

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第6432697号
(P6432697)

(45) 発行日 平成30年12月5日 (2018. 12. 5)

(24) 登録日 平成30年11月16日 (2018. 11. 16)

(51) Int. Cl.

F I

C O 7 F	5/02	(2006. 01)	C O 7 F	5/02	C S P D
C O 9 K	11/06	(2006. 01)	C O 9 K	11/06	
G O 2 B	5/20	(2006. 01)	G O 2 B	5/20	
F 2 1 S	2/00	(2016. 01)	F 2 1 S	2/00	1 0 0
F 2 1 V	9/08	(2018. 01)	F 2 1 V	9/08	1 0 0

請求項の数 30 (全 64 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2017-561423 (P2017-561423)
 (86) (22) 出願日 平成29年11月21日 (2017. 11. 21)
 (86) 国際出願番号 PCT/JP2017/041865
 (87) 国際公開番号 W02018/101129
 (87) 国際公開日 平成30年6月7日 (2018. 6. 7)
 審査請求日 平成30年3月29日 (2018. 3. 29)
 (31) 優先権主張番号 特願2016-232257 (P2016-232257)
 (32) 優先日 平成28年11月30日 (2016. 11. 30)
 (33) 優先権主張国 日本国 (JP)
 (31) 優先権主張番号 特願2017-146290 (P2017-146290)
 (32) 優先日 平成29年7月28日 (2017. 7. 28)
 (33) 優先権主張国 日本国 (JP)

早期審査対象出願

(73) 特許権者 000003159
 東レ株式会社
 東京都中央区日本橋室町2丁目1番1号
 (74) 代理人 110002147
 特許業務法人酒井国際特許事務所
 (72) 発明者 市橋 泰宜
 滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株
 式会社 滋賀事業場内
 (72) 発明者 小林 和紀
 滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株
 式会社 滋賀事業場内

審査官 鈴木 雅雄

最終頁に続く

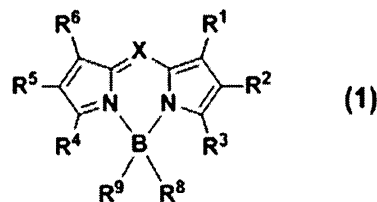
(54) 【発明の名称】 ピロメテンハウ素錯体、色変換組成物、色変換フィルム、光源ユニット、ディスプレイおよび照明装置

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

一般式(1)で表される化合物である、
 ことを特徴とするピロメテンハウ素錯体。

【化1】



(一般式(1)において、Xは、C-R⁷またはNである。R¹~R⁷は、それぞれ同じでも異なってもよく、水素、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シクロアルキル基、置換もしくは無置換の複素環基、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シクロアルケニル基、置換もしくは無置換のアルキニル基、水酸基、チオール基、置換もしくは無置換のアルコキシ基、置換もしくは無置換のアルキルチオ基、置換もしくは無置換のアリールエーテル基、置換もしくは無置換のアリールチオエーテル基、置換もしくは無置換のアリール基、置換もしくは無置換のヘテロアリール基、ハロゲン、シアノ基、アルデヒド基、カルボキシル基、置換もしくは無置換のエステル基、置換もしくは無置換のアミド基、置換もしくは無置換のアシル基、置換もしくは無置

換のスルホニル基、置換もしくは無置換のスルホン酸エステル基、置換もしくは無置換のスルホンアミド基、ニトロ基、置換もしくは無置換のシリル基、置換もしくは無置換のシロキサニル基、置換もしくは無置換のボリル基、置換もしくは無置換のホスフィンオキシド基の中から選ばれる。但し、 R^2 および R^5 は、これらのうち、置換もしくは無置換のアリール基および置換もしくは無置換のヘテロアリール基以外の基の中から選ばれる。また、 R^2 および R^5 は、2環以上が縮合したヘテロアリール基を含まない基である。 R^8 および R^9 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シクロアルキル基、置換もしくは無置換の複素環基、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シクロアルケニル基、置換もしくは無置換のアルキニル基、水酸基、チオール基、置換もしくは無置換のアルコキシ基、置換もしくは無置換のアルキルチオ基、置換もしくは無置換のアリールエーテル基、置換もしくは無置換のアリールチオエーテル基、置換もしくは無置換のアリール基、置換もしくは無置換のヘテロアリール基、ハロゲン、またはシアノ基の中から選ばれる。 R^8 もしくは R^9 のいずれか一つは、シアノ基である。 $R^1 \sim R^6$ のうちの少なくとも一つは、フッ素原子を含む基である。)

【請求項2】

前記一般式(1)における $R^1 \sim R^6$ のうちの二つ以上は、フッ素原子を含む基である、ことを特徴とする請求項1に記載のピロメテンホウ素錯体。

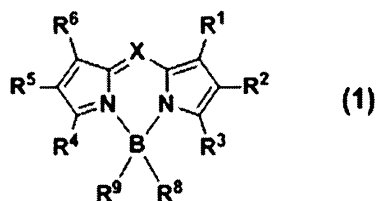
【請求項3】

前記一般式(1)における前記フッ素原子を含む基は、含フッ素アシル基、含フッ素エステル基、含フッ素アミド基、含フッ素スルホニル基、含フッ素スルホン酸エステル基、または含フッ素スルホンアミド基である、ことを特徴とする請求項1または2に記載のピロメテンホウ素錯体。

