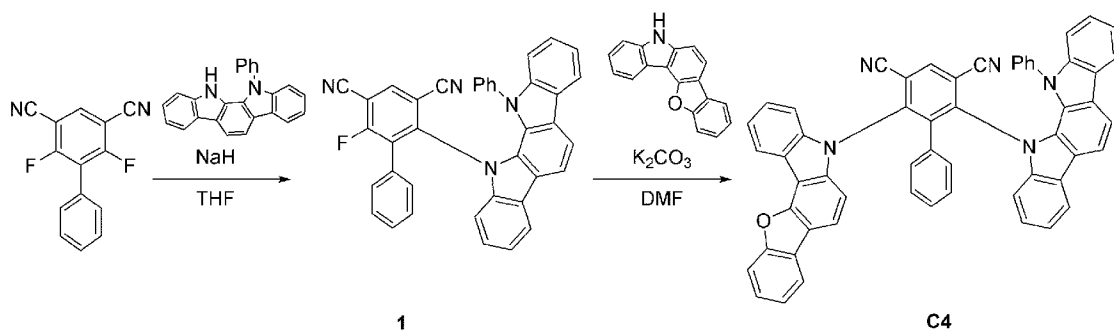
[0090] 窒素気流下で、炭酸カリウム（1.22 g, 8.8 mmol）、ベンゾフロ[2,3-c]カルバゾール（2.00 g, 7.4 mmol）および4,6-ジフルオロ-5-フェニルイソフタロニトリル（0.77 mmol, 3.0 mmol）をジメチルホルムアミド（36 mL）中、80℃で2時間反応した。その後、室温に戻し、水を加え反応を停止した。反応混合物にクロロホルムを加え分液し、有機層を硫酸マグネシウムにて乾燥した。溶媒を減圧留去後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（トルエン）で精製することで黄色固体の化合物C3（2.25 g, 収率90%）を得た。

^1H NMR (400 MHz, CDCl_3 , δ): 8.44 (s, 1H), 8.22 (d, $J = 5.2$ Hz, 2H), 7.92 (t, $J = 7.2$ Hz, 2H), 7.88–7.81 (m, 2H), 7.69 (d, $J = 8.0$ Hz, 2H), 7.45–7.40 (m, 2H), 7.38–7.33 (m, 2H), 7.27–7.26 (m, 1H), 7.22 (t, $J = 8.4$ Hz, 1H), 7.07–6.95 (m, 4H), 6.49–6.46 (m, 3H), 6.40–6.36 (m, 2H), 2.56 (d, $J = 7.2$ Hz, 6H).

MS (ASAP): 743.28 $[(\text{M}+\text{H})^+]$, cal. $\text{C}_{52}\text{H}_{31}\text{N}_4\text{O}_2$, 743.24].

[0091]（合成例4）化合物C4の合成

[化34]



[0092] 窒素気流下で、水素化ナトリウム (0.30 g, 7.5 mmol), 11-フェニル-11,12-ジヒドロインドロ[2,3-a]カルバゾール (2.08 g, 6.3 mmol) を THF (20 mL) 中、室温で1時間間攪拌後、テトラヒドロフラン (50 mL) に溶解させた4,6-ジフルオロ-5-フェニルイソフタロニトリル (1.50 g, 6.24 mmol) 滴下にて加えた。5時間室温で反応した後、水を加え反応を停止させた。反応混合物にクロロホルムを加え分液し、有機層を硫酸マグネシウムにて乾燥した。溶媒を減圧留去後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (トルエン) で精製することで黄色固体の中間体1 (1.82 g, 収率53%) を得た。

^1H NMR (400 MHz, CDCl_3 , δ): 8.10 (d, $J = 8.4$ Hz, 1H), 7.99 (d, $J = 7.6$ Hz, 1H), 7.78 (s, 1H), 7.61 (d, $J = 6.4$ Hz, 1H), 7.48–7.40 (m, 4H), 7.36–7.20 (m, 7H), 6.84–6.82 (br, 1H), 6.70 (t, $J = 7.6$ Hz, 1H), 6.40 (t, $J = 7.6$ Hz, 2H), 6.06 (br, 1H); MS (ASAP): 553.70 $[(\text{M}+\text{H})^+]$, cal. $\text{C}_{38}\text{H}_{22}\text{FN}_4$, 553.18].

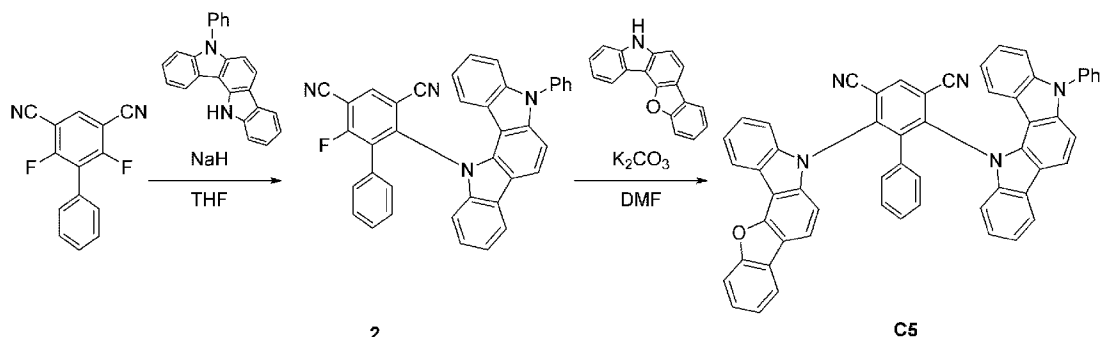
[0093] 窒素気流下で、炭酸カリウム (0.36 g, 2.6 mmol), ベンゾフロ[2,3-c]カルバゾール (0.54 g, 2.1 mmol) および中間体1 (0.96 mmol, 1.7 mmol) をジメチルホルムアミド (17 mL) 中、室温で4時間反応した。水を加えることで反応を停止し、反応混合物にクロロホルムを加え分液し、有機層を硫酸マグネシウムにて乾燥した。溶媒を減圧留去後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (トルエン) で精製することで黄色固体の化合物C4 (1.36 g, 収率99%) を得た。

^1H NMR (400 MHz, CDCl_3 , δ): 8.78 (s, 1.00), 8.55 (d, $J = 8.8$ Hz, 0.54), 8.27–8.19 (m, 2.38), 8.02–7.97 (m, 1.55), 7.89–7.83 (m, 2.85), 7.94–7.75 (m, 1.99), 7.70–7.62 (m, 1.98), 7.59–7.43 (m, 6.17), 7.39–7.34 (m, 0.51), 7.29–7.26 (m, 2.61), 7.21–7.16 (m, 1.02), 7.06–6.99 (m, 1.00), 6.81 (br, 0.90), 6.67–6.61 (m, 1.00), 6.15 (t, $J = 7.6$ Hz, 0.5)

, 6.09 (t, $J = 7.6$ Hz, 0.5), 5.91 (br, 1.87), 5.57 (br, 0.90), 5.29 (br, 0.90); MS (ASAP): 790.31 $[(M+H)^+]$, cal. $C_{56}H_{32}N_4O$, 790.25].

