

(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
2022年6月23日(23.06.2022)



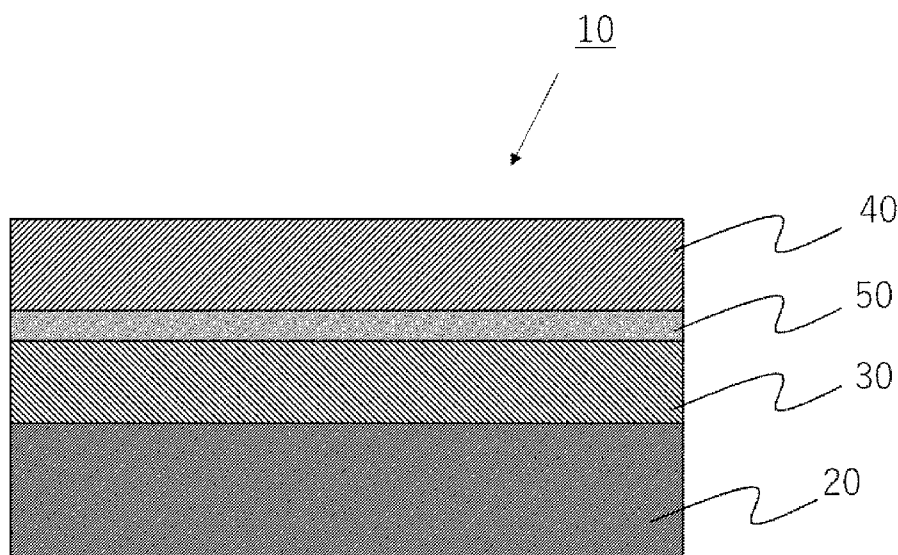
(10) 国際公開番号

WO 2022/130784 A1

- (51) 国際特許分類:
C09K 11/06 (2006.01) *F21S 2/00* (2016.01)
F21Y 115/10 (2016.01) *F21V 9/38* (2018.01)
F21Y 115/30 (2016.01) *G02F 1/13357* (2006.01)
G02B 5/20 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2021/039167
- (22) 国際出願日: 2021年10月22日(22.10.2021)
- (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 2020-210832 2020年12月18日(18.12.2020) JP
- (71) 出願人: 富士フイルム株式会社 (FUJIFILM CORPORATION) [JP/JP]; 〒1068620 東京都港区西麻布2丁目26番30号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 有年 陽平 (ARITOSHI, Yohei); 〒4188666 静岡県富士宮市大中里200番地 富士フイルム株式会社内 Shizuoka (JP).
- (74) 代理人: 特許業務法人太陽国際特許事務所 (TAIYO, NAKAJIMA & KATO); 〒1600022 東京都新宿区新宿4丁目3番17号 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,

(54) **Title:** COLOR CONVERSION FILM, METHOD FOR MANUFACTURING COLOR CONVERSION FILM, BACKLIGHT UNIT, AND LIQUID CRYSTAL DISPLAY DEVICE

(54) 発明の名称: 色変換フィルム、色変換フィルムの製造方法、バックライトユニット及び液晶表示装置



(57) **Abstract:** Provided is a color conversion film comprising: a support body; a first color conversion layer including an organic light-emitting material which, by being excited by excitation light having a wavelength of at least 400 nm but less than 500 nm, emits light having a peak wavelength observed in a region between 500 nm inclusive and 580 nm exclusive; a second color conversion layer including an organic light-emitting material which, by being excited by at least one of excitation light having a wavelength of at least 400 nm but less than 500 nm and light emitted by the organic light-emitting material, emits light having a peak wavelength observed in a region between 580 nm and 750 nm inclusive;



WO 2022/130784 A1

HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, IT, JO, JP, 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).

添付公開書類：

一 国際調査報告 (条約第21条(3))

and an interlayer mixed layer that is disposed between the first color conversion layer and the second color conversion layer, and that has the first color conversion layer and the second color conversion layer mixed therein. Also provided are a method for manufacturing the color conversion film, a backlight unit comprising the color conversion film, and a liquid crystal display device comprising the backlight unit.

(57) 要約：支持体と、波長400nm以上500nm未満の励起光により、ピーク波長が500nm以上580nm未満の領域に観測される発光を呈する有機発光材料を含む第1の色変換層と、波長400nm以上500nm未満の励起光及び有機発光材料の発光の少なくとも一方により、ピーク波長が580nm以上750nm以下の領域に観測される発光を呈する有機発光材料を含む第2の色変換層と、第1の色変換層及び第2の色変換層の間に、第1の色変換層及び第2の色変換層が混ざり合う層間混合層と、を備える、色変換フィルム、色変換フィルムの製造方法、上記色変換フィルムを備えるバックライトユニット及び上記バックライトユニットを備える液晶表示装置。

明 細 書

発明の名称：

色変換フィルム、色変換フィルムの製造方法、バックライトユニット及び液晶表示装置

技術分野

[0001] 本開示は、色変換フィルム、色変換フィルムの製造方法、バックライトユニット及び液晶表示装置に関する。

背景技術

[0002] 液晶表示装置（LCD：Liquid Crystal Display）等のフラットパネルディスプレイは、消費電力が小さく、省スペースの表示装置として、年々、用途が広がっている。

[0003] LCDが備えるバックライトユニットの色変換フィルムは、青色光により、緑色光及び赤色光を発光する発光材料を含むため、色変換フィルムから上記青色光、緑色光及び赤色光が混合した白色光を取り出すことが可能となる。

[0004] 色変換フィルムとしては、例えば、支持体と、波長400nm以上500nm未満の青色光によりピーク波長が500nm以上580nm未満の緑色光を発光する有機発光材料を含む（A）層と、上記青色光又は上記緑色光によりピーク波長が580nm以上750nm以下の赤色光を発光する有機発光材料を含む（B）層と、を備え、（A）層及び（B）層に含まれるバインダー樹脂のSP値が特定の関係を有する、色変換フィルムが知られている（例えば、国際公開第2018/221216号等参照）。

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 国際公開第2018/221216号において提案される色変換フィルムにおいて、（A）層と（B）層との積層は、加温ラミネートにより行われているところ、今般、本発明者は、上記色変換フィルムは、（A）層と、（B

）層との間の密着性に改善の余地があるとの知見を得た。

[0006] 本開示は、上記知見に基づいてなされたものであり、解決しようとする課題は、層間の密着性に優れる色変換フィルム、色変換フィルムの製造方法、上記色変換フィルムを備えるバックライトユニット及び上記バックライトユニットを備える液晶表示装置を提供することである。

課題を解決するための手段

[0007] <1> 支持体と、波長400nm以上500nm未満の励起光により、ピーク波長が500nm以上580nm未満の領域に観測される発光を呈する有機発光材料を含む第1の色変換層と、波長400nm以上500nm未満の励起光及び有機発光材料の発光の少なくとも一方により、ピーク波長が580nm以上750nm以下の領域に観測される発光を呈する有機発光材料を含む第2の色変換層と、第1の色変換層及び第2の色変換層の間に、第1の色変換層及び第2の色変換層が混ざり合う層間混合層と、この順に備える、色変換フィルム。

[0008] <2> 支持体と、波長400nm以上500nm未満の励起光及び第2の色変換層に含まれる有機発光材料の発光の少なくとも一方により、ピーク波長が580nm以上750nm以下の領域に観測される発光を呈する有機発光材料を含む第1の色変換層と、波長400nm以上500nm未満の励起光により、ピーク波長が500nm以上580nm未満の領域に観測される発光を呈する有機発光材料を含む第2の色変換層と、第1の色変換層及び第2の色変換層の間に、第1の色変換層及び第2の色変換層が混ざり合う層間混合層と、この順に備える、色変換フィルム。

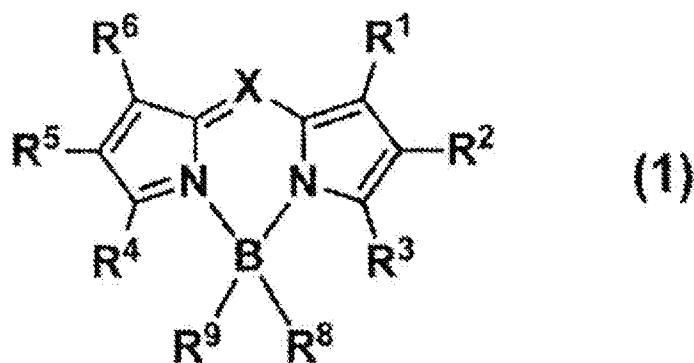
[0009] <3> 層間混合層の厚みが、0.1 μ m～2.0 μ mである、<1>又は<2>に記載の色変換フィルム。

[0010] <4> 第2の色変換層の、第1の色変換層とは反対側に、保護層を備える、<1>～<3>のいずれか1つに記載の色変換フィルム。

[0011] <5> 第1の色変換層に含まれる有機発光材料及び第2の色変換層に含まれる有機発光材料の少なくとも一方が、下記一般式(1)で表される、<1>

>～<4>のいずれか1つに記載の色変換フィルム用組成物

[化1]



一般式(1)中、Xは、C-R⁷又はNを表す。R¹～R⁹は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、複素環基、アルケニル基、シクロアルケニル基、アルキニル基、水酸基、チオール基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリールエーテル基、アリールチオエーテル基、アリール基、ヘテロアリール基、ハロゲン、シアノ基、アルデヒド基、カルボニル基、カルボキシ基、オキシカルボニル基、カルバモイル基、アミノ基、ニトロ基、シリル基、シロキサニル基、ボリル基及びホスフィンオキシド基の中から選ばれ、R¹～R⁹の隣接する基は縮合環を形成していてもよい。

[0012] <6> 支持体上に、波長400nm以上500nm未満の励起光により、ピーク波長が500nm以上580nm未満の領域に観測される発光を呈する有機発光材料を含む第1の色変換層を形成することと、第1の色変換層上に、波長400nm以上500nm未満の励起光及び有機発光材料の発光の少なくとも一方により、ピーク波長が580nm以上750nm以下の領域に観測される発光を呈する有機発光材料を含む第2の色変換層を形成し、かつ第1の色変換層及び第2の色変換層の間に、第1の色変換層及び第2の色変換層が混ざり合う層間混合層を形成することと、を含む、色変換フィルムの製造方法。

[0013] <7> 支持体上に、波長400nm以上500nm未満の励起光及び第2

の色変換層に含まれる有機発光材料の発光の少なくとも一方により、ピーク波長が580nm以上750nm以下の領域に観測される発光を呈する有機発光材料を含む第1の色変換層を形成することと、第1の色変換層上に、波長400nm以上500nm未満の励起光により、ピーク波長が500nm以上580nm未満の領域に観測される発光を呈する有機発光材料を含む第2の色変換層を形成し、かつ第1の色変換層及び第2の色変換層の間に、第1の色変換層及び第2の色変換層が混ざり合う層間混合層を形成することと、を含む、色変換フィルムの製造方法。

[0014] <8> 第1の色変換層の形成が、第1の色変換層形成用塗布液を、支持体上に塗布し、乾燥することにより行われる、<6>又は<7>に記載の色変換フィルムの製造方法。

[0015] <9> 第2の色変換層の形成が、第2の色変換層形成用塗布液を、第1の色変換層上に塗布し、乾燥することにより行われる、<6>～<8>のいずれか1つに記載の色変換フィルムの製造方法。

[0016] <10> 第2の色変換層形成用塗布液が、沸点100℃以上の高沸点有機溶剤及び沸点99℃以下の低沸点有機溶剤を含む、<9>に記載の色変換フィルムの製造方法。

[0017] <11> 第2の色変換層形成用塗布液に含まれる有機溶剤の総量100質量部に対する高沸点有機溶剤の含有量が、20質量部～80質量部である、<10>に記載の色変換フィルムの製造方法。

[0018] <12> 光源と、<1>～<5>のいずれか1つに記載の色変換フィルムと、を備えるバックライトユニット。

[0019] <13> <12>に記載のバックライトユニットと、液晶セルユニットと、を備える液晶表示装置。

発明の効果

[0020] 本開示によれば、層間の密着性に優れる色変換フィルム、色変換フィルムの製造方法、上記色変換フィルムを備えるバックライトユニット及び上記バックライトユニットを備える液晶表示装置を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0021] [図1]図1は、第1の態様に係る色変換フィルムの一実施形態を示す模式断面図である。

[図2]図2は、本開示のバックライトユニットの一実施形態を示す概略構成断面図である。

[図3]図3は、本開示の液晶表示装置の一実施形態を示す概略構成断面図である。

発明を実施するための形態

[0022] 以下において、本開示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、本開示の代表的な実施形態に基づいてなされることがあるが、本開示はそのような実施形態に限定されるものではない。

[0023] 本開示において、「～」を用いて示された数値範囲には、「～」の前後に記載される数値がそれぞれ最小値及び最大値として含まれる。

本開示中に段階的に記載されている数値範囲において、一つの数値範囲で記載された上限値又は下限値は、他の段階的な記載の数値範囲の上限値又は下限値に置き換えてもよい。また、本開示中に記載されている数値範囲において、その数値範囲の上限値又は下限値は、実施例に示されている値に置き換えてもよい。

本開示において、各成分は該当する物質を複数種含んでいてもよい。組成物中に各成分に該当する物質が複数種存在する場合、各成分の含有率又は含有量は、特に断らない限り、組成物中に存在する当該複数種の物質の合計の含有率又は含有量を意味する。

本開示において、「(メタ)アクリル」は、アクリル及びメタクリルの両方を包含する概念で用いられる語である。

本開示において「層」との語には、層が存在する領域を観察したときに、当該領域の全体に層が形成されている場合に加え、当該領域の一部にのみ層が形成されている場合も含まれる。

本開示において、「発光材料」とは、光が照射されたときに、上記光とは

波長の異なる波長の光を発する材料を指す。

本開示において、「励起光」とは、有機発光材料を励起させ、発光を呈させることのできる光を指す。

[0024] 本開示において、色変換フィルムが備える第1の色変換層に含まれる有機発光材料が呈する発光のピーク波長及び色変換フィルムが備える第2の色変換層に含まれる有機発光材料が呈する発光のピーク波長は、以下のようにして測定する。

まず、波長400nm以上500nm未満の励起光を発光することのできる面状発光装置上に、色変換フィルムを配置し、色変換フィルム上にプリズムシートを載せる。

面状発光装置に電流を流し、上記励起光を上記色変換フィルムへ照射すると、青色光、緑色光及び赤色光を含む白色光が観察されるため、分光放出輝度計（例えば、コニカミノルタ株式会社製、CS-1000）を用いて、上記白色光の発光スペクトルを得、上記発光スペクトルから、ピーク波長が500nm以上580nm未満の領域に観測される発光及びピーク波長が580nm以上750nm以下の領域に観測される発光を確認する。

[0025] 本開示において、各層の厚みは、所望の厚みになるように、塗布液の塗布量および液固形分濃度（質量％）を調整することによって制御することができる。また、その厚みは、走査型電子顕微鏡法（SEM：Scanning Electron Microscopy）又は透過型電子顕微鏡法（TEM：Transmission Electron Microscopy）により得られる色変換フィルムの断面画像より求めることができる。

なお、本開示において、「沸点」とは標準沸点（1気圧下での沸点）を意味する。また、沸点の測定はJIS K 2254：2018に準じて行う。

なお、図面において、構成要素と実質的に同一の構成要素には同一の符号を付し、その説明を省略する。

以下、本開示を詳細に説明する。

[0026] (第1の態様に係る色変換フィルム)

第1の態様において、図1に示すように、色変換フィルム10は、支持体20と、波長400nm以上500nm未満の励起光により、ピーク波長が500nm以上580nm未満の領域に観測される発光を呈する有機発光材料を含む第1の色変換層30と、波長400nm以上500nm未満の励起光及び有機発光材料の発光の少なくとも一方により、ピーク波長が580nm以上750nm以下の領域に観測される発光を呈する有機発光材料を含む第2の色変換層40と、第1の色変換層30及び第2の色変換層40の間に、第1の色変換層30及び第2の色変換層40が混ざり合う層間混合層50と、をこの順に備える。

[0027] 上記色変換フィルムによれば、第1の色変換層と、第2の色変換層との密着性に優れる色変換フィルムを提供することができる。

[0028] 上記効果が奏される理由は以下のように推測されるが、これに限定されない。

第1の態様に係る色変換フィルムは、第1の色変換層及び第2の色変換層の層間に、これら層が混ざり合う層間混合層を備える。上記層間混合層により、色変換フィルムが備える第1の色変換層及び第2の色変換層が一体化されるため、その密着性が改良されると推測される。

[0029] (支持体)

支持体は、特に限定されるものではなく、従来公知の支持体を使用することができる。支持体としては、例えば、樹脂フィルム、ガラス、セラミック、紙、金属板及び箔等が挙げられる。

上記樹脂フィルムが含む樹脂材料としては、例えば、ポリエチレンテレフタレート(PET)等のポリエステル、セルロースアセテート等のセルロース樹脂、ポリエチレン及びポリプロピレン等のポリオレフィン樹脂、ポリアミド樹脂、ポリイミド樹脂、ポリスチレン樹脂、ポリカーボネート樹脂、ビニル樹脂、シリコーン樹脂、フッ素樹脂、熱硬化性樹脂及び光硬化性樹脂等が挙げられる。

上記樹脂フィルムは、表面処理が施されたものであってもよく、例えば、ケミカルマット処理が施された樹脂フィルムを支持体として使用してもよい。ケミカルマット処理が施された樹脂フィルムを使用することにより、支持体に光拡散層としての機能を付与することができる。

[0030] 可撓性を有する点、加圧下又は加圧及び加熱下において、著しい変形、収縮又は伸びを生じない点、優れた透明性を有している点、優れた平滑性を有している点から上記樹脂フィルムは、ポリエステルフィルムが好ましく、ポリエチレンテレフタレートフィルムが特に好ましい。

[0031] ポリエステルフィルムは、2軸延伸フィルムであることが好ましい。

また、ポリエステルフィルムの厚みは、 $20\mu\text{m}$ ～ $250\mu\text{m}$ であることが好ましい。

ポリエステルフィルムの市販品としては、例えば、ルミラー(登録商標) #38-U48、ルミラー(登録商標) #50-U48、ルミラー(登録商標) #75-U48、ルミラー(登録商標) #50-U40、ルミラー(登録商標) #75-U40 (以上、東レ株式会社製)、コスモシャイン(登録商標) A4100 (膜厚 $50\mu\text{m}$ 、 $75\mu\text{m}$ 、 $100\mu\text{m}$ 、 $125\mu\text{m}$ 、 $188\mu\text{m}$)、コスモシャイン(登録商標) A4300 (膜厚 $38\mu\text{m}$ 、 $50\mu\text{m}$ 、 $75\mu\text{m}$ 、 $100\mu\text{m}$ 、 $125\mu\text{m}$ 、 $188\mu\text{m}$ 、 $250\mu\text{m}$) 及びコスモシャイン(登録商標) A8300 (膜厚 $100\mu\text{m}$) (以上、東洋紡株式会社製) 等が挙げられる。

[0032] 支持体は、従来公知の方法により作製してもよく、市販されるものを使用してもよい。上記したケミカルマット処理が施された樹脂フィルムは、例えば、株式会社きもと製のケミカルマット125PW等が挙げられる。ケミカルマット処理としては、例えば、フィルム表面を薬剤により処理し、凹凸構造を形成すること等が挙げられる。

[0033] 支持体の厚みは、特に限定されるものではないが、色変換フィルムの強度及び色変換層の保持性の観点から、 $20\mu\text{m}$ 以上であることが好ましく、 $30\mu\text{m}$ 以上であることがより好ましい。

また、バックライトユニット等の小型化の観点からは、支持体の厚みは、 $1000\mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。

[0034] (第1の色変換層)

第1の態様において、第1の色変換層は、波長 400nm 以上 500nm 未満の励起光により、ピーク波長が 500nm 以上 580nm 未満の領域に観測される発光を呈する有機発光材料を含む（以下、特定有機発光材料Aともいう）。

特定有機発光材料Aとしては、例えば、縮合アリール環を有する化合物及びその誘導体等が挙げられる。縮合アリール環としては、例えば、ナフタレン、アントラセン、フェナンスレン、ピレン、クリセン、ナфтаセン、トリフェニレン、ペリレン、フルオランテン、フルオレン及びインデン等が挙げられる。

また、特定有機発光材料Aとしては、例えば、ヘテロアリール環を有する化合物、その誘導体及びボラン化合物等が挙げられる。ヘテロアリール環としては、フラン、ピロール、チオフェン、シロール、9-シラフルオレン、9,9'-スピロビシラフルオレン、ベンゾチオフェン、ベンゾフラン、インドール、ジベンゾチオフェン、ジベンゾフラン、イミダゾピリジン、フェナントロリン、ピリジン、ピラジン、ナフチリジン、キノキサリン及びピロロピリジン等が挙げられる。

また、特定有機発光材料Aとしては、スチルベン化合物、芳香族アセチレン化合物、テトラフェニルブタジエン化合物、アルダジン化合物、ピロメテン化合物及びジケトピロロ〔3,4-c〕ピロール化合物等が挙げられる。スチルベン化合物としては、1,4-ジスチリルベンゼン、4,4'-ビス（2-（4-ジフェニルアミノフェニル）エテニル）ビフェニル及び4,4'-ビス（N-（スチルベン-4-イル）-N-フェニルアミノ）スチルベン等が挙げられる。

また、特定有機発光材料Aとしては、クマリン6、クマリン7及びクマリン153等のクマリン化合物、イミダゾール、チアゾール、チアジアゾール

、カルバゾール、オキサゾール、オキサジアゾール及びトリアゾール等のアゾール化合物及びその金属錯体、インドシアニングリーン等のシアニン系化合物、フルオレセイン、エオシン及びローダミン等のキサンテン系化合物、並びにチオキサンテン系化合物等が挙げられる。

また、特定有機発光材料Aとしては、ポリフェニレン系化合物、ナフタルイミド化合物、フタロシアニン化合物及びその金属錯体、ポルフィリン化合物及びその金属錯体、ナイルレッド及びナイルブルー等のオキサジン系化合物、ヘリセン系化合物、並びにN, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(3-メチルフェニル)-4, 4'-ジフェニル-1, 1'-ジアミン等の芳香族アミン化合物等が挙げられる。

また、特定有機発光材料Aとしては、イリジウム(Ir)、ルテニウム(Ru)、ロジウム(Rh)、パラジウム(Pd)、白金(Pt)、オスミウム(Os)、及びレニウム(Re)等の有機金属錯体化合物等が挙げられる。

但し、本開示において、特定有機発光材料Aは、上述したものに限定されない。

[0035] 特定有機発光材料Aは、蛍光発光材料であっても、リン光発光材料であってもよいが、優れた色純度を達成するためには、蛍光発光材料が好ましい。

上記した中でも、熱的安定性及び光安定性に優れることから、縮合アリール環を有する化合物又はその化合物が好ましい。

また、特定有機発光材料Aとしては、溶解性及び分子構造の多様性の観点から、配位結合を有する化合物が好ましい。半値幅が小さく、高効率な発光が可能である点で、フッ化ホウ素錯体等のホウ素を含有する化合物も好ましい。

[0036] 例えば、特定有機発光材料Aとしては、クマリン6、クマリン7及びクマリン153等のクマリン化合物；インドシアニングリーン等のシアニン化合物；フルオレセイン、フルオレセインイソチオシアネート及びカルボキシフルオレセインジアセテート等のフルオレセイン化合物；フタロシアニングリ

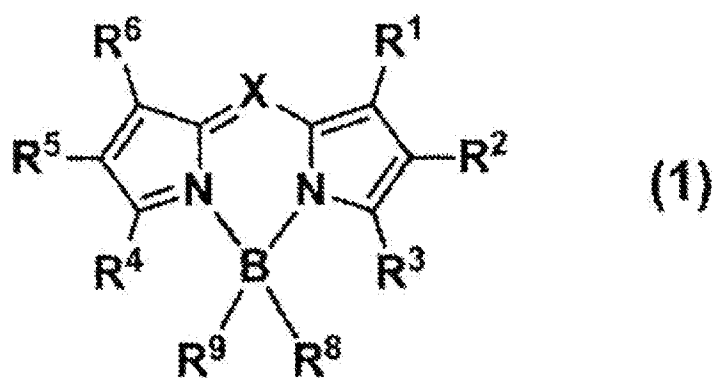
ーン等のフタロシアニン化合物；ジイソブチルー４，１０－ジシアノペリレン－３，９－ジカルボキシレート等のペリレン化合物；ピロメテン化合物；スチルベン化合物；オキサジン化合物；ナフタルイミド化合物；ピラジン化合物；ベンゾイミダゾール化合物；ベンゾオキサゾール化合物；ベンゾチアゾール化合物；イミダゾピリジン化合物；アゾール化合物；アントラセン等の縮合アリール環を有する化合物；及びこれらの誘導体；芳香族アミン化合物；並びに有機金属錯体化合物等が好ましい。しかし、特定有機発光材料Ａは、特にこれらに限定されるものではない。

[0037] 上記化合物の中でも、ピロメテン化合物は、優れた発光量子収率を与え、耐久性が良好なので、特に好適な化合物である。ピロメテン化合物としては、例えば、後述の一般式（１）で表される化合物が、色純度の優れる発光を示すことから、好ましい。

[0038] （一般式（１）で表される化合物）

特定有機発光材料Ａは、下記の一般式（１）で表される化合物であることが好ましい。

[0039] [化2]



[0040] 一般式（１）において、Xは、C－R⁷又はNを表す。R¹～R⁹は、独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、複素環基、アルケニル基、シクロアルケニル基、アルキニル基、水酸基、チオール基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリールエーテル基、アリールチオエーテル基、アリール基

、ヘテロアリール基、ハロゲン、シアノ基、アルデヒド基、カルボニル基、カルボキシル基、オキシカルボニル基、カルバモイル基、アミノ基、ニトロ基、シリル基、シロキサニル基、ボリル基及びホスフィンオキシド基の中から選ばれ、また、 $R^1 \sim R^9$ の隣接する基は縮合環を形成していてもよい。

上記の全ての基において、水素原子は重水素原子であってもよい。

このことは、以下に説明する化合物又はその部分構造においても同様である。また、以下の説明において、例えば、炭素数6～40の置換又は無置換のアリール基とは、アリール基に置換した置換基に含まれる炭素数も含めて全ての炭素数が6～40となるアリール基である。炭素数を規定している他の置換基も、これと同様である。

[0041] また、上記の全ての基において、置換される場合における置換基としては、アルキル基、シクロアルキル基、複素環基、アルケニル基、シクロアルケニル基、アルキニル基、水酸基、チオール基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリールエーテル基、アリールチオエーテル基、アリール基、ヘテロアリール基、ハロゲン、シアノ基、アルデヒド基、カルボニル基、カルボキシル基、オキシカルボニル基、カルバモイル基、アミノ基、ニトロ基、シリル基、シロキサニル基、ボリル基又はホスフィンオキシド基が好ましく、さらには、各置換基の説明において好ましいとする具体的な置換基が好ましい。また、これらの置換基は、さらに上述の置換基により置換されていてもよい。

「置換又は無置換の」という場合における「無置換」とは、水素原子又は重水素原子が置換したことを意味する。以下に説明する化合物又はその部分構造において、「置換又は無置換の」という場合についても、上記と同様である。

[0042] 上記の全ての基のうち、アルキル基とは、例えば、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、*sec*-ブチル基及び*tert*-ブチル基等の飽和脂肪族炭化水素基を示し、これは、置換基を有していても有していなくてもよい。置換されている場合の追加の置換基には特

に制限は無く、例えば、アルキル基、ハロゲン、アリール基及びヘテロアリール基等を挙げることができ、この点は、以下の記載にも共通する。また、アルキル基の炭素数は、特に限定されないが、入手の容易性やコストの点から、好ましくは1以上20以下、より好ましくは1以上8以下の範囲である。

[0043] シクロアルキル基とは、例えば、シクロプロピル基、シクロヘキシル基、ノルボルニル基及びアダマンチル基等の飽和脂環式炭化水素基を示し、これは、置換基を有していてもよく、有していなくてもよい。アルキル基部分の炭素数は、特に限定されないが、好ましくは、3以上20以下の範囲である。

[0044] 複素環基とは、例えば、ピラン環、ピペリジン環及び環状アミド等の炭素以外の原子を環内に有する脂肪族環を示し、これは、置換基を有していても有していなくてもよい。

複素環基の炭素数は、特に限定されないが、好ましくは、2以上20以下の範囲である。

[0045] アルケニル基とは、例えば、ビニル基、アリル基及びブタジエニル基等の二重結合を含む不飽和脂肪族炭化水素基を示し、これは、置換基を有していても有していなくてもよい。アルケニル基の炭素数は、特に限定されないが、好ましくは、2以上20以下の範囲である。

[0046] シクロアルケニル基とは、例えば、シクロペンテニル基、シクロペンタジエニル基及びシクロヘキセニル基等の二重結合を含む不飽和脂環式炭化水素基を示し、これは、置換基を有していても有していなくてもよい。

[0047] アルキニル基とは、例えば、エチニル基等の三重結合を含む不飽和脂肪族炭化水素基を示し、これは、置換基を有していても有していなくてもよい。アルキニル基の炭素数は、特に限定されないが、好ましくは、2以上20以下の範囲である。

[0048] アルコキシ基とは、例えば、メトキシ基、エトキシ基及びプロポキシ基等のエーテル結合を介して脂肪族炭化水素基が結合した官能基を示し、この脂

肪族炭化水素基は、置換基を有していても有していなくてもよい。アルコキシ基の炭素数は、特に限定されないが、好ましくは、1以上20以下の範囲である。

[0049] アルキルチオ基とは、アルコキシ基のエーテル結合の酸素原子が硫黄原子に置換されたものである。アルキルチオ基の炭化水素基は、置換基を有していても有していなくてもよい。アルキルチオ基の炭素数は、特に限定されないが、好ましくは、1以上20以下の範囲である。

[0050] アリールエーテル基とは、例えば、フェノキシ基等、エーテル結合を介した芳香族炭化水素基が結合した官能基を示し、芳香族炭化水素基は、置換基を有していても有していなくてもよい。アリールエーテル基の炭素数は、特に限定されないが、好ましくは、6以上40以下の範囲である。

[0051] アリールチオエーテル基とは、アリールエーテル基のエーテル結合の酸素原子が硫黄原子に置換されたものである。アリールチオエーテル基における芳香族炭化水素基は、置換基を有していても有していなくてもよい。アリールチオエーテル基の炭素数は、特に限定されないが、好ましくは、6以上40以下の範囲である。

[0052] アリール基とは、例えば、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基、フルオレニル基、ベンゾフルオレニル基、ジベンゾフルオレニル基、フェナントリル基、アントラセニル基、ベンゾフェナントリル基、ベンゾアントラセニル基、クリセニル基、ピレニル基、フルオランテニル基、トリフェニレニル基、ベンゾフルオランテニル基、ジベンゾアントラセニル基、ペリレニル基及びヘリセニル基等の芳香族炭化水素基を示す。上記した中でも、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基、フルオレニル基、フェナントリル基、アントラセニル基、ピレニル基、フルオランテニル基又はトリフェニレニル基が好ましい。アリール基は、置換基を有していても有していなくてもよい。アリール基の炭素数は、特に限定されないが、好ましくは6以上40以下、より好ましくは6以上30以下の範囲である。

[0053] $R^1 \sim R^9$ が置換又は無置換のアリール基を表す場合、アリール基としては、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基、フルオレニル基、フェナントリル基、アントラセニル基が好ましく、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基がより好ましい。さらに好ましくは、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基であり、フェニル基が特に好ましい。

それぞれの置換基がさらにアリール基で置換される場合、アリール基としては、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基、フルオレニル基、フェナントリル基又はアントラセニル基が好ましく、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基又はナフチル基がより好ましい。特に好ましくは、フェニル基である。

[0054] ヘテロアリール基とは、例えば、ピリジル基、フラニル基、チエニル基、キノリニル基、イソキノリニル基、ピラジニル基、ピリミジニル基、ピリダジニル基、トリアジニル基、ナフチリジニル基、シンノリニル基、フタラジニル基、キノキサリニル基、キナゾリニル基、ベンゾフラニル基、ベンゾチエニル基、インドリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチエニル基、カルバゾリル基、ベンゾカルバゾリル基、カルボリニル基、インドロカルバゾリル基、ベンゾフロカルバゾリル基、ベンゾチエノカルバゾリル基、ジヒドロインデノカルバゾリル基、ベンゾキノリニル基、アクリジニル基、ジベンゾアクリジニル基、ベンゾイミダゾリル基、イミダゾピリジル基、ベンゾオキサゾリル基、ベンゾチアゾリル基及びフェナントロリニル基等の、炭素以外の原子を一個又は複数個環内に有する環状芳香族基を示す。