【請求項4】

一般式(1)で表される化合物である、
ことを特徴とするピロメテンホウ素錯体。

【化2】



(一般式(1)において、Xは、 $C-R^7$ またはNである。 $R^1 \sim R^7$ は、それぞれ同じでも異なってもよく、水素、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シクロアルキル基、置換もしくは無置換の複素環基、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シクロアルケニル基、置換もしくは無置換のアルキニル基、水酸基、チオール基、置換もしくは無置換のアルコキシ基、置換もしくは無置換のアルキルチオ基、置換もしくは無置換のアリールエーテル基、置換もしくは無置換のアリールチオエーテル基、置換もしくは無置換のアリール基、置換もしくは無置換のヘテロアリール基、ハロゲン、シアノ基、アルデヒド基、カルボキシ基、置換もしくは無置換のエステル基、置換もしくは無置換のアミド基、置換もしくは無置換のアシル基、置換もしくは無置換のスルホニル基、置換もしくは無置換のスルホン酸エステル基、置換もしくは無置換のスルホンアミド基、ニトロ基、置換もしくは無置換のシリル基、置換もしくは無置換のシロキサニル基、置換もしくは無置換のボリル基、置換もしくは無置換のホスフィンオキシド基の中から選ばれる。但し、 R^2 および R^5 は、これらのうち、置換もしくは無置換のアリール基および置換もしくは無置換のヘテロアリール基以外の基の中から選ばれる。また、 R^2 および R^5 は、2環以上が縮合したヘテロアリール基を含まない基である。 R^8 および R^9 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シクロアルキル基、置換もしくは無置換の複素環基、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シクロアルケニル基、置換もしくは無置換のアルキニル基、水酸基、チオール基

、置換もしくは無置換のアルコキシ基、置換もしくは無置換のアルキルチオ基、置換もしくは無置換のアリールエーテル基、置換もしくは無置換のアリールチオエーテル基、置換もしくは無置換のアリール基、置換もしくは無置換のヘテロアリール基、ハロゲン、またはシアノ基の中から選ばれる。R¹～R⁶のうちの少なくとも一つは、フッ素原子を含む基である。前記フッ素原子を含む基は、含フッ素アシル基、含フッ素エステル基、含フッ素アミド基、含フッ素スルホニル基、含フッ素スルホン酸エステル基、または含フッ素スルホンアミド基である。)

【請求項5】

前記一般式(1)におけるR¹～R⁶のうちの二つ以上は、フッ素原子を含む基である、ことを特徴とする請求項4に記載のピロメテンハウ素錯体。

10

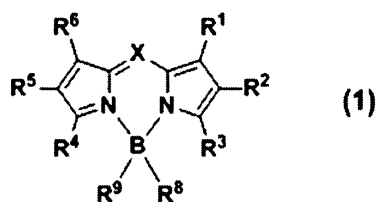
【請求項6】

前記一般式(1)におけるR⁸もしくはR⁹のいずれか一つは、シアノ基である、ことを特徴とする請求項4または5に記載のピロメテンハウ素錯体。

【請求項7】

一般式(1)で表される化合物である、
ことを特徴とするピロメテンハウ素錯体。

【化3】



20

(一般式(1)において、Xは、C-R⁷であり、R⁷は、置換もしくは無置換のアリール基である。R¹～R⁶は、それぞれ同じでも異なってもよく、水素、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シクロアルキル基、置換もしくは無置換の複素環基、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シクロアルケニル基、置換もしくは無置換のアルキニル基、水酸基、チオール基、置換もしくは無置換のアルコキシ基、置換もしくは無置換のアルキルチオ基、置換もしくは無置換のアリールエーテル基、置換もしくは無置換のアリールチオエーテル基、置換もしくは無置換のアリール基、置換もしくは無置換のヘテロアリール基、ハロゲン、シアノ基、アルデヒド基、カルボキシル基、置換もしくは無置換のエステル基、置換もしくは無置換のアミド基、置換もしくは無置換のアシル基、置換もしくは無置換のスルホニル基、置換もしくは無置換のスルホン酸エステル基、置換もしくは無置換のスルホンアミド基、ニトロ基、置換もしくは無置換のシリル基、置換もしくは無置換のシロキサニル基、置換もしくは無置換のボリル基、置換もしくは無置換のホスフィンオキシド基の中から選ばれる。但し、R²およびR⁵は、これらのうち、置換もしくは無置換のアリール基および置換もしくは無置換のヘテロアリール基以外の基の中から選ばれる。また、R²およびR⁵は、2環以上が縮合したヘテロアリール基を含まない基である。R⁸およびR⁹は、フッ素である。R¹～R⁶のうちの少なくとも一つは、フッ素原子を含む基であって、R¹およびR⁶は、ともに含フッ素アリール基または含フッ素アルキル基のいずれの基でもない。)