[0094] (合成例5) 化合物C 5 の合成

[化35]



[0095] 窒素気流下で、水素化ナトリウム (0.30 g, 7.5 mmol), 5-フェニルー5, 12-ジヒドロインドロ [3, 2-a] カルバゾールをTHF (50 mL) 中、室温で1時間間攪拌後、THF (50 mL) に溶解させた4, 6-ジフルオロ-5-フェニルイソフタロニトリル (1.49 g, 6.20 mmol) 滴下にて加えた。15時間室温で反応した後、水で反応を停止させた。反応混合物にクロロホルムを加え分液し、有機層を硫酸マグネシウムにて乾燥した。溶媒を減圧留去後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (トルエン) で精製することで黄色固体の中間体2 (1.70 g, 収率50%) を得た。

1H NMR (400 MHz, $CDCl_3$, δ): 9.05 (d, $J = 6.4$ Hz, 1H), 8.16 (d, $J = 8.8$ Hz, 1H), 8.09–8.07 (m, 1H), 7.72–7.68 (m, 2H), 7.61–7.57 (m, 3H), 7.37–7.29 (m, 2H), 7.27–7.19 (m, 4H), 7.14–7.02 (m, 2H), 6.99–6.95 (m, 4H), 6.21 (d, $J = 8.0$ Hz, 1H).

MS (ASAP): 553.40 $[(M+H)^+]$, cal. $C_{38}H_{22}FN_4$, 553.18].

[0096] 窒素気流下で、炭酸カリウム (0.43 g, 3.1 mmol), ベンゾフロ [2, 3-c] カルバゾール (0.66 g, 2.6 mmol) および中間体2 (1.30 mmol, 2.4 mmol) をジメチルホルムアミド (25 mL) 中、室温で4時間反応した。水を加えることで反応を停止し、反応混

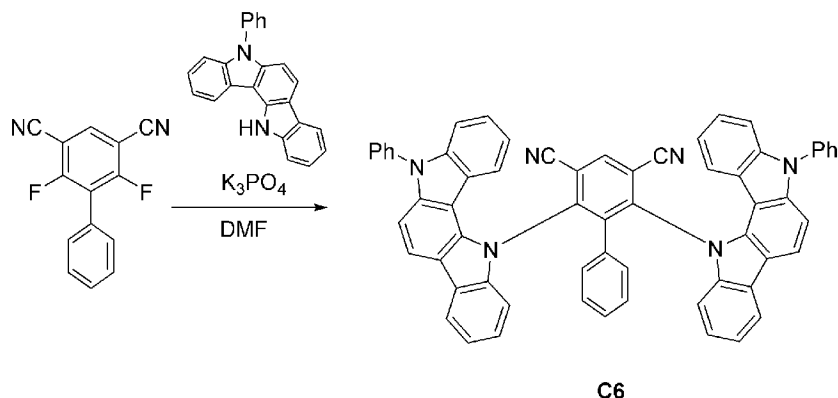
合物にクロロホルムを加え分液し、有機層を硫酸マグネシウムにて乾燥した。溶媒を減圧留去後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（トルエン）で精製することで黄色固体の化合物C 5（1.63 g, 収率88%）を得た。

^1H NMR (400 MHz, CDCl_3 , δ): 9.44 (s, 1H), 8.22–8.17 (m, 1H), 8.12–8.07 (m, 1H), 7.76 (d, $J = 8.0$ Hz, 1H), 7.69–7.26 (m, 17H), 7.08 (d, $J = 8.4$ Hz, 1H), 6.54–6.49 (m, 1H), 6.40–6.03 (m, 5H).

MS (ASAP): 790.37 $[(\text{M}+\text{H})^+]$, cal. $\text{C}_{56}\text{H}_{32}\text{N}_4\text{O}$, 790.25].

[0097]（合成例6）化合物C 6の合成

[化36]



[0098] 窒素気流下で、リン酸カリウム（1.74 g, 8.2 mmol）, 5-フェニル-5, 12-ジヒドロインドロ[3, 2-a]カルバゾール（2.28 g, 6.8 mmol）および4, 6-ジフルオロ-5-フェニルイソフタロニトリル（0.66 g, 2.7 mmol）をジメチルホルムアミド（30 mL）中、110℃で6時間反応した。反応後、室温で水を加えることで反応を停止し、反応混合物にクロロホルムを加え分液し、有機層を硫酸マグネシウムにて乾燥した。溶媒を減圧留去後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（トルエン）で精製することで黄色固体の化合物C 6（0.97 g, 収率41%）を得た。

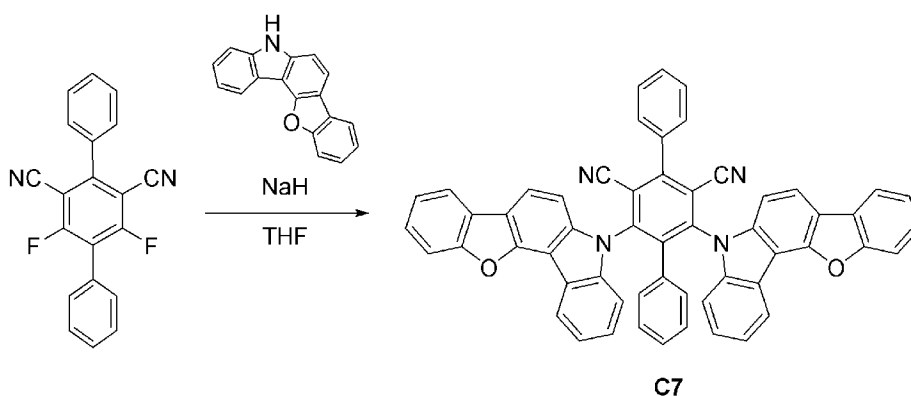
^1H NMR (400 MHz, CDCl_3 , δ): 9.57 (s, 1H), 8.01 (d, $J = 7.6$ Hz, 2H), 7.91 (d, $J = 8.4$ Hz, 2H), 7.64–7.60 (m, 4H), 7.54–7.50 (m, 4H), 7.42–7

.35 (m, 10H), 7.26 (t, $J = 8.0$ Hz, 2H), 7.22–7.19 (m, 2H), 6.91 (d, $J = 8.4$ Hz, 2H), 6.52–6.49 (m, 2H), 6.21 (t, $J = 7.2$ Hz, 1H), 5.78 (t, $J = 8.0$ Hz, 2H), 5.22 (d, $J = 7.6$ Hz, 2H).

MS (ASAP): 865.47 [(M+H)⁺, cal. C₆₂H₃₇N₆, 865.30].