なお、ナフチリジニル基とは、1, 5-ナフチリジニル基、1, 6-ナフチリジニル基、1, 7-ナフチリジニル基、1, 8-ナフチリジニル基又は2, 6-ナフチリジニル基、2, 7-ナフチリジニル基のいずれかを示す。ヘテロアリール基は、置換基を有していても有していなくてもよい。ヘテロアリール基の炭素数は、特に限定されないが、好ましくは、2以上40以下、より好ましくは2以上30以下の範囲である。

[0055] $R^1 \sim R^9$ 置換又は無置換のヘテロアリール基を表す場合、ヘテロアリール基は、ピリジル基、フラニル基、チエニル基、キノリニル基、ピリミジル基、トリアジニル基、ベンゾフラニル基、ベンゾチエニル基、インドリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチエニル基、カルバゾリル基、ベンゾイミダゾリル基、イミダゾピリジル基、ベンゾオキサゾリル基、ベンゾチアゾリル基又はフェナントロリニル基が好ましく、ピリジル基、フラニル基、チエニル基又はキノリニル基がより好ましい。特に好ましくは、ピリジル基である。

[0056] それぞれの置換基がさらにヘテロアリール基で置換される場合、ヘテロアリール基は、ピリジル基、フラニル基、チエニル基、キノリニル基、ピリミジル基、トリアジニル基、ベンゾフラニル基、ベンゾチエニル基、インドリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチエニル基、カルバゾリル基、ベンゾイミダゾリル基、イミダゾピリジル基、ベンゾオキサゾリル基、ベンゾチアゾリル基又はフェナントロリニル基が好ましく、ピリジル基、フラニル基、チエニル基又はキノリニル基がより好ましい。特に好ましくは、ピリジル基である。

[0057] ハロゲンとは、フッ素、塩素、臭素及びヨウ素から選ばれる原子を示す。また、カルボニル基、カルボキシル基、オキシカルボニル基及びカルバモイル基は、置換基を有していても有していなくてもよい。ここで、置換基としては、例えば、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基及びヘテロアリール基等が挙げられ、これら置換基は、さらに置換されてもよい。

[0058] アミノ基とは、置換又は無置換のアミノ基である。置換する場合の置換基としては、例えば、アリール基、ヘテロアリール基、直鎖アルキル基及び分岐アルキル基等が挙げられる。アリール基及びヘテロアリール基としては、フェニル基、ナフチル基、ピリジル基又はキノリニル基が好ましい。これら置換基は、さらに置換されてもよい。炭素数は、特に限定されないが、好ましくは、2以上50以下、より好ましくは6以上40以下、特に好ましくは6以上30以下の範囲である。

[0059] シリル基とは、例えば、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、*tert*-ブチルジメチルシリル基、プロピルジメチルシリル基、ビニルジメチルシリル基等のアルキルシリル基や、フェニルジメチルシリル基、*tert*-ブチルジフェニルシリル基、トリフェニルシリル基及びトリナフチルシリル基等のアリールシリル基を示す。ケイ素上の置換基は、さらに置換されてもよい。シリル基の炭素数は、特に限定されないが、好ましくは、1以上30以下の範囲である。

[0060] シロキサニル基とは、例えば、トリメチルシロキサニル基等のエーテル結合を介したケイ素化合物基を示す。ケイ素上の置換基は、さらに置換されてもよい。

また、ボリル基とは、置換又は無置換のボリル基である。置換する場合の置換基としては、例えば、アリール基、ヘテロアリール基、直鎖アルキル基、分岐アルキル基、アリールエーテル基、アルコキシ基及びヒドロキシル基等が挙げられる。上記した中でも、アリール基又はアリールエーテル基が好ましい。また、ホスフィンオキシド基とは、 $-P(=O)R^{10}R^{11}$ で表される基である。 $R^{10}R^{11}$ は、 $R^1 \sim R^9$ と同様の群から選ばれる。

[0061] 隣接置換基との間に形成される縮合環及び脂肪族環とは、任意の隣接する2置換基（例えば一般式（1）の R^1 及び R^2 ）が互いに結合して、共役又は非共役の環状骨格を形成することをいう。このような縮合環及び脂肪族環の構成元素としては、炭素、窒素、酸素、硫黄、リン及びケイ素等が挙げられる。また、縮合環及び脂肪族環は、さらに別の環と縮合してもよい。

[0062] 一般式（1）で表される化合物は、優れた発光量子収率を示し、かつ、発光スペクトルの半値幅が小さいため、効率的な色変換と優れた色純度との双方を達成することができる。さらに、一般式（1）で表される化合物は、適切な置換基を適切な位置に導入することで、発光効率、色純度、熱的安定性、光安定性及び分散性等の様々な特性や物性を調整することができる。

[0063] 例えば、 R^1 、 R^3 、 R^4 及び R^6 が全て水素原子を表す場合に比べ、 R^1 、 R^3 、 R^4 及び R^6 の少なくとも1つが、置換又は無置換のアルキル基、置換又は

無置換のアリール基及び置換又は無置換のヘテロアリール基を含む群より選択される基を表す場合の方が、より優れた熱的安定性及び光安定性を示す。

[0064] R^1 、 R^3 、 R^4 及び R^6 の少なくとも1つが置換又は無置換のアルキル基を表す場合、アルキル基としては、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、*sec*-ブチル基、*tert*-ブチル基、ペンチル基又はヘキシル基といった炭素数1～6のアルキル基が好ましい。

さらに、上記アルキル基としては、熱的安定性に優れるという観点から、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、*sec*-ブチル基又は*tert*-ブチル基が好ましい。また、濃度消光を防ぎ、発光量子収率を向上させるという観点では、上記アルキル基として、立体的にかさ高い*tert*-ブチル基がより好ましい。また、合成の容易さ、原料入手の容易さという観点から、上記アルキル基として、メチル基も好ましく用いられる。

[0065] R^1 、 R^3 、 R^4 及び R^6 の少なくとも1つが置換又は無置換のアリール基を表す場合、アリール基としては、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基又はナフチル基が好ましく、さらに好ましくは、フェニル基又はビフェニル基である。特に好ましくは、フェニル基である。

[0066] R^1 、 R^3 、 R^4 及び R^6 の少なくとも1つが置換又は無置換のヘテロアリール基を表す場合、ヘテロアリール基としては、ピリジル基、キノリニル基又はチエニル基が好ましく、さらに好ましくは、ピリジル基又はキノリニル基である。特に好ましくは、ピリジル基である。

[0067] R^1 、 R^3 、 R^4 及び R^6 が全て、それぞれ独立に、置換又は無置換のアルキル基を表す場合、バインダー樹脂や溶媒への溶解性が良好なため、好ましい。この場合、アルキル基としては、合成の容易さ、原料入手の容易さという観点から、メチル基が好ましい。

[0068] R^1 、 R^3 、 R^4 及び R^6 が全て、それぞれ独立に、置換又は無置換のアリール基又は置換又は無置換のヘテロアリール基である場合、より良い熱的安定性及び光安定性を示すため、好ましい。この場合、 R^1 、 R^3 、 R^4 及び R^6 が

全て、それぞれ独立に、置換又は無置換のアリール基を表すことがより好ましい。

[0069] 複数の性質を向上させる置換基もあるが、全てにおいて十分な性能を示す置換基は限られている。特に、高発光効率と高色純度との両立が難しい。そのため、一般式(1)で表される化合物に対して複数種類の置換基を導入することで、発光特性や色純度等にバランスの取れた化合物を得ることが可能である。

[0070] 特に、 R^1 、 R^3 、 R^4 及び R^6 が全て、それぞれ独立に、置換又は無置換のアリール基を表す場合、例えば、 $R^1 \neq R^4$ 、 $R^3 \neq R^6$ 、 $R^1 \neq R^3$ 又は $R^4 \neq R^6$ 等のように、複数種類の置換基を導入することが好ましい。

ここで、「 $\neq$ 」は、異なる構造の基であることを示す。例えば、 $R^1 \neq R^4$ は、 R^1 と R^4 とが異なる構造の基であることを示す。上記のように複数種類の置換基を導入することにより、色純度に影響を与えるアリール基と発光効率に影響を与えるアリール基とを同時に導入することができるため、細やかな調節が可能となる。

[0071] $R^1 \neq R^3$ 又は $R^4 \neq R^6$ である場合、発光効率と色純度とをバランスよく向上させることができるため、好ましい。この場合、一般式(1)で表される化合物に対して、色純度に影響を与えるアリール基を両側のピロール環にそれぞれ1つ以上導入し、それ以外の位置に発光効率に影響を与えるアリール基を導入することができるため、これら両方の性質を向上させることができる。また、 $R^1 \neq R^3$ 又は $R^4 \neq R^6$ である場合、耐熱性と色純度との双方を向上させるという観点から、 $R^1 = R^4$ 及び $R^3 = R^6$ であることがより好ましい。

[0072] 主に色純度に影響を与えるアリール基としては、電子供与性基で置換されたアリール基が好ましい。電子供与性基とは、有機電子論において、誘起効果や共鳴効果により、置換した原子団に、電子を供与する原子団である。電子供与性基としては、ハメット則の置換基定数(σ_p (パラ))として、負の値をとるものが挙げられる。ハメット則の置換基定数(σ_p (パラ))は、化学便覧基礎編改訂5版(II-380頁)から引用することができる。

[0073] 電子供与性基の具体例としては、例えば、アルキル基（メチル基の σ_p ： -0.17 ）、アルコキシ基（メトキシ基の σ_p ： -0.27 ）及びアミノ基（ $-NH_2$ の σ_p ： -0.66 ）等が挙げられる。

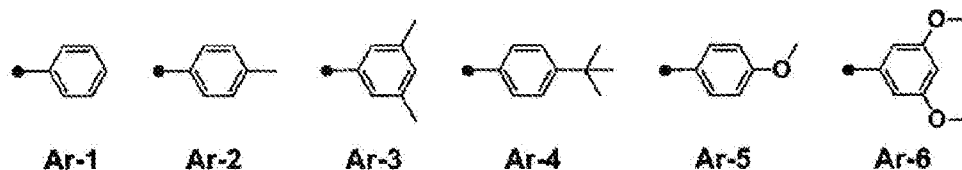
特に、炭素数1～8のアルキル基又は炭素数1～8のアルコキシ基が好ましく、メチル基、エチル基、*tert*-ブチル基又はメトキシ基がより好ましい。分散性の観点からは、*tert*-ブチル基又はメトキシ基が特に好ましく、これらを上記の電子供与性基とした場合、一般式（1）で表される化合物において、分子同士の凝集による消光を防ぐことができる。

置換基の置換位置は、特に限定されないが、一般式（1）で表される化合物の光安定性を高めるには結合のねじれを抑える必要があるため、ピロメテン骨格との結合位置に対してメタ位又はパラ位に結合させることが好ましい。一方、主に発光効率に影響を与えるアリール基としては、*tert*-ブチル基、アダマンチル基、メトキシ基等のかさ高い置換基を有するアリール基が好ましい。

[0074] R^1 、 R^3 、 R^4 及び R^6 が、それぞれ独立に、置換又は無置換のアリール基を表す場合、 R^1 、 R^3 、 R^4 及び R^6 は、それぞれ独立に、置換又は無置換のフェニル基を表すことが好ましい。このとき、 R^1 、 R^3 、 R^4 及び R^6 は、それぞれ以下のAr-1～Ar-6から選ばれることがより好ましい。この場合、 R^1 、 R^3 、 R^4 及び R^6 の好ましい組み合わせとしては、表1～表22に示すような組み合わせが挙げられるが、これらに限定されるものではない。

なお、黒丸は、主骨格との結合部を意味する。

[0075] [化3]



[0076] [表1]

R1	R3	R4	R6
Ar-1	Ar-1	Ar-1	Ar-1
Ar-1	Ar-1	Ar-1	Ar-2
Ar-1	Ar-1	Ar-1	Ar-3
Ar-1	Ar-1	Ar-1	Ar-4
Ar-1	Ar-1	Ar-1	Ar-5
Ar-1	Ar-1	Ar-1	Ar-6
Ar-1	Ar-1	Ar-2	Ar-1
Ar-1	Ar-1	Ar-2	Ar-2
Ar-1	Ar-1	Ar-2	Ar-3
Ar-1	Ar-1	Ar-2	Ar-4
Ar-1	Ar-1	Ar-2	Ar-5
Ar-1	Ar-1	Ar-2	Ar-6
Ar-1	Ar-1	Ar-3	Ar-1
Ar-1	Ar-1	Ar-3	Ar-2
Ar-1	Ar-1	Ar-3	Ar-3
Ar-1	Ar-1	Ar-3	Ar-4
Ar-1	Ar-1	Ar-3	Ar-5
Ar-1	Ar-1	Ar-3	Ar-6
Ar-1	Ar-1	Ar-4	Ar-1
Ar-1	Ar-1	Ar-4	Ar-2
Ar-1	Ar-1	Ar-4	Ar-3
Ar-1	Ar-1	Ar-4	Ar-4
Ar-1	Ar-1	Ar-4	Ar-5
Ar-1	Ar-1	Ar-4	Ar-6
Ar-1	Ar-1	Ar-5	Ar-1
Ar-1	Ar-1	Ar-5	Ar-2
Ar-1	Ar-1	Ar-5	Ar-3
Ar-1	Ar-1	Ar-5	Ar-4
Ar-1	Ar-1	Ar-5	Ar-5
Ar-1	Ar-1	Ar-5	Ar-6

[0077]

[表2]

R1	R3	R4	R6
Ar-1	Ar-1	Ar-6	Ar-1
Ar-1	Ar-1	Ar-6	Ar-2
Ar-1	Ar-1	Ar-6	Ar-3
Ar-1	Ar-1	Ar-6	Ar-4
Ar-1	Ar-1	Ar-6	Ar-5
Ar-1	Ar-1	Ar-6	Ar-6
Ar-1	Ar-2	Ar-1	Ar-2
Ar-1	Ar-2	Ar-1	Ar-3
Ar-1	Ar-2	Ar-1	Ar-4
Ar-1	Ar-2	Ar-1	Ar-5
Ar-1	Ar-2	Ar-1	Ar-6
Ar-1	Ar-2	Ar-2	Ar-1
Ar-1	Ar-2	Ar-2	Ar-2
Ar-1	Ar-2	Ar-2	Ar-3
Ar-1	Ar-2	Ar-2	Ar-4
Ar-1	Ar-2	Ar-2	Ar-5
Ar-1	Ar-2	Ar-2	Ar-6
Ar-1	Ar-2	Ar-3	Ar-1
Ar-1	Ar-2	Ar-3	Ar-2
Ar-1	Ar-2	Ar-3	Ar-3
Ar-1	Ar-2	Ar-3	Ar-4
Ar-1	Ar-2	Ar-3	Ar-5
Ar-1	Ar-2	Ar-3	Ar-6
Ar-1	Ar-2	Ar-4	Ar-1
Ar-1	Ar-2	Ar-4	Ar-2
Ar-1	Ar-2	Ar-4	Ar-3
Ar-1	Ar-2	Ar-4	Ar-4
Ar-1	Ar-2	Ar-4	Ar-5
Ar-1	Ar-2	Ar-4	Ar-6

[0078]

[表3]

R1	R3	R4	R6
Ar-1	Ar-2	Ar-5	Ar-1
Ar-1	Ar-2	Ar-5	Ar-2
Ar-1	Ar-2	Ar-5	Ar-3
Ar-1	Ar-2	Ar-5	Ar-4
Ar-1	Ar-2	Ar-5	Ar-5
Ar-1	Ar-2	Ar-5	Ar-6
Ar-1	Ar-2	Ar-6	Ar-1
Ar-1	Ar-2	Ar-6	Ar-2
Ar-1	Ar-2	Ar-6	Ar-3
Ar-1	Ar-2	Ar-6	Ar-4
Ar-1	Ar-2	Ar-6	Ar-5
Ar-1	Ar-2	Ar-6	Ar-6
Ar-1	Ar-3	Ar-1	Ar-2
Ar-1	Ar-3	Ar-1	Ar-3
Ar-1	Ar-3	Ar-1	Ar-4
Ar-1	Ar-3	Ar-1	Ar-5
Ar-1	Ar-3	Ar-1	Ar-6
Ar-1	Ar-3	Ar-2	Ar-2
Ar-1	Ar-3	Ar-2	Ar-3
Ar-1	Ar-3	Ar-2	Ar-4
Ar-1	Ar-3	Ar-2	Ar-5
Ar-1	Ar-3	Ar-2	Ar-6
Ar-1	Ar-3	Ar-3	Ar-1
Ar-1	Ar-3	Ar-3	Ar-2
Ar-1	Ar-3	Ar-3	Ar-3
Ar-1	Ar-3	Ar-3	Ar-4
Ar-1	Ar-3	Ar-3	Ar-5
Ar-1	Ar-3	Ar-3	Ar-6
Ar-1	Ar-3	Ar-4	Ar-1
Ar-1	Ar-3	Ar-4	Ar-2
Ar-1	Ar-3	Ar-4	Ar-3

[0079]

[表4]

R1	R3	R4	R6
Ar-1	Ar-3	Ar-4	Ar-4
Ar-1	Ar-3	Ar-4	Ar-5
Ar-1	Ar-3	Ar-4	Ar-6
Ar-1	Ar-3	Ar-5	Ar-1
Ar-1	Ar-3	Ar-5	Ar-2
Ar-1	Ar-3	Ar-5	Ar-3
Ar-1	Ar-3	Ar-5	Ar-4
Ar-1	Ar-3	Ar-5	Ar-5
Ar-1	Ar-3	Ar-5	Ar-6
Ar-1	Ar-3	Ar-6	Ar-1
Ar-1	Ar-3	Ar-6	Ar-2
Ar-1	Ar-3	Ar-6	Ar-3
Ar-1	Ar-3	Ar-6	Ar-4
Ar-1	Ar-3	Ar-6	Ar-5
Ar-1	Ar-3	Ar-6	Ar-6
Ar-1	Ar-4	Ar-1	Ar-2
Ar-1	Ar-4	Ar-1	Ar-3
Ar-1	Ar-4	Ar-1	Ar-4
Ar-1	Ar-4	Ar-1	Ar-5
Ar-1	Ar-4	Ar-1	Ar-6
Ar-1	Ar-4	Ar-2	Ar-2
Ar-1	Ar-4	Ar-2	Ar-3
Ar-1	Ar-4	Ar-2	Ar-4
Ar-1	Ar-4	Ar-2	Ar-5
Ar-1	Ar-4	Ar-2	Ar-6
Ar-1	Ar-4	Ar-3	Ar-2
Ar-1	Ar-4	Ar-3	Ar-3
Ar-1	Ar-4	Ar-3	Ar-4
Ar-1	Ar-4	Ar-3	Ar-5
Ar-1	Ar-4	Ar-3	Ar-6

[0080]

[表5]

R1	R3	R4	R6
Ar-1	Ar-4	Ar-4	Ar-1
Ar-1	Ar-4	Ar-4	Ar-2
Ar-1	Ar-4	Ar-4	Ar-3
Ar-1	Ar-4	Ar-4	Ar-4
Ar-1	Ar-4	Ar-4	Ar-5
Ar-1	Ar-4	Ar-4	Ar-6
Ar-1	Ar-4	Ar-5	Ar-1
Ar-1	Ar-4	Ar-5	Ar-2
Ar-1	Ar-4	Ar-5	Ar-3
Ar-1	Ar-4	Ar-5	Ar-4
Ar-1	Ar-4	Ar-5	Ar-5
Ar-1	Ar-4	Ar-5	Ar-6
Ar-1	Ar-4	Ar-6	Ar-1
Ar-1	Ar-4	Ar-6	Ar-2
Ar-1	Ar-4	Ar-6	Ar-3
Ar-1	Ar-4	Ar-6	Ar-4
Ar-1	Ar-4	Ar-6	Ar-5
Ar-1	Ar-4	Ar-6	Ar-6
Ar-1	Ar-5	Ar-1	Ar-2
Ar-1	Ar-5	Ar-1	Ar-3
Ar-1	Ar-5	Ar-1	Ar-4
Ar-1	Ar-5	Ar-1	Ar-5
Ar-1	Ar-5	Ar-1	Ar-6
Ar-1	Ar-5	Ar-2	Ar-2
Ar-1	Ar-5	Ar-2	Ar-3
Ar-1	Ar-5	Ar-2	Ar-4
Ar-1	Ar-5	Ar-2	Ar-5
Ar-1	Ar-5	Ar-2	Ar-6
Ar-1	Ar-5	Ar-3	Ar-2
Ar-1	Ar-5	Ar-3	Ar-3

[0081]

[表6]

R1	R3	R4	R6
Ar-1	Ar-5	Ar-3	Ar-4
Ar-1	Ar-5	Ar-3	Ar-5
Ar-1	Ar-5	Ar-3	Ar-6
Ar-1	Ar-5	Ar-4	Ar-2
Ar-1	Ar-5	Ar-4	Ar-3
Ar-1	Ar-5	Ar-4	Ar-4
Ar-1	Ar-5	Ar-4	Ar-5
Ar-1	Ar-5	Ar-4	Ar-6
Ar-1	Ar-5	Ar-5	Ar-1
Ar-1	Ar-5	Ar-5	Ar-2
Ar-1	Ar-5	Ar-5	Ar-3
Ar-1	Ar-5	Ar-5	Ar-4
Ar-1	Ar-5	Ar-5	Ar-5
Ar-1	Ar-5	Ar-5	Ar-6
Ar-1	Ar-5	Ar-6	Ar-1
Ar-1	Ar-5	Ar-6	Ar-2
Ar-1	Ar-5	Ar-6	Ar-3
Ar-1	Ar-5	Ar-6	Ar-4
Ar-1	Ar-5	Ar-6	Ar-5
Ar-1	Ar-5	Ar-6	Ar-6
Ar-1	Ar-6	Ar-1	Ar-2
Ar-1	Ar-6	Ar-1	Ar-3
Ar-1	Ar-6	Ar-1	Ar-4
Ar-1	Ar-6	Ar-1	Ar-5
Ar-1	Ar-6	Ar-1	Ar-6
Ar-1	Ar-6	Ar-2	Ar-2
Ar-1	Ar-6	Ar-2	Ar-3
Ar-1	Ar-6	Ar-2	Ar-4
Ar-1	Ar-6	Ar-2	Ar-5
Ar-1	Ar-6	Ar-2	Ar-6

[0082]

[表7]

R1	R3	R4	R6
Ar-1	Ar-6	Ar-3	Ar-2
Ar-1	Ar-6	Ar-3	Ar-3
Ar-1	Ar-6	Ar-3	Ar-4
Ar-1	Ar-6	Ar-3	Ar-5
Ar-1	Ar-6	Ar-3	Ar-6
Ar-1	Ar-6	Ar-4	Ar-2
Ar-1	Ar-6	Ar-4	Ar-3
Ar-1	Ar-6	Ar-4	Ar-4
Ar-1	Ar-6	Ar-4	Ar-5
Ar-1	Ar-6	Ar-4	Ar-6
Ar-1	Ar-6	Ar-5	Ar-2
Ar-1	Ar-6	Ar-5	Ar-3
Ar-1	Ar-6	Ar-5	Ar-4
Ar-1	Ar-6	Ar-5	Ar-5
Ar-1	Ar-6	Ar-5	Ar-6
Ar-1	Ar-6	Ar-6	Ar-1
Ar-1	Ar-6	Ar-6	Ar-2
Ar-1	Ar-6	Ar-6	Ar-3
Ar-1	Ar-6	Ar-6	Ar-4
Ar-1	Ar-6	Ar-6	Ar-5
Ar-1	Ar-6	Ar-6	Ar-6
Ar-2	Ar-1	Ar-1	Ar-2
Ar-2	Ar-1	Ar-1	Ar-3
Ar-2	Ar-1	Ar-1	Ar-4
Ar-2	Ar-1	Ar-1	Ar-5
Ar-2	Ar-1	Ar-1	Ar-6
Ar-2	Ar-1	Ar-2	Ar-2
Ar-2	Ar-1	Ar-2	Ar-3
Ar-2	Ar-1	Ar-2	Ar-4
Ar-2	Ar-1	Ar-2	Ar-5

[0083]

[表8]

R1	R3	R4	R6
Ar-2	Ar-1	Ar-2	Ar-6
Ar-2	Ar-1	Ar-3	Ar-2
Ar-2	Ar-1	Ar-3	Ar-3
Ar-2	Ar-1	Ar-3	Ar-4
Ar-2	Ar-1	Ar-3	Ar-5
Ar-2	Ar-1	Ar-3	Ar-6
Ar-2	Ar-1	Ar-4	Ar-2
Ar-2	Ar-1	Ar-4	Ar-3
Ar-2	Ar-1	Ar-4	Ar-4
Ar-2	Ar-1	Ar-4	Ar-5
Ar-2	Ar-1	Ar-4	Ar-6
Ar-2	Ar-1	Ar-5	Ar-2
Ar-2	Ar-1	Ar-5	Ar-3
Ar-2	Ar-1	Ar-5	Ar-4
Ar-2	Ar-1	Ar-5	Ar-5
Ar-2	Ar-1	Ar-5	Ar-6
Ar-2	Ar-1	Ar-6	Ar-2
Ar-2	Ar-1	Ar-6	Ar-3
Ar-2	Ar-1	Ar-6	Ar-4
Ar-2	Ar-1	Ar-6	Ar-5
Ar-2	Ar-1	Ar-6	Ar-6
Ar-2	Ar-2	Ar-1	Ar-3
Ar-2	Ar-2	Ar-1	Ar-4
Ar-2	Ar-2	Ar-1	Ar-5
Ar-2	Ar-2	Ar-1	Ar-6
Ar-2	Ar-2	Ar-2	Ar-2
Ar-2	Ar-2	Ar-2	Ar-3
Ar-2	Ar-2	Ar-2	Ar-4
Ar-2	Ar-2	Ar-2	Ar-5
Ar-2	Ar-2	Ar-2	Ar-6

[0084]

[表9]

R1	R3	R4	R6
Ar-2	Ar-2	Ar-3	Ar-2
Ar-2	Ar-2	Ar-3	Ar-3
Ar-2	Ar-2	Ar-3	Ar-4
Ar-2	Ar-2	Ar-3	Ar-5
Ar-2	Ar-2	Ar-3	Ar-6
Ar-2	Ar-2	Ar-4	Ar-2
Ar-2	Ar-2	Ar-4	Ar-3
Ar-2	Ar-2	Ar-4	Ar-4
Ar-2	Ar-2	Ar-4	Ar-5
Ar-2	Ar-2	Ar-4	Ar-6
Ar-2	Ar-2	Ar-5	Ar-2
Ar-2	Ar-2	Ar-5	Ar-3
Ar-2	Ar-2	Ar-5	Ar-4
Ar-2	Ar-2	Ar-5	Ar-5
Ar-2	Ar-2	Ar-5	Ar-6
Ar-2	Ar-2	Ar-6	Ar-2
Ar-2	Ar-2	Ar-6	Ar-3
Ar-2	Ar-2	Ar-6	Ar-4
Ar-2	Ar-2	Ar-6	Ar-5
Ar-2	Ar-2	Ar-6	Ar-6
Ar-2	Ar-3	Ar-1	Ar-3
Ar-2	Ar-3	Ar-1	Ar-4
Ar-2	Ar-3	Ar-1	Ar-5
Ar-2	Ar-3	Ar-1	Ar-6
Ar-2	Ar-3	Ar-2	Ar-3
Ar-2	Ar-3	Ar-2	Ar-4
Ar-2	Ar-3	Ar-2	Ar-5
Ar-2	Ar-3	Ar-2	Ar-6
Ar-2	Ar-3	Ar-3	Ar-2
Ar-2	Ar-3	Ar-3	Ar-3

[0085]

[表10]

R1	R3	R4	R6
Ar-2	Ar-3	Ar-3	Ar-4
Ar-2	Ar-3	Ar-3	Ar-5
Ar-2	Ar-3	Ar-3	Ar-6
Ar-2	Ar-3	Ar-4	Ar-2
Ar-2	Ar-3	Ar-4	Ar-3
Ar-2	Ar-3	Ar-4	Ar-4
Ar-2	Ar-3	Ar-4	Ar-5
Ar-2	Ar-3	Ar-4	Ar-6
Ar-2	Ar-3	Ar-5	Ar-2
Ar-2	Ar-3	Ar-5	Ar-3
Ar-2	Ar-3	Ar-5	Ar-4
Ar-2	Ar-3	Ar-5	Ar-5
Ar-2	Ar-3	Ar-5	Ar-6
Ar-2	Ar-3	Ar-6	Ar-2
Ar-2	Ar-3	Ar-6	Ar-3
Ar-2	Ar-3	Ar-6	Ar-4
Ar-2	Ar-3	Ar-6	Ar-5
Ar-2	Ar-3	Ar-6	Ar-6
Ar-2	Ar-4	Ar-1	Ar-3
Ar-2	Ar-4	Ar-1	Ar-4
Ar-2	Ar-4	Ar-1	Ar-5
Ar-2	Ar-4	Ar-1	Ar-6
Ar-2	Ar-4	Ar-2	Ar-3
Ar-2	Ar-4	Ar-2	Ar-4
Ar-2	Ar-4	Ar-2	Ar-5
Ar-2	Ar-4	Ar-2	Ar-6
Ar-2	Ar-4	Ar-3	Ar-3
Ar-2	Ar-4	Ar-3	Ar-4
Ar-2	Ar-4	Ar-3	Ar-5
Ar-2	Ar-4	Ar-3	Ar-6

[0086]

[表11]

R1	R3	R4	R6
Ar-2	Ar-4	Ar-4	Ar-2
Ar-2	Ar-4	Ar-4	Ar-3
Ar-2	Ar-4	Ar-4	Ar-4
Ar-2	Ar-4	Ar-4	Ar-5
Ar-2	Ar-4	Ar-4	Ar-6
Ar-2	Ar-4	Ar-5	Ar-2
Ar-2	Ar-4	Ar-5	Ar-3
Ar-2	Ar-4	Ar-5	Ar-4
Ar-2	Ar-4	Ar-5	Ar-5
Ar-2	Ar-4	Ar-5	Ar-6
Ar-2	Ar-4	Ar-6	Ar-2
Ar-2	Ar-4	Ar-6	Ar-3
Ar-2	Ar-4	Ar-6	Ar-4
Ar-2	Ar-4	Ar-6	Ar-5
Ar-2	Ar-4	Ar-6	Ar-6
Ar-2	Ar-5	Ar-1	Ar-3
Ar-2	Ar-5	Ar-1	Ar-4
Ar-2	Ar-5	Ar-1	Ar-5
Ar-2	Ar-5	Ar-1	Ar-6
Ar-2	Ar-5	Ar-2	Ar-3
Ar-2	Ar-5	Ar-2	Ar-4
Ar-2	Ar-5	Ar-2	Ar-5
Ar-2	Ar-5	Ar-2	Ar-6
Ar-2	Ar-5	Ar-3	Ar-3
Ar-2	Ar-5	Ar-3	Ar-4
Ar-2	Ar-5	Ar-3	Ar-5
Ar-2	Ar-5	Ar-3	Ar-6
Ar-2	Ar-5	Ar-4	Ar-3
Ar-2	Ar-5	Ar-4	Ar-4
Ar-2	Ar-5	Ar-4	Ar-5
Ar-2	Ar-5	Ar-4	Ar-6

[0087]

[表12]

R1	R3	R4	R6
Ar-2	Ar-5	Ar-5	Ar-2
Ar-2	Ar-5	Ar-5	Ar-3
Ar-2	Ar-5	Ar-5	Ar-4
Ar-2	Ar-5	Ar-5	Ar-5
Ar-2	Ar-5	Ar-5	Ar-6
Ar-2	Ar-5	Ar-6	Ar-2
Ar-2	Ar-5	Ar-6	Ar-3
Ar-2	Ar-5	Ar-6	Ar-4
Ar-2	Ar-5	Ar-6	Ar-5
Ar-2	Ar-5	Ar-6	Ar-6
Ar-2	Ar-6	Ar-1	Ar-3
Ar-2	Ar-6	Ar-1	Ar-4
Ar-2	Ar-6	Ar-1	Ar-5
Ar-2	Ar-6	Ar-1	Ar-6
Ar-2	Ar-6	Ar-2	Ar-3
Ar-2	Ar-6	Ar-2	Ar-4
Ar-2	Ar-6	Ar-2	Ar-5
Ar-2	Ar-6	Ar-2	Ar-6
Ar-2	Ar-6	Ar-3	Ar-3
Ar-2	Ar-6	Ar-3	Ar-4
Ar-2	Ar-6	Ar-3	Ar-5
Ar-2	Ar-6	Ar-3	Ar-6
Ar-2	Ar-6	Ar-4	Ar-3
Ar-2	Ar-6	Ar-4	Ar-4
Ar-2	Ar-6	Ar-4	Ar-5
Ar-2	Ar-6	Ar-4	Ar-6
Ar-2	Ar-6	Ar-5	Ar-3
Ar-2	Ar-6	Ar-5	Ar-4
Ar-2	Ar-6	Ar-5	Ar-5
Ar-2	Ar-6	Ar-5	Ar-6