30

40

【請求項8】

前記一般式(1)におけるR¹～R⁶のうちの二つ以上は、フッ素原子を含む基である、ことを特徴とする請求項7に記載のピロメテンハウ素錯体。

【請求項9】

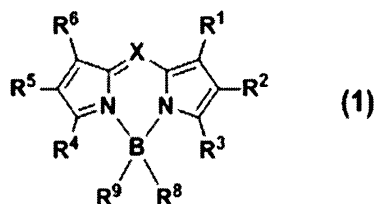
前記一般式(1)における前記フッ素原子を含む基は、含フッ素アシル基、含フッ素エステル基、含フッ素アミド基、含フッ素スルホニル基、含フッ素スルホン酸エステル基、または含フッ素スルホンアミド基である、ことを特徴とする請求項7または8に記載のピロメテンハウ素錯体。

50

【請求項 10】

一般式（１）で表される化合物である、
ことを特徴とするピロメテンハウ素錯体。

【化 4】



10

（一般式（１）において、Xは、C－R⁷またはNである。XがC－R⁷である場合、R⁷は、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のいずれかである。R¹～R⁷は、それぞれ同じでも異なってもよく、水素、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シクロアルキル基、置換もしくは無置換の複素環基、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シクロアルケニル基、置換もしくは無置換のアルキニル基、水酸基、チオール基、置換もしくは無置換のアルコキシ基、置換もしくは無置換のアルキルチオ基、置換もしくは無置換のアリールエーテル基、置換もしくは無置換のアリールチオエーテル基、置換もしくは無置換のアリール基、置換もしくは無置換のヘテロアリール基、ハロゲン、シアノ基、アルデヒド基、カルボキシル基、置換もしくは無置換のエステル基、置換もしくは無置換のアミド基、置換もしくは無置換のアシル基、置換もしくは無置換のスルホニル基、置換もしくは無置換のスルホン酸エステル基、置換もしくは無置換のスルホンアミド基、ニトロ基、置換もしくは無置換のシリル基、置換もしくは無置換のシロキサニル基、置換もしくは無置換のボリル基、置換もしくは無置換のホスフィンオキシド基の中から選ばれる。但し、R²およびR⁵は、これらのうち、置換もしくは無置換のアリール基および置換もしくは無置換のヘテロアリール基以外の基の中から選ばれる。また、R²およびR⁵は、2環以上が縮合したヘテロアリール基を含まない基である。R¹、R³、R⁴およびR⁶のうちの少なくとも一つは、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。R⁸およびR⁹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シクロアルキル基、置換もしくは無置換の複素環基、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シクロアルケニル基、置換もしくは無置換のアルキニル基、水酸基、チオール基、置換もしくは無置換のアルコキシ基、置換もしくは無置換のアルキルチオ基、置換もしくは無置換のアリールエーテル基、置換もしくは無置換のアリールチオエーテル基、置換もしくは無置換のアリール基、置換もしくは無置換のヘテロアリール基、ハロゲン、またはシアノ基の中から選ばれる。R¹～R⁶のうちの二つ以上は、フッ素原子を含む基であって、R¹およびR⁶は、ともに含フッ素アリール基または含フッ素アルキル基のいずれの基でもない。）

20

30

【請求項 11】

前記一般式（１）における前記フッ素原子を含む基は、含フッ素アシル基、含フッ素エステル基、含フッ素アミド基、含フッ素スルホニル基、含フッ素スルホン酸エステル基、または含フッ素スルホンアミド基である、ことを特徴とする請求項 10 に記載のピロメテンハウ素錯体。

40

【請求項 12】

前記一般式（１）におけるR⁸もしくはR⁹のいずれか一つは、シアノ基である、ことを特徴とする請求項 10 または 11 に記載のピロメテンハウ素錯体。

【請求項 13】

前記一般式（１）におけるR²およびR⁵のうちの少なくとも一つは、フッ素原子を含む基である、ことを特徴とする請求項 1～12 のいずれか一つに記載のピロメテンハウ素錯体。

50

【請求項 14】

前記一般式(1)における R^2 および R^5 は、フッ素原子を含む基である、ことを特徴とする請求項1～13のいずれか一つに記載のピロメテンホウ素錯体。

【請求項 15】

前記一般式(1)における前記フッ素原子を含む基は、含フッ素エステル基である、ことを特徴とする請求項1～14のいずれか一つに記載のピロメテンホウ素錯体。

【請求項 16】

前記一般式(1)における R^1 、 R^3 、 R^4 および R^6 のうちの少なくとも一つは、置換もしくは無置換のアルキル基である、ことを特徴とする請求項1～15のいずれか一つに記載のピロメテンホウ素錯体。