[0099] (合成例 7) 化合物 C 7 の合成

[化37]



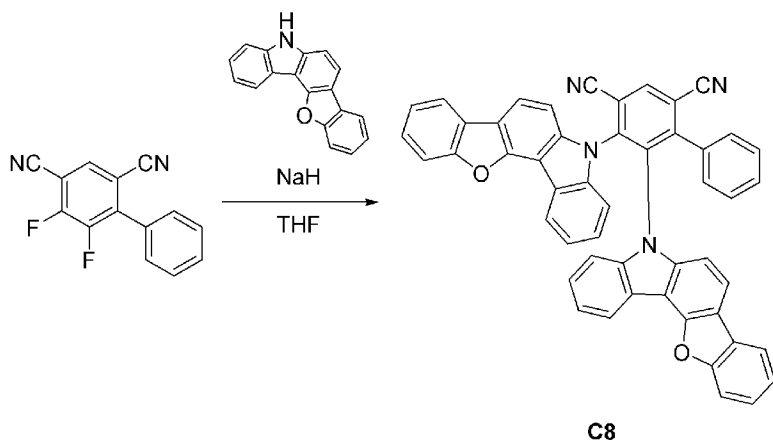
[0100] 窒素気流下で、水素化ナトリウム (0.19 g, 4.7 mmol), ベンゾフロ [3, 2-c] カルバゾール (1.02 g, 4.0 mmol) をテトラヒドロフラン (15 mL) 中, 0℃で30分間攪拌後, 4, 6-ジフルオロ-5-フェニルイソフタロニトリルを加えた。反応溶液を40℃に昇温し6時間反応した後、室温に戻し、水とメタノールで反応を停止した。析出した黄色固体をろ過し、ろ物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (トルエン/ヘキサン=4/1) および再沈殿 (トルエン/メタノール) で精製し、黄色固体の化合物 C 7 (0.98 g, 収率 78%) を得た。

¹H NMR (400MHz, CDCl₃, δ): 8.44 (d, $J = 8.0$ Hz, 2H), 7.99–7.95 (m, 4H), 7.89–7.86 (m, 2H), 7.73–7.63 (m, 5H), 7.49–7.45 (m, 4H), 7.42–7.37 (m, 4H), 7.25 (d, $J = 8.4$ Hz, 2H), 7.23 (d, $J = 8.8$ Hz, 2H), 6.56–6.50 (m, 3H), 6.40 (t, $J = 7.6$ Hz, 2H).

MS (ASAP): 791.26 (M+H⁺). Calcd for C₅₆H₃₀N₄O₂: 790.24

[0101] (合成例 8) 化合物 C 8 の合成

[化38]



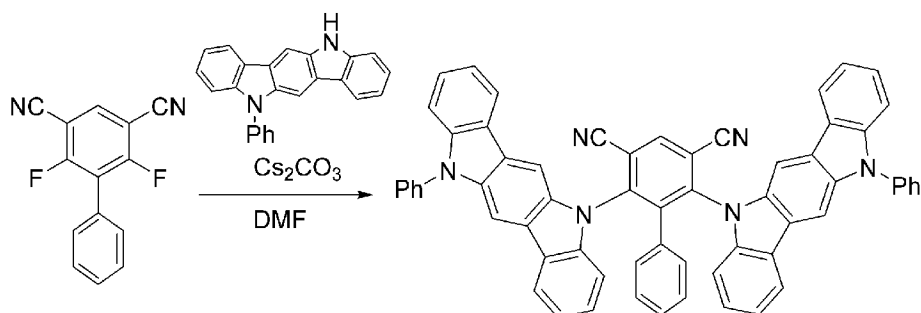
[0102] 窒素気流下で、水素化ナトリウム（0.49 g, 11.8 mmol）、ベンゾフロ[3,2-c]カルバゾール（2.54 g, 9.9 mmol）をテトラヒドロフラン（20 mL）中、0℃で30分間攪拌後、4,5-ジフルオロ-6-フェニルイソフタロニトリルを加えた。反応溶液を室温に戻し6時間室温で反応した後、水とメタノールで反応を停止した。析出した黄色固体をろ過し、ろ物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（トルエン／クロロホルム＝10／1）および再沈殿（トルエン／メタノール）で精製し、黄色固体の化合物C8（0.48 g, 収率17%）を得た。

^1H NMR (400MHz, CDCl_3 , δ): (With the presence of stereoisomers in the sample, the proton number is displayed as a relative ratio.) 8.53 (s, 1H), 8.12 (t, $J = 7.6$ Hz, 1H), 7.97–7.94 (m, 1H), 7.89–7.74 (m, 2H), 7.67 (d, $J = 8.4$ Hz, 0.5H), 7.59–7.50 (m, 3H), 7.45 (d, $J = 8.4$ Hz, 0.5H), 7.41–7.28 (m, 4H), 7.22–7.17 (m, 0.5H), 7.14–6.97 (m, 10H), 6.90–6.84 (m, 2.5H).

MS (ASAP): 715.38 ($\text{M}+\text{H}^+$). Calcd for $\text{C}_{50}\text{H}_{26}\text{N}_4\text{O}_2$: 714.21

[0103] （合成例9）化合物C9の合成

[化39]

**C9**

[0104] 窒素気流下、炭酸セシウム（1.30g, 4.0mmol）, 5-フェニル-5,11-ジヒドロインドロ[3,2-a]カルバゾール（0.78g, 2.3mmol）および4,6-ジフルオロ-5-フェニルイソフタロニトリル（0.24g, 1.0mmol）をジメチルホルムアミド（20mL）中、80℃で12時間反応した。反応後、室温で水を加えることで反応を停止し、反応混合物にクロロホルムを加え分液し、有機層を硫酸マグネシウムにて乾燥した。溶媒を減圧留去後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（トルエン）および再沈殿（トルエン／メタノール）で精製することで黄色固体の化合物C9（0.17g, 収率22%）を得た。