[0088]

[表13]

R1	R3	R4	R6
Ar-2	Ar-6	Ar-6	Ar-2
Ar-2	Ar-6	Ar-6	Ar-3
Ar-2	Ar-6	Ar-6	Ar-4
Ar-2	Ar-6	Ar-6	Ar-5
Ar-2	Ar-6	Ar-6	Ar-6
Ar-3	Ar-1	Ar-1	Ar-3
Ar-3	Ar-1	Ar-1	Ar-4
Ar-3	Ar-1	Ar-1	Ar-5
Ar-3	Ar-1	Ar-1	Ar-6
Ar-3	Ar-1	Ar-2	Ar-3
Ar-3	Ar-1	Ar-2	Ar-4
Ar-3	Ar-1	Ar-2	Ar-5
Ar-3	Ar-1	Ar-2	Ar-6
Ar-3	Ar-1	Ar-3	Ar-3
Ar-3	Ar-1	Ar-3	Ar-4
Ar-3	Ar-1	Ar-3	Ar-5
Ar-3	Ar-1	Ar-3	Ar-6
Ar-3	Ar-1	Ar-4	Ar-3
Ar-3	Ar-1	Ar-4	Ar-4
Ar-3	Ar-1	Ar-4	Ar-5
Ar-3	Ar-1	Ar-4	Ar-6
Ar-3	Ar-1	Ar-5	Ar-3
Ar-3	Ar-1	Ar-5	Ar-4
Ar-3	Ar-1	Ar-5	Ar-5
Ar-3	Ar-1	Ar-5	Ar-6
Ar-3	Ar-1	Ar-6	Ar-3
Ar-3	Ar-1	Ar-6	Ar-4
Ar-3	Ar-1	Ar-6	Ar-5
Ar-3	Ar-1	Ar-6	Ar-6
Ar-3	Ar-2	Ar-1	Ar-4
Ar-3	Ar-2	Ar-1	Ar-5

[0089]

[表14]

R1	R3	R4	R6
Ar-3	Ar-2	Ar-1	Ar-6
Ar-3	Ar-2	Ar-2	Ar-3
Ar-3	Ar-2	Ar-2	Ar-4
Ar-3	Ar-2	Ar-2	Ar-5
Ar-3	Ar-2	Ar-2	Ar-6
Ar-3	Ar-2	Ar-3	Ar-3
Ar-3	Ar-2	Ar-3	Ar-4
Ar-3	Ar-2	Ar-3	Ar-5
Ar-3	Ar-2	Ar-3	Ar-6
Ar-3	Ar-2	Ar-4	Ar-3
Ar-3	Ar-2	Ar-4	Ar-4
Ar-3	Ar-2	Ar-4	Ar-5
Ar-3	Ar-2	Ar-4	Ar-6
Ar-3	Ar-2	Ar-5	Ar-3
Ar-3	Ar-2	Ar-5	Ar-4
Ar-3	Ar-2	Ar-5	Ar-5
Ar-3	Ar-2	Ar-5	Ar-6
Ar-3	Ar-2	Ar-6	Ar-3
Ar-3	Ar-2	Ar-6	Ar-4
Ar-3	Ar-2	Ar-6	Ar-5
Ar-3	Ar-2	Ar-6	Ar-6
Ar-3	Ar-3	Ar-1	Ar-4
Ar-3	Ar-3	Ar-1	Ar-5
Ar-3	Ar-3	Ar-1	Ar-6
Ar-3	Ar-3	Ar-2	Ar-4
Ar-3	Ar-3	Ar-2	Ar-5
Ar-3	Ar-3	Ar-2	Ar-6
Ar-3	Ar-3	Ar-3	Ar-3
Ar-3	Ar-3	Ar-3	Ar-4
Ar-3	Ar-3	Ar-3	Ar-5

[0090]

[表15]

R1	R3	R4	R6
Ar-3	Ar-3	Ar-3	Ar-6
Ar-3	Ar-3	Ar-4	Ar-3
Ar-3	Ar-3	Ar-4	Ar-4
Ar-3	Ar-3	Ar-4	Ar-5
Ar-3	Ar-3	Ar-4	Ar-6
Ar-3	Ar-3	Ar-5	Ar-3
Ar-3	Ar-3	Ar-5	Ar-4
Ar-3	Ar-3	Ar-5	Ar-5
Ar-3	Ar-3	Ar-5	Ar-6
Ar-3	Ar-3	Ar-6	Ar-3
Ar-3	Ar-3	Ar-6	Ar-4
Ar-3	Ar-3	Ar-6	Ar-5
Ar-3	Ar-3	Ar-6	Ar-6
Ar-3	Ar-4	Ar-1	Ar-4
Ar-3	Ar-4	Ar-1	Ar-5
Ar-3	Ar-4	Ar-1	Ar-6
Ar-3	Ar-4	Ar-2	Ar-4
Ar-3	Ar-4	Ar-2	Ar-5
Ar-3	Ar-4	Ar-2	Ar-6
Ar-3	Ar-4	Ar-3	Ar-4
Ar-3	Ar-4	Ar-3	Ar-5
Ar-3	Ar-4	Ar-3	Ar-6
Ar-3	Ar-4	Ar-4	Ar-3
Ar-3	Ar-4	Ar-4	Ar-4
Ar-3	Ar-4	Ar-4	Ar-5
Ar-3	Ar-4	Ar-4	Ar-6
Ar-3	Ar-4	Ar-5	Ar-3
Ar-3	Ar-4	Ar-5	Ar-4
Ar-3	Ar-4	Ar-5	Ar-5
Ar-3	Ar-4	Ar-5	Ar-6

[0091]

[表16]

R1	R3	R4	R6
Ar-3	Ar-4	Ar-6	Ar-3
Ar-3	Ar-4	Ar-6	Ar-4
Ar-3	Ar-4	Ar-6	Ar-5
Ar-3	Ar-4	Ar-6	Ar-6
Ar-3	Ar-5	Ar-1	Ar-4
Ar-3	Ar-5	Ar-1	Ar-5
Ar-3	Ar-5	Ar-1	Ar-6
Ar-3	Ar-5	Ar-2	Ar-4
Ar-3	Ar-5	Ar-2	Ar-5
Ar-3	Ar-5	Ar-2	Ar-6
Ar-3	Ar-5	Ar-3	Ar-4
Ar-3	Ar-5	Ar-3	Ar-5
Ar-3	Ar-5	Ar-3	Ar-6
Ar-3	Ar-5	Ar-4	Ar-4
Ar-3	Ar-5	Ar-4	Ar-5
Ar-3	Ar-5	Ar-4	Ar-6
Ar-3	Ar-5	Ar-5	Ar-3
Ar-3	Ar-5	Ar-5	Ar-4
Ar-3	Ar-5	Ar-5	Ar-5
Ar-3	Ar-5	Ar-5	Ar-6
Ar-3	Ar-5	Ar-6	Ar-3
Ar-3	Ar-5	Ar-6	Ar-4
Ar-3	Ar-5	Ar-6	Ar-5
Ar-3	Ar-5	Ar-6	Ar-6
Ar-3	Ar-6	Ar-1	Ar-4
Ar-3	Ar-6	Ar-1	Ar-5
Ar-3	Ar-6	Ar-1	Ar-6
Ar-3	Ar-6	Ar-2	Ar-4
Ar-3	Ar-6	Ar-2	Ar-5
Ar-3	Ar-6	Ar-2	Ar-6

[0092]

[表17]

R1	R3	R4	R6
Ar-3	Ar-6	Ar-3	Ar-4
Ar-3	Ar-6	Ar-3	Ar-5
Ar-3	Ar-6	Ar-3	Ar-6
Ar-3	Ar-6	Ar-4	Ar-4
Ar-3	Ar-6	Ar-4	Ar-5
Ar-3	Ar-6	Ar-4	Ar-6
Ar-3	Ar-6	Ar-5	Ar-4
Ar-3	Ar-6	Ar-5	Ar-5
Ar-3	Ar-6	Ar-5	Ar-6
Ar-3	Ar-6	Ar-6	Ar-3
Ar-3	Ar-6	Ar-6	Ar-4
Ar-3	Ar-6	Ar-6	Ar-5
Ar-3	Ar-6	Ar-6	Ar-6
Ar-4	Ar-1	Ar-1	Ar-4
Ar-4	Ar-1	Ar-1	Ar-5
Ar-4	Ar-1	Ar-1	Ar-6
Ar-4	Ar-1	Ar-2	Ar-4
Ar-4	Ar-1	Ar-2	Ar-5
Ar-4	Ar-1	Ar-2	Ar-6
Ar-4	Ar-1	Ar-3	Ar-4
Ar-4	Ar-1	Ar-3	Ar-5
Ar-4	Ar-1	Ar-3	Ar-6
Ar-4	Ar-1	Ar-4	Ar-4
Ar-4	Ar-1	Ar-4	Ar-5
Ar-4	Ar-1	Ar-4	Ar-6
Ar-4	Ar-1	Ar-5	Ar-4
Ar-4	Ar-1	Ar-5	Ar-5
Ar-4	Ar-1	Ar-5	Ar-6
Ar-4	Ar-1	Ar-6	Ar-4
Ar-4	Ar-1	Ar-6	Ar-5
Ar-4	Ar-1	Ar-6	Ar-6

[0093]

[表18]

R1	R3	R4	R6
Ar-4	Ar-2	Ar-1	Ar-5
Ar-4	Ar-2	Ar-1	Ar-6
Ar-4	Ar-2	Ar-2	Ar-4
Ar-4	Ar-2	Ar-2	Ar-5
Ar-4	Ar-2	Ar-2	Ar-6
Ar-4	Ar-2	Ar-3	Ar-4
Ar-4	Ar-2	Ar-3	Ar-5
Ar-4	Ar-2	Ar-3	Ar-6
Ar-4	Ar-2	Ar-4	Ar-4
Ar-4	Ar-2	Ar-4	Ar-5
Ar-4	Ar-2	Ar-4	Ar-6
Ar-4	Ar-2	Ar-5	Ar-4
Ar-4	Ar-2	Ar-5	Ar-5
Ar-4	Ar-2	Ar-5	Ar-6
Ar-4	Ar-2	Ar-6	Ar-4
Ar-4	Ar-2	Ar-6	Ar-5
Ar-4	Ar-2	Ar-6	Ar-6
Ar-4	Ar-3	Ar-1	Ar-5
Ar-4	Ar-3	Ar-1	Ar-6
Ar-4	Ar-3	Ar-2	Ar-5
Ar-4	Ar-3	Ar-2	Ar-6
Ar-4	Ar-3	Ar-3	Ar-4
Ar-4	Ar-3	Ar-3	Ar-5
Ar-4	Ar-3	Ar-3	Ar-6
Ar-4	Ar-3	Ar-4	Ar-4
Ar-4	Ar-3	Ar-4	Ar-5
Ar-4	Ar-3	Ar-4	Ar-6
Ar-4	Ar-3	Ar-5	Ar-4
Ar-4	Ar-3	Ar-5	Ar-5
Ar-4	Ar-3	Ar-5	Ar-6

[0094]

[表19]

R1	R3	R4	R6
Ar-4	Ar-3	Ar-6	Ar-4
Ar-4	Ar-3	Ar-6	Ar-5
Ar-4	Ar-3	Ar-6	Ar-6
Ar-4	Ar-4	Ar-1	Ar-5
Ar-4	Ar-4	Ar-1	Ar-6
Ar-4	Ar-4	Ar-2	Ar-5
Ar-4	Ar-4	Ar-2	Ar-6
Ar-4	Ar-4	Ar-3	Ar-5
Ar-4	Ar-4	Ar-3	Ar-6
Ar-4	Ar-4	Ar-4	Ar-4
Ar-4	Ar-4	Ar-4	Ar-5
Ar-4	Ar-4	Ar-4	Ar-6
Ar-4	Ar-4	Ar-5	Ar-4
Ar-4	Ar-4	Ar-5	Ar-5
Ar-4	Ar-4	Ar-5	Ar-6
Ar-4	Ar-4	Ar-6	Ar-4
Ar-4	Ar-4	Ar-6	Ar-5
Ar-4	Ar-4	Ar-6	Ar-6
Ar-4	Ar-5	Ar-1	Ar-5
Ar-4	Ar-5	Ar-1	Ar-6
Ar-4	Ar-5	Ar-2	Ar-5
Ar-4	Ar-5	Ar-2	Ar-6
Ar-4	Ar-5	Ar-3	Ar-5
Ar-4	Ar-5	Ar-3	Ar-6
Ar-4	Ar-5	Ar-4	Ar-5
Ar-4	Ar-5	Ar-4	Ar-6
Ar-4	Ar-5	Ar-5	Ar-4
Ar-4	Ar-5	Ar-5	Ar-5
Ar-4	Ar-5	Ar-5	Ar-6
Ar-4	Ar-5	Ar-6	Ar-4
Ar-4	Ar-5	Ar-6	Ar-5

[0095]

[表20]

R1	R3	R4	R6
Ar-4	Ar-5	Ar-6	Ar-6
Ar-4	Ar-6	Ar-1	Ar-5
Ar-4	Ar-6	Ar-1	Ar-6
Ar-4	Ar-6	Ar-2	Ar-5
Ar-4	Ar-6	Ar-2	Ar-6
Ar-4	Ar-6	Ar-3	Ar-5
Ar-4	Ar-6	Ar-3	Ar-6
Ar-4	Ar-6	Ar-4	Ar-5
Ar-4	Ar-6	Ar-4	Ar-6
Ar-4	Ar-6	Ar-5	Ar-5
Ar-4	Ar-6	Ar-5	Ar-6
Ar-4	Ar-6	Ar-6	Ar-4
Ar-4	Ar-6	Ar-6	Ar-5
Ar-4	Ar-6	Ar-6	Ar-6
Ar-5	Ar-1	Ar-1	Ar-5
Ar-5	Ar-1	Ar-1	Ar-6
Ar-5	Ar-1	Ar-2	Ar-5
Ar-5	Ar-1	Ar-2	Ar-6
Ar-5	Ar-1	Ar-3	Ar-5
Ar-5	Ar-1	Ar-3	Ar-6
Ar-5	Ar-1	Ar-4	Ar-5
Ar-5	Ar-1	Ar-4	Ar-6
Ar-5	Ar-1	Ar-5	Ar-5
Ar-5	Ar-1	Ar-5	Ar-6
Ar-5	Ar-1	Ar-6	Ar-5
Ar-5	Ar-1	Ar-6	Ar-6
Ar-5	Ar-2	Ar-1	Ar-6
Ar-5	Ar-2	Ar-2	Ar-5
Ar-5	Ar-2	Ar-2	Ar-6
Ar-5	Ar-2	Ar-3	Ar-5
Ar-5	Ar-2	Ar-3	Ar-6

[0096]

[表21]

R1	R3	R4	R6
Ar-5	Ar-2	Ar-4	Ar-5
Ar-5	Ar-2	Ar-4	Ar-6
Ar-5	Ar-2	Ar-5	Ar-5
Ar-5	Ar-2	Ar-5	Ar-6
Ar-5	Ar-2	Ar-6	Ar-5
Ar-5	Ar-2	Ar-6	Ar-6
Ar-5	Ar-3	Ar-1	Ar-6
Ar-5	Ar-3	Ar-2	Ar-6
Ar-5	Ar-3	Ar-3	Ar-5
Ar-5	Ar-3	Ar-3	Ar-6
Ar-5	Ar-3	Ar-4	Ar-5
Ar-5	Ar-3	Ar-4	Ar-6
Ar-5	Ar-3	Ar-5	Ar-5
Ar-5	Ar-3	Ar-5	Ar-6
Ar-5	Ar-3	Ar-6	Ar-5
Ar-5	Ar-3	Ar-6	Ar-6
Ar-5	Ar-4	Ar-1	Ar-6
Ar-5	Ar-4	Ar-2	Ar-6
Ar-5	Ar-4	Ar-3	Ar-6
Ar-5	Ar-4	Ar-4	Ar-5
Ar-5	Ar-4	Ar-4	Ar-6
Ar-5	Ar-4	Ar-5	Ar-5
Ar-5	Ar-4	Ar-5	Ar-6
Ar-5	Ar-4	Ar-6	Ar-5
Ar-5	Ar-4	Ar-6	Ar-6
Ar-5	Ar-5	Ar-1	Ar-6
Ar-5	Ar-5	Ar-2	Ar-6
Ar-5	Ar-5	Ar-3	Ar-6
Ar-5	Ar-5	Ar-4	Ar-6
Ar-5	Ar-5	Ar-5	Ar-5
Ar-5	Ar-5	Ar-5	Ar-6

[0097]

[表22]

R1	R3	R4	R6
Ar-5	Ar-5	Ar-6	Ar-5
Ar-5	Ar-5	Ar-6	Ar-6
Ar-5	Ar-6	Ar-1	Ar-6
Ar-5	Ar-6	Ar-2	Ar-6
Ar-5	Ar-6	Ar-3	Ar-6
Ar-5	Ar-6	Ar-4	Ar-6
Ar-5	Ar-6	Ar-5	Ar-6
Ar-5	Ar-6	Ar-6	Ar-5
Ar-5	Ar-6	Ar-6	Ar-6
Ar-6	Ar-1	Ar-1	Ar-6
Ar-6	Ar-1	Ar-2	Ar-6
Ar-6	Ar-1	Ar-3	Ar-6
Ar-6	Ar-1	Ar-4	Ar-6
Ar-6	Ar-1	Ar-5	Ar-6
Ar-6	Ar-1	Ar-6	Ar-6
Ar-6	Ar-2	Ar-2	Ar-6
Ar-6	Ar-2	Ar-3	Ar-6
Ar-6	Ar-2	Ar-4	Ar-6
Ar-6	Ar-2	Ar-5	Ar-6
Ar-6	Ar-2	Ar-6	Ar-6
Ar-6	Ar-3	Ar-3	Ar-6
Ar-6	Ar-3	Ar-4	Ar-6
Ar-6	Ar-3	Ar-5	Ar-6
Ar-6	Ar-3	Ar-6	Ar-6
Ar-6	Ar-4	Ar-4	Ar-6
Ar-6	Ar-4	Ar-5	Ar-6
Ar-6	Ar-4	Ar-6	Ar-6
Ar-6	Ar-5	Ar-5	Ar-6
Ar-6	Ar-5	Ar-6	Ar-6
Ar-6	Ar-6	Ar-6	Ar-6

[0098] R^2 及び R^5 は、水素原子、アルキル基、カルボニル基、オキシカルボニル基及びアリール基のいずれかであることが好ましい。中でも、熱的安定性の観点から、水素原子又はアルキル基が好ましく、発光スペクトルにおいて狭い半値幅を得やすいという観点から、水素原子がより好ましい。

[0099] R^8 及び R^9 は、アルキル基、アリール基、ヘテロアリール基、フッ素、含フッ素アルキル基、含フッ素ヘテロアリール基又は含フッ素アリール基が好ましい。特に、励起光に対して安定であって、より優れた発光量子収率が得られることから、 R^8 及び R^9 は、フッ素又は含フッ素アリール基を表すことがより好ましい。さらに、合成の容易さから、 R^8 及び R^9 は、フッ素であることが一層好ましい。

含フッ素アリール基とは、フッ素を含むアリール基であり、例えば、フルオロフェニル基、トリフルオロメチルフェニル基及びペンタフルオロフェニル基等が挙げられる。含フッ素ヘテロアリール基とは、フッ素を含むヘテロ

アリール基であり、例えば、フルオロピリジル基、トリフルオロメチルピリジル基及びトリフルオロピリジル基等が挙げられる。含フッ素アルキル基とは、フッ素を含むアルキル基であり、例えば、トリフルオロメチル基及びペンタフルオロエチル基等が挙げられる。

[0100] 一般式(1)において、Xは、C-R⁷であることが、光安定性の観点から好ましい。XがC-R⁷である場合、一般式(1)で表される化合物の耐久性、すなわち、この化合物の発光強度の経時的な低下には、置換基R⁷が大きく影響する。具体的には、R⁷が水素原子である場合、この部位の反応性が高いため、この部位と空気中の水分や酸素とが容易に反応してしまう。これにより、一般式(1)で表される化合物の分解を引き起こす可能性がある。また、R⁷が例えばアルキル基のような分子鎖の運動の自由度が大きい置換基である場合は、反応性は低下するが、色変換フィルム中で化合物同士が経時的に凝集し、結果的に濃度消光による発光強度の低下を招く可能性がある。したがって、R⁷は、剛直で、かつ運動の自由度が小さく凝集を引き起こしにくい基であることが好ましく、具体的には、置換若しくは無置換のアリール基、又は置換若しくは無置換のヘテロアリール基のいずれかであることが好ましい。

[0101] より優れた発光量子収率を与え、より熱分解しづらい点、また光安定性の観点から、XがC-R⁷であり、R⁷が置換又は無置換のアリール基であることが好ましい。アリール基としては、発光波長を損なわないという観点から、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基、フルオレニル基、フェナントリル基又はアントラセニル基が好ましい。

[0102] さらに、過度にねじれが大きい場合、励起光に対する反応性が高まる等、光安定性が低下するため、一般式(1)で表される化合物の光安定性を高めるには、R⁷とピロメテン骨格との炭素-炭素結合のねじれを適度に抑えることが好ましい。

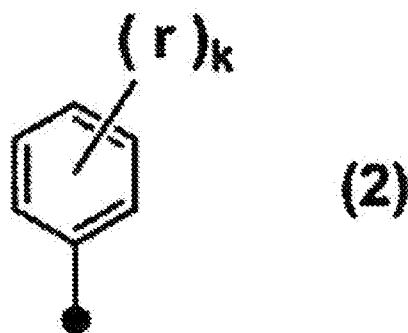
上記観点から、R⁷としては、置換若しくは無置換のフェニル基、置換若しくは無置換のビフェニル基、置換若しくは無置換のターフェニル基、又は置

換若しくは無置換のナフチル基が好ましく、置換若しくは無置換のフェニル基、置換若しくは無置換のビフェニル基、又は置換若しくは無置換のターフェニル基であることがより好ましい。特に好ましくは、置換若しくは無置換のフェニル基である。

[0103] また、 R^7 は、適度にかさ高い置換基を表すことが好ましい。 R^7 が、ある程度のかさ高さを有することにより、分子の凝集を防ぐことができ、その結果、一般式（１）で表される化合物の発光効率及び耐久性がより向上する。

かさ高い置換基のさらに好ましい例としては、下記一般式（２）で表される R^7 の構造が挙げられる。

[0104] [化4]



[0105] 一般式（２）において、 r は、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、複素環基、アルケニル基、シクロアルケニル基、アルキニル基、水酸基、チオール基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリアルエーテル基、アリアルチオエーテル基、アリアル基、ヘテロアリアル基、ハロゲン、シアノ基、アルデヒド基、カルボニル基、カルボキシル基、オキシカルボニル基、カルバモイル基、アミノ基、ニトロ基、シリル基、シロキサニル基、ボリル基及びホスフィンオキシド基からなる群より選ばれる。 k は、１～３の整数である。 k が２以上である場合、 r はそれぞれ同じでも異なってもよい。

[0106] 発光量子収率の観点から、 r は、置換又は無置換のアリアル基を表すことが好ましい。上記アリアル基の中でも、特に、フェニル基又はナフチル基が好ましい例として挙げられる。 r がアリアル基を表す場合、一般式（２）の

kは、1又は2であることが好ましく、中でも、分子の凝集をより防ぐという観点から2であることがより好ましい。さらに、kが2以上である場合、rの少なくとも1つは、アルキル基で置換されていることが好ましい。アルキル基としては、熱的安定性の観点から、メチル基、エチル基及びtert-ブチル基が特に好ましい例として挙げられる。

[0107] 蛍光波長及び吸収波長の制御、並びに溶媒との相溶性の観点から、rは、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルコキシ基又はハロゲンであることが好ましく、メチル基、エチル基、tert-ブチル基又はメトキシ基がより好ましい。分散性の観点からは、tert-ブチル基又はメトキシ基が特に好ましい。rがtert-ブチル基又はメトキシ基を表すことは、分子同士の凝集による消光防止の観点からも有効である。

[0108] また、一般式(1)で表される化合物の別の態様として、 $R^1 \sim R^7$ のうち少なくとも1つが電子求引基を表すことが好ましい。

特に、(1) $R^1 \sim R^6$ のうち少なくとも1つが電子求引基を表すこと、(2) R^7 が電子求引基を表すこと、又は(3) $R^1 \sim R^6$ のうち少なくとも1つが電子求引基であり、かつ、 R^7 が電子求引基を表すことが好ましい。

上記化合物のピロメテン骨格に電子求引基を導入することで、ピロメテン骨格の電子密度を大幅に下げることができる。これにより、上記化合物の酸素に対する安定性がより向上し、その結果、上記化合物の耐久性をより向上させることができる。

[0109] 電子求引基とは、電子受容性基とも呼称し、有機電子論において、誘起効果や共鳴効果により、置換した原子団から、電子を引き付ける原子団である。電子求引基としては、ハメット則の置換基定数(σ_p (パラ))として、正の値をとるものが挙げられる。ハメット則の置換基定数(σ_p (パラ))は、化学便覧基礎編改訂5版(II-380頁)から引用することができる。なお、フェニル基も、上記のような正の値をとる例もあるが、本開示において、電子求引基にフェニル基は含まれない。

[0110] 電子求引基の例として、例えば、 $-F$ ($\sigma_p: +0.06$)、 $-Cl$ (σ

$p : +0.23$)、 $-Br$ ($\sigma p : +0.23$)、 $-I$ ($\sigma p : +0.18$)、 $-CO_2R^{12}$ ($\sigma p : R^{12}$ がエチル基の時 $+0.45$)、 $-CONH_2$ ($\sigma p : +0.38$)、 $-COR^{12}$ ($\sigma p : R^{12}$ がメチル基の時 $+0.49$)、 $-CF_3$ ($\sigma p : +0.50$)、 $-SO_2R^{12}$ ($\sigma p : R^{12}$ がメチル基の時 $+0.69$)及び $-NO_2$ ($\sigma p : +0.81$)等が挙げられる。

R^{12} は、それぞれ独立に、水素原子、置換若しくは無置換の環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素基、置換若しくは無置換の環形成原子数5～30の複素環基、置換若しくは無置換の炭素数1～30のアルキル基、又は置換若しくは無置換の炭素数1～30のシクロアルキル基を表す。これら各基の具体例としては、上記と同様の例が挙げられる。

[0111] 分解性の観点から好ましい電子求引基としては、フッ素、含フッ素アリール基、含フッ素ヘテロアリール基、含フッ素アルキル基、置換又は無置換のアシル基、置換又は無置換のエステル基、置換又は無置換のアミド基、置換又は無置換のスルホニル基及びシアノ基が挙げられる。

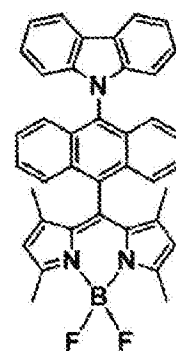
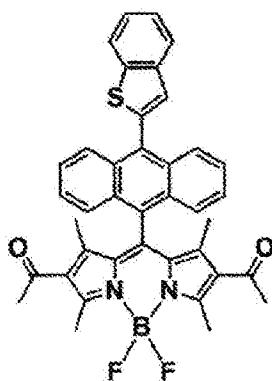
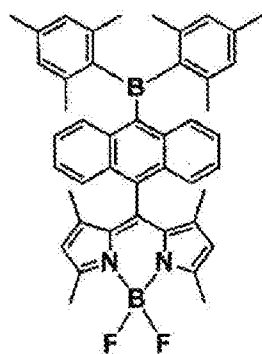
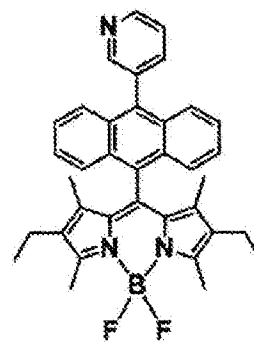
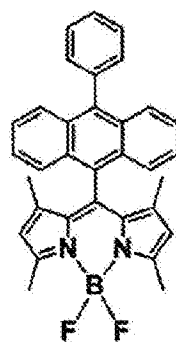
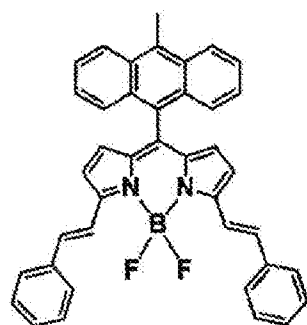
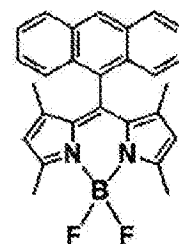
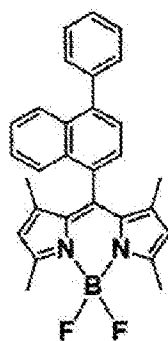
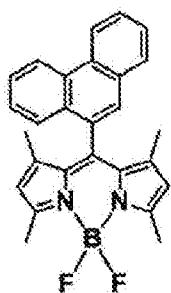
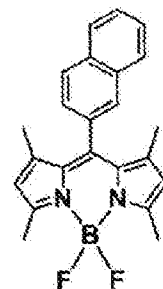
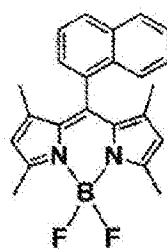
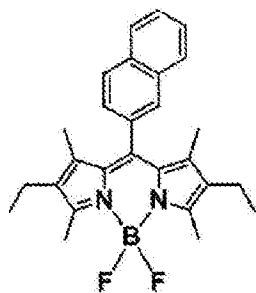
より好ましい電子求引基としては、含フッ素アルキル基、含フッ素アリール基、置換又は無置換のアシル基、置換又は無置換のエステル基及びシアノ基が挙げられる。

上記した電子求引基によれば、濃度消光を防ぎ、発光量子収率を向上させることができる。特に好ましい電子求引基は、置換又は無置換のエステル基である。

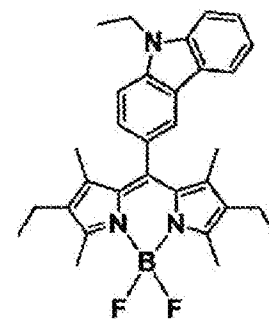
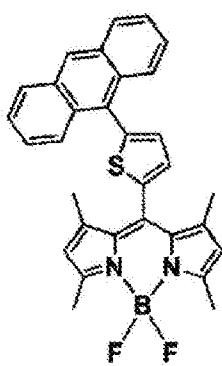
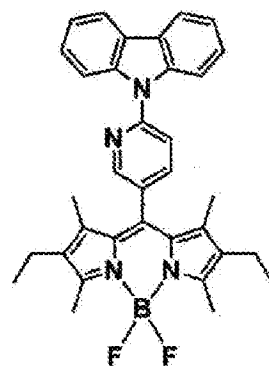
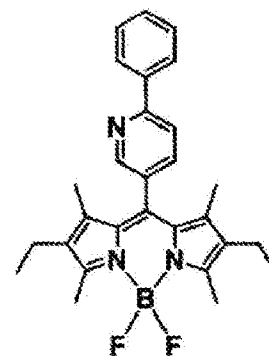
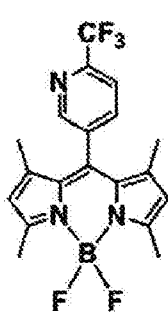
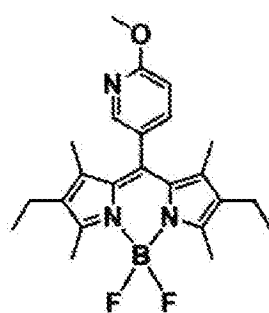
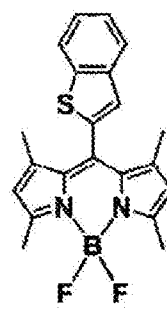
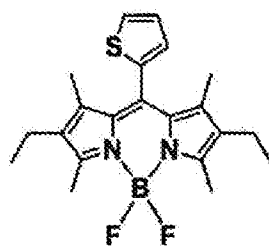
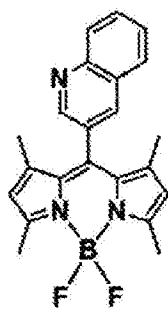
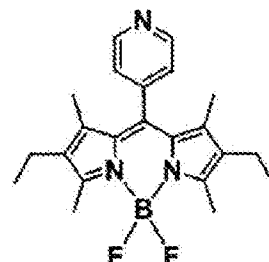
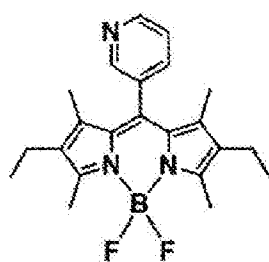
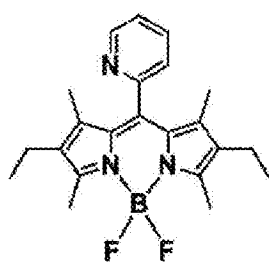
[0112] 特定有機発光材料Aとして好適に用いることができる一般式(1)で表される化合物の好ましい例の1つとして、 R^1 、 R^3 、 R^4 及び R^6 が全て、それぞれ独立に、置換又は無置換のアルキル基W0を表し、さらに、Xが $C-R^7$ を表し、 R^7 が、一般式(2)で表される基を表す場合が挙げられる。この場合、 R^7 は、 r が置換又は無置換のフェニル基として含まれる一般式(2)で表される基を表すことが特に好ましい。