10

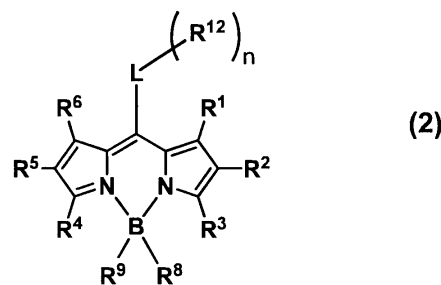
【請求項 17】

前記一般式(1)における R^7 は、置換もしくは無置換のアリール基である、ことを特徴とする請求項1～9、11～16のいずれか一つに記載のピロメテンホウ素錯体。

【請求項 18】

前記一般式(1)で表される化合物は、一般式(2)で表される化合物である、ことを特徴とする請求項1～17のいずれか一つに記載のピロメテンホウ素錯体。

【化 5】



20

(一般式(2)において、 $R^1 \sim R^6$ 、 R^8 および R^9 は、前記一般式(1)と同様である。 R^{12} は、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。Lは、置換もしくは無置換のアリーレン基、または置換もしくは無置換のヘテロアリーレン基である。 n は1～5の整数である。)

【請求項 19】

30

前記一般式(1)で表される化合物は、励起光を用いることによってピーク波長が500nm以上580nm以下の領域に観測される発光を呈する、ことを特徴とする請求項1～18のいずれか一つに記載のピロメテンホウ素錯体。

【請求項 20】

入射光を、その入射光よりも長波長の光に変換する色変換組成物であって、
請求項1～19のいずれか一つに記載のピロメテンホウ素錯体と、
バインダー樹脂と、
を含むことを特徴とする色変換組成物。

【請求項 21】

40

以下の発光材料(a)および発光材料(b)を含有し、

前記発光材料(a)および前記発光材料(b)のうちの少なくとも一つは、前記ピロメテンホウ素錯体である、ことを特徴とする請求項20に記載の色変換組成物。

発光材料(a)：励起光を用いることによってピーク波長が500nm以上580nm以下の領域に観測される発光を呈する発光材料

発光材料(b)：励起光もしくは前記発光材料(a)からの発光の少なくとも一方によって励起されることにより、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発光材料

【請求項 22】

前記発光材料(a)の含有量 w_a と、前記発光材料(b)の含有量 w_b とは、 $w_a \geq w_b$ の関係である、ことを特徴とする請求項21に記載の色変換組成物。

50

【請求項 23】

さらに溶媒を含有する、ことを特徴とする請求項 20～22 のいずれか一つに記載の色変換組成物。

【請求項 24】

前記バインダー樹脂は、熱可塑性樹脂である、ことを特徴とする請求項 20～23 のいずれか一つに記載の色変換組成物。

【請求項 25】

請求項 20～24 のいずれか一つに記載の色変換組成物またはその硬化物からなる層を含む、

ことを特徴とする色変換フィルム。

10

【請求項 26】

さらにバリアフィルムを有する、

ことを特徴とする請求項 25 に記載の色変換フィルム。

【請求項 27】

光源と、

請求項 25 または 26 に記載の色変換フィルムと、

を備えることを特徴とする光源ユニット。

【請求項 28】

前記光源は、波長 430 nm 以上 500 nm 以下の範囲に極大発光を有する発光ダイオードである、ことを特徴とする請求項 27 に記載の光源ユニット。

20

【請求項 29】

請求項 25 または 26 に記載の色変換フィルムを備える、

ことを特徴とするディスプレイ。

【請求項 30】

請求項 25 または 26 に記載の色変換フィルムを備える、

ことを特徴とする照明装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、ピロメテンホウ素錯体、色変換組成物、色変換フィルム、光源ユニット、ディスプレイおよび照明装置に関する。

30

【背景技術】

【0002】

色変換方式によるマルチカラー化技術を液晶ディスプレイや有機 EL ディスプレイ、照明装置などへ応用することが、盛んに検討されている。色変換とは、発光体からの発光をより長波長な光へと変換することであり、例えば青色発光を緑色発光や赤色発光へと変換することを表す。この色変換機能を有する組成物（以下、「色変換組成物」という）をフィルム化し、例えば青色光源と組み合わせることにより、青色光源から、青、緑、赤色の 3 原色を取り出すこと、すなわち白色光を取り出すことが可能となる。このような青色光源と色変換機能を有するフィルム（以下、「色変換フィルム」という）とを組み合わせた白色光源を光源ユニットとし、この光源ユニットと、液晶駆動部分と、カラーフィルターと組み合わせることで、フルカラーディスプレイの作製が可能になる。また、液晶駆動部分が無ければ、そのまま白色光源として用いることができ、例えば LED 照明などの白色光源として応用できる。

40

【0003】

液晶ディスプレイの課題として、色再現性の向上が挙げられる。色再現性の向上には、光源ユニットの青、緑、赤の各発光スペクトルの半値幅を狭くし、青、緑、赤各色の色純度を高めることが有効である。これを解決する手段として、無機半導体微粒子による量子ドットを色変換組成物の成分として用いる技術が提案されている（例えば、特許文献 1 参照）。この量子ドットを用いる技術は、確かに緑、赤色の発光スペクトルの半値幅が狭く