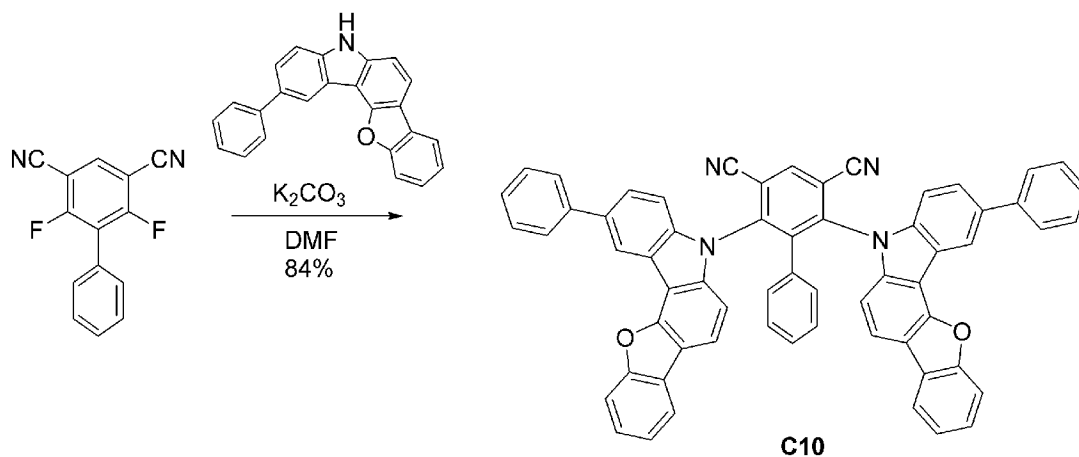
^1H NMR (400MHz, CDCl_3 , δ): 8.53 (d, $J=7.6$ Hz, 1H), 8.21 (d, $J=8.0$ Hz, 1H), 8.15 (d, $J=8.0$ Hz, 1H), 7.89–7.96 (m, 4H), 7.85 (s, 1H), 7.78 (s, 1H), 7.07–7.66 (m, 22H), 6.95 (d, $J=8.0$ Hz, 1H), 6.40–6.58 (m, 3H), 6.34 (t, $J=8.0$ Hz, 2H).

MS (ASAP): 865.58 ($\text{M}+\text{H}^+$). Calcd for $\text{C}_{62}\text{H}_{36}\text{N}_6$: 864.30

[0105] （合成例10）化合物C10の合成

合成例1と同様の手法により化合物C10を合成した（収率84%）。

[化40]



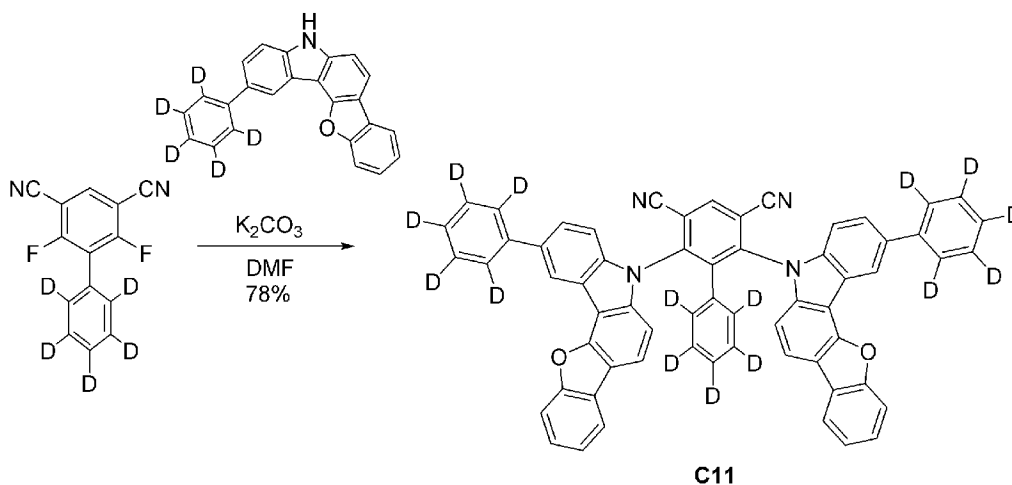
[0106] ^1H NMR (400MHz, CDCl_3 , δ): 8.62 (s, 2H), 8.51 (s, 1H), 7.99–7.90 (m, 4H), 7.79–7.71 (m, 6H), 7.69–7.64 (m, 2H), 7.52–7.44 (m, 6H), 7.39–7.35 (m, 4H), 7.21–7.18 (m, 2H), 7.09–7.06 (m, 2H), 6.58–6.50 (m, 3H), 6.41 (t, $J = 8.4$ Hz, 2H).

MS (ASAP): 867.50 ($\text{M}+\text{H}^+$). Calcd for $\text{C}_{62}\text{H}_{34}\text{N}_4\text{O}_2$: 866.27.

[0107] (合成例 1 1) 化合物 C 1 1 の合成

合成例 1 と同様の手法により化合物 C 1 1 を合成した (収率 78%)。

[化41]



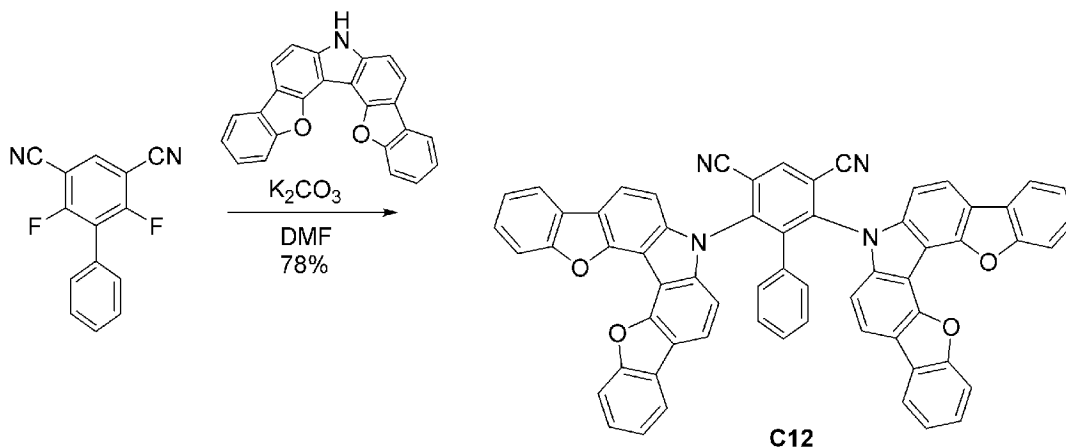
[0108] ^1H NMR (400MHz, CDCl_3 , δ): 8.62 (s, 2H), 8.51 (s, 1H), 7.96–7.91 (m, 4H), 7.72 (d, $J = 8.2$ Hz, 2H), 7.70–7.64 (m, 2H), 7.46–7.37 (m, 2H), 7.21–7.19 (m, 2H), 7.09–7.06 (m, 2H),

MS (ASAP): 882.21 (M+H⁺). Calcd for C₆₂H₁₉D₁₅N₄O₂: 881.36.