[0113] 一般式(1)で表される化合物の一例を以下に示すが、この化合物は、これらに限定されるものではない。

[0114] [化5]

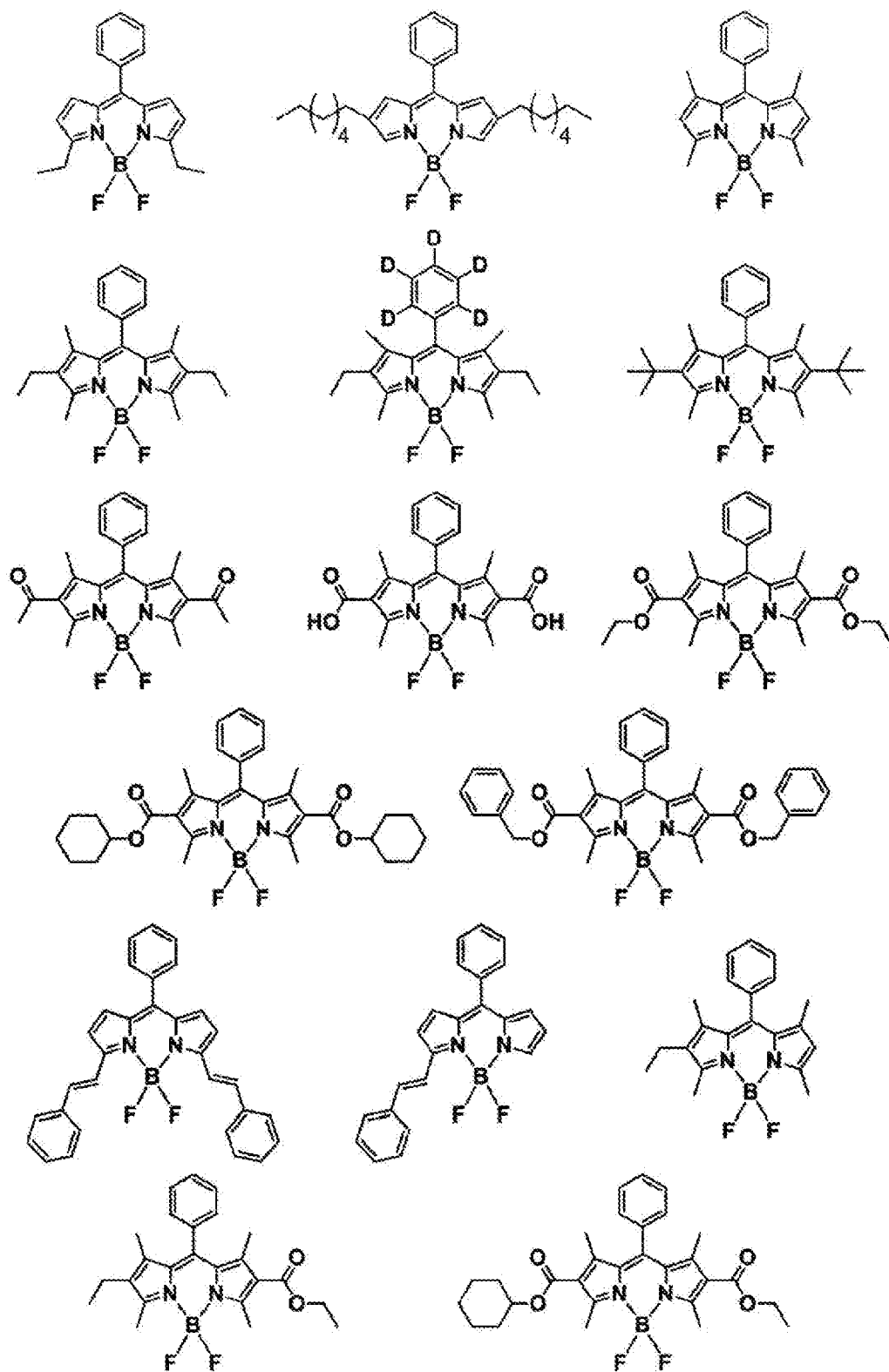


[0115] [化6]



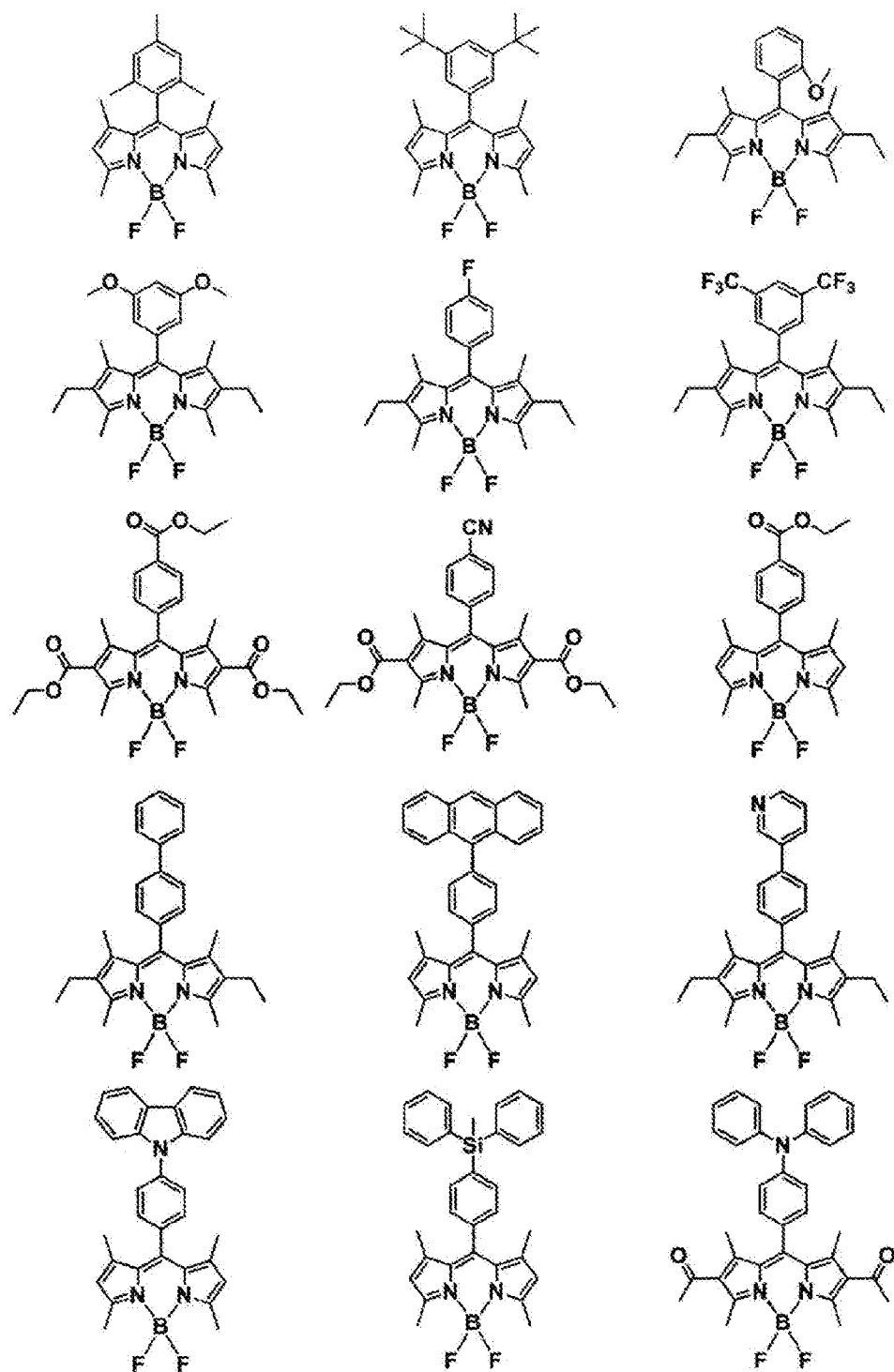
[0116]

[化7]



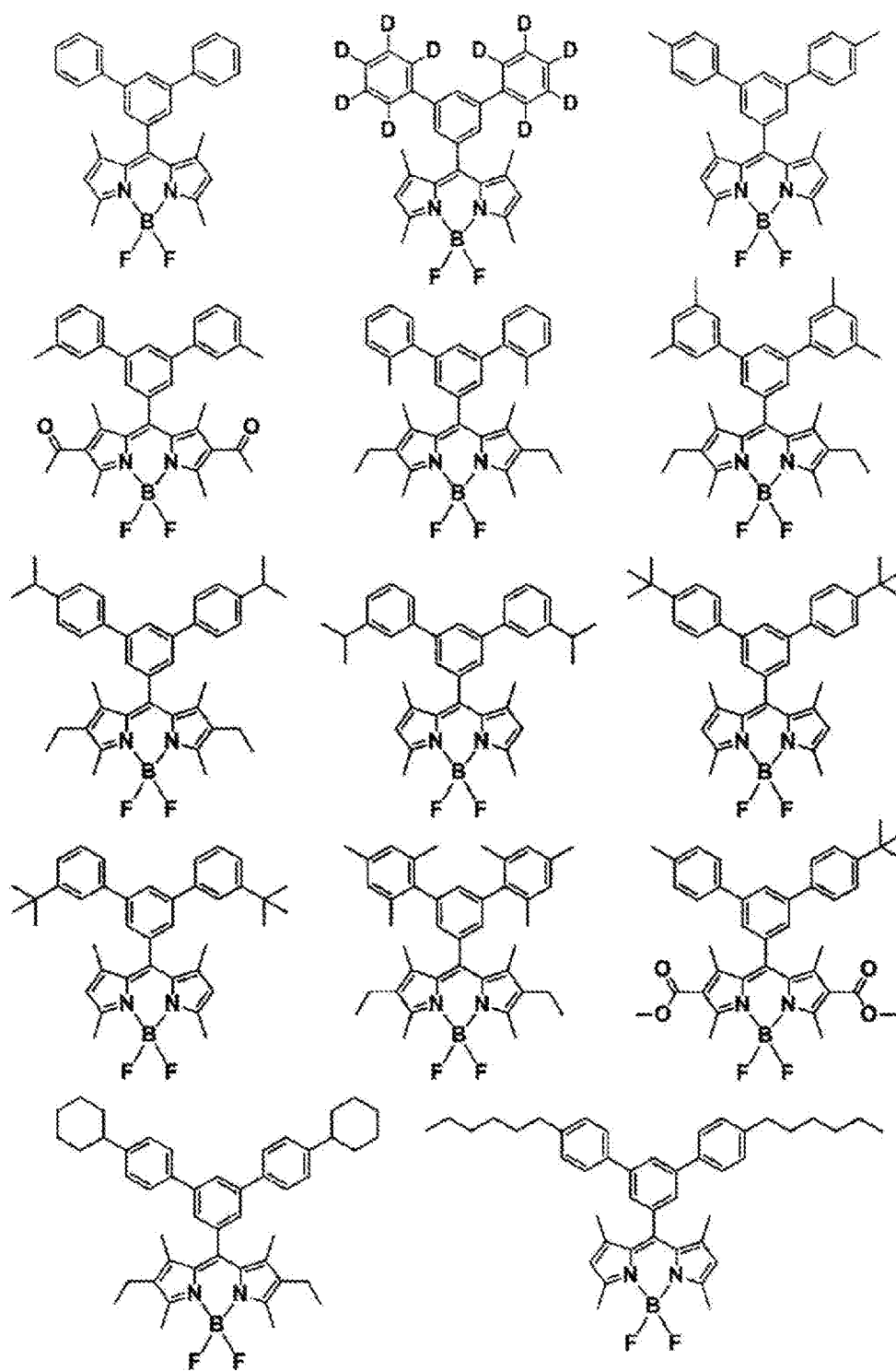
[0117]

[化8]



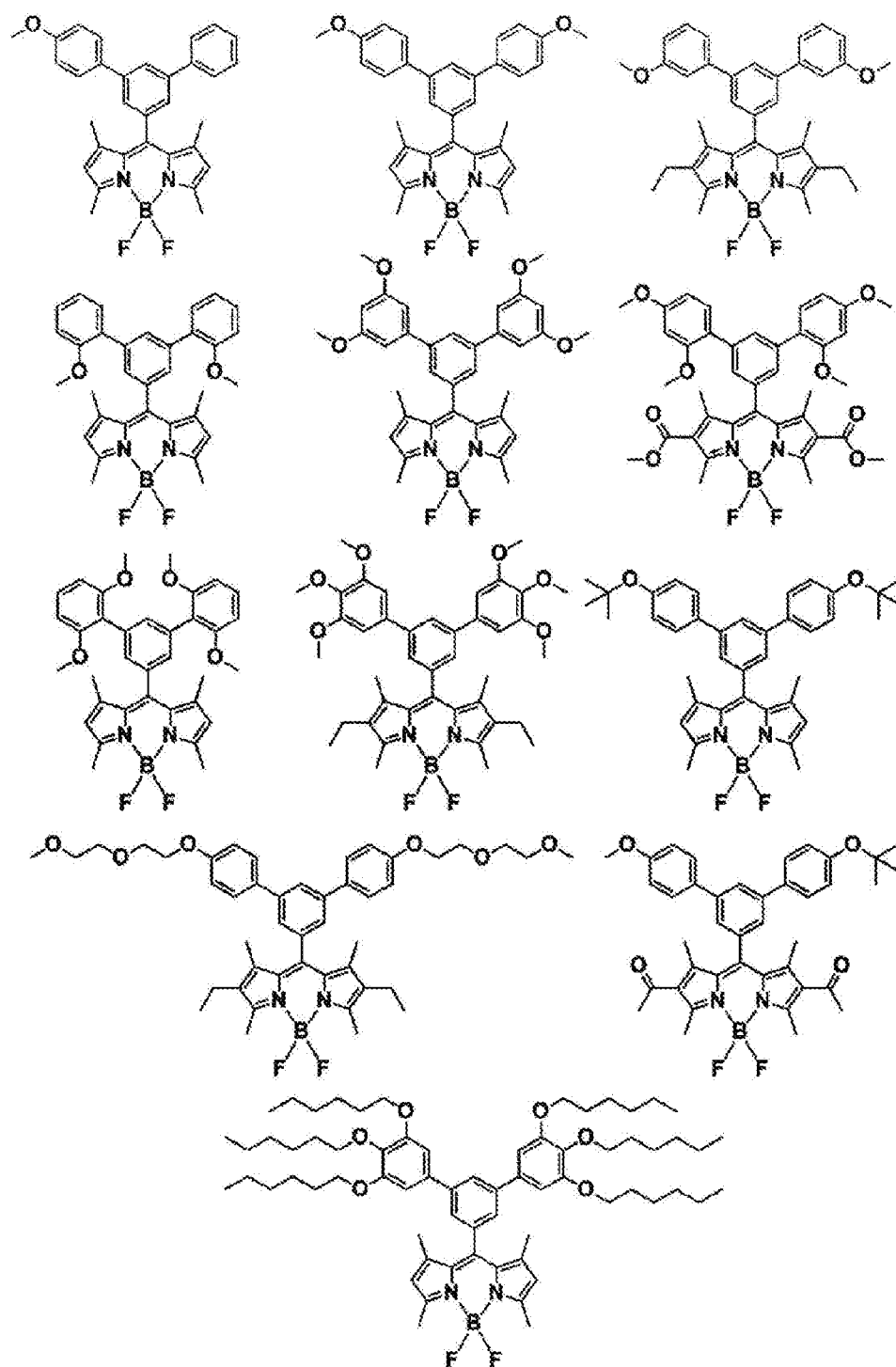
[0118]

[化9]



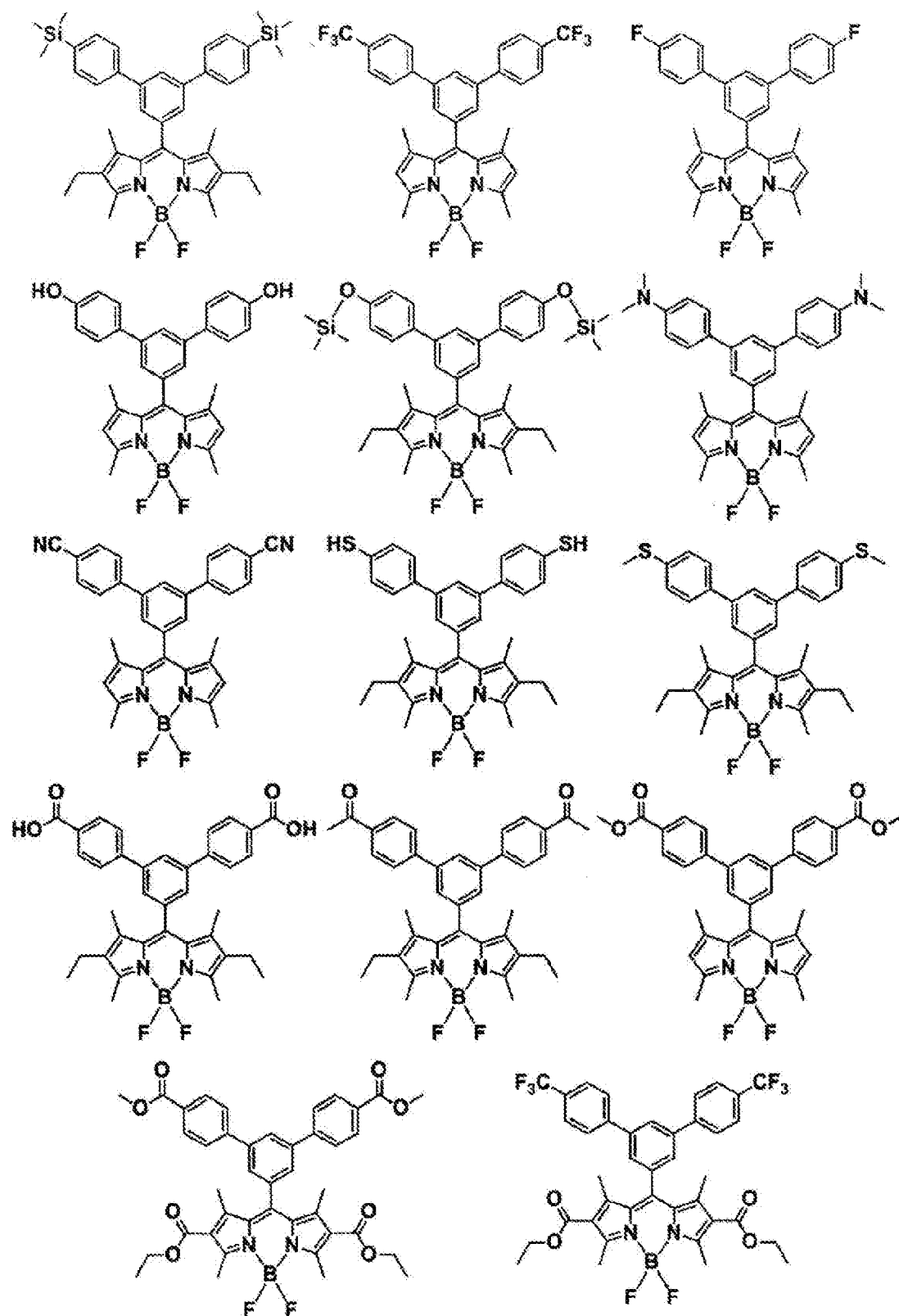
[0119]

[化10]

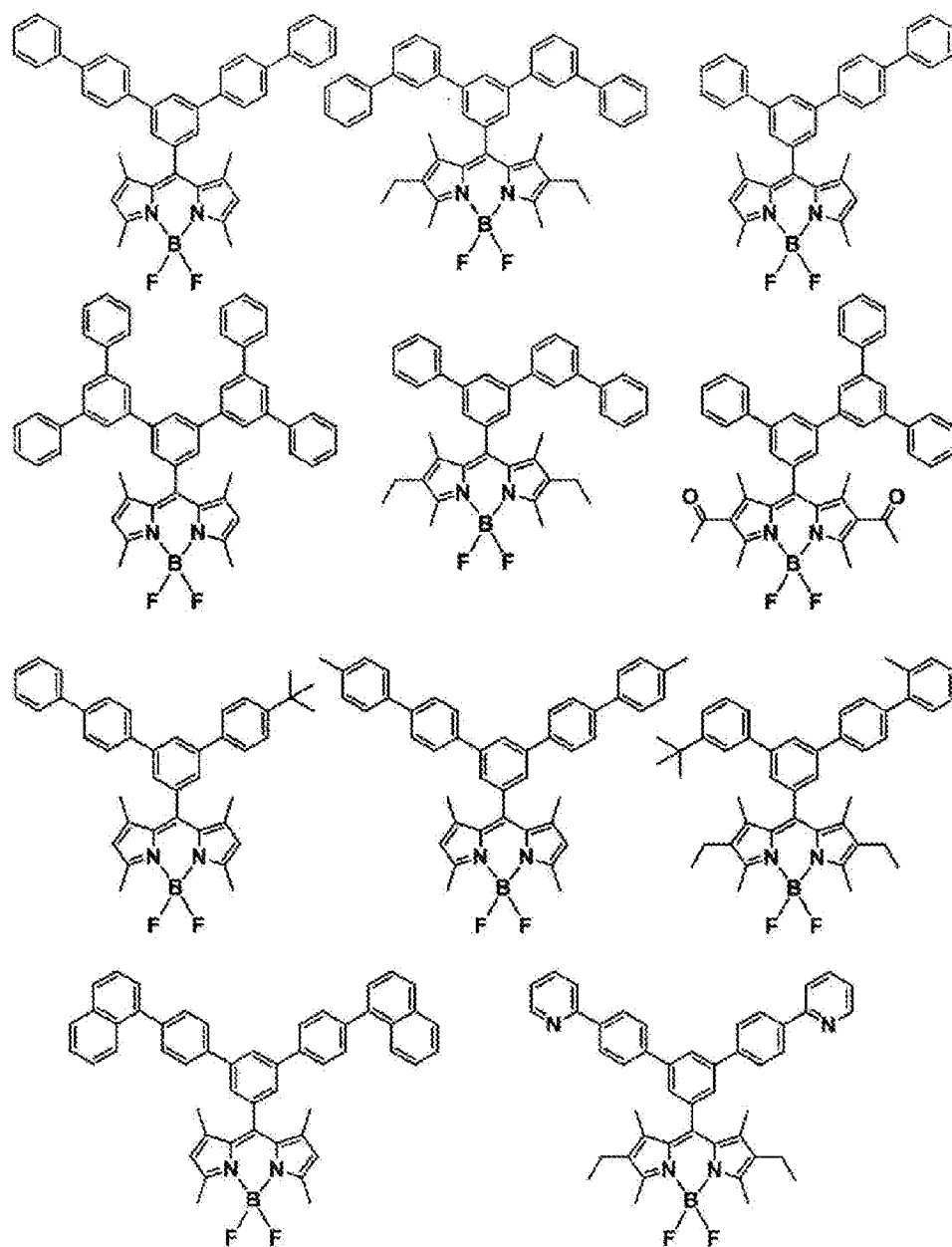


[0120]

[化11]

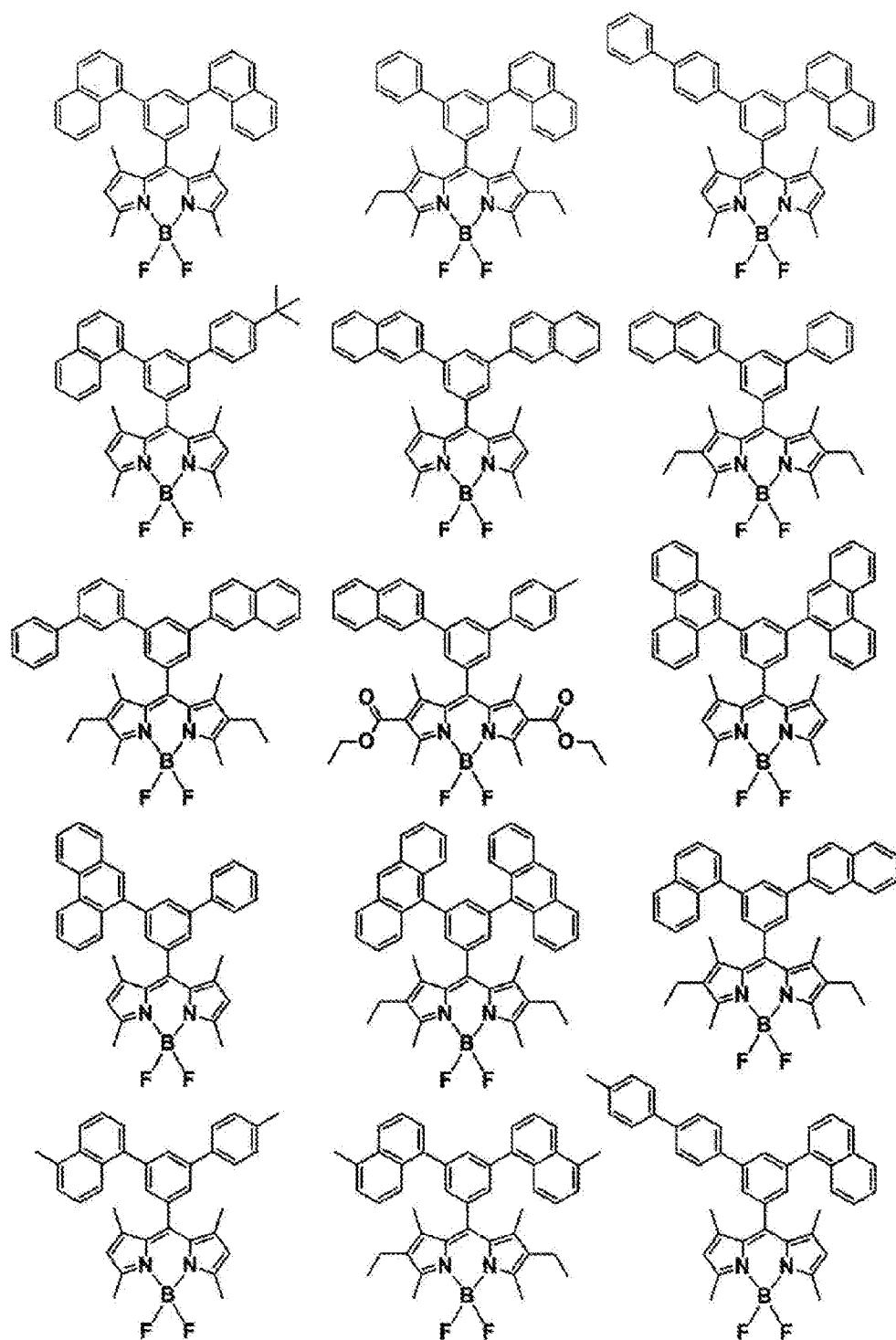


[0121] [化12]



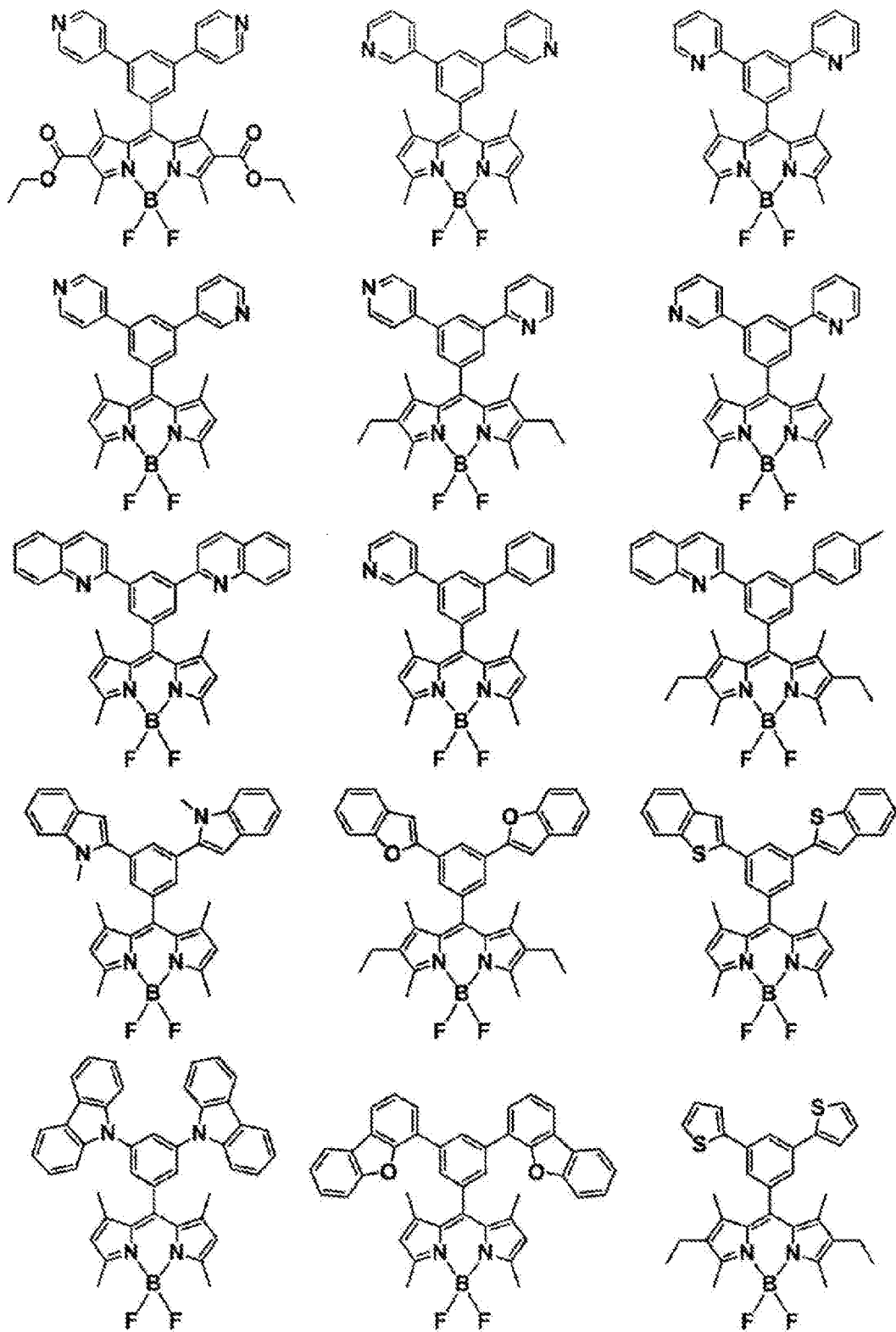
[0122]

[化13]