50

、色再現性は向上するが、反面、量子ドットは熱、空気中の水分や酸素に弱く、耐久性が十分でなかった。

【0004】

また、量子ドットの代わりに有機物の発光材料を色変換組成物の成分として用いる技術も提案されている。有機発光材料を色変換組成物の成分として用いる技術の例としては、ピリジン-フタルイミド縮合体を用いたもの（例えば、特許文献2参照）、クマリン誘導体を用いたもの（例えば、特許文献3参照）が開示されている。また、赤色発光材料については、これまでに、ペリレン誘導体を用いたもの（例えば、特許文献4参照）、ローダミン誘導体を用いたもの（例えば、特許文献5参照）、ピロメテン誘導体を用いたもの（例えば、特許文献6～9参照）が開示されている。

10

【先行技術文献】

【特許文献】

【0005】

【特許文献1】特開2012-22028号公報

【特許文献2】特開2002-348568号公報

【特許文献3】特開2007-273440号公報

【特許文献4】特開2002-317175号公報

【特許文献5】特開2001-164245号公報

【特許文献6】特開2011-241160号公報

【特許文献7】特開2014-136771号公報

20

【特許文献8】国際公開第2016/108411号

【特許文献9】韓国特許公開第2017/0049360号

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

しかし、これらの有機発光材料を用いて色変換組成物を作製しても、色再現性、発光効率および耐久性の向上という観点では、未だ不十分であった。特に、高発光効率と高い耐久性とを両立できる技術や、高色純度の緑色発光と高い耐久性とを両立できる技術が不十分であった。

【0007】

30

本発明が解決しようとする課題は、液晶ディスプレイ等のディスプレイやLED照明等の照明装置に用いられる色変換材料として好適な有機発光材料を提供し、色再現性の向上と高い耐久性とを両立させることである。

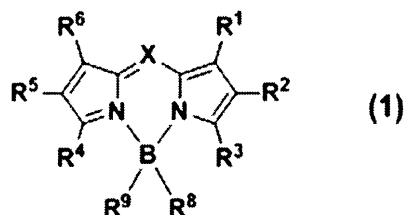
【課題を解決するための手段】

【0008】

すなわち、上述した課題を解決し、目的を達成するために、本発明に係るピロメテンホウ素錯体は、一般式(1)で表される化合物である、ことを特徴とする。

【0009】

【化1】



40

(一般式(1)において、Xは、C-R⁷またはNである。R¹～R⁷は、それぞれ同じでも異なってもよく、水素、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シクロアルキル基、置換もしくは無置換の複素環基、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シクロアルケニル基、置換もしくは無置換のアルキニル基、水酸基、チオール基、置換もしくは無置換のアルコキシ基、置換もしくは無置換のアルキル

50

チオ基、置換もしくは無置換のアリールエーテル基、置換もしくは無置換のアリールチオエーテル基、置換もしくは無置換のアリール基、置換もしくは無置換のヘテロアリール基、ハロゲン、シアノ基、アルデヒド基、置換もしくは無置換のカルボニル基、カルボキシル基、置換もしくは無置換のオキシカルボニル基、置換もしくは無置換のカルバモイル基、置換もしくは無置換のエステル基、置換もしくは無置換のアミド基、置換もしくは無置換のアシル基、置換もしくは無置換のスルホニル基、置換もしくは無置換のスルホン酸エステル基、置換もしくは無置換のスルホンアミド基、ニトロ基、置換もしくは無置換のシリル基、置換もしくは無置換のシロキサニル基、置換もしくは無置換のボリル基、置換もしくは無置換のホスフィンオキシド基の中から選ばれる。但し、 R^2 および R^5 は、これらのうち、置換もしくは無置換のアリール基および置換もしくは無置換のヘテロアリール基以外の基の中から選ばれる。また、 R^2 および R^5 は、2 環以上が縮合したヘテロアリール基を含まない基である。 R^8 および R^9 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シクロアルキル基、置換もしくは無置換の複素環基、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シクロアルケニル基、置換もしくは無置換のアルキニル基、水酸基、チオール基、置換もしくは無置換のアルコキシ基、置換もしくは無置換のアルキルチオ基、置換もしくは無置換のアリールエーテル基、置換もしくは無置換のアリールチオエーテル基、置換もしくは無置換のアリール基、置換もしくは無置換のヘテロアリール基、ハロゲン、またはシアノ基の中から選ばれる。 $R^1 \sim R^6$ のうちの少なくとも一つは、フッ素原子を含む基である。)

10

【0010】

20

また、本発明に係るピロメテンハウ素錯体は、上記の発明において、前記一般式(1)における $R^1 \sim R^6$ のうちの二つ以上は、フッ素原子を含む基である、ことを特徴とする。