[0109] (合成例 1 2) 化合物 C 1 2 の合成

合成例 1 と同様の手法により化合物 C 1 2 を合成した (収率 7 8 %)。

[化42]



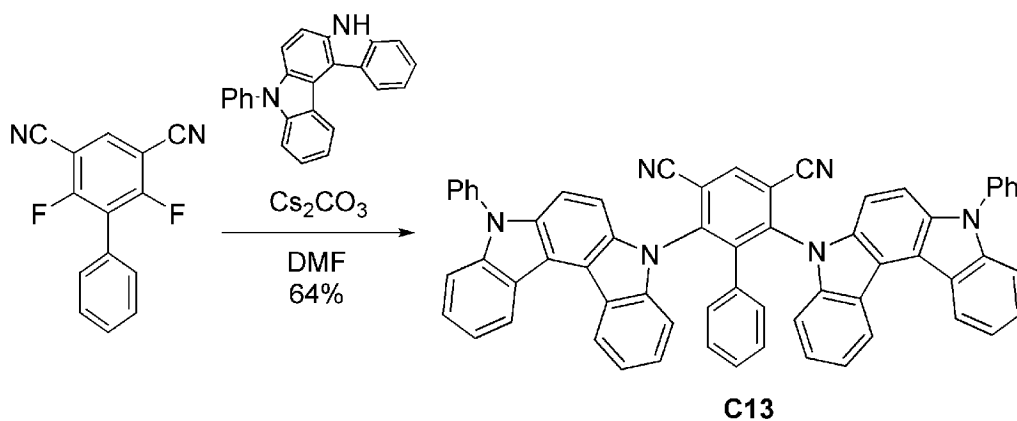
[0110] ¹H NMR (400MHz, DMSO, δ): 9.48 (s, 1H), 8.51 (s, 1H), 8.29 (d, J = 8.4 Hz, 4H), 8.19 (d, J = 8.4 Hz, 4H), 7.91 (m J = 8.4 Hz, 4H), 7.84 (t, J = 6.8 Hz, 4H), 7.45 (t, J = 6.8 Hz, 4H), 6.73(t, J = 7.2 Hz ,2H), 6.38 (t, J = 7.2 Hz ,3H),

MS (ASAP): 895.35 (M+H⁺). Calcd for C₆₂H₃N₄O₄:894.23

[0111] (合成例 1 3) 化合物 C 1 3 の合成

合成例 1 と同様の手法により化合物 C 1 3 を合成した (収率 6 4 %)。

[化43]



[0112] ¹H NMR (400MHz, CDCl₃, δ): 8.82–8.76 (m, 4H), 8.45 (s, 1H), 7.64–7.32

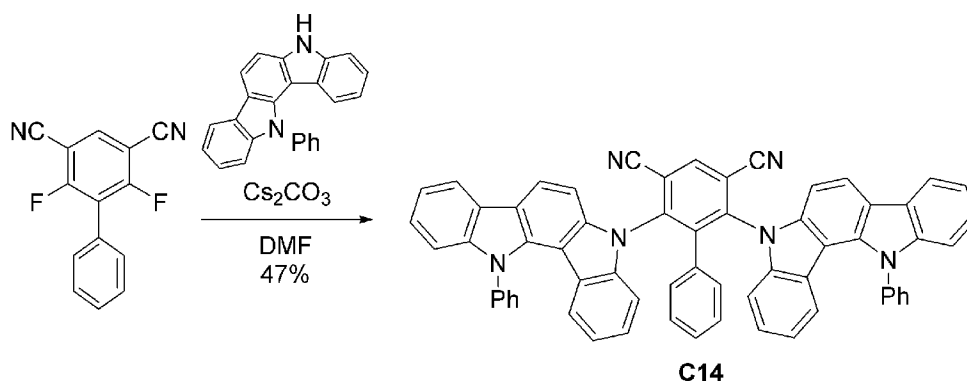
(m, 22H), 7.21 (d, $J = 9.2$ Hz, 2H), 7.08–7.05 (m, 2H), 6.47–6.44 (m, 3H), 6.32 (t, $J = 9.2$ Hz, 2H).

MS (ASAP): 865.27 ($M+H^+$). Calcd for $C_{62}H_{36}N_6$: 864.30

[0113] (合成例 14) 化合物 C 14 の合成

合成例 1 と同様の手法により化合物 C 14 を合成した (収率 47%)。

[化 44]



[0114] 1H NMR (400MHz, $CDCl_3$, δ): 8.47 (s, 1H), 8.19–8.10 (m, 4H), 7.68–7.51 (m, 10H), 7.38–7.26 (m, 6H), 7.20–7.14 (m, 2H), 7.06–6.98 (m, 4H), 6.74 (t, $J = 7.6$ Hz, 2H), 6.47–6.44 (m, 3H), 6.31 (t, $J = 7.6$ Hz, 2H)...

MS (ASAP): 865.37 ($M+H^+$). Calcd for $C_{62}H_{36}N_6$: 864.30

[0115] (実施例 1～9、比較例 1～4) 薄膜の作製と評価

石英基板上に真空蒸着法にて、真空度 1×10^{-3} Pa 未満の条件にて化合物 C 1 と Host 1 とを異なる蒸着源から蒸着し、化合物 C 1 の濃度が 20 重量%である薄膜を 100 nm の厚さで形成し、実施例 1 のドープ薄膜とした。

化合物 C 1 の代わりに、化合物 C 2～C 9 をそれぞれ用いて、順に実施例 2～9 の薄膜を得た。また、化合物 A と PPF を用いて同様に比較例 1 の薄膜を得た。なお、本願明細書中の実施例および比較例にて発光材料として用いた各化合物は、使用前に昇華精製をしてから用いた。

得られた各薄膜に 300 nm 励起光を照射したところ、いずれの薄膜についてもフォトルミネッセンスが認められた。発光の過渡減衰曲線から遅延蛍光の寿命 (τ_d) を得て、比較例 1 の寿命をきじゅんとして比較例 1 に対する

相対値を計算した。結果は以下の表に示す通りであった。実施例 1 ～ 9 の遅延蛍光寿命 (τ_d) が短いことが確認された。

[表2]

	化合物	τ_d (%)
実施例 1	化合物 C 1	25. 7
実施例 2	化合物 C 2	16. 2
実施例 3	化合物 C 3	23. 2
実施例 4	化合物 C 4	19. 2
実施例 5	化合物 C 5	39. 2
実施例 6	化合物 C 6	41. 5
実施例 7	化合物 C 7	43. 7
実施例 8	化合物 C 8	36. 5
実施例 9	化合物 C 9	9. 95
比較例 1	比較化合物 A	100

[0116] (実施例 10 ～ 14、比較例 2) 有機エレクトロルミネッセンス素子の作製

膜厚 100 nm のインジウム・スズ酸化物 (ITO) からなる陽極が形成されたガラス基材上に、各薄膜を真空蒸着法にて、真空度 1×10^{-6} Pa で積層した。まず、ITO 上に HATCN を 10 nm の厚さに形成し、その上に NPD を 30 nm の厚さに形成した。次いで、その上に TrisPCz を 10 nm の厚さに形成し、さらにその上に Host 1 を 5 nm の厚さに形成した。次に、化合物 C 1 および Host 1 をそれぞれ異なる蒸着源から共蒸着し、30 nm の厚さの発光層を形成した。このとき、化合物 C 1 の濃度は 35 重量%とした。その上に、SF3TRZ を 10 nm の厚さに形成し、さらにその上に SF3TRZ と Liq を異なる蒸着源から共蒸着して 30 nm の厚さに形成した。この時、SF3TRZ : Liq (重量比) は 7 : 3 とした。さらに、Liq を 2 nm の厚さに形成し、次いでアルミニウム (Al) を 100 nm の厚さに蒸着することにより陰極を形成した。以上の手順によ