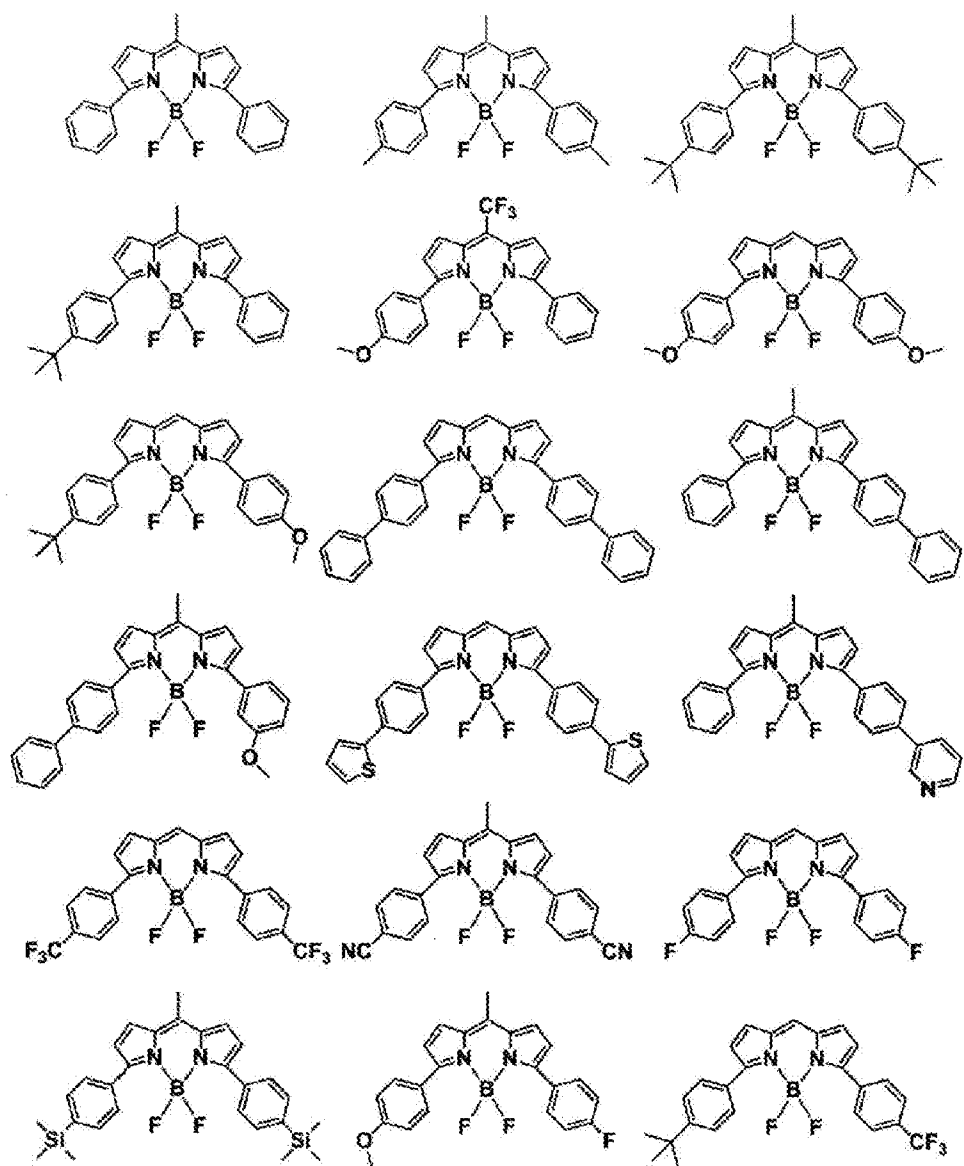


[0123]

[化14]

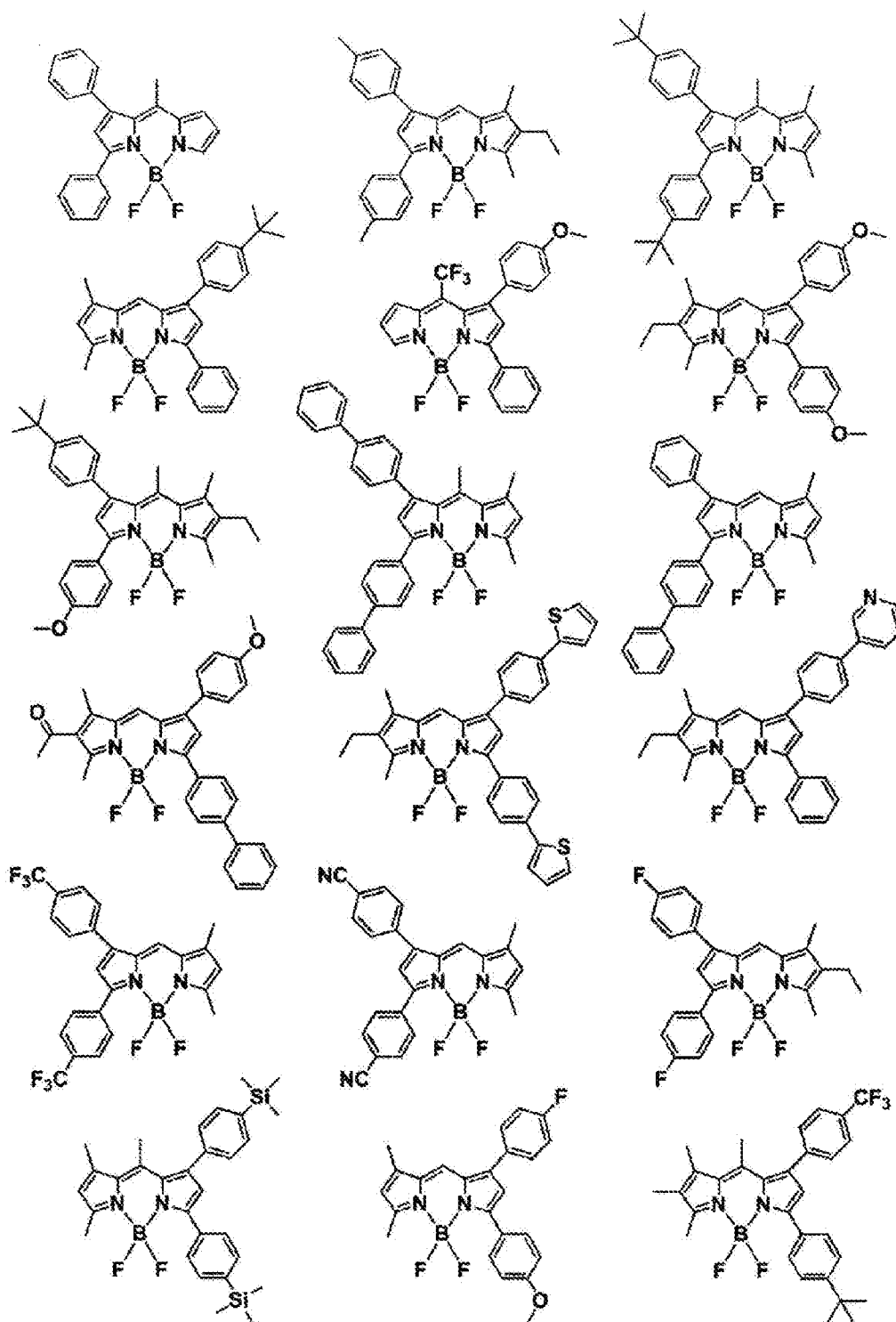


[0124] [化15]



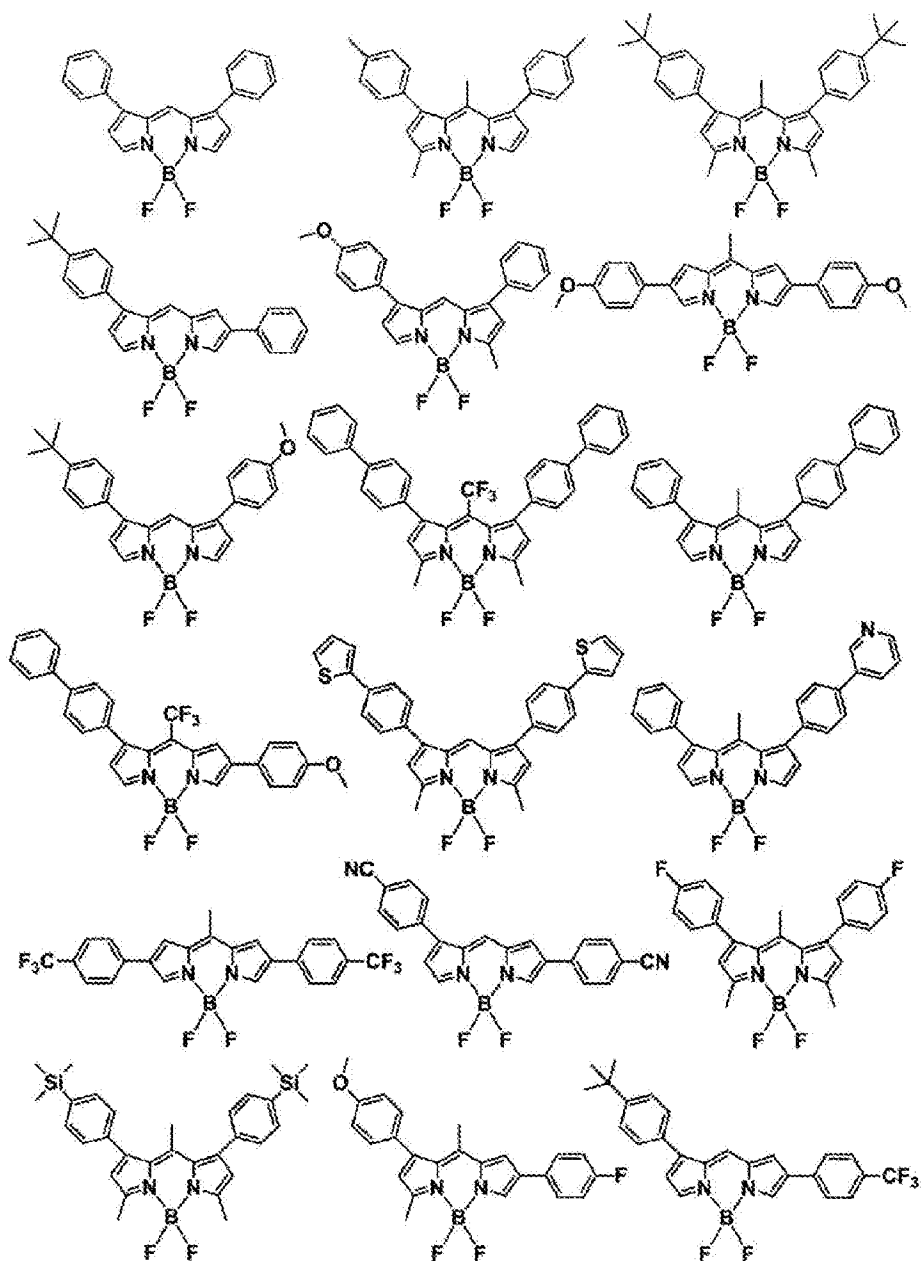
[0125]

[化16]



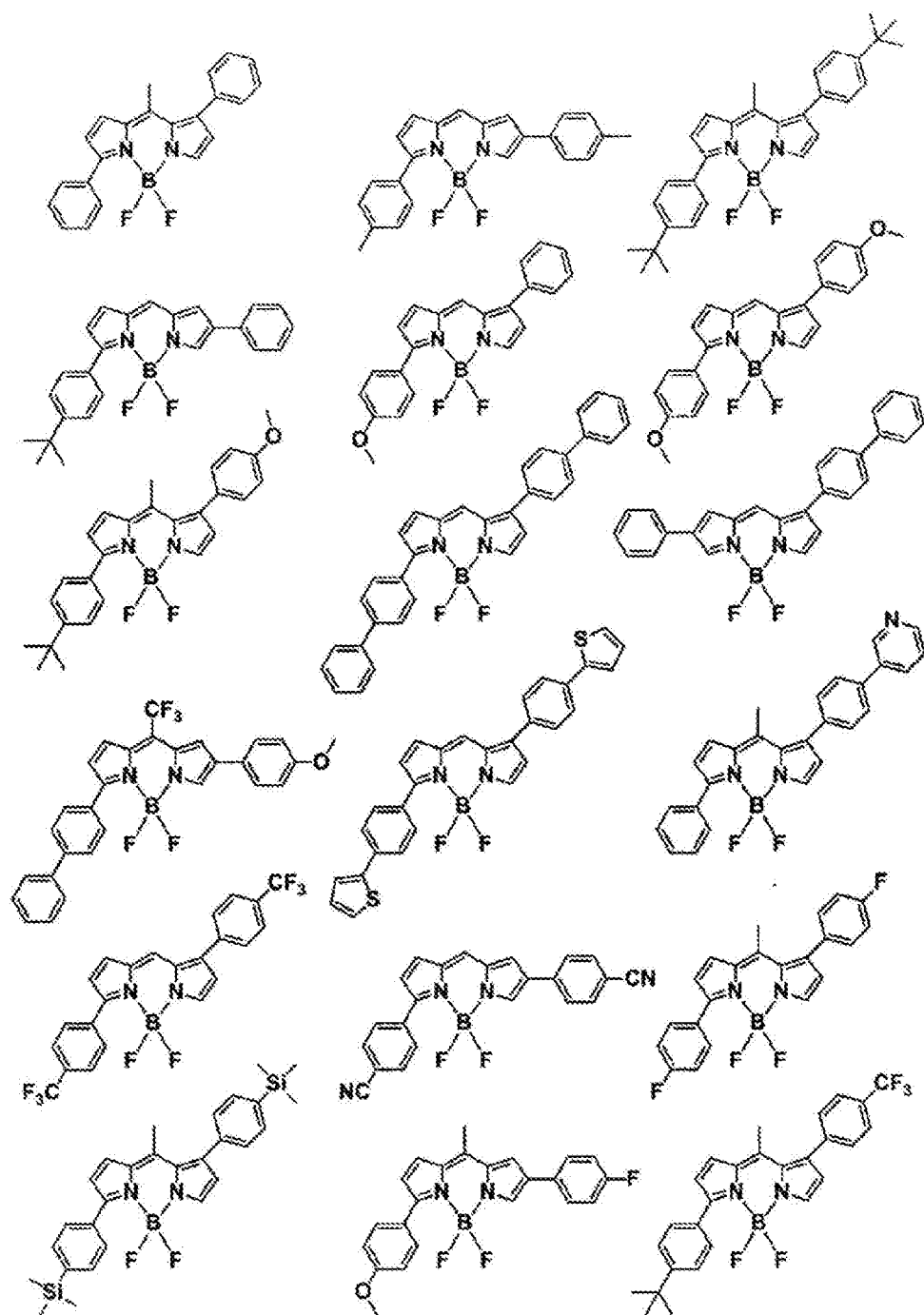
[0126]

[化17]



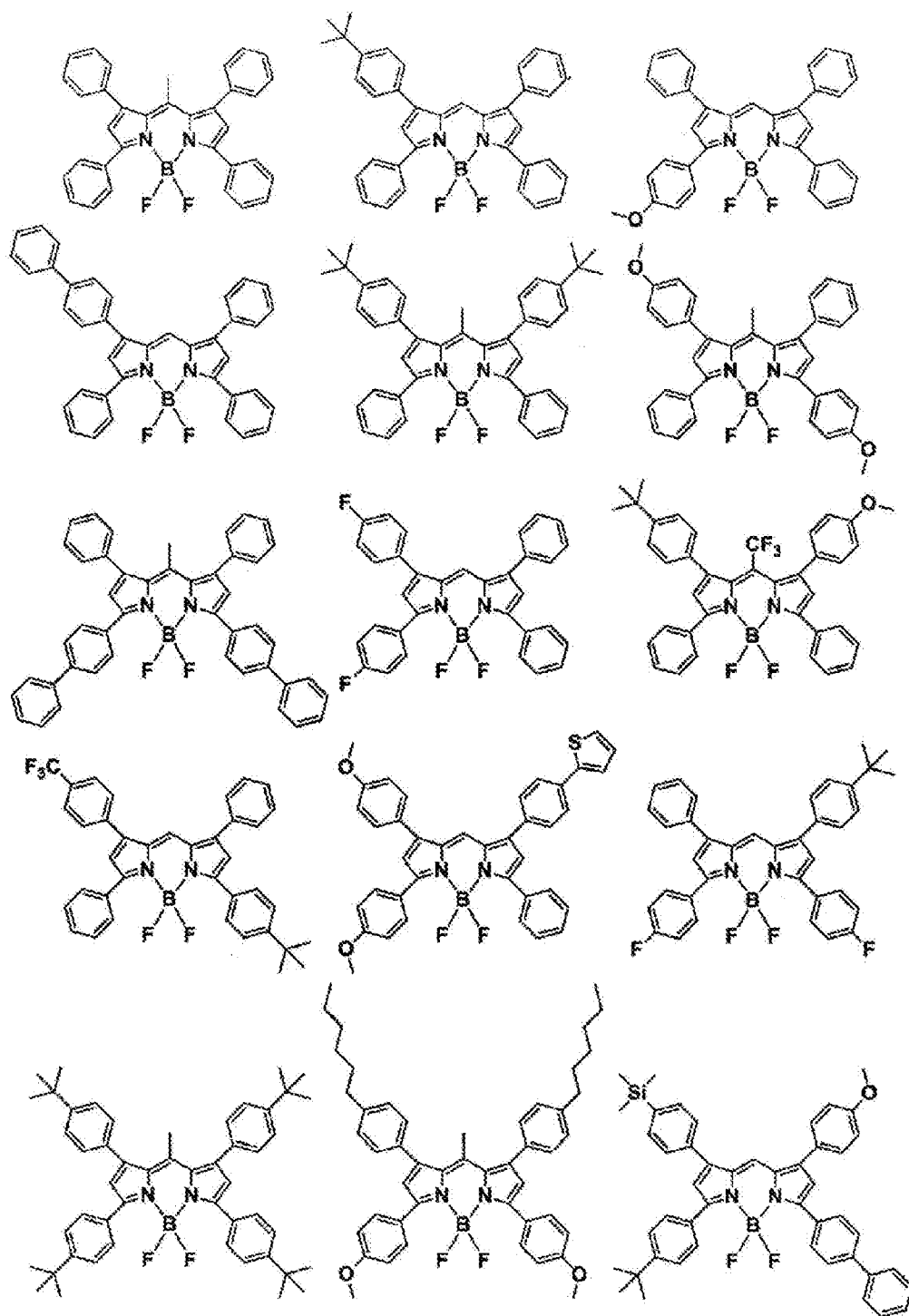
[0127]

[化18]



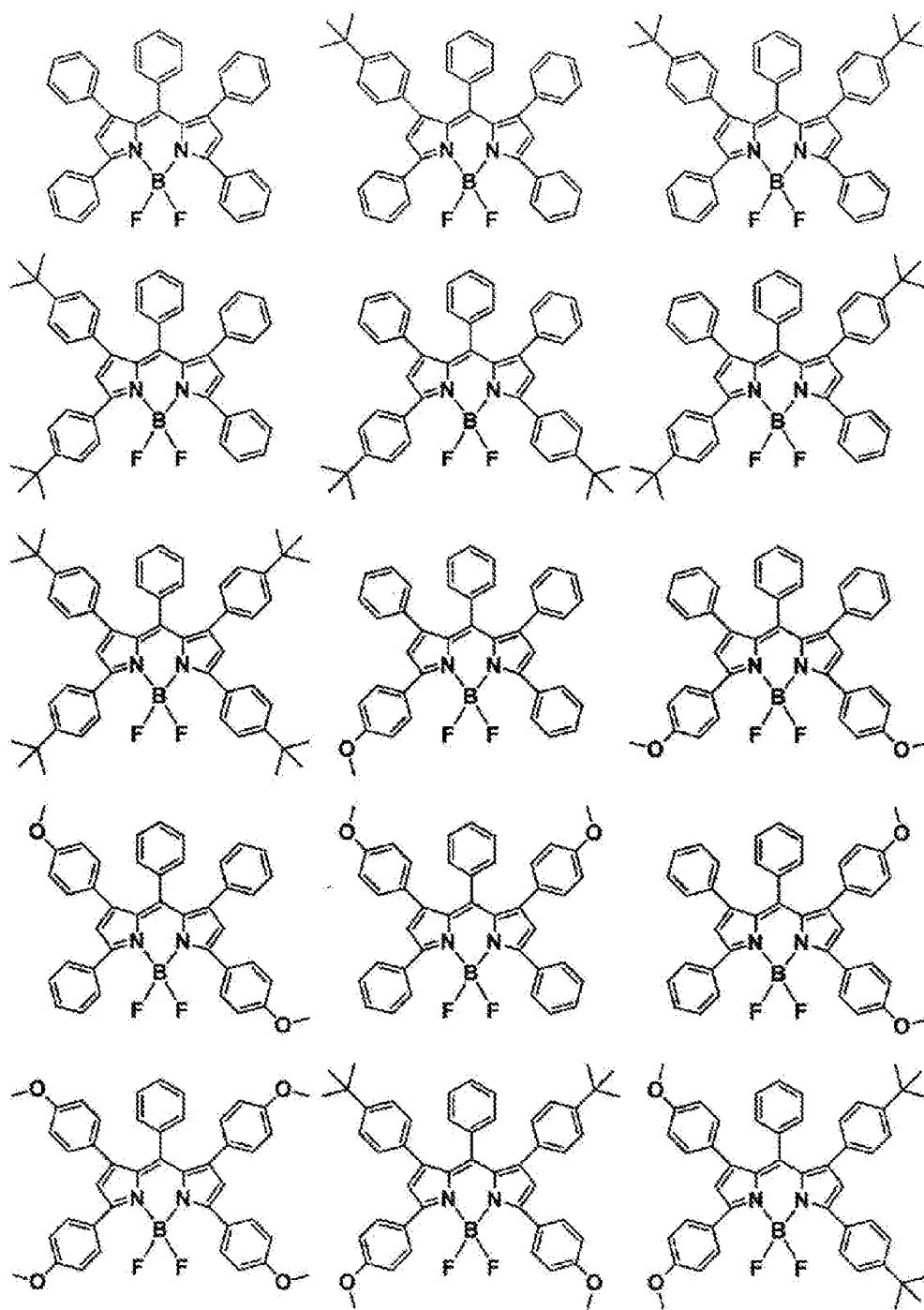
[0128]

[化19]



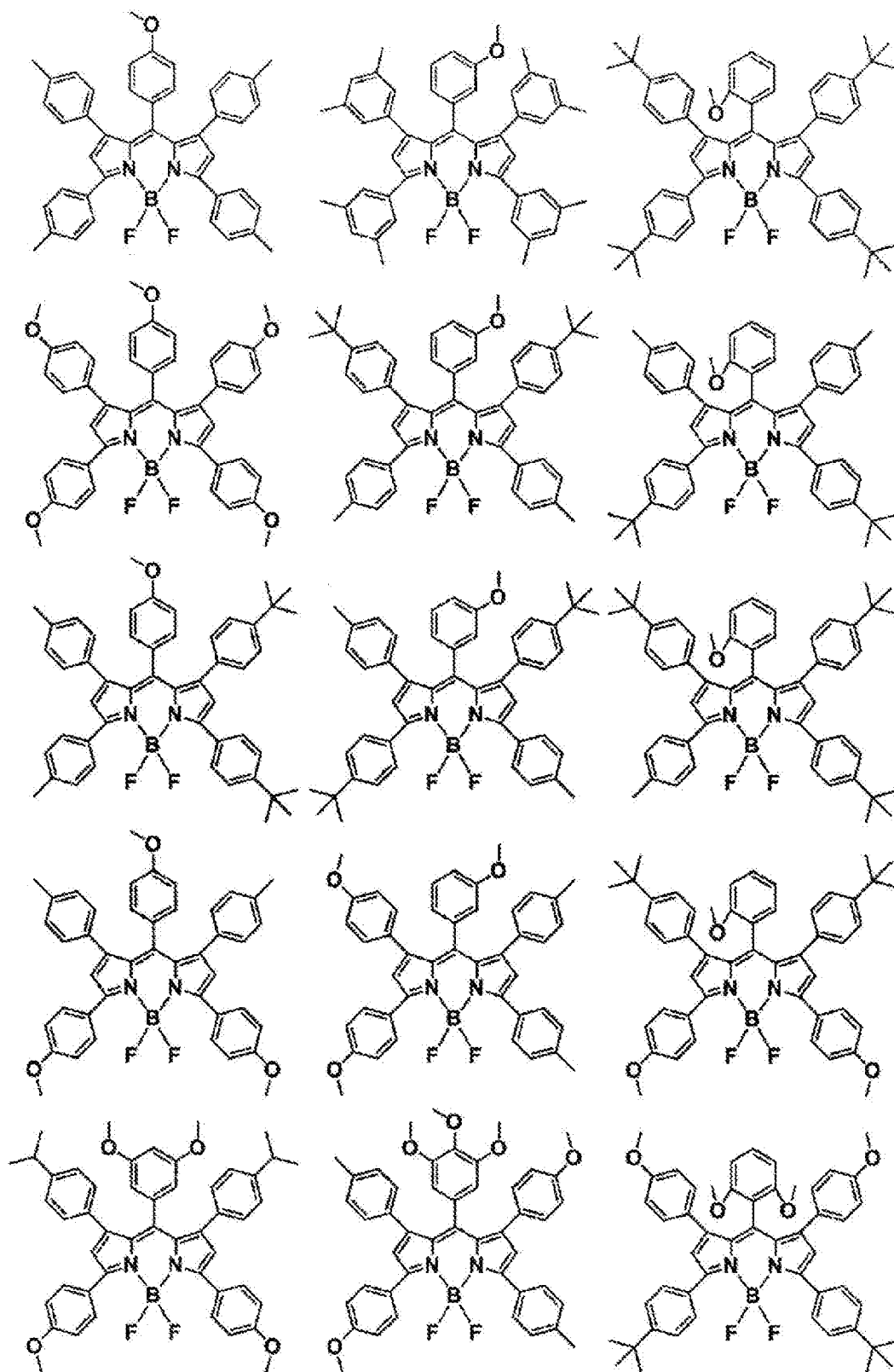
[0129]

[化20]

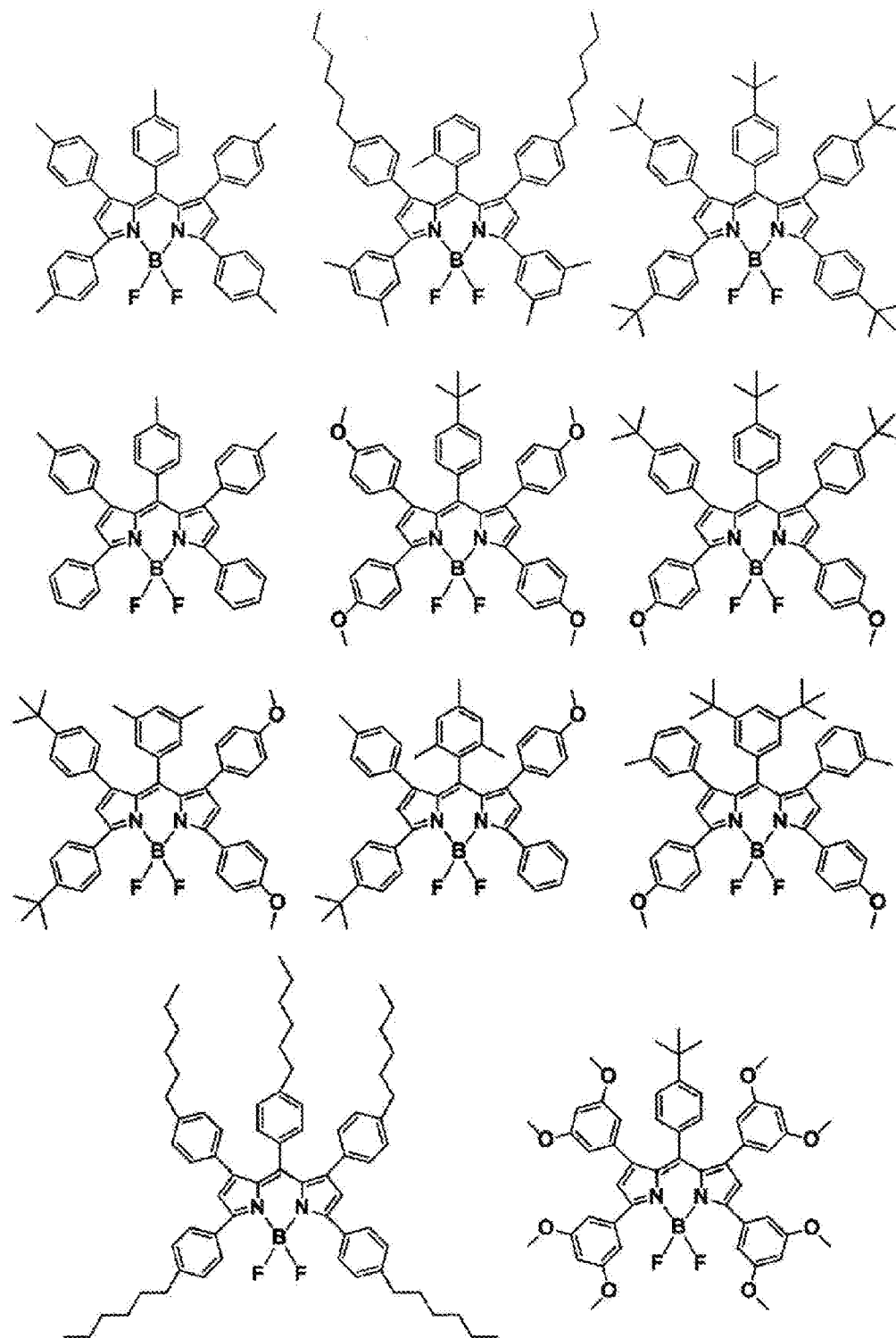


[0130]

[化21]

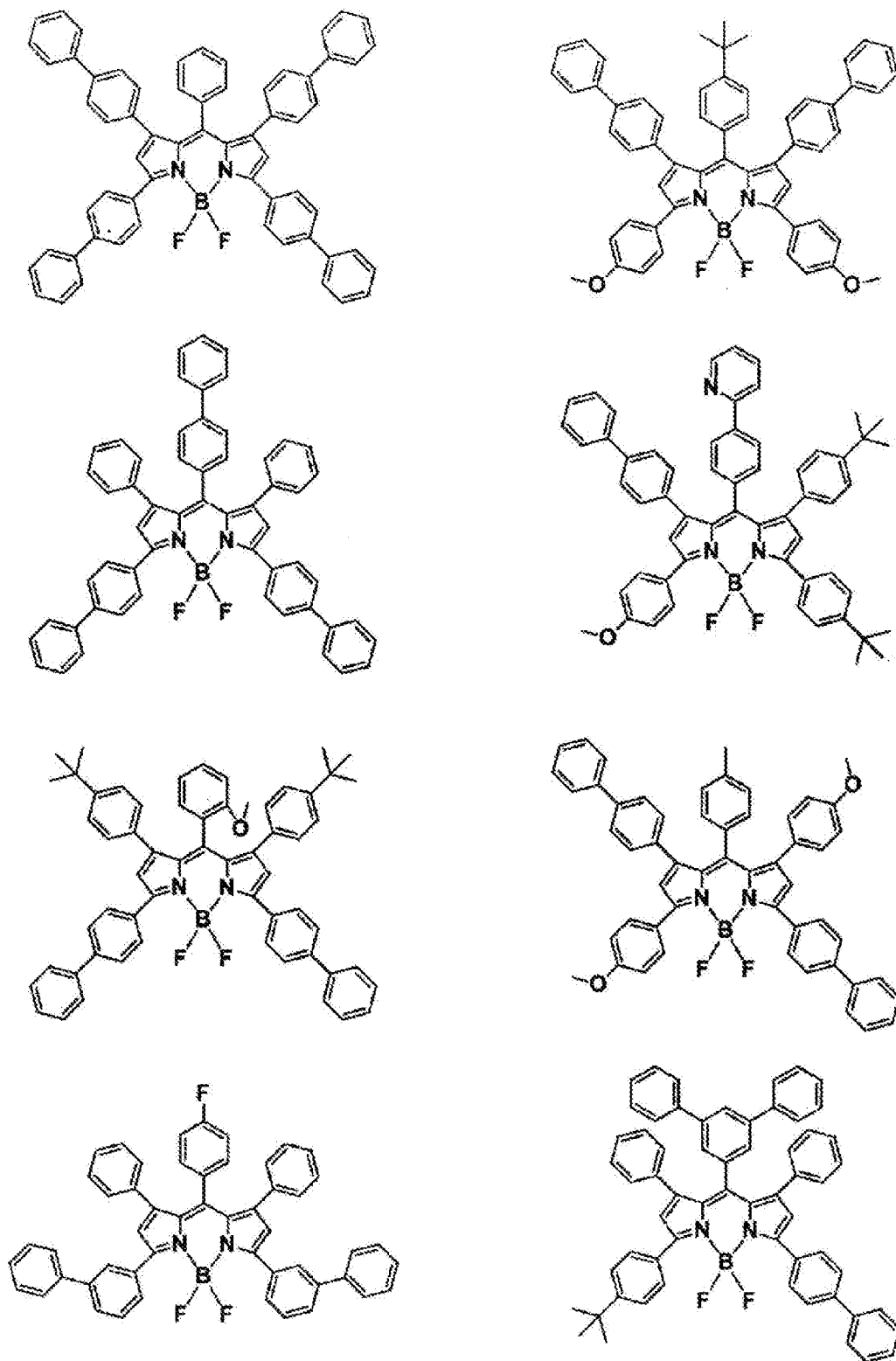


[0131] [化22]