【0011】

また、本発明に係るピロメテンハウ素錯体は、上記の発明において、前記一般式(1)における R^2 および R^5 のうちの少なくとも一つは、フッ素原子を含む基である、ことを特徴とする。

【0012】

また、本発明に係るピロメテンハウ素錯体は、上記の発明において、前記一般式(1)における R^2 および R^5 は、フッ素原子を含む基である、ことを特徴とする。

30

【0013】

また、本発明に係るピロメテンハウ素錯体は、上記の発明において、前記一般式(1)における前記フッ素原子を含む基は、含フッ素アシル基、含フッ素エステル基、含フッ素アミド基、含フッ素スルホニル基、含フッ素スルホン酸エステル基、または含フッ素スルホンアミド基である、ことを特徴とする。

【0014】

また、本発明に係るピロメテンハウ素錯体は、上記の発明において、前記一般式(1)における前記フッ素原子を含む基は、含フッ素エステル基である、ことを特徴とする。

【0015】

また、本発明に係るピロメテンハウ素錯体は、上記の発明において、前記一般式(1)における R^1 、 R^3 、 R^4 および R^6 のうちの少なくとも一つは、置換もしくは無置換のアルキル基である、ことを特徴とする。

40

【0016】

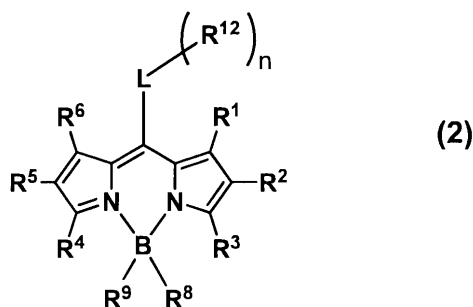
また、本発明に係るピロメテンハウ素錯体は、上記の発明において、前記一般式(1)における R^7 は、置換もしくは無置換のアリール基である、ことを特徴とする。

【0017】

また、本発明に係るピロメテンハウ素錯体は、上記の発明において、前記一般式(1)で表される化合物は、一般式(2)で表される化合物である、ことを特徴とする。

【0018】

【化 2】



(一般式(2)において、 $R^1 \sim R^6$ 、 R^8 および R^9 は、前記一般式(1)と同様である。 R^{12} は、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。 L は、置換もしくは無置換のアリーレン基、または置換もしくは無置換のヘテロアリーレン基である。 n は1～5の整数である。)

【0019】

また、本発明に係るピロメテンハウ素錯体は、上記の発明において、前記一般式(1)における R^8 もしくは R^9 のいずれか一つは、シアノ基である、ことを特徴とする。

【0020】

また、本発明に係るピロメテンハウ素錯体は、上記の発明において、前記一般式(1)で表される化合物は、励起光を用いることによってピーク波長が500nm以上580nm以下の領域に観測される発光を呈する、ことを特徴とする。

【0021】

また、本発明に係る色変換組成物は、入射光を、その入射光よりも長波長の光に変換する色変換組成物であって、上記の発明のいずれか一つに記載のピロメテンハウ素錯体と、バインダー樹脂と、を含むことを特徴とする。

【0022】

また、本発明に係る色変換組成物は、上記の発明において、以下の発光材料(a)および発光材料(b)を含有し、前記発光材料(a)および前記発光材料(b)のうちの少なくとも一つは、前記ピロメテンハウ素錯体である、ことを特徴とする。

発光材料(a)：励起光を用いることによってピーク波長が500nm以上580nm以下の領域に観測される発光を呈する発光材料

発光材料(b)：励起光もしくは前記発光材料(a)からの発光の少なくとも一方によって励起されることにより、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発光材料

【0023】

また、本発明に係る色変換組成物は、上記の発明において、前記発光材料(a)の含有量 w_a と、前記発光材料(b)の含有量 w_b とは、 $w_a \geq w_b$ の関係である、ことを特徴とする。

【0024】

また、本発明に係る色変換組成物は、上記の発明において、さらに溶媒を含有する、ことを特徴とする。

【0025】

また、本発明に係る色変換組成物は、上記の発明において、前記バインダー樹脂は、熱可塑性樹脂である、ことを特徴とする。

【0026】

また、本発明に係る色変換フィルムは、上記の発明のいずれか一つに記載の色変換組成物またはその硬化物からなる層を含む、ことを特徴とする。

【0027】

また、本発明に係る色変換フィルムは、上記の発明において、さらにバリアフィルムを有する、ことを特徴とする。

【0028】

10

20

30

40

50

また、本発明に係る光源ユニットは、光源と、上記の発明のいずれか一つに記載の色変換フィルムと、を備えることを特徴とする。

【0029】

また、本発明に係る光源ユニットは、上記の発明において、前記光源は、波長430nm以上500nm以下の範囲に極大発光を有する発光ダイオードである、ことを特徴とする。