り、実施例 10 の有機エレクトロルミネッセンス素子を作製した。

化合物 C 1 の代わりに、化合物 C 2、化合物 C 3、化合物 C 4、化合物 C 6、比較化合物 A をそれぞれ用いて、順に実施例 11 ～ 14、比較例 2 の有機エレクトロルミネッセンス素子を作製した。

[0117] (評価)

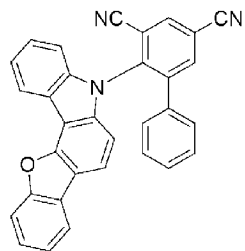
実施例 10 の有機エレクトロルミネッセンス素子の発光について、CIE 色度座標の x と y を測定したところ、 $x = 0.26$ 、 $y = 0.57$ で色度が良好であることが確認された。また、実施例 10 と比較例 2 の各有機エレクトロルミネッセンス素子の 12.6 mA/cm^2 における発光強度が 95% に低下するまでの時間 (LT95) を測定して、比較例 2 の LT95 を 1 としたときの相対値を算出した。結果は以下の表に示す通りであった。実施例 10 の有機エレクトロルミネッセンス素子は素子寿命 (素子耐久性) が大幅に改善されていた。

[0118] [表3]

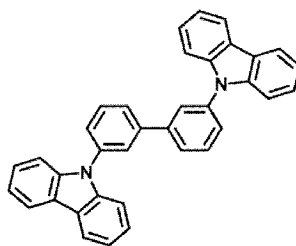
	化合物	LT95 (相対値)
実施例 10	化合物 C 1	54.4
比較例 2	比較化合物 A	1

[0119]

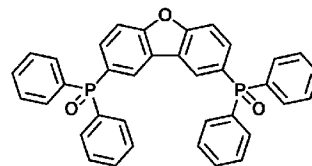
[化45]



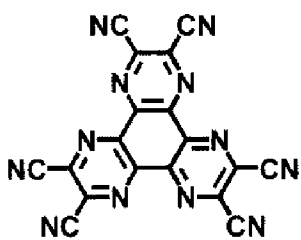
比較化合物A



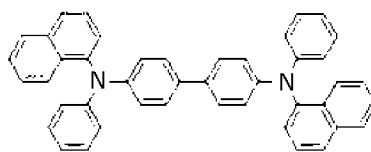
mCBP



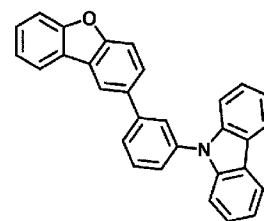
PPF



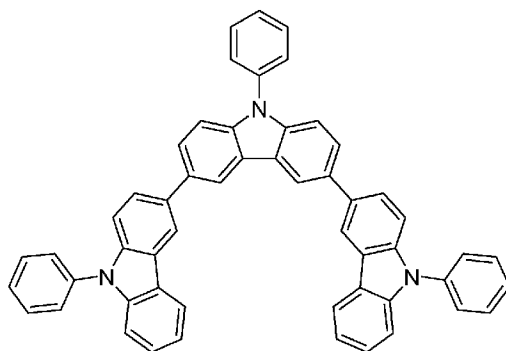
HATCN



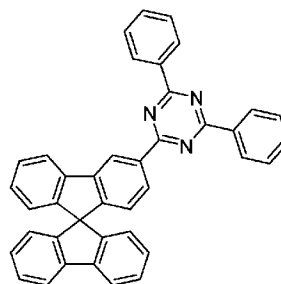
NPD



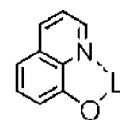
Host1



TrisPCz



SF3TRZ



Liq

符号の説明

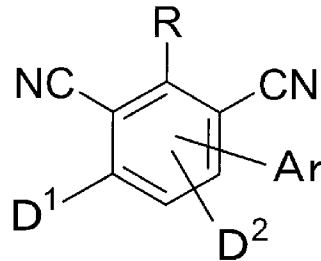
- [0120]
- 1 基材
 - 2 陽極
 - 3 正孔注入層
 - 4 正孔輸送層
 - 5 発光層
 - 6 電子輸送層
 - 7 陰極

請求の範囲

[請求項1] 下記一般式（１）で表される化合物。

[化1]

一般式（１）



[一般式（１）において、

Rは、水素原子、重水素原子、置換もしくは無置換のアリール基、または炭素原子で結合する置換もしくは無置換のヘテロアリール基であり、

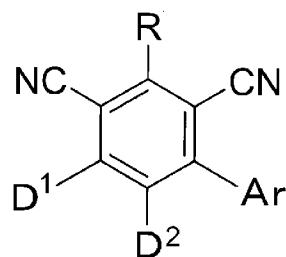
Arは、置換もしくは無置換のアリール基、または炭素原子で結合する置換もしくは無置換のヘテロアリール基であり、

D¹およびD²は、各々独立にドナー性基を表すが、そのうちの少なくとも１つはヘテロ環縮合カルバゾール－９－イル基（前記ヘテロ環と前記カルバゾールは置換されていてもよい）である。]

[請求項2] 前記化合物が下記一般式（２）で表される、請求項１に記載の化合物。

[化2]

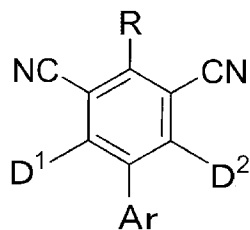
一般式（２）



[請求項3] 前記化合物が下記一般式（３）で表される、請求項１に記載の化合物。

[化3]

一般式 (3)



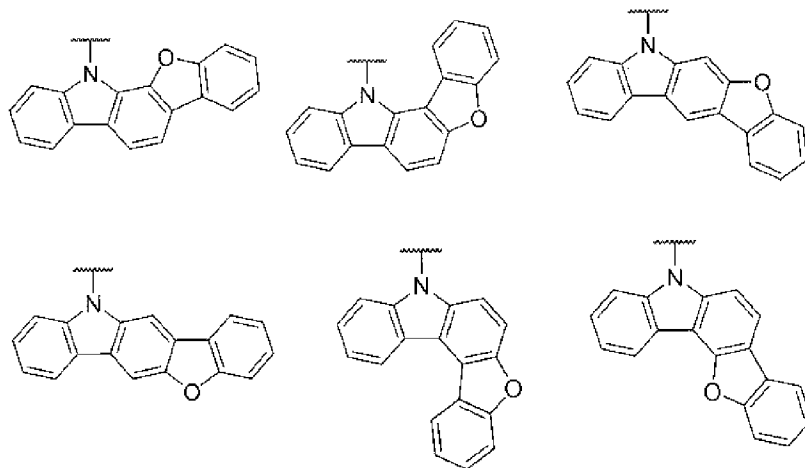
[請求項4] D¹とD²が同一である、請求項1～3のいずれか1項に記載の化合物。