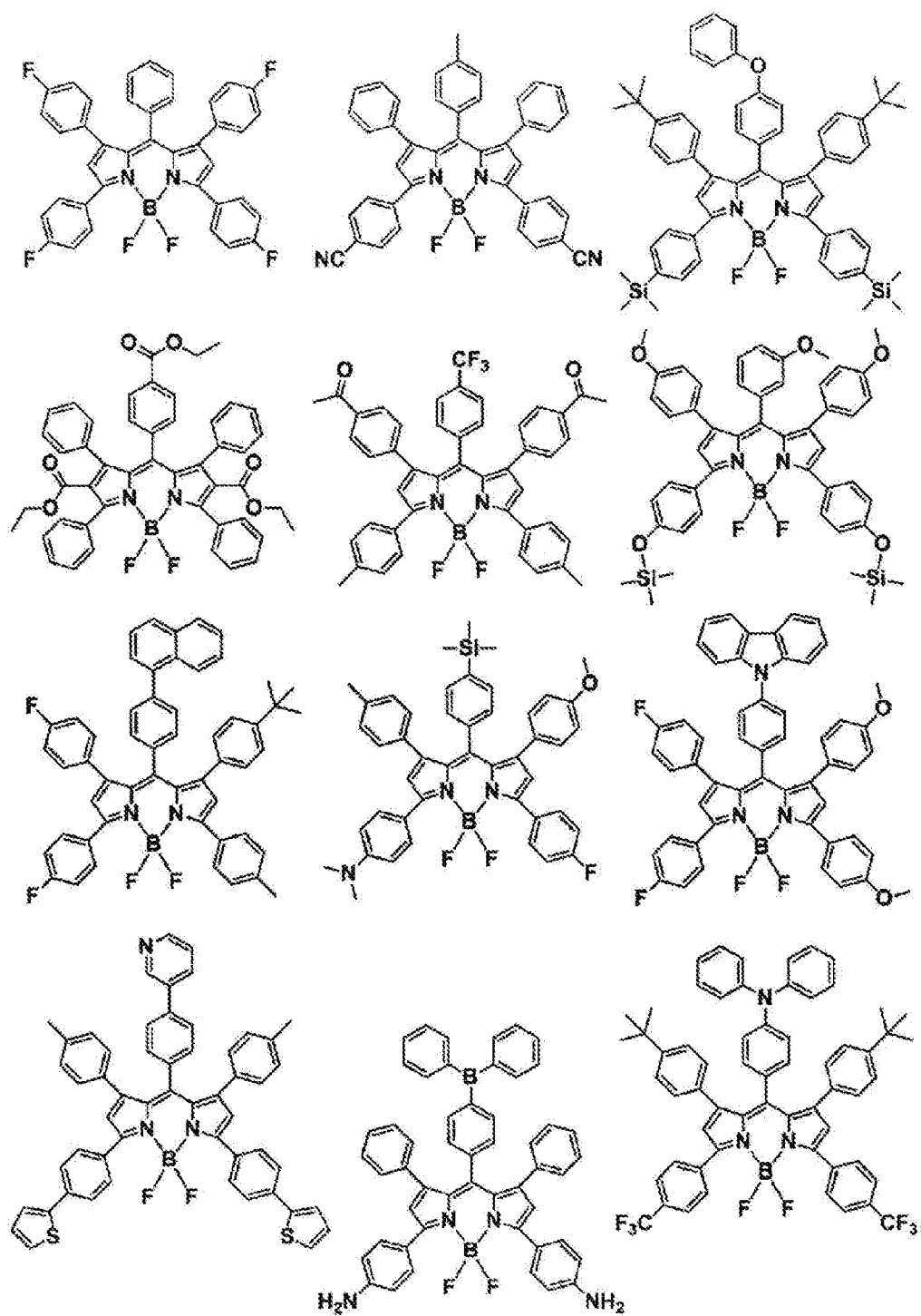
[0132]

[化23]



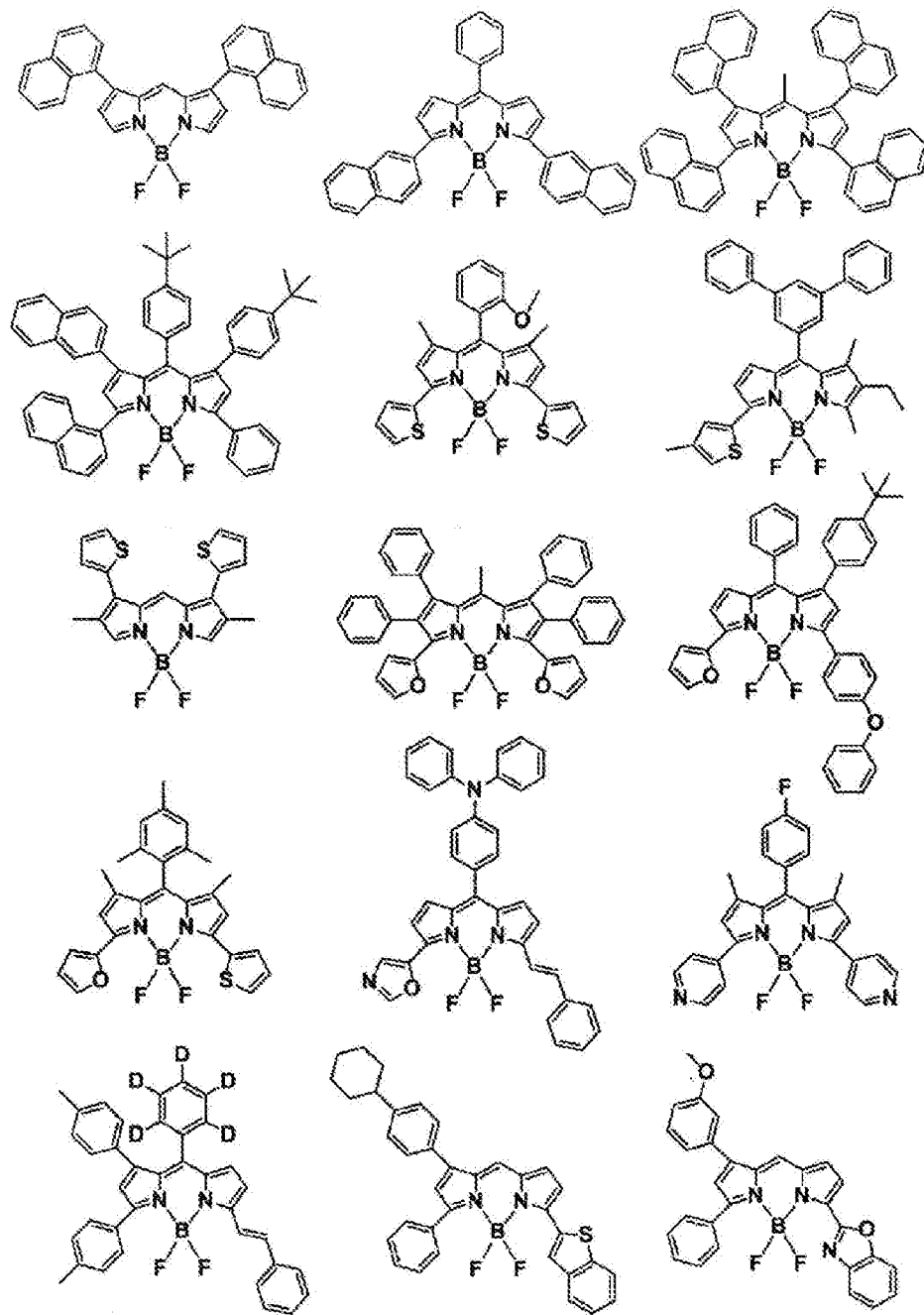
[0133]

[化24]



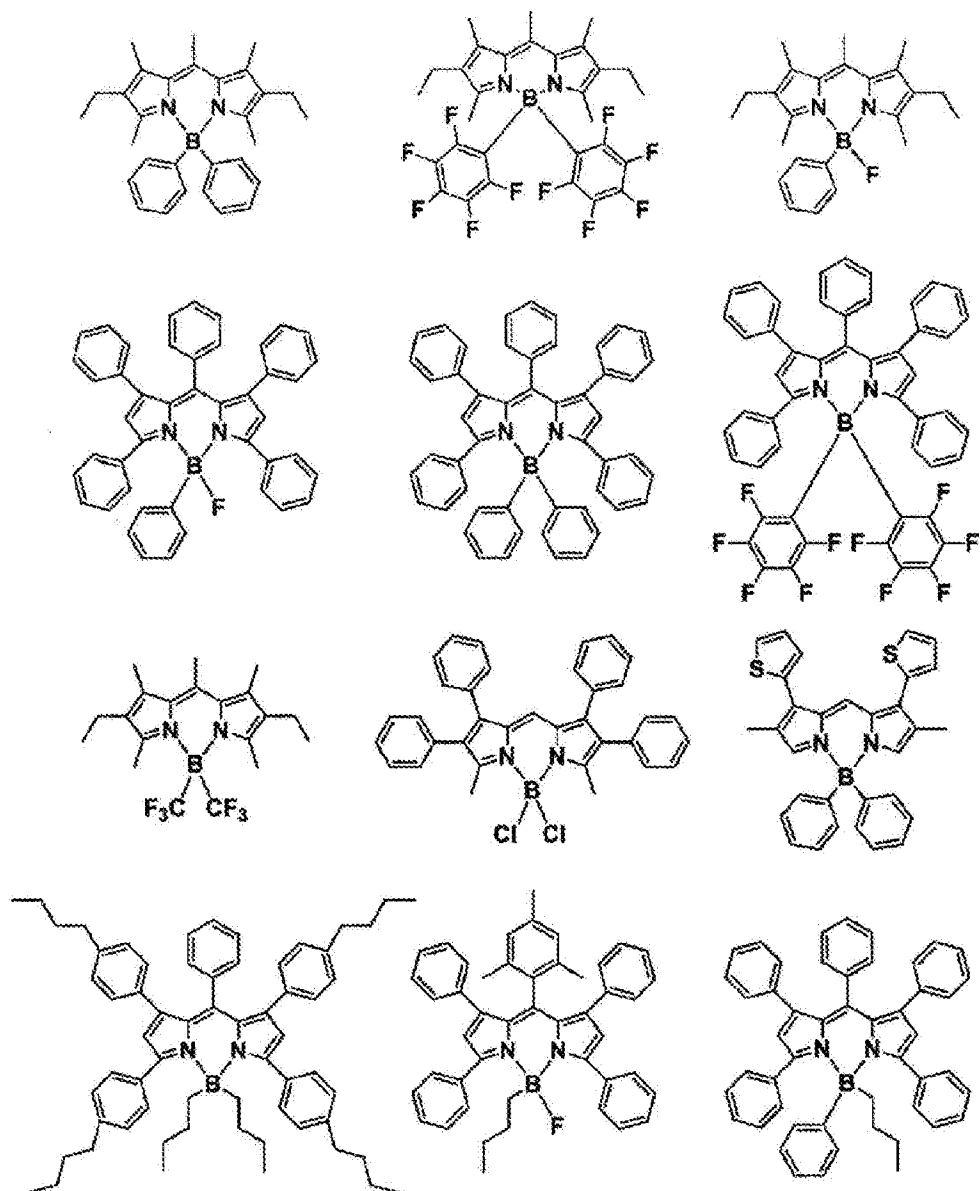
[0134]

[化25]



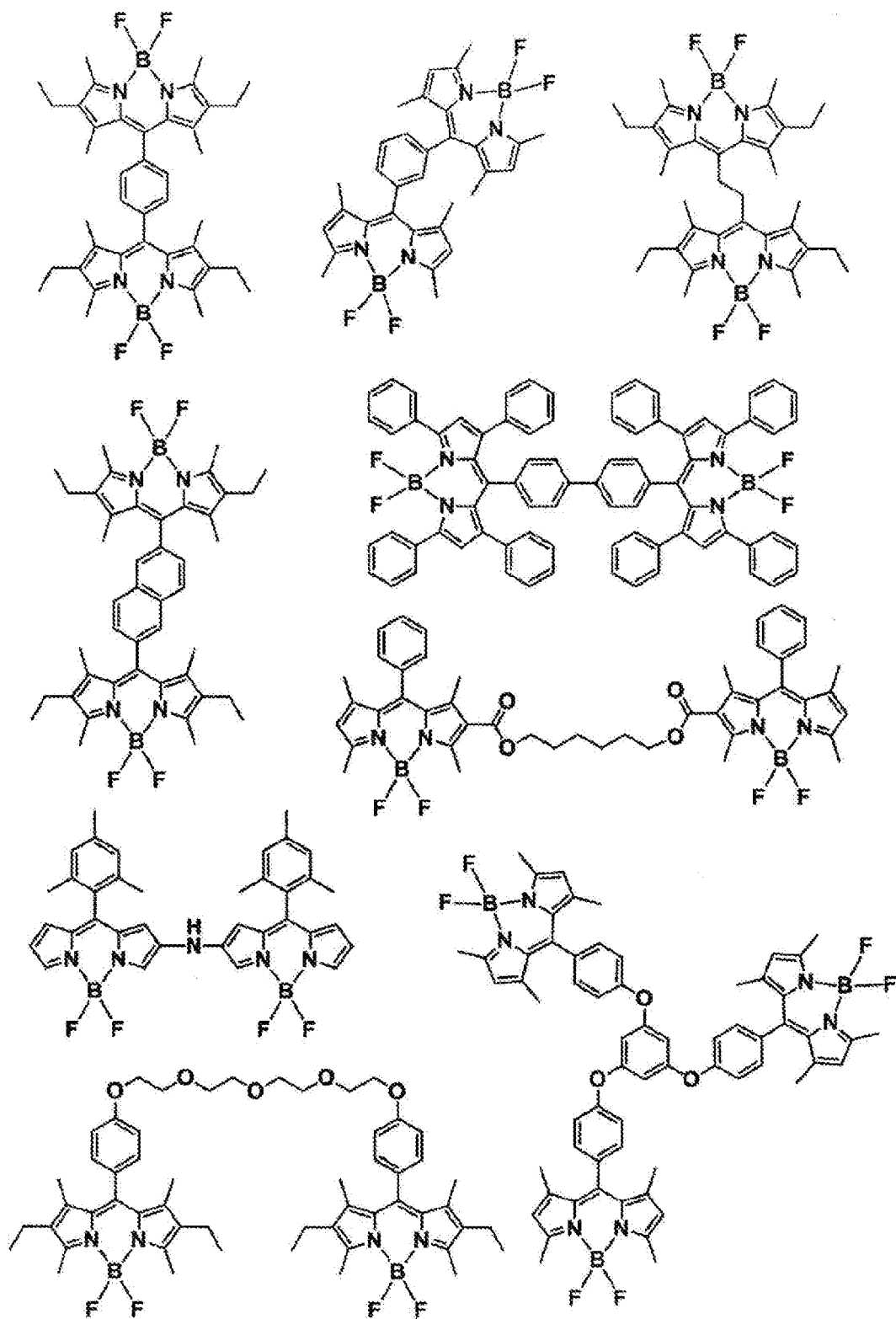
[0135]

[化26]



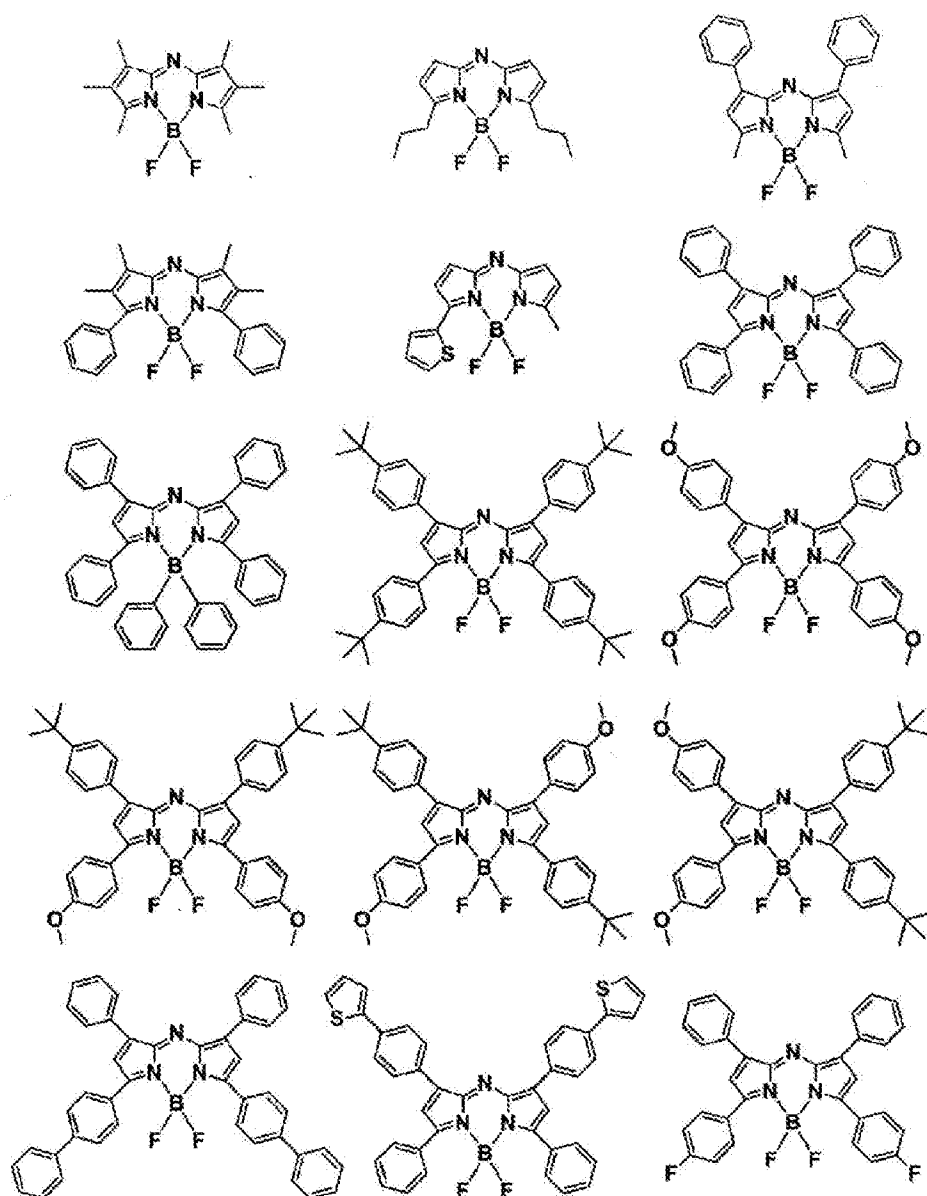
[0136]

[化27]



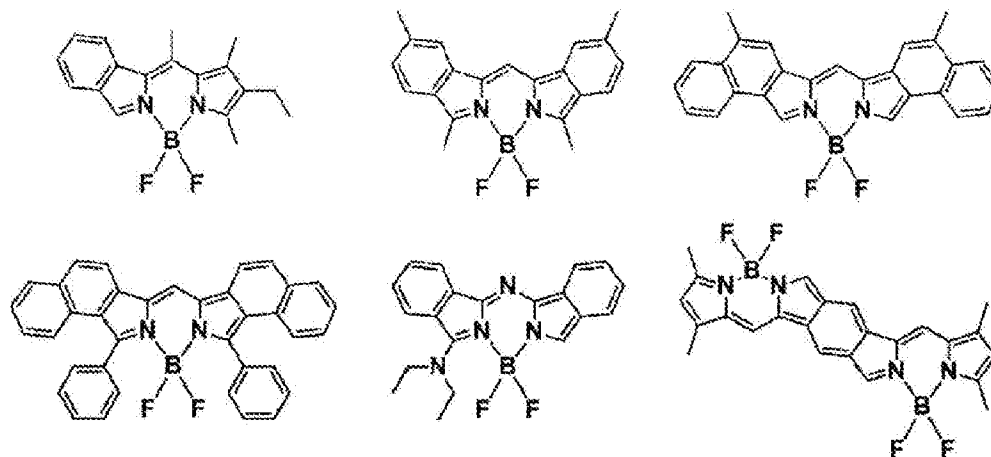
[0137]

[化28]



[0138]

[化29]

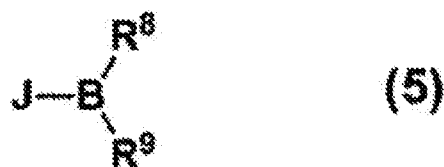
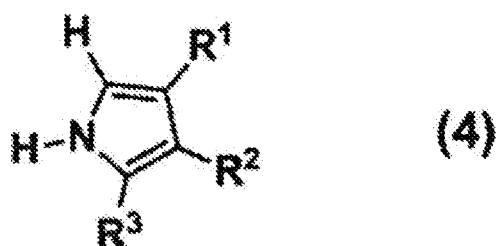
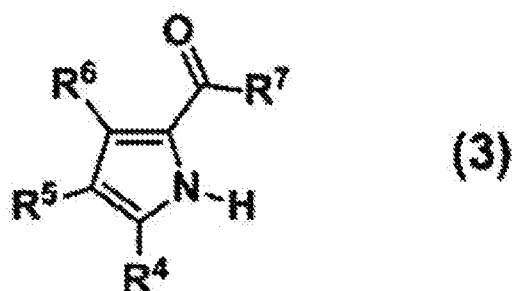


[0139] 一般式(1)で表される化合物は、例えば、特表平8-509471号公報及び特開2000-208262号公報に記載の方法で合成することができる。すなわち、ピロメテン化合物と金属塩とを塩基共存下で反応させることにより、目的とするピロメテン系金属錯体が得られる。

また、ピロメテン-フッ化ホウ素錯体の合成については、J. Org. Chem., vol. 64, No. 21, pp. 7813-7819 (1999)、Angew. Chem., Int. Ed. Engl., vol. 36, pp. 1333-1335 (1997)等に記載されている方法を参考にして、一般式(1)で表される化合物を合成することができる。例えば、下記一般式(3)で表される化合物と一般式(4)で表される化合物とをオキシ塩化リン存在下、1,2-ジクロロエタン中で加熱した後、下記一般式(5)で表される化合物をトリエチルアミン存在下、1,2-ジクロロエタン中で反応させ、これにより、一般式(1)で表される化合物を得る方法が挙げられる。しかし、本開示は、これに限定されるものではない。ここで、 $R^1 \sim R^9$ は、上記説明と同様である。Jは、ハロゲンを表す。

[0140]

[化30]



[0141] さらに、アリール基又はヘテロアリール基の導入の際は、ハロゲン化合物とボロン酸又はボロン酸エステル化合物とのカップリング反応により、炭素－炭素結合を生成する方法が挙げられるが、これに限定されるものではない。

同様に、アミノ基又はカルバゾリル基の導入の際にも、例えば、パラジウム等の金属触媒下におけるハロゲン化合物とアミン又はカルバゾール化合物とのカップリング反応により、炭素－窒素結合を生成する方法が挙げられるが、これに限定されるものではない。

[0142] 第1の色変換層は、一般式(1)で表される化合物以外に、必要に応じてその他の化合物を適宜含有することができる。例えば、第1の色変換層は、

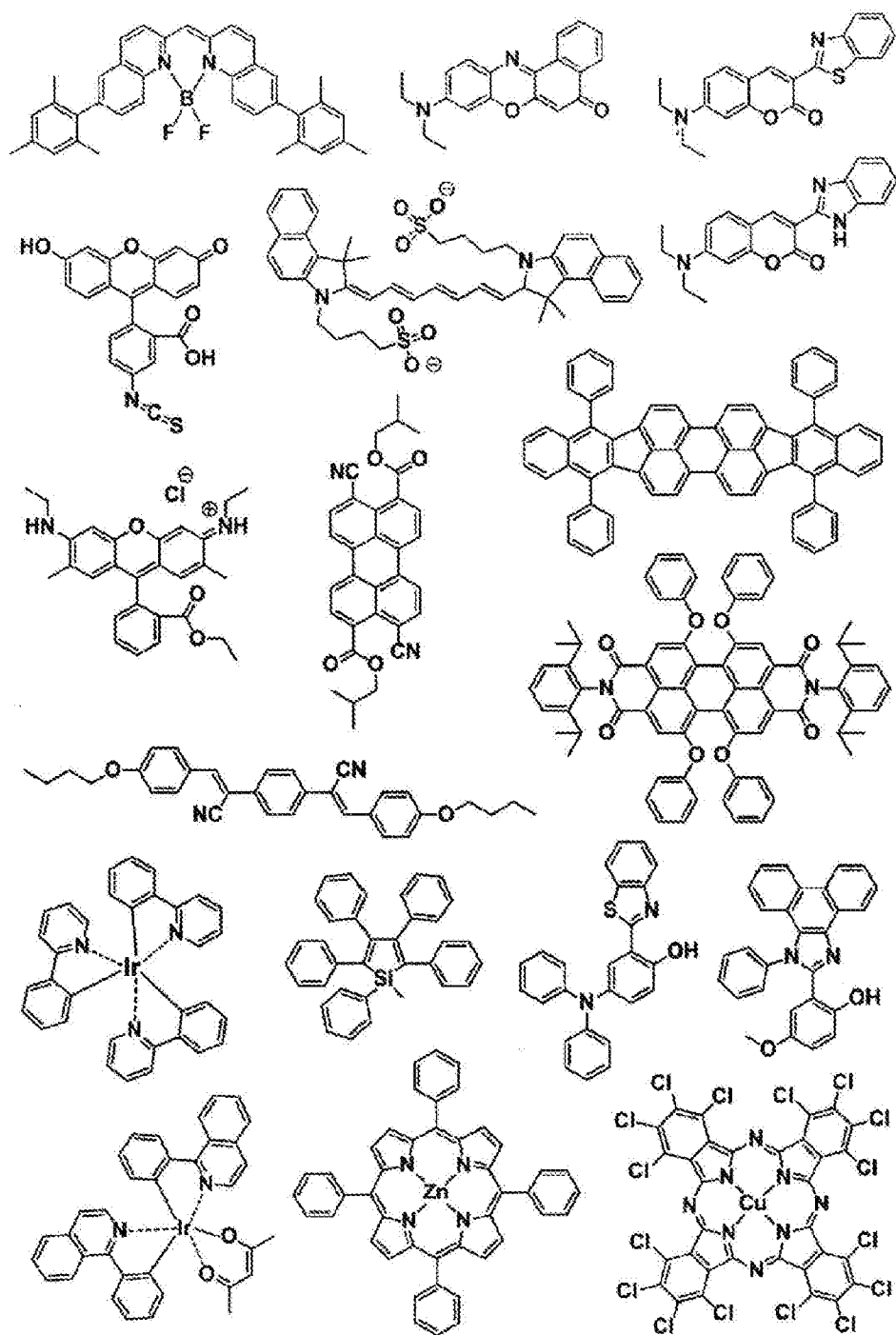
励起光から一般式（１）で表される化合物へのエネルギー移動効率を更に高めるために、ルブレン等のアシストドーパントを含有してもよい。

また、一般式（１）で表される化合物の発光色以外の発光色を加味したい場合は、所望の有機発光材料（例えば、クマリン系色素及びローダミン系色素等）を添加することができる。その他、これらの有機発光材料以外でも、無機蛍光体、蛍光顔料、蛍光染料及び量子ドット等の公知の発光材料を組み合わせることも可能である。

[0143] 以下に、一般式（１）で表される化合物以外の有機発光材料の一例を示すが、本開示は、特にこれらに限定されるものではない。

[0144]

[化31]



[0145] 第1の色変換層は、特定有機発光材料Aを2種以上含んでもよい。

[0146] 波長変換効果の観点から、第1の色変換層に含まれる固形分の総量100

質量部に対する特定有機発光材料Aの含有量は、0.005質量部～1質量部であることが好ましく、0.007質量部～0.7質量部であることがより好ましく、0.01質量部～0.5質量部であることがさらに好ましい。

[0147] 第1の色変換層は、バインダー樹脂を1種又は2種以上含んでいてもよい。

バインダー樹脂は、特に限定されるものではなく、例えば、エポキシ樹脂、（シリコーンゴム、シリコーンゲル等のオルガノポリシロキサン硬化物（架橋物）を含む）シリコーン樹脂、ポリエステル樹脂、（メタ）アクリル樹脂、ビニル樹脂、ポリアミド樹脂、ポリイミド樹脂、ポリカーボネート樹脂、セルロース樹脂、ポリオレフィン樹脂、ウレア樹脂、メラミン樹脂、フェノール樹脂、ポリビニルアルコール樹脂、ポリビニルブチラル樹脂、フッ素樹脂、熱硬化性樹脂及び光硬化性樹脂等が挙げられる。

上記した中でも、透明性及び耐熱性の観点から、エポキシ樹脂、シリコーン樹脂、ポリエステル樹脂、（メタ）アクリル樹脂又はこれらの混合物が好ましい。

第1の色変換層に含まれるバインダー樹脂と、第2の色変換層に含まれるバインダー樹脂とは異なることが好ましい。これにより、第1の色変換層に含まれる有機発光材料と、第2の色変換層に含まれる有機発光材料とをそれぞれ異なるバインダー樹脂中に分散させ、これら有機発光材料の各発光ピーク波長をそれぞれ個別に最適ピーク波長に調整することができる。なお、2つのバインダー樹脂が異なるとは、樹脂の組成が異なることをいう

[0148] 第1の色変換層がバインダー樹脂を含む場合、透明性、耐熱性及び有機発光材料の分散性の観点から、第1の色変換層に含まれる固形分の総量100質量部に対する上記バインダー樹脂の含有量は、90質量部以上であることが好ましく、93質量部以上であることがより好ましく、95質量部以上であることがさらに好ましい。

また、第1の色変換層に含まれる固形分の総量100質量部に対する上記バインダー樹脂の含有量は、99質量部以下であることが好ましい。

[0149] 第1の色変換層は、界面活性剤を含んでもよい。

界面活性剤としては、例えば、特許第4502784号公報の段落[0017]、及び、特開2009-237362号公報の段落[0060]～[0071]に記載の界面活性剤が挙げられる。

[0150] 界面活性剤としては、フッ素系界面活性剤、ノニオン系界面活性剤又はシリコン系界面活性剤が好ましい。

[0151] フッ素系界面活性剤の市販品としては、例えば、メガファック（登録商標）F-171、F-172、F-173、F-176、F-177、F-141、F-142、F-143、F-144、F-437、F-475、F-477、F-479、F-482、F-482、F-511、F-552、F-554、F-555-A、F-556、F-557、F-558、F-559、F-560、F-561、F-565、F-563、F-568、F-575、F-780、EXP、MFS-330、MFS-578、MFS-579、MFS-586、MFS-587、R-41、R-41-LM、R-01、R-40、R-40-LM、RS-43、TF-1956、RS-90、R-94、RS-72-K及びDS-21（以上、DIC株式会社製）、フロラード FC430、FC431及びFC171（以上、住友スリーエム株式会社製）、サーフロン（登録商標）S-382、SC-101、SC-103、SC-104、SC-105、SC-1068、SC-381、SC-383、S-393及びKH-40（以上、AGC株式会社製）、PolyFox PF636、PF656、PF6320、PF6520及びPF7002（以上、OMNOVA社製）、並びにフタージェント（登録商標）710FL、710FM、610FM、601AD、601ADH2、602A、215M、245F、251、212M、250、209F、222F、208G、710LA、710FS、730LM、650AC、681及び683（以上、株式会社NEOS製）等が挙げられる。

[0152] また、フッ素系界面活性剤としては、フッ素原子を含有する官能基を持つ分子構造を有

し、熱を加えるとフッ素原子を含有する官能基の部分が切断されてフッ素原子が揮発する

(メタ) アクリル系化合物も好適に使用できる。

このようなフッ素系界面活性剤としては、D I C株式会社製のメガファック(登録商標) DSシリーズ(化学工業日報(2016年2月22日)、日経産業新聞(2016年2月23日))が挙げられる(例えば、メガファック(登録商標) DS-21)。

また、フッ素系界面活性剤としては、フッ素化アルキル基又はフッ素化アルキレンエーテル基を有するフッ素原子含有ビニルエーテル化合物と、親水性のビニルエーテル化合物との重合体を用いることも好ましい。

また、フッ素系界面活性剤としては、ブロックポリマーも使用できる。

また、フッ素系界面活性剤としては、フッ素原子を有する(メタ)アクリレート化合物に由来する構成単位と、アルキレンオキシ基(好ましくは、エチレンオキシ基又はプロピレンオキシ基)を2以上(好ましくは5以上)有する(メタ)アクリレート化合物に由来する構成単位と、を含む含フッ素高分子化合物も好ましく使用できる。

また、フッ素系界面活性剤としては、エチレン性不飽和結合含有基を側鎖に有する含フ

ッ素重合体も使用できる。具体的には、メガファック(登録商標) RS-101、RS-102、RS-718K及びRS-72-K(以上、D I C株式会社製)等が挙げられる。

[0153] フッ素系界面活性剤としては、環境適性向上の観点から、パーフルオロオクタン酸(PFOA)及びパーフルオロオクタンスルホン酸(PFOS)等の炭素数が7以上の直鎖状パーフルオロアルキル基を有する化合物の代替材料に由来する界面活性剤であることが好ましい。

[0154] ノニオン系界面活性剤としては、グリセロール、トリメチロールプロパン、トリメチロールエタン、これらのエトキシレート及びこれらのプロポキシレート(例えば、グリセロールプロポキシレート、グリセロールエトキシレ