【0030】

また、本発明に係るディスプレイは、上記の発明のいずれか一つに記載の色変換フィルムを備える、ことを特徴とする。

【0031】

また、本発明に係る照明装置は、上記の発明のいずれか一つに記載の色変換フィルムを備える、ことを特徴とする。

【発明の効果】

【0032】

本発明に係るピロメテンハウ素錯体や色変換組成物を用いた色変換フィルムは、高色純度の発光と高い耐久性とが両立されているため、色再現性の向上と高い耐久性とを両立させることが可能となるという効果を奏する。本発明に係る光源ユニット、ディスプレイおよび照明装置は、このような色変換フィルムを用いるため、色再現性の向上と高い耐久性とを両立させることが可能となるという効果を奏する。

【図面の簡単な説明】

【0033】

【図1】図1は、本発明の実施の形態に係る色変換フィルムの第一例を示す模式断面図である。

【図2】図2は、本発明の実施の形態に係る色変換フィルムの第二例を示す模式断面図である。

【図3】図3は、本発明の実施の形態に係る色変換フィルムの第三例を示す模式断面図である。

【図4】図4は、本発明の実施の形態に係る色変換フィルムの第四例を示す模式断面図である。

【発明を実施するための形態】

【0034】

以下、本発明に係るピロメテンハウ素錯体、色変換組成物、色変換フィルム、光源ユニット、ディスプレイおよび照明装置の好適な実施の形態を具体的に説明するが、本発明は以下の実施の形態に限定されるものではなく、目的や用途に応じて種々に変更して実施することができる。

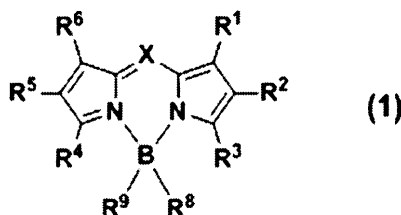
【0035】

<ピロメテンハウ素錯体>

本発明の実施の形態に係るピロメテンハウ素錯体について詳細に説明する。本発明の実施の形態に係るピロメテンハウ素錯体は、色変換組成物や色変換フィルムなどを構成する色変換材料であって、一般式(1)で表される化合物である。

【0036】

【化3】



【0037】

一般式(1)において、Xは、C-R⁷またはNである。R¹~R⁷は、それぞれ同じ

10

20

30

40

50

でも異なっているとしてもよく、水素、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シクロアルキル基、置換もしくは無置換の複素環基、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シクロアルケニル基、置換もしくは無置換のアルキニル基、水酸基、チオール基、置換もしくは無置換のアルコキシ基、置換もしくは無置換のアルキルチオ基、置換もしくは無置換のアリールエーテル基、置換もしくは無置換のアリールチオエーテル基、置換もしくは無置換のアリール基、置換もしくは無置換のヘテロアリール基、ハロゲン、シアノ基、アルデヒド基、置換もしくは無置換のカルボニル基、カルボキシル基、置換もしくは無置換のオキシカルボニル基、置換もしくは無置換のカルバモイル基、置換もしくは無置換のエステル基、置換もしくは無置換のアミド基、置換もしくは無置換のアシル基、置換もしくは無置換のスルホニル基、置換もしくは無置換のスルホン酸エステル基、置換もしくは無置換のスルホンアミド基、ニトロ基、置換もしくは無置換のシリル基、置換もしくは無置換のシロキサニル基、置換もしくは無置換のボリル基、置換もしくは無置換のホスフィンオキシド基の中から選ばれる。但し、 R^2 および R^5 は、これらのうち、置換もしくは無置換のアリール基および置換もしくは無置換のヘテロアリール基以外の基の中から選ばれる。また、 R^2 および R^5 は、2 環以上が縮合したヘテロアリール基を含まない基である。

10

【0038】

R^8 および R^9 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シクロアルキル基、置換もしくは無置換の複素環基、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シクロアルケニル基、置換もしくは無置換のアルキニル基、水酸基、チオール基、置換もしくは無置換のアルコキシ基、置換もしくは無置換のアルキルチオ基、置換もしくは無置換のアリールエーテル基、置換もしくは無置換のアリールチオエーテル基、置換もしくは無置換のアリール基、置換もしくは無置換のヘテロアリール基、ハロゲン、またはシアノ基の中から選ばれる。 $R^1 \sim R^6$ のうちの少なくとも一つは、フッ素原子を含む基である。

20

【0039】

上記の全ての基において、水素は重水素であってもよい。このことは、以下に説明する化合物また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 の置換もしく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。

30

【0040】

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、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。

40

【0041】

「置換もしくは無置換の」という場合における「無置換」とは、水素原子また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またはその部分構造において、「置換もしくは無置換の」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、*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、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

50

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、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、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。

10

【0045】

アルケニル基とは、例えば、ビニル基、アリル基、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、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。

20

【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、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】

30

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】

40

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、ヘリセニル基等の芳香族炭化水素基を示す。中

50

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、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】

$R^1 \sim R^9$ が置換もしくは無置換のアリール基の場合、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。

10

【0054】

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、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。特に好ましくは、フェニル基である。