[請求項5] D¹とD²が異なる、請求項1～3のいずれか1項に記載の化合物。

[請求項6] 前記ヘテロ環縮合カルバゾールー9-イル基のカルバゾールー9-イル基に縮合しているヘテロ環が、置換もしくは無置換のフラン環、置換もしくは無置換のチオフェン環、または置換もしくは無置換のピロール環であって、前記フラン環、前記チオフェン環および前記ピロール環にはさらに他の環が縮合していてもよい、請求項1～5のいずれか1項に記載の化合物。

[請求項7] 前記ヘテロ環縮合カルバゾールー9-イル基が下記のいずれかの構造を有する、請求項1～6のいずれか1項に記載の化合物。

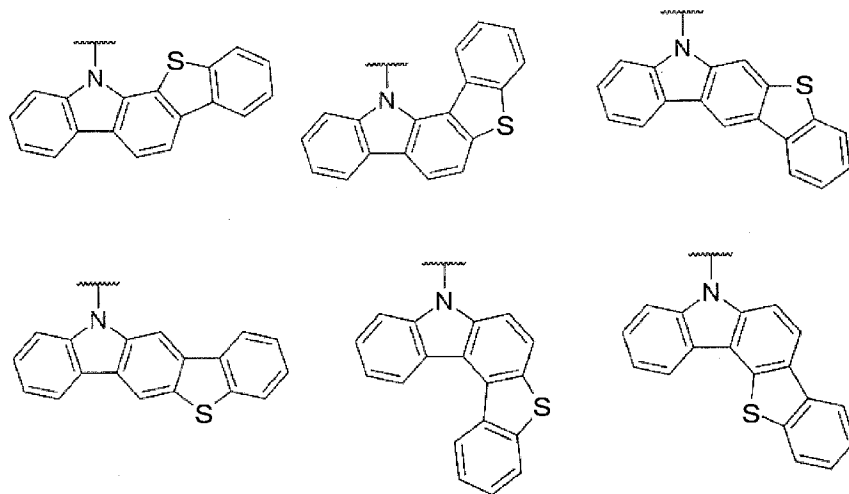
[化4]



[上記の各構造において、水素原子は置換されていてもよいが、さらにヘテロ環が縮合していることはない。]

[請求項8] 前記ヘテロ環縮合カルバゾールー9-イル基が下記のいずれかの構造を有する、請求項1～6のいずれか1項に記載の化合物。

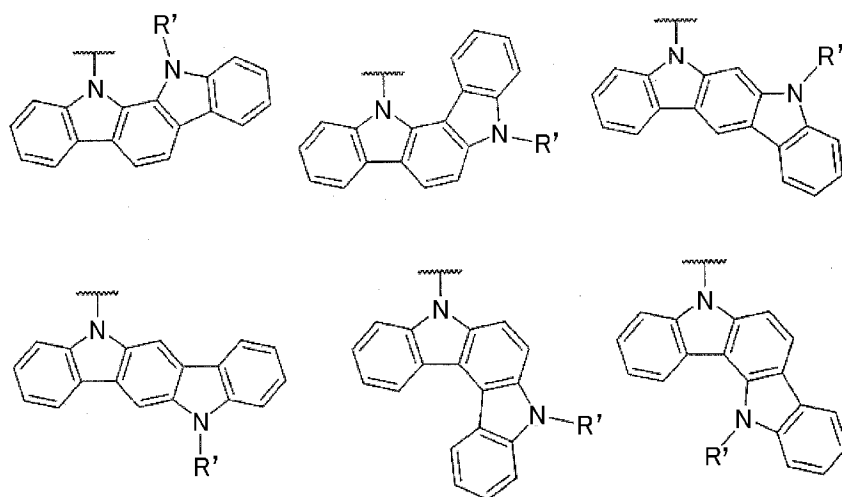
[化5]



[上記の各構造において、水素原子は置換されていてもよいが、さらにヘテロ環が縮合していることはない。]

[請求項9] 前記ヘテロ環縮合カルバゾールー9-イル基が下記のいずれかの構造を有する、請求項1～6のいずれか1項に記載の化合物。

[化6]

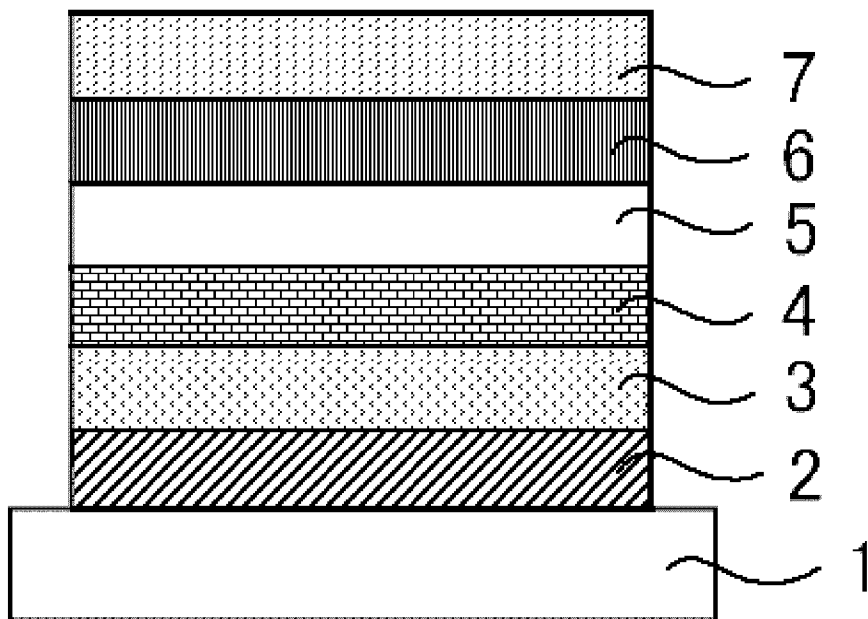


[上記の各構造において、水素原子は置換されていてもよいが、さらにヘテロ環が縮合していることはない。R' は水素原子、重水素原子または置換基を表す。]