ート等)、ポリオキシエチレンラウリルエーテル、ポリオキシエチレンステア
 アリルエーテル、ポリオキシエチレンオレイルエーテル、ポリオキシエチレ
 ンオクチルフェニルエーテル、ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテル
 、ポリエチレングリコールジラウレート、ポリエチレングリコールジステア
 レート、並びにソルビタン脂肪酸エステル等が挙げられる。

市販品としては、例えば、プルロニック（登録商標）L 1 0、L 3 1、L
 6 1、L 6 2、1 0 R 5、1 7 R 2 及び 2 5 R 2（以上、B A S F 株式会社
 製）、テトロニック（登録商標）3 0 4、7 0 1、7 0 4、9 0 1、9 0 4
 及び 1 5 0 R 1（以上、B A S F 株式会社製）、ソルスパス 2 0 0 0 0
 （以上、日本ルーブリゾール株式会社製）、NCW-1 0 1、NCW-1 0
 0 1 及び NCW-1 0 0 2（以上、富士フイルム和光純薬株式会社製）、パ
 イオニン D-6 1 1 2、D-6 1 1 2-W 及び D-6 3 1 5（以上、竹本
 油脂株式会社製）、オルフィン（登録商標）E 1 0 1 0、並びにサーフィノ
 ール（登録商標）1 0 4、4 0 0 及び 4 4 0（以上、日信化学工業（株）製
 ）等が挙げられる。

[0155] シリコーン系界面活性剤としては、シロキサン結合を有する直鎖状ポリマ
 ー及び側

鎖又は末端に有機基が導入された変性シロキサンポリマーが挙げられる。

[0156] シリコーン系界面活性剤の具体例としては、D O W S I L（登録商標）8
 0 3 2 A D D I T I V E、トーレシリコーン D C 3 P A、トーレシリコー
 ン S H 7 P A、トーレシリコーン D C 1 1 P A、トーレシリコーン S H 2 1
 P A、トーレシリコーン S H 2 8 P A、トーレシリコーン S H 2 9 P A、ト
 ーレシリコーン S H 3 0 P A、トーレシリコーン S H 8 4 0 0（以上、東レ
 ・ダウコーニング株式会社製）、X-2 2-4 9 5 2、X-2 2-4 2 7 2
 、X-2 2-6 2 6 6、K F-3 5 1 A、K 3 5 4 L、K F-3 5 5 A、K
 F-9 4 5、K F-6 4 0、K F-6 4 2、K F-6 4 3、X-2 2-6 1
 9 1、X-2 2-4 5 1 5、K F-6 0 0 4、K P-3 4 1、K F-6 0 0
 1、K F-6 0 0 2（以上、信越シリコーン株式会社製）、F-4 4 4 0、

T S F - 4 3 0 0、T S F - 4 4 4 5、T S F - 4 4 6 0、T S F - 4 4 5 2（以上、モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ社製）、B Y K 3 0 7、B Y K 3 2 3 及び B Y K 3 3 0（以上、ビッケミー社製）等が挙げられる。

[0157] 界面活性剤は、1 種単独で使用してもよいし、2 種以上を併用することもできる。

第 1 の色変換層が界面活性剤を含む場合、界面活性剤の含有量は、第 1 の色変換層に含まれる固形分 1 0 0 質量部に対して、0. 0 1 質量部～3 質量部が好ましく、0. 0 2 質量部～1 質量部がより好ましく、0. 0 5 質量部～0. 8 0 質量部がさらに好ましい。

[0158] 第 1 の色変換層は、上記した有機発光材料及びバインダー樹脂以外の添加材を含んでもよい。添加材としては、例えば、粘度調整剤、酸化防止剤、熱安定化剤、可塑剤、レベリング剤、帯電防止剤、架橋剤、硬化剤、シランカップリング剤、無機粒子及び有機粒子等が挙げられる。

[0159] 第 1 の色変換層の厚みは、波長変換効果の観点から、1 μm 以上であることが好ましく、5 μm 以上であることがより好ましく、1 0 μm 以上であることがさらに好ましい。

また、バックライトユニット等の小型化の観点からは、第 1 の色変換層の厚みは、5 0 μm 以下であることが好ましい。

[0160] （第 2 の色変換層）

第 1 の態様において、第 2 の色変換層は、波長 4 0 0 n m 以上 5 0 0 n m 未満の励起光及び第 1 の色変換層に含まれる有機発光材料の発光の少なくとも一方により、ピーク波長が 5 8 0 n m 以上 7 5 0 n m 以下の領域に観測される発光を呈する有機発光材料（以下、特定有機発光材料 B ともいう。）を含む。

特定有機発光材料 B としては、4 - ジシアノメチレン - 2 - メチル - 6 - (p - ジメチルアミノスチリル) - 4 H - ピラン等のシアニン化合物；ローダミン B、ローダミン 6 G、ローダミン 1 0 1 及びスルホローダミン 1 0 1

等のローダミン化合物；1-エチル-2-(4-(p-ジメチルアミノフェニル)-1,3-ブタジエニル)-ピリジニウム-パークロレート等のピリジン化合物；N,N'-ビス(2,6-ジイソプロピルフェニル)-1,6,7,12-テトラフェノキシペリレン-3,4:9,10-ビスジカルボイミド等のペリレン化合物；ポルフィリン化合物；ピロメテン化合物；オキサジン化合物；ピラジン化合物；ナフタセン及びジベンゾジインデノペリレン等の縮合アリール環を有する化合物；これらの誘導体；並びに有機金属錯体化合物等が好適なものとして挙げられる。しかし、特定有機発光材料Bは、特にこれらに限定されるものではない。

上記した化合物の中でも、ピロメテン化合物は、優れた発光量子収率を与え、耐久性が良好であるため好ましい。ピロメテン化合物としては、例えば、上記一般式(1)で表される化合物が、色純度の優れる発光を示すことから、好ましい。

第1の色変換層に含まれる有機発光材料及び第2の色変換層に含まれる有機発光材料の少なくとも一方は、一般式(1)で表される化合物であることが好ましく、共に、一般式(1)で表される化合物であることがより好ましい。

また、第2の色変換層は、第1の色変換層と同様に、一般式(1)で表される化合物以外の有機発光材料を含んでもよい。

[0161] また、特定有機発光材料Bとして好適に用いることができる一般式(1)で表される化合物の好ましい例の1つとして、 R^1 、 R^3 、 R^4 及び R^6 が全て、それぞれ独立に、上記したAr-1～Ar-6から選ばれ、さらに、XがC-R⁷であり、R⁷が、一般式(2)で表される基を表す場合が挙げられる。この場合、R⁷は、rがtert-ブチル基又はメトキシ基として含まれる一般式(2)で表される基を表すことがより好ましく、rがメトキシ基として含まれる一般式(2)で表される基を表すことが特に好ましい。

[0162] 第2の色変換層は、特定有機発光材料Bを2種以上含んでもよい。また、第1の色変換層と同様に、有機発光材料以外の発光材料を含んでもよい。

。

[0163] 波長変換効果の観点から、第2の色変換層に含まれる固形分の総量100質量部に対する特定有機発光材料Bの含有量は、0.005質量部～1質量部であることが好ましく、0.007質量部～0.7質量部であることがより好ましく、0.01質量部～0.5質量部であることがさらに好ましい。

[0164] 第2の色変換層は、バインダー樹脂を1種又は2種以上含んでもよい。バインダー樹脂の種類及び好ましい含有量については、第1の色変換層の場合と同様であるため、ここでは記載を省略する。

[0165] 第2の色変換層は、界面活性剤を1種又は2種以上含んでもよい。界面活性剤の種類及び好ましい含有量については、第1の色変換層の場合と同様であるため、ここでは記載を省略する。

[0166] 第2の色変換層形成用塗布液は、上記添加材を含んでもよい。

[0167] 第2の色変換層の厚みは、波長変換効果の観点から、1 μ m以上であることが好ましく、5 μ m以上であることがより好ましく、10 μ m以上であることがさらに好ましい。

また、バックライトユニット等の小型化の観点からは、第2の色変換層の厚みは、50 μ m以下であることが好ましい。

[0168] (層間混合層)

第1の態様において、色変換フィルムは、第1の色変換層及び第2の色変換層の間に、第1の色変換層及び第2の色変換層が混ざり合う層間混合層を備える。

上記層間混合層は、後述するように、第1の色変換層上に、第2の色変換層を形成する際、第2の色変換層を形成するための塗布液等により、第1の色変換層が侵食され、第1の色変換層及び第2の色変換層が混ざり合うことにより、形成される。

[0169] 層間混合層の存在及びその厚さは、透過電子顕微鏡法(TEM)又は走査型電子顕微鏡法(SEM)により、色変換フィルムの断面を観察することにより確認することができる。

また、第1の色変換層及び第2の色変換層のそれぞれに含まれる有機発光材料及びバインダー樹脂が、層間混合層に含まれていることを確認することによっても、層間混合層の存在を確認することができる。具体的には、二次イオン質量分析法（TOF-SIMS）により、色変換フィルムの断面におけるバインダー樹脂に固有のフラグメントを検出することにより、層間混合層の存在を確認することができる。

また、層間混合層の厚みは、検出されるバインダー樹脂のフラグメントマッピングすることにより測定できる。具体的な測定方法については、実施例において記載する。

[0170] 密着性及び色再現性の観点から、層間混合層の厚みは、 $0.01\mu\text{m}\sim 5.0\mu\text{m}$ を挙げることができ、 $0.1\mu\text{m}\sim 2.0\mu\text{m}$ であることが好ましく、 $0.2\mu\text{m}\sim 1.0\mu\text{m}$ であることがより好ましい。

[0171] （保護層）

第1の態様において、色変換フィルムは、層間混合層とは反対側の第2の色変換層上に保護層を備えていてもよい。

[0172] 保護層は、上記した支持体と同様の材料を使用することができる。具体的な材料については上記したため、ここでは記載を省略する。

[0173] 保護層の厚みは、色変換フィルムの強度の観点から、 $20\mu\text{m}$ 以上であることが好ましく、 $30\mu\text{m}$ 以上であることがより好ましい。

また、バックライトユニット等の小型化の観点からは、保護層の厚みは、 $1000\mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。

[0174] （その他の層の形成）

第1の態様において、色変換フィルムは、支持体、第2の色変換層又は保護層上にその他の層を形成してもよい。

その他の層としては、例えば、酸素バリア層、水蒸気バリア層、反射防止層、帯電防止層及び防汚層等が挙げられる。

[0175] （第1の態様に係る色変換フィルムの製造方法）

第1の態様において、色変換フィルムの製造方法は、支持体上に、波長4

00 nm以上500 nm未満の励起光により、ピーク波長が500 nm以上580 nm未満の領域に観測される発光を呈する有機発光材料を含む第1の色変換層を形成することと、

第1の色変換層上に、波長400 nm以上500 nm未満の励起光及び第1の色変換層に含まれる有機発光材料の発光の少なくとも一方により、ピーク波長が580 nm以上750 nm以下の領域に観測される発光を呈する有機発光材料を含む第2の色変換層を形成し、かつ第1の色変換層及び第2の色変換層の間に、第1の色変換層及び第2の色変換層が混ざり合う層間混合層を形成することと、を含む。

[0176] (第1の色変換層の形成)

第1の態様において、色変換フィルムの製造方法は、支持体上に、第1の色変換層を形成することを含む。

第1の色変換層の形成方法としては、例えば、波長400 nm以上500 nm未満の励起光により、ピーク波長が500 nm以上580 nm未満の領域に観測される発光を呈する有機発光材料（特定有機発光材料A）を含む第1の色変換層形成用塗布液を、支持体上に塗布し、乾燥することが挙げられる。

また、特定有機発光材料Aを含む組成物を支持体上に溶融押出することにより、第1の色変換層を形成してもよい。

[0177] 第1の色変換層を、第1の色変換層形成用塗布液の支持体上への塗布及び乾燥により形成する場合、塗布方法は、特に限定されるものではなく、従来公知の方法により行うことができる。塗布方法としては、例えば、カーテンコーティング法、ディップコーティング法、スピンのコーティング法、印刷コーティング法、スプレーコーティング法、スロットコーティング法、ロールコーティング法、スライドコーティング法、ブレードコーティング法、グラビアコーティング法及びワイヤーバー法等が挙げられる。

[0178] 乾燥方法は、特に限定されるものではなく、温風を利用する等、従来公知の方法により行うことができる。

乾燥温度は、第1の色変換層形成用塗布液の組成に応じ適宜変更することが好ましいが、50℃～200℃であることが好ましく、70℃～150℃であることが好ましい。

[0179] (第1の色変換層形成用塗布液)

第1の態様において、第1の色変換層形成用塗布液は、特定有機発光材料Aを含む。特定有機発光材料Aは、上記した通りであり、ここでは記載を省略する。

また、第1の色変換層形成用塗布液は、上記バインダー樹脂及び添加材等を含んでもよい。

[0180] 第1の色変換層形成用塗布液は、有機溶剤を含んでいてもよい。

乾燥適性の観点から、第1の色変換層形成用塗布液は、沸点100℃以上の高沸点有機溶剤及び沸点99℃以下の低沸点有機溶剤を含むことが好ましい。

高沸点有機溶剤の沸点は、250℃以下であることが好ましく、110℃～180℃であることがより好ましく、120℃～170℃であることがさらに好ましい。

低沸点有機溶剤の沸点は、0℃以上であることが好ましく、10℃～95℃であることがより好ましく、20℃～90℃であることがさらに好ましい。

[0181] 高沸点有機溶剤としては、1-メトキシ-2-プロピルアセテート（140℃）、1,2-ペンタンジオール（206℃）、1,2-プロパンジオール（188℃）、1,3-プロパンジオール（214℃）、1,2-ブタンジオール（193℃）、3-メトキシ-3-メチル-1-ブタノール（174℃）、1,3-ブタンジオール（207℃）、1,4-ブタンジオール（228℃）、1,5-ペンタンジオール（242℃）、2-エチル-1,3-ヘキサンジオール（244℃）、2-ブテン-1,4-ジオール（235℃）、1,2-ヘキサンジオール（223℃）及び2-メチル-2,4-ペンタンジオール（198℃）等が挙げられる。

低沸点有機溶剤としては、メチルエチルケトン（８０℃）、アセトアルデヒド（２１℃）、アセトン（５６℃）、アセトニトリル（８２℃）、ベンゼン（８０℃）及びクロロホルム（６１℃）等が挙げられる。

なお、括弧内の温度は沸点である。

[0182] 第１の色変換層形成用塗布液に含まれる有機溶剤の量は、特に制限されるものではないが、有機発光材料等の分散性、塗布液の支持体上への塗布容易性及び乾燥容易性の観点から、第１の色変換層形成用塗布液に含まれる固形分の総量１００質量部に対する上記有機溶剤の含有量は、５０質量部～５００質量部であることが好ましい。

[0183] （第２の色変換層及び層間混合層の形成）

第１の態様において、色変換フィルムの製造方法は、第１の色変換層上に、第２の色変換層を形成し、かつ第１の色変換層及び第２の色変換層の間に、第１の色変換層及び第２の色変換層が混ざり合う層間混合層を形成することを含む。

[0184] 第２の色変換層の形成方法としては、例えば、波長４００ｎｍ以上５００ｎｍ未満の励起光及び第１の色変換層に含まれる有機発光材料の発光の少なくとも一方により、ピーク波長が５８０ｎｍ以上７５０ｎｍ以下の領域に観測される発光を呈する有機発光材料（以下、特定有機発光材料Ｂともいう。）を含む第２の色変換層形成用塗布液を、第１の色変換層上に塗布し、乾燥することが挙げられる。なお、塗布方法及び乾燥温度等は、第１の色変換層の形成と同様とすることができ、ここでは記載を省略する。

また、特定有機発光材料Ｂを含む組成物を第１の色変換層上に溶融押出することにより、第１の色変換層を形成してもよい。

第２の色変換層の形成に使用される上記塗布液又は組成物により、第１の色変換層が侵食され、第１の色変換層及び第２の色変換層が混ざり合うことにより、第１の色変換層及び第２の色変換層の間に層間混合層が形成される。

[0185] （第２の色変換層形成用塗布液）

第1の態様において、第2の色変換層形成用塗布液は、特定有機発光材料Bを含む。特定有機発光材料Bは、上記した通りであり、ここでは記載を省略する。

また、第2の色変換層形成用塗布液は、上記バインダー樹脂及び添加材等を含んでもよい。

[0186] 第2の色変換層形成用塗布液は、有機溶剤を含んでいてもよい。

第2の色変換層形成用塗布液は、沸点100℃以上の高沸点有機溶剤及び沸点99℃以下の低沸点有機溶剤を含むことが好ましい。

高沸点有機溶剤の沸点は、250℃以下であることが好ましく、110℃～180℃であることがより好ましく、120℃～170℃であることがさらに好ましい。

低沸点有機溶剤の沸点は、0℃以上であることが好ましく、10℃～95℃であることがより好ましく、20℃～90℃であることがさらに好ましい。

有機溶剤の具体例は、上記した通りである。

第2の色変換層形成用塗布液に含まれる有機溶剤の総量100質量部に対する高沸点有機溶剤の含有量は、10質量部～90質量部であることが好ましく、20質量部～80質量部であることがより好ましい。

高沸点有機溶剤の含有量を上記数値範囲内とすることにより、第1の色変換層と第2の色変換層との間に、適切な厚みの層間混合層が形成され、色再現性を維持しつつ、これら層間の密着性がより向上される。

[0187] 第2の色変換層形成用塗布液に含まれる有機溶剤の量は、特に制限されるものではないが、有機発光材料等の分散性、塗布液の支持体上への塗布容易性及び乾燥容易性の観点から、第2の色変換層形成用塗布液に含まれる固形分の総量100質量部に対する上記有機溶剤の含有量は、50質量部～500質量部であることが好ましい。

[0188] (保護層の形成)

第1の態様において、色変換フィルムの製造方法は、第2の色変換層上に

保護層を形成することを含んでもよい。

[0189] 保護層は、上記樹脂フィルム等を第2の色変換層上に加温圧着することにより形成することができる。

別の態様において、保護層は、樹脂材料を含む塗布液を、第2の色変換層上に塗布、乾燥することにより形成することができる。

[0190] (その他の層の形成)

第1の態様において、色変換フィルムの製造方法は、第2の色変換層等の層上にその他の層を形成してもよい。その他の層の具体例については、上記したため、ここでは記載を省略する。

[0191] (第2の態様に係る色変換フィルム)

第2の態様において、色変換フィルムは、支持体と、波長400nm以上500nm未満の励起光及び第2の色変換層に含まれる有機発光材料の発光の少なくとも一方により、ピーク波長が580nm以上750nm以下の領域に観測される発光を呈する有機発光材料を含む第1の色変換層と、波長400nm以上500nm未満の励起光により、ピーク波長が500nm以上580nm未満の領域に観測される発光を呈する有機発光材料を含む第2の色変換層と、第1の色変換層及び第2の色変換層の間に、第1の色変換層及び第2の色変換層が混ざり合う層間混合層と、を備える（図示せず）。

[0192] (支持体)

支持体は、第1の態様に係る色変換フィルムが備える支持体と同様のものを使用することができるため、ここで記載を省略する。

[0193] (第1の色変換層)

第2の態様において、第1の色変換層は、波長400nm以上500nm未満の励起光及び第2の色変換層に含まれる有機発光材料の発光の少なくとも一方により、ピーク波長が580nm以上750nm以下の領域に観測される発光を呈する有機発光材料（特定有機発光材料B）を含む。特定有機発光材料Bは上記したため、ここでは記載を省略する。

[0194] 波長変換効果の観点から、第1の色変換層に含まれる固形分の総量100

質量部に対する特定有機発光材料Bの含有量は、0.005質量部～1質量部であることが好ましく、0.007質量部～0.7質量部であることがより好ましく、0.01質量部～0.5質量部であることがさらに好ましい。

[0195] 第1の色変換層は、バインダー樹脂を1種又は2種以上含んでもよい。バインダー樹脂の種類及び好ましい含有量については、第1の色変換層の場合と同様であるため、ここでは記載を省略する。

[0196] 第1の色変換層形成用塗布液は、上記添加材を含んでもよい。

[0197] 第1の色変換層の厚みは、波長変換効果の観点から、1 μ m以上であることが好ましく、5 μ m以上であることがより好ましく、10 μ m以上であることがさらに好ましい。

また、バックライトユニット等の小型化の観点からは、第1の色変換層の厚みは、50 μ m以下であることが好ましい。

[0198] (第2の色変換層)

第2の態様において、第2の色変換層は、波長400nm以上500nm未満の励起光により、ピーク波長が500nm以上580nm未満の領域に観測される発光を呈する有機発光材料（以下、特定有機発光材料Aともいう。）を含む。特定有機発光材料Aは上記したため、ここでは記載を省略する。

[0199] 波長変換効果の観点から、第2の色変換層に含まれる固形分の総量100質量部に対する特定有機発光材料Aの含有量は、0.005質量部～1質量部であることが好ましく、0.007質量部～0.7質量部であることがより好ましく、0.01質量部～0.5質量部であることがさらに好ましい。

[0200] 第2の色変換層は、バインダー樹脂を1種又は2種以上含んでもよい。バインダー樹脂の種類及び好ましい含有量については、第2の色変換層の場合と同様であるため、ここでは記載を省略する。

[0201] 第2の色変換層形成用塗布液は、上記添加材を含んでもよい。

[0202] 第2の色変換層の厚みは、波長変換効果の観点から、1 μ m以上であることが好ましく、5 μ m以上であることがより好ましく、10 μ m以上である

ことがさらに好ましい。

また、バックライトユニット等の小型化の観点からは、第2の色変換層の厚みは、 $50\mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。

[0203] (層間混合層)

第2の態様において、色変換フィルムは、第1の色変換層及び第2の色変換層の間に、第1の色変換層及び第2の色変換層が混ざり合う層間混合層を備える。層間混合層については、第1の態様と同様であるため、ここでは記載を省略する。

[0204] (保護層)

第2の態様において、色変換フィルムは、第2の色変換層上に保護層を備えていてもよい。保護層については、第1の態様と同様であるため、ここでは記載を省略する。

[0205] (その他の層の形成)

第2の態様において、色変換フィルムは、支持体、第2の色変換層又は保護層上にその他の層を形成してもよい。その他の層については、第1の態様と同様であるため、ここでは記載を省略する。

[0206] (第2の態様に係る色変換フィルムの製造方法)

第2の態様において、色変換フィルムの製造方法は、支持体上に、波長 400nm 以上 500nm 未満の励起光及び第2の色変換層に含まれる有機発光材料の発光の少なくとも一方により、ピーク波長が 580nm 以上 750nm 以下の領域に観測される発光を呈する有機発光材料を含む第1の色変換層を形成することと、

第1の色変換層上に、波長 400nm 以上 500nm 未満の励起光により、ピーク波長が 500nm 以上 580nm 未満の領域に観測される発光を呈する有機発光材料を含む第2の色変換層を形成し、かつ第1の色変換層及び第2の色変換層の間に、第1の色変換層及び第2の色変換層が混ざり合う層間混合層を形成することと、を含む。

[0207] (第1の色変換層の形成)

第2の態様において、色変換フィルムの製造方法は、支持体上に、第1の色変換層を形成することを含む。第1の色変換層の形成方法は、第1の態様と同様であるため、ここでは記載を省略する。

[0208] (第2の色変換層及び層間混合層の形成)

第2の態様において、色変換フィルムの製造方法は、第1の色変換層上に、第2の色変換層を形成し、かつ第1の色変換層及び第2の色変換層の間に、第1の色変換層及び第2の色変換層が混ざり合う層間混合層を形成することを含む。第2の色変換層及び層間混合層の形成方法は、第1の態様と同様であるため、ここでは記載を省略する。

[0209] (保護層の形成)

第2の態様において、色変換フィルムの製造方法は、第2の色変換層上に保護層を形成することを含んでもよい。保護層の形成方法は、第1の態様と同様であるため、ここでは記載を省略する。

[0210] (その他の層の形成)

第2の態様において、色変換フィルムの製造方法は、第1の色変換層及び第2の色変換層の少なくとも一方の層上にその他の層を形成してもよい。その他の層の形成方法は、第1の態様と同様であるため、ここでは記載を省略する。

[0211] (バックライトユニット)

本開示のバックライトユニットは、光源と、上記した第1の態様に係る色変換フィルム又は第2の態様に係る色変換フィルムを備える。

第1の態様に係る色変換フィルムである場合、色変換フィルムは、支持体が設けられた面を光源側に向けて配置されてもよく、支持体が設けられた面と反対の面を光源側に向けて配置されてもよい。

第2の態様に係る色変換フィルムである場合、色変換フィルムは、支持体が設けられた面と反対の面（第2の色変換層が設けられた面）を光源側に向けて配置されてもよく、支持体が設けられた面を光源側に向けて配置されてもよい。

[0212] 図2は、バックライトユニットの一実施形態を示す概略構成断面図であり、図2に基づいて、バックライトユニットについて以下説明する。

[0213] 図2に示されるように、バックライトユニット2は、波長400nm以上500nm未満の励起光（青色光 L_B ）を出射する光源1A及び光源1Aから出射された励起光を導光させて出射させる導光板1Bとを備える面状光源1Cと、面状光源1C上に備えられてなる色変換フィルム1Dと、色変換フィルム1Dを挟んで面状光源1Cと対向配置される再帰反射性部材2Bと、面状光源1Cを挟んで色変換フィルム1Dと対向配置される反射板2Aとを備える。

[0214] 色変換フィルム1Dが第1の態様に係る色変換フィルムである場合、面状光源1Cから出射された励起光により、第1の色変換層に含まれる特定有機発光材料Aが、ピーク波長が500nm以上580nm未満の領域に観測される光（緑色光 L_G ）を発光する。

また、第1の色変換層を通過した励起光及び特定有機発光材料Aの発光の少なくとも一方により、第2の色変換層に含まれる特定有機発光材料Bが、ピーク波長が580nm以上750nm以下の領域に観測される光（赤色光 L_R ）を発光する。

色変換フィルムを通過した励起光（青色光 L_B ）と、第2の色変換層を通過したピーク波長が500nm以上580nm未満の領域に観測される光（緑色光 L_G ）と、ピーク波長が580nm以上750nm以下の領域に観測される光（赤色光 L_R ）とにより、再帰反射性部材2Bの表面から白色光 L_W が出射される。

[0215] 色変換フィルム1Dが第2の態様に係る色変換フィルムである場合、面状光源1Cから出射された励起光により、第2の色変換層に含まれる特定有機発光材料Aが、ピーク波長が500nm以上580nm未満の領域に観測される光（緑色光 L_G ）を発光する。

また、第2の色変換層を通過した励起光及び特定有機発光材料Bの発光の少なくとも一方により、第1の色変換層に含まれる特定有機発光材料Bが、

ピーク波長が580nm以上750nm以下の領域に観測される光（赤色光 L_R ）を発光する。

色変換フィルムを通過した励起光（青色光 L_B ）と、第1の色変換層を通過したピーク波長が500nm以上580nm未満の領域に観測される光（緑色光 L_G ）と、ピーク波長が580nm以上750nm以下の領域に観測される光（赤色光 L_R ）とにより、再帰反射性部材2Bの表面から白色光 L_W が出射される。

[0216] 図2において、色変換フィルム1Dから出射された青色光 L_B 、緑色光 L_G 及び赤色光 L_R は、再帰反射性部材2Bに入射し、入射した各光は、再帰反射性部材2Bと反射板2Aとの間で反射を繰り返し、色変換フィルム1Dを複数回通過する。

その結果、色変換フィルム1Dでは充分な量の励起光（青色光 L_B ）が、赤色光 L_R を発光する特定有機発光材料B、緑色光 L_G 発光する特定有機発光材料Aによって吸収され、必要な量の蛍光（緑色光 L_G 及び赤色光 L_R ）が発せられ、青色光 L_B 、緑色光 L_G 及び赤色光 L_R の総和として再帰反射性部材2Bから白色光 L_W が出射される。

[0217] 輝度及び色再現性の向上の観点から、バックライトユニットが発光する青色光、緑色光及び赤色光の各発光強度の半値幅は、いずれも80nm以下であることが好ましく、50nm以下であることがより好ましく、40nm以下であることがさらに好ましく、30nm以下であることが一層好ましい。また、青色光の発光強度の半値幅が25nm以下であることが、特に好ましい。

[0218] 光源としては、発光ダイオード又はレーザー光源等を使用することができる。

[0219] 面状光源1Cは、図2に示すように、光源1Aと光源1Aから出射された一次光を導光させて出射させる導光板1Bとからなる光源（エッジライト方式光源）であってもよく、光源1Aが色変換フィルム1Dと平行な平面状に並べて配置され、導光板1Bに替えて拡散板を備えた光源（直下型方式光源

）であってもよい。バックライトユニットの構成としては、図2では、導光板及び反射板等を構成部材とするエッジライト方式光源について説明したが、直下型方式光源であってもよい。

導光板としては、公知のものを何ら制限なく使用することができる。なお、本実施形態では、光源として面状光源を用いた場合を例に説明したが、光源としては面状光源以外の光源も使用することができる。

[0220] また、反射板としては、特に制限は無く、公知のものを用いることができる。例えば、特許第3416302号、特許第3363565号、特許第4091978号及び特許第3448626号等の各公報に記載される反射板を使用することができる。なお、これらの公報の内容は本明細書中に参照により組み込まれる。

[0221] 再帰反射性部材は、公知の拡散板、拡散シート、プリズムシート（例えば、住友スリーエム株式会社製BEFシリーズ等）又は反射型偏光フィルム（例えば、住友スリーエム株式会社製DBEFシリーズ等）等から構成されていてもよい。

再帰反射性部材の構成については、特許第3416302号、特許第3363565号、特許第4091978号及び特許第3448626号等の各公報に記載されており、これらの公報の内容は本明細書中に参照により組み込まれる。

[0222] （液晶表示装置）

本開示の液晶表示装置は、上記バックライトユニットと、液晶セルユニットとを備える。

図3に、本開示の液晶表示装置の一実施形態を示す概略構成断面図を示す。図3に示されるように、液晶表示装置4は、図2に示されるバックライトユニット2と、バックライトユニット2の再帰反射性部材2B側に対向配置される液晶セルユニット3とを備える。

液晶セルユニット3は、液晶セル31を、偏光板32と偏光板33とで挟持した構成を有する。また、偏光板32及び偏光板33は、それぞれ、偏光

子 3 2 2 及び偏光子 3 3 2 の両主面が偏光板保護フィルム 3 2 1、3 2 3、3 3 1、3 3 3 により保護される構成を有する。

[0223] 液晶表示装置を構成する液晶セル及び偏光板は、特に限定はなく、公知の方法で作製されるもの又は市販品を使用できる。また、各層の間に、接着層等の公知の中間層を設けてもよい。

[0224] 液晶セルの駆動モードは、特に制限はなく、ツイステッドネマチック（TN）、スーパーツイステッドネマチック（STN）、バーティカルアライメント（VA）、インプレインスイッチング（IPS）又はオプティカリーコンペンセイテッドベンドセル（OCB）等の種々のモードを利用することができる。

VAモードの液晶表示装置の構成としては、特開 2008-262161 号公報の図 2 に示す構成が一例として挙げられる。但し、液晶表示装置の具体的構成には特に制限はなく、公知の構成を採用することができる。

[0225] 液晶表示装置は、光学補償を行う光学補償部材又は接着層等の機能層を備えていてもよい。

また、液晶表示装置は、カラーフィルター基板、薄層トランジスタ基板、レンズフィルム、拡散シート、ハードコート層、反射防止層、低反射層又はアンチグレア層等を備えていてもよい。

さらに、液晶表示装置は、前方散乱層、プライマー層、帯電防止層又は下塗り層等を備えていてもよい。

[0226] バックライトユニット側の偏光板は、液晶セル側の偏光板保護フィルムとして、位相差フィルムを備えていてもよい。このような位相差フィルムとしては、セルロースアシレートフィルム等の公知の位相差フィルムを用いることができる。

実施例

[0227] 以下、本開示を実施例により更に具体的に説明するが、本開示はその主旨を越えない限

り、以下の実施例に限定されるものではない。また、表中の数値は特に断り

のない限り「質量部」を意味する。

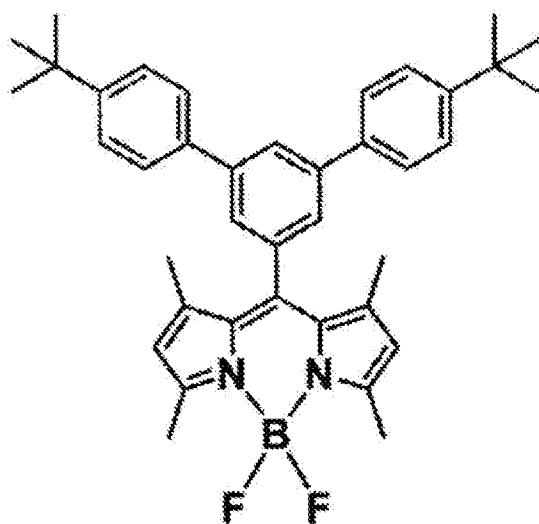
[0228] (色変換層形成用塗布液の調製)