- [請求項10] 前記ヘテロ環縮合カルバゾールー9-イル基のカルバゾールー9-イル基に、置換もしくは無置換のフラン環、置換もしくは無置換のチオフェン環、および置換もしくは無置換のピロール環（前記フラン環、前記チオフェン環および前記ピロール環にはさらに他の環が縮合していてもよい）からなる群より選択される2つのヘテロ環が縮合している、請求項1～9のいずれか1項に記載の化合物。
- [請求項11] 前記ヘテロ環縮合カルバゾールー9-イル基が、カルバゾール環の1, 2位にヘテロ環が縮合した構造を有する、請求項1～10のいずれか1項に記載の化合物。
- [請求項12] 前記ヘテロ環縮合カルバゾールー9-イル基が、カルバゾール環の2, 3位にヘテロ環が縮合した構造を有する、請求項1～10のいずれか1項に記載の化合物。
- [請求項13] 前記ヘテロ環縮合カルバゾールー9-イル基が、カルバゾール環の3, 4位にヘテロ環が縮合した構造を有する、請求項1～10のいずれか1項に記載の化合物。
- [請求項14] RとA_rが異なる、請求項1～13のいずれか1項に記載の化合物。
- [請求項15] Rが水素原子または重水素原子である、請求項1～13のいずれか1項に記載の化合物。
- [請求項16] A_rが置換もしくは無置換のフェニル基、または置換もしくは無置換のピリジル基である、請求項1～15のいずれか1項に記載の化合物。
- [請求項17] 炭素原子、水素原子、重水素原子、窒素原子、酸素原子および硫黄原子からなる群より選択される原子からなる、請求項1～16のいずれか1項に記載の化合物。
- [請求項18] 請求項1～17のいずれか1項に記載の化合物からなる発光材料。
- [請求項19] 請求項1～17のいずれか1項に記載の化合物を含むことを特徴とする発光素子。

- [請求項20] 前記発光素子が発光層を有しており、前記発光層が前記化合物とホスト材料を含む、請求項19に記載の発光素子。
- [請求項21] 前記発光素子が発光層を有しており、前記発光層が前記化合物と発光材料を含み、前記発光材料から主として発光する、請求項20に記載の発光素子。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2021/019431

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl. C07D491/048 (2006.01)i, C09K11/06 (2006.01)i, C07D487/04 (2006.01)i, C07D519/00 (2006.01)i, H01L51/50 (2006.01)n

FI: C07D491/048CSP, C09K11/06640, C09K11/06620, C09K11/06690, C07D519/00301, C09K11/06655, C09K11/06650, C07D487/04137, H05B33/14B

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl. C07D491/048, C09K11/06, C07D487/04, C07D519/00, H01L51/50

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan	1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan	1971-2021
Registered utility model specifications of Japan	1996-2021
Published registered utility model applications of Japan	1994-2021

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

CAplus/REGISTRY (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2019/195104 A1 (KYULUX, INC.) 10 October 2019 (2019-10-10), particularly, formula (I)	1-21
X	JP 2016-516085 A (MERCK PATENT GMBH) 02 June 2016 (2016-06-02), particularly, formula (I), compounds 245-247, 252, 253	1-21
A	WO 2018/237389 A1 (KYULUX INC.) 27 December 2018 (2018-12-27)	1-21
A	WO 2014/208698 A1 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) 31 December 2014 (2014-12-31)	1-21



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
05 July 2021

Date of mailing of the international search report
03 August 2021

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2021/019431

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2020/085765 A1 (LG CHEM, LTD.) 30 April 2020 (2020-04-30)	1-21
P, X	WO 2021/066059 A1 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) 08 April 2021 (2021-04-08), particularly, claims, examples	1-21

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2021/019431

WO 2019/195104 A1	10 October 2019	(Family: none)
JP 2016-516085 A	02 June 2016	US 2016/0072076 A1 particularly, formula (I), compounds 245-247, 252, 253 WO 2014/146752 A1 EP 2976329 A1 EP 3375785 A1 CN 105051014 A KR 10-2015-0132872 A CN 107739352 A
WO 2018/237389 A1	27 December 2018	US 2020/0119287 A1 US 2020/0115364 A1 US 2020/0115376 A1 WO 2018/237385 A1 WO 2018/237393 A1 EP 3642303 A1 KR 10-2020-0019694 A CN 110914378 A KR 10-2020-0023371 A CN 110997866 A
WO 2014/208698 A1	31 December 2014	US 2016/0130225 A1 US 2020/0148639 A1 EP 3015457 A1 CN 105209434 A KR 10-2016-0023655 A CN 108822137 A
WO 2020/085765 A1	30 April 2020	KR 10-2020-0045433 A
WO 2021/066059 A1	08 April 2021	(Family: none)

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C07D 491/048(2006.01)i; C09K 11/06(2006.01)i; C07D 487/04(2006.01)i; C07D 519/00(2006.01)i; H01L 51/50(2006.01)n FI: C07D491/048 CSP; C09K11/06 640; C09K11/06 620; C09K11/06 690; C07D519/00 301; C09K11/06 655; C09K11/06 650; C07D487/04 137; H05B33/14 B		
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC）） C07D491/048; C09K11/06; C07D487/04; C07D519/00; H01L51/50 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2021年 日本国実用新案登録公報 1996-2021年 日本国登録実用新案公報 1994-2021年 国際調査で利用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語） CAplus/REGISTRY (STN)		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	WO 2019/195104 A1 (KYULUX, INC.) 10.10.2019 (2019 - 10 - 10) 特に、Formula (I)	1-21
X	JP 2016-516085 A (メルク パテント ゲーエムベーハー) 02.06.2016 (2016 - 06 - 02) 特に、式 (I)、化合物245-247、化合物252-253	1-21
A	WO 2018/237389 A1 (KYULUX INC.) 27.12.2018 (2018 - 12 - 27)	1-21
A	WO 2014/208698 A1 (出光興産株式会社) 31.12.2014 (2014 - 12 - 31)	1-21
A	WO 2020/085765 A1 (LG CHEM, LTD.) 30.04.2020 (2020 - 04 - 30)	1-21
P, X	WO 2021/066059 A1 (出光興産株式会社) 08.04.2021 (2021 - 04 - 08) 特に、特許請求の範囲、実施例	1-21
☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。 ☒ パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー “A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの “E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの “L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） “O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 “P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献 “T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの “X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの “Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの “&” 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日 05.07.2021		国際調査報告の発送日 03.08.2021
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		権限のある職員（特許庁審査官） 安藤 倫世 4P 9837 電話番号 03-3581-1101 内線 3492

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2021/019431

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
WO	2019/195104	A1	10.10.2019	(ファミリーなし)	
JP	2016-516085	A	02.06.2016	US 2016/0072076	A1
				特に、式(1)、化合物245-247、化合物252-253	
				WO 2014/146752	A1
				EP 2976329	A1
				EP 3375785	A1
				CN 105051014	A
				KR 10-2015-0132872	A
				CN 107739352	A
WO	2018/237389	A1	27.12.2018	US 2020/0119287	A1
				US 2020/0115364	A1
				US 2020/0115376	A1
				WO 2018/237385	A1
				WO 2018/237393	A1
				EP 3642303	A1
				KR 10-2020-0019694	A
				CN 110914378	A
				KR 10-2020-0023371	A
				CN 110997866	A
WO	2014/208698	A1	31.12.2014	US 2016/0130225	A1
				US 2020/0148639	A1
				EP 3015457	A1
				CN 105209434	A
				KR 10-2016-0023655	A
				CN 108822137	A
WO	2020/085765	A1	30.04.2020	KR 10-2020-0045433	A
WO	2021/066059	A1	08.04.2021	(ファミリーなし)	