表 2 3 に示す成分を混合し、色変換層形成用塗布液 A - 1 ~ A - 5、B - 1 ~ B - 5、a - 1 及び b - 1 を調製した。

なお、表 2 3 中の成分の詳細は以下の通りである。

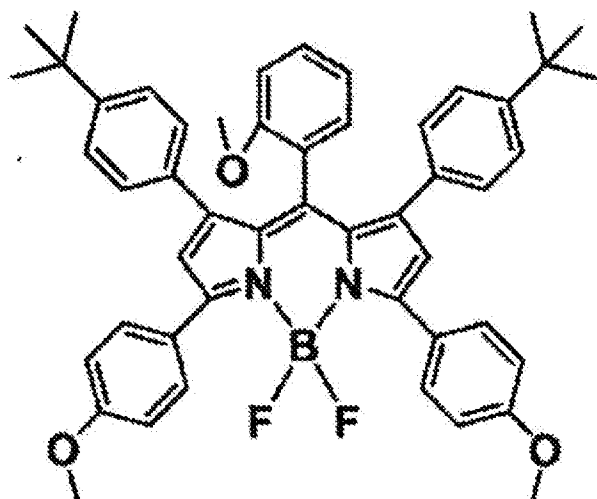
・有機発光材料 a : 下記化学式で表される化合物

[0229] [化32]



[0230] ・有機発光材料 b : 下記化学式で表される化合物

[0231] [化33]



- [0232] ・ ポリエステル樹脂：（SP値＝10.7（cal/cm³）^{0.5}）
- ・ （メタ）アクリル樹脂：スチレン／アクリル酸＝4／1（モル比）、重量平均分子量（M_w）＝20000
- ・ MEK：メチルエチルケトン、沸点80℃
- ・ MMPGAC：1－メトキシ－2－プロピルアセテート、沸点140℃

[0233]

[表23]

	有機発光材料		バインダー		有機溶剤					
	種類	含有量	種類	含有量	種類	含有量	種類	含有量	種類	含有量
A-1	a	0.25	ポリスチレン樹脂	100	MEK	50	MMPGAC	50	トルエン	-
A-2	a	0.25	ポリスチレン樹脂	100	MEK	20	MMPGAC	80	トルエン	-
A-3	a	0.25	ポリスチレン樹脂	100	MEK	80	MMPGAC	20	トルエン	-
A-4	a	0.25	ポリスチレン樹脂	100	MEK	10	MMPGAC	90	トルエン	-
A-5	a	0.25	ポリスチレン樹脂	100	MEK	90	MMPGAC	10	トルエン	-
B-1	b	0.03	(×9) アクリル樹脂	100	MEK	150	MMPGAC	150	トルエン	-
B-2	b	0.03	(×9) アクリル樹脂	100	MEK	60	MMPGAC	240	トルエン	-
B-3	b	0.03	(×9) アクリル樹脂	100	MEK	240	MMPGAC	60	トルエン	-
B-4	b	0.03	(×9) アクリル樹脂	100	MEK	30	MMPGAC	270	トルエン	-
B-5	b	0.03	(×9) アクリル樹脂	100	MEK	270	MMPGAC	30	トルエン	-
a-1	a	0.25	ポリスチレン樹脂	100	MEK	100	MMPGAC	-	トルエン	-
b-1	b	0.03	(×9) アクリル樹脂	100	MEK	-	MMPGAC	-	トルエン	300

[0234] (実施例 1)

支持体として、ポリエチレンテレフタレート (PET) フィルム (厚み $50\text{ }\mu\text{m}$ 、東レ株式会社製、ルミラー (登録商標) U48) を準備した。

PET フィルムの一方の面に、スリット状ノズルを用いて、色変換層形成用塗布液 A-1 を塗布し、 100°C において乾燥し、溶剤を揮発させることにより、支持体上に乾燥後の厚みが $15\text{ }\mu\text{m}$ の第 1 の色変換層を形成した。

[0235] 上記第 1 の色変換層の上に、色変換層形成用塗布液 B-1 を塗布し、 100°C の乾燥ゾーンで溶剤を揮発させることにより、第 1 の色変換層上に、乾燥後の厚みが $13\text{ }\mu\text{m}$ の第 2 の色変換層を形成した。

[0236] 次に、第 2 の色変換層上に、保護層として、厚み $138\text{ }\mu\text{m}$ のケミカルマット処理フィルム (株式会社きもと製、ケミカルマット 125PW) を、加温圧着し、色変換フィルムを製造した。

[0237] 発光ピーク波長 405 nm の青色 LED 素子を搭載した面状発光装置上に、色変換フィルムを支持体面が接するように配置し、色変換フィルム上にプリズムシートを載せた。

面状発光装置に 30 mA の電流を流し、青色 LED 素子を点灯させ、発光ピーク波長 447 nm 光を支持体側から照射したところ、青色光、緑色光及び赤色光を含む白色光が観察された。

分光放出輝度計 (コニカミノルタ株式会社製、CS-1000) を用いて、上記白色光の発光スペクトルを得た。

得られた発光スペクトルから、緑色光のピーク波長を求めたところ、 530 nm であった。また、同様にして、赤色光のピーク波長を求めたところ、 630 nm であった。

以降の実施例についても同様に求め、表 23 にまとめた。なお、実施例 6 ~ 実施例 10 については、面状発光装置上に、色変換フィルムを保護層面が接するように配置した。

[0238] (実施例 2 ~ 実施例 5)

色変換層形成用塗布液 B-1 を、表 13 に示すように、色変換層形成用塗

布液 B-2～色変換層形成用塗布液 B-5 のいずれかに変更した以外は、実施例 1 と同様に、色変換フィルムを製造した。

[0239] (実施例 6)

支持体として、厚み $138\text{ }\mu\text{m}$ のケミカルマット処理フィルム（株式会社きもと製、ケミカルマット 125PW）を準備した。

ケミカルマット処理フィルムの一方向の面に、スリット状ノズルを用いて、色変換層形成用塗布液 B-1 を塗布し、 100°C の乾燥ゾーンで溶剤を揮発させることにより、支持体上に乾燥後の厚みが $13\text{ }\mu\text{m}$ の第 1 の色変換層を形成した。

[0240] 上記第 1 の色変換層の上に、色変換層形成用塗布液 A-1 を塗布し、 100°C の乾燥ゾーンで溶剤を揮発させることにより、第 1 の色変換層上に、乾燥後の厚みが $15\text{ }\mu\text{m}$ の第 2 の色変換層 B を形成した。

[0241] 次に、第 2 の色変換層上に、保護層として、ポリエチレンテレフタレート（PET）フィルム（厚み $50\text{ }\mu\text{m}$ 、東レ株式会社製、ルミラー（登録商標）U48）を、加温圧着し、色変換フィルムを製造した。

[0242] (実施例 7～実施例 10)

色変換層形成用塗布液 A-1 を、表 13 に示すように、色変換層形成用塗布液 A-2～色変換層形成用塗布液 A-5 のいずれかに変更した以外は、実施例 6 と同様に、色変換フィルムを製造した。

[0243] (比較例 1)

国際公開第 2018/2221216 号の実施例 1 において開示される方法に基づいて、色変換フィルムを製造した。具体的には、以下の通りである。

[0244] 支持体として、ポリエチレンテレフタレート（PET）フィルム（厚み $50\text{ }\mu\text{m}$ 、東レ株式会社製、ルミラー（登録商標）U48）を準備した。

PET フィルムの一方向の面に、スリット状ノズルを用いて、色変換層形成用塗布液 a-1 を塗布し、 100°C の乾燥ゾーンで溶剤を揮発させることにより、支持体上に乾燥後の厚みが $15\text{ }\mu\text{m}$ の第 1 の色変換層を形成した。

[0245] 別の支持体として、厚み $138\mu\text{m}$ のケミカルマット処理フィルム（株式会社きもと製、ケミカルマット125PW）を準備した。

ケミカルマット処理フィルムの一方向の面に、スリット状ノズルを用いて、色変換層形成用塗布液b-1を塗布し、 100°C の乾燥ゾーンで溶剤を揮発させることにより、支持体上に乾燥後の厚みが $13\mu\text{m}$ の第2の色変換層を形成した。

[0246] 上記形成した、第1の色変換層及び第2の色変換層を加温ラミネートし、色変換フィルムを製造した。

[0247] <<層間混合層の厚み測定>>

上記実施例及び比較例において製造した色変換フィルムの断面を、二次イオン質量分析法（TOF-SIMS）により、（メタ）アクリル樹脂に含まれるスチレンのフラグメントを検出し、マッピングし、層間混合層の厚みを求めた。

より具体的には、バインダー樹脂として、（メタ）アクリル樹脂を使用している層側（例えば、実施例1では、第2の色変換層）から、スチレンのフラグメント検出を開始し、スチレンのフラグメントが弱まった位置を層間混合層の開始位置とし、スチレンのフラグメントが検出されなくなった位置を層間混合層の終了位置とし、その厚みを求めた。

測定結果を下記基準で表24に示す。

（測定結果）

A：層間混合層が形成されていることが確認され、層間混合層が $0.1\mu\text{m}$ 未満であった。

B：層間混合層の厚みが $0.1\mu\text{m}$ 以上 $0.2\mu\text{m}$ 未満であった。

C：層間混合層の厚みが $0.2\mu\text{m}$ 以上 $1.0\mu\text{m}$ 未満であった。

D：層間混合層の厚みが $1.0\mu\text{m}$ 以上であった。

E：層間混合の形成が確認されなかった。

[0248] <<密着性評価>>

上記実施例及び比較例において製造した色変換フィルムを、それぞれ、1

0 c m × 1 0 c m のサイズにカットし、試験片を準備した。

H A S T 試験装置 E H S - 2 2 1 M D (エスペック株式会社製) を用いて、6 5 ° C 及び相対湿度 9 0 % の環境下において 5 0 0 時間静置した。

静置後の試験片について下記評価基準に基づいて、第 1 の色変換層及び第 2 の色変換層の密着性を第 1 の色変換層及び第 2 の色変換層の剥離面積により、評価した。評価結果を表 2 4 に示す。

(評価基準)

A : 第 1 の色変換層と第 2 の色変換層との層間において剥離が生じなかった。

B : 第 1 の色変換層と第 2 の色変換層との層間において剥離が生じたが、剥離面積は 5 % 未満であり、実用上問題のない程度であった。

C : 第 1 の色変換層と第 2 の色変換層との層間において剥離が生じ、剥離面積は 5 % 以上 1 0 % 未満であり、実用上問題があった。

D : 第 1 の色変換層と第 2 の色変換層との層間において剥離が生じ、剥離面積は 1 0 % 以上であり、実用上問題があった。

[0249] <<色再現性評価>>

上記実施例及び比較例で得られた色変換シートを用いて発光ピーク波長 4 0 5 n m の青色 L E D を色変換させて得られた発光スペクトルと、カラーフィルターの透過率のスペクトルデータとから、カラーフィルターにより色純度を向上させた場合の (u ' , v ') 色空間における色域を算出した。また、算出された (u ' , v ') 色空間における色域は、D C I - P 3 色域規格に対するカバー率により、以下の基準で評価した。評価結果を表 2 4 に示す。

(評価基準)

A : カバー率が、9 8 % 以上であった。

B : カバー率が、9 5 % 以上 9 8 % 未満であった。

C : カバー率が、9 4 % 以上 9 5 % 未満であった。

D : カバー率が、9 4 % 未満であった。

[0250] [表24]

	第1の色変換層への第2色変換層の形成方法	基板の形状	第1の色変換層の形成に使用した塗布液	第2の色変換層の形成に使用した塗布液	緑色光のピーク波長 (nm)	赤色光のピーク波長 (nm)	保護層の形状	保護層の厚みの測定	信頼性	評価
実施例1	塗布乾燥	PETフィルム	A-1	B-1	530	630	ケミカルエッチ処理フィルム	C	A	A
実施例2	塗布乾燥	PETフィルム	A-1	B-2	530	630	ケミカルエッチ処理フィルム	C	A	A
実施例3	塗布乾燥	PETフィルム	A-1	B-3	530	630	ケミカルエッチ処理フィルム	C	A	B
実施例4	塗布乾燥	PETフィルム	A-1	B-4	527	632	ケミカルエッチ処理フィルム	B	A	A
実施例5	塗布乾燥	PETフィルム	A-1	B-5	532	633	ケミカルエッチ処理フィルム	D	B	C
実施例6	塗布乾燥	ケミカルエッチ処理フィルム	B-1	A-1	530	630	PETフィルム	C	A	A
実施例7	塗布乾燥	ケミカルエッチ処理フィルム	B-1	A-2	530	630	PETフィルム	C	A	A
実施例8	塗布乾燥	ケミカルエッチ処理フィルム	B-1	A-3	530	630	PETフィルム	C	A	B
実施例9	塗布乾燥	ケミカルエッチ処理フィルム	B-1	A-4	527	632	PETフィルム	B	A	A
実施例10	塗布乾燥	ケミカルエッチ処理フィルム	B-1	A-5	532	633	PETフィルム	D	B	C
比較例1	加熱乾燥	PETフィルム	a-1	b-1	530	630	ケミカルエッチ処理フィルム	E	D	A

- [0251] 上記実施例の結果から、本開示の色変換フィルムによれば、第1の色変換層と第2の色変換層との層間に、層間混合層を備え、第1の色変換層及び第2の色変換層の層間は優れた密着性を有することがわかる。
- [0252] 2020年12月18日に出願された日本国特許出願2020-210832号の開示は、その全体が参照により本明細書に取り込まれる。本明細書に記載された全ての文献、特許出願、及び技術規格は、個々の文献、特許出願、及び技術規格が参照により取り込まれることが具体的かつ個々に記載された場合と同程度に、本明細書に参照により取り込まれる。

請求の範囲

[請求項1]

支持体と、

波長400nm以上500nm未満の励起光により、ピーク波長が500nm以上580nm未満の領域に観測される発光を呈する有機発光材料を含む第1の色変換層と、

波長400nm以上500nm未満の励起光及び前記有機発光材料の発光の少なくとも一方により、ピーク波長が580nm以上750nm以下の領域に観測される発光を呈する有機発光材料を含む第2の色変換層と、

前記第1の色変換層及び前記第2の色変換層の間に、前記第1の色変換層及び前記第2の色変換層が混ざり合う層間混合層と、

をこの順に備える、色変換フィルム。

[請求項2]

支持体と、

波長400nm以上500nm未満の励起光及び第2の色変換層に含まれる有機発光材料の発光の少なくとも一方により、ピーク波長が580nm以上750nm以下の領域に観測される発光を呈する有機発光材料を含む第1の色変換層と、

波長400nm以上500nm未満の励起光により、ピーク波長が500nm以上580nm未満の領域に観測される発光を呈する有機発光材料を含む第2の色変換層と、

前記第1の色変換層及び前記第2の色変換層の間に、前記第1の色変換層及び前記第2の色変換層が混ざり合う層間混合層と、

をこの順に備える、色変換フィルム。

[請求項3]

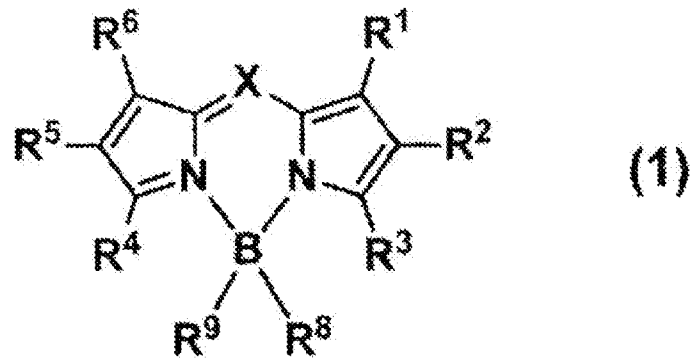
前記層間混合層の厚みが、0.1 μ m～2.0 μ mである、請求項1又は請求項2に記載の色変換フィルム。

[請求項4]

前記第2の色変換層の、前記第1の色変換層とは反対側に、保護層を備える、請求項1～請求項3のいずれか一項に記載の色変換フィルム。

[請求項5] 前記第1の色変換層に含まれる前記有機発光材料及び前記第2の色変換層に含まれる前記有機発光材料の少なくとも一方が、下記一般式(1)で表される、請求項1～請求項4のいずれか一項に記載の色変換フィルム用組成物。

[化1]



一般式(1)中、Xは、C-R⁷又はNを表す。R¹～R⁹は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、複素環基、アルケニル基、シクロアルケニル基、アルキニル基、水酸基、チオール基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリールエーテル基、アリールチオエーテル基、アリール基、ヘテロアリール基、ハロゲン、シアノ基、アルデヒド基、カルボニル基、カルボキシ基、オキシカルボニル基、カルバモイル基、アミノ基、ニトロ基、シリル基、シロキシル基、ボリル基及びホスフィンオキシド基の中から選ばれ、R¹～R⁹の隣接する基は縮合環を形成していてもよい。

[請求項6] 支持体上に、波長400nm以上500nm未満の励起光により、ピーク波長が500nm以上580nm未満の領域に観測される発光を呈する有機発光材料を含む第1の色変換層を形成することと、

前記第1の色変換層上に、波長400nm以上500nm未満の励起光及び前記有機発光材料の発光の少なくとも一方により、ピーク波長が580nm以上750nm以下の領域に観測される発光を呈する

有機発光材料を含む第2の色変換層を形成し、かつ前記第1の色変換層及び前記第2の色変換層の間に、前記第1の色変換層及び前記第2の色変換層が混ざり合う層間混合層を形成することと、を含む、色変換フィルムの製造方法。

[請求項7] 支持体上に、波長400nm以上500nm未満の励起光及び第2の色変換層に含まれる有機発光材料の発光の少なくとも一方により、ピーク波長が580nm以上750nm以下の領域に観測される発光を呈する有機発光材料を含む第1の色変換層を形成することと、

前記第1の色変換層上に、波長400nm以上500nm未満の励起光により、ピーク波長が500nm以上580nm未満の領域に観測される発光を呈する有機発光材料を含む第2の色変換層を形成し、かつ前記第1の色変換層及び前記第2の色変換層の間に、前記第1の色変換層及び前記第2の色変換層が混ざり合う層間混合層を形成することと、を含む、色変換フィルムの製造方法。

[請求項8] 前記第1の色変換層の形成が、第1の色変換層形成用塗布液を、支持体上に塗布し、乾燥することにより行われる、請求項6又は請求項7に記載の色変換フィルムの製造方法。

[請求項9] 前記第2の色変換層の形成が、第2の色変換層形成用塗布液を、第1の色変換層上に塗布し、乾燥することにより行われる、請求項6～請求項8のいずれか一項に記載の色変換フィルムの製造方法。

[請求項10] 前記第2の色変換層形成用塗布液が、沸点100℃以上の高沸点有機溶剤及び沸点99℃以下の低沸点有機溶剤を含む、請求項9に記載の色変換フィルムの製造方法。

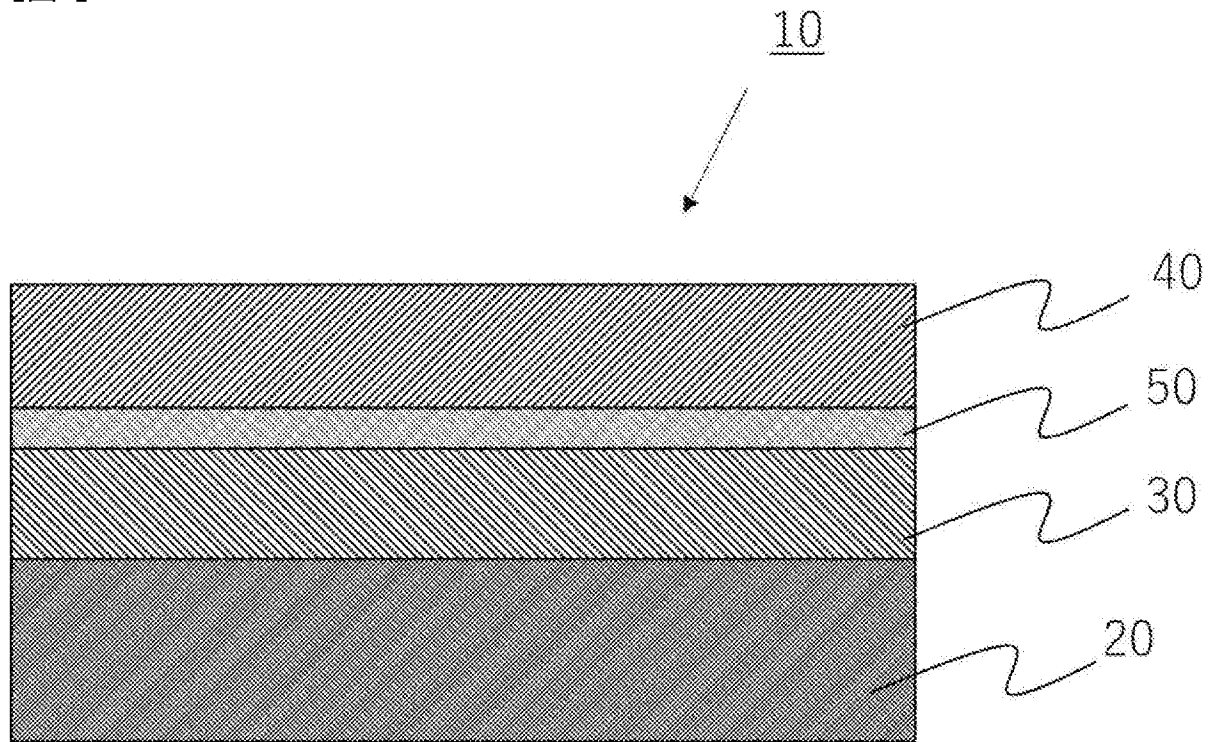
[請求項11] 前記第2の色変換層形成用塗布液に含まれる有機溶剤の総量100質量部に対する前記高沸点有機溶剤の含有量が、20質量部～80質量部である、請求項10に記載の色変換フィルムの製造方法。

[請求項12] 光源と、請求項1～請求項4のいずれか一項に記載の色変換フィル

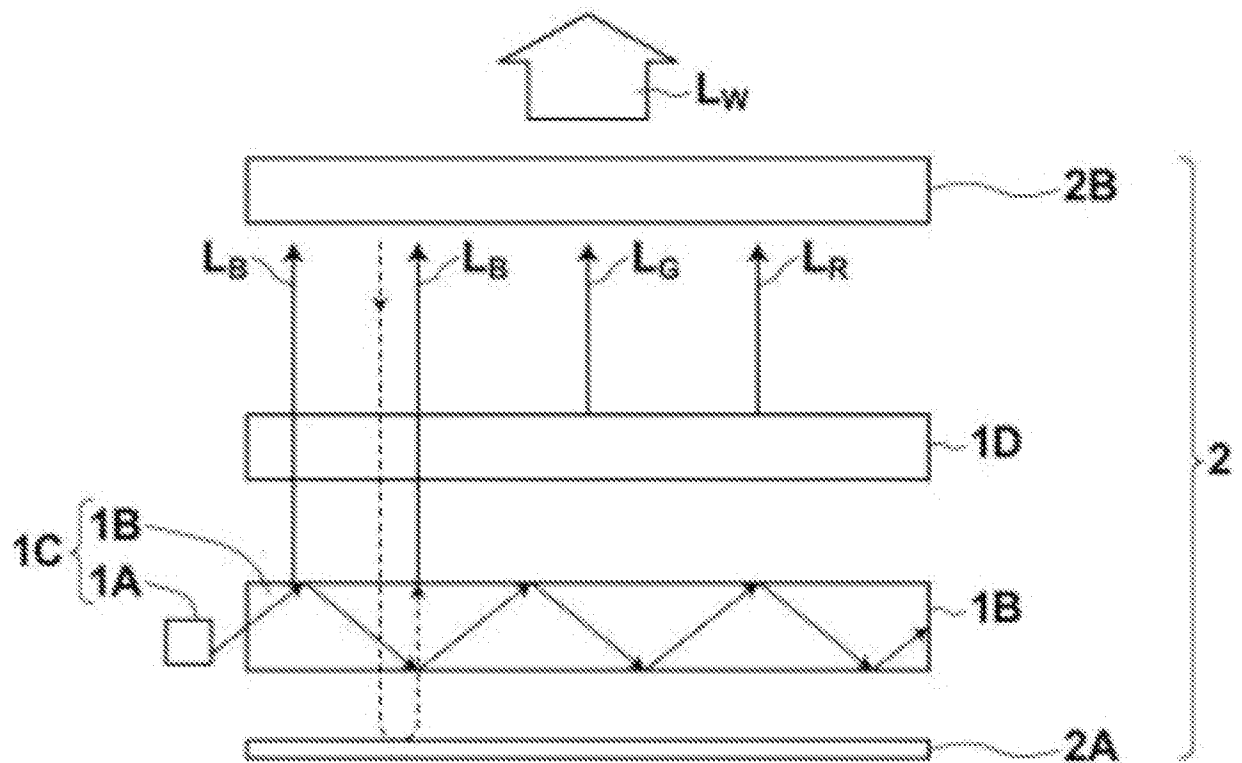
ムと、を備えるバックライトユニット。

[請求項13] 請求項11に記載のバックライトユニットと、液晶セルユニットと、を備える液晶表示装置。

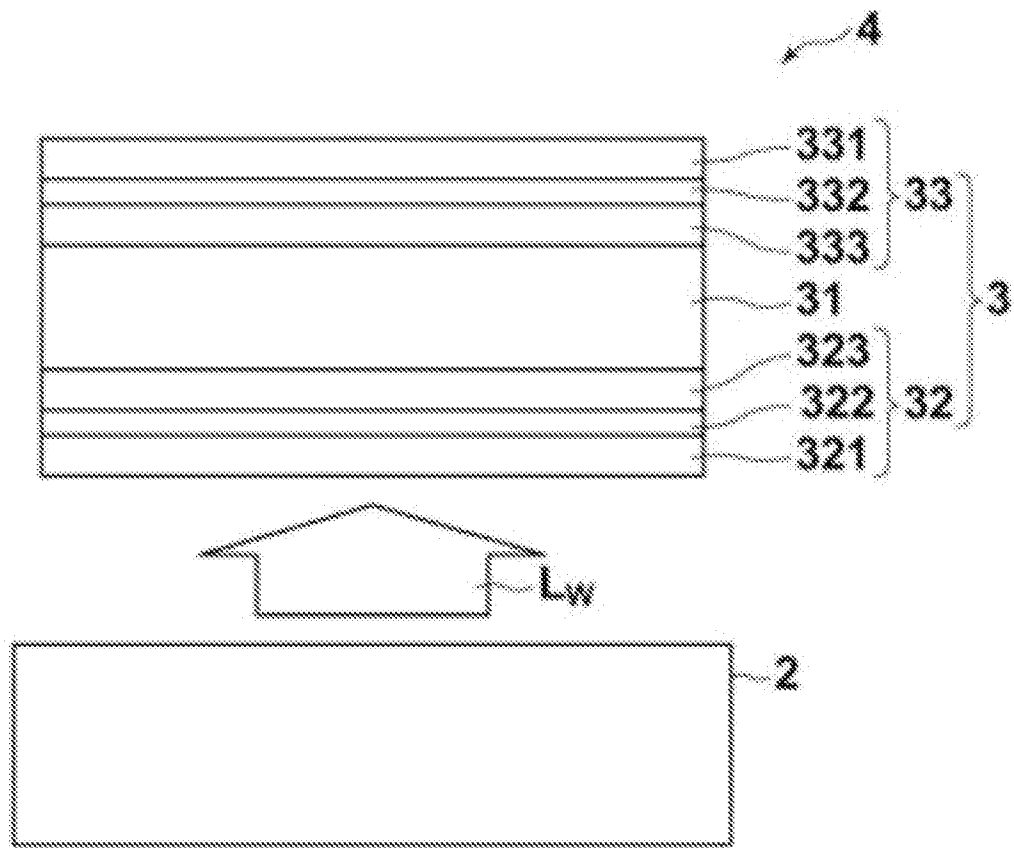
[図1]



[図2]



[図3]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2021/039167

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C09K 11/06(2006.01)i; **F21Y 115/10**(2016.01)n; **F21Y 115/30**(2016.01)n; **G02B 5/20**(2006.01)i; **F21S 2/00**(2016.01)i; **F21V 9/38**(2018.01)i; **G02F 1/13357**(2006.01)i
 FI: G02B5/20; G02F1/13357; F21S2/00 431; F21V9/38; C09K11/06; F21Y115:30; F21Y115:10

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)

C09K11/06; F21Y115/10; F21Y115/30; G02B5/20; F21S2/00; F21V9/38; G02F1/13357

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)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2018/221216 A1 (TORAY INDUSTRIES) 06 December 2018 (2018-12-06) abstract, paragraphs [0009], [0061]-[0062], [0258]-[0264], [0271], claim 8	1-2, 4-9, 12-13
A		3, 10-11
A	JP 2020-513585 A (MERCK PATENT GMBH) 14 May 2020 (2020-05-14) entire text, all drawings	1-13

☐ 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

16 November 2021

Date of mailing of the international search report

21 December 2021

Name and mailing address of the ISA/JP

**Japan Patent Office (ISA/JP)
 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915
 Japan**

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2021/039167

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)			Publication date (day/month/year)
WO	2018/221216	A1	06 December 2018	US	2020/0088920	A1	
				abstract, paragraphs [0013], [0081]-[0082], [0245]-[0252], [0261]-[0262], claim 8			
				CN	110612466	A	
				KR	10-2020-0012851	A	

JP	2020-513585	A	14 May 2020	US	2019/0375957	A1	
				entire text, all drawings			
				EP	3545043	A	
				CN	109983084	A	
				KR	10-2019-0089184	A	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C09K 11/06(2006.01)i; F21Y 115/10(2016.01)n; F21Y 115/30(2016.01)n; G02B 5/20(2006.01)i; F21S 2/00(2016.01)i; F21V 9/38(2018.01)i; G02F 1/13357(2006.01)i FI: G02B5/20; G02F1/13357; F21S2/00 431; F21V9/38; C09K11/06; F21Y115:30; F21Y115:10														
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）） C09K11/06; F21Y115/10; F21Y115/30; G02B5/20; F21S2/00; F21V9/38; G02F1/13357 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 <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922 - 1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971 - 2021年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996 - 2021年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994 - 2021年</td> </tr> </table> 国際調査で使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）			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				
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													
C. 関連すると認められる文献 <table border="1"> <thead> <tr> <th>引用文献の カテゴリー*</th> <th>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</th> <th>関連する 請求項の番号</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>X</td> <td>WO 2018/221216 A1（東レ株式会社） 06.12.2018（2018-12-06） 要約, [0009], [0061]-[0062], [0258]-[0264], [0271], 請求項8</td> <td>1-2, 4-9, 12-13</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td></td> <td>3, 10-11</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>JP 2020-513585 A（メルク パテント ゲゼルシャフト ミット ベシュレンクテル ハ フツング） 14.05.2020（2020-05-14） 全文全図</td> <td>1-13</td> </tr> </tbody> </table>			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 2018/221216 A1（東レ株式会社） 06.12.2018（2018-12-06） 要約, [0009], [0061]-[0062], [0258]-[0264], [0271], 請求項8	1-2, 4-9, 12-13	A		3, 10-11	A	JP 2020-513585 A（メルク パテント ゲゼルシャフト ミット ベシュレンクテル ハ フツング） 14.05.2020（2020-05-14） 全文全図	1-13
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 2018/221216 A1（東レ株式会社） 06.12.2018（2018-12-06） 要約, [0009], [0061]-[0062], [0258]-[0264], [0271], 請求項8	1-2, 4-9, 12-13												
A		3, 10-11												
A	JP 2020-513585 A（メルク パテント ゲゼルシャフト ミット ベシュレンクテル ハ フツング） 14.05.2020（2020-05-14） 全文全図	1-13												
☐ 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 16.11.2021		国際調査報告の発送日 21.12.2021												
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） 渡邊 吉喜 20 3406 電話番号 03-3581-1101 内線 3271												

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/JP2021/039167

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
WO	2018/221216	A1	06.12.2018	US 2020/0088920 A1 要約, [0013], [0081]- [0082], [0245]-[0252], [0261]-[0262], 請求項8 CN 110612466 A KR 10-2020-0012851 A	
JP	2020-513585	A	14.05.2020	US 2019/0375957 A1 全文全図 EP 3545043 A CN 109983084 A KR 10-2019-0089184 A	