【0055】

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、ジヒドロインドノカルバゾリル基、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、フェナントロリニル基等の、炭素以外の原子を一個または複数個環内に有する環状芳香族基を示す。ただし、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、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。

20

30

【0056】

$R^1 \sim R^9$ が置換もしくは無置換のヘテロアリール基である場合、ヘテロアリール基としては、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、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、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】

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、ヘテロアリール基としては、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、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、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。

40

【0058】

ハロゲンとは、フッ素、塩素、臭素およ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、カルバモイル基は、置換基を有してい

50

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、ヘテロアリール基等が挙げられ、これらの置換基は、さらに置換されてもよい。

【0059】

エステル基とは、例えば、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、ヘテロアリール基等がエステル結合を介して結合した官能基を示し、この置換基は、さらに置換されていてもよい。エステル基の炭素数は、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。より具体的には、エステル基として、例えば、メトキシカルボニル基等のメチルエステル基、エトキシカルボニル基等のエチルエステル基、プロポキシカルボニル基等のプロピルエステル基、ブトキシカルボニル基等のブチルエステル基、イソプロポキシシメトキシカルボニル基等のイソプロピルエステル基、ヘキシロキシカルボニル基等のヘキシルエステル基、フェノキシカルボニル基等のフェニルエステル基が挙げられる。

10

【0060】

アミド基とは、例えば、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、ヘテロアリール基等の置換基がアミド結合を介して結合した官能基を示し、この置換基は、さらに置換されていてもよい。アミド基の炭素数は、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。より具体的には、アミド基として、メチルアミド基、エチルアミド基、プロピルアミド基、ブチルアミド基、イソプロピルアミド基、ヘキシルアミド基、フェニルアミド基等が挙げられる。

【0061】

20

アミノ基とは、置換もしくは無置換のアミノ基である。アミノ基は、置換基を有していても有していなくてもよく、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、分岐アルキル基が挙げられる。アリール基、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、キノリニル基が好ましい。これらの置換基は、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。

【0062】

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、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。

30

【0063】

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、置換もしくは無置換のボリル基である。ボリル基は、置換基を有していても有していなくてもよく、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、ヒドロキシ基が挙げられる。中でも、アリール基、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。

40

【0064】

アシル基とは、例えば、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、ヘテロアリール基等の置換基がカルボニル結合を介して結合した官能基を示し、この置換基は、さらに置換されていてもよい。アシル基の炭素数は、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。より具体的には、アシル基として、アセチル基、プロピオニル基、ベンゾイル基、アクリリル基等が挙げられる。

【0065】

50

スルホニル基とは、例えば、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、ヘテロアリール基等の置換基が $-S(=O)_2-$ 結合を介して結合した官能基を示し、この置換基は、さらに置換されていてもよい。

【0066】

アリーレン基とは、ベンゼン、ナフタレン、ビフェニル、フルオレン、フェナントレン等の芳香族炭化水素基から導かれる2価以上の基を示し、これは、置換基を有していても有していなくてもよい。好ましくは、2価もしくは3価のアリーレン基である。アリーレン基としては、具体的には、フェニレン基、ビフェニレン基、ナフチレン基等が挙げられる。

【0067】

ヘテロアリーレン基とは、ピリジン、キノリン、ピリミジン、ピラジン、トリアジン、キノキサリン、キナゾリン、ジベンゾフラン、ジベンゾチオフェン等の炭素以外の原子を一個または複数個環内に有する芳香族基から導かれる2価以上の基を示し、これは、置換基を有していても有していなくてもよい。好ましくは、2価もしくは3価のヘテロアリーレン基である。ヘテロアリーレン基の炭素数は、特に限定されないが、好ましくは、2～30の範囲である。ヘテロアリーレン基としては、具体的には、2，6-ピリジレン基、2，5-ピリジレン基、2，4-ピリジレン基、3，5-ピリジレン基、3，6-ピリジレン基、2，4，6-ピリジレン基、2，4-ピリミジニレン基、2，5-ピリミジニレン基、4，6-ピリミジニレン基、4，6-ピリミジニレン基、2，4，6-ピリミジニレン基、2，4，6-トリアジニレン基、4，6-ジベンゾフラニレン基、2，6-ジベンゾフラニレン基、2，8-ジベンゾフラニレン基、3，7-ジベンゾフラニレン基等が挙げられる。

【0068】

一般式(1)で表される化合物は、ピロメテンハウ素錯体骨格を有する。ピロメテンハウ素錯体骨格は、強固で平面性の高い骨格である。このため、ピロメテンハウ素錯体骨格を有する当該化合物は、高い発光量子収率を示し、かつ、当該化合物の発光スペクトルのピーク半値幅は小さい。したがって、一般式(1)で表される化合物は、高効率の色変換と高い色純度とを達成することができる。

【0069】

また、一般式(1)で表される化合物は、ピロメテンハウ素錯体骨格にフッ素原子を含む基を必ず有する。本発明に係る色変換組成物、すなわち、当該化合物(ピロメテンハウ素錯体)を一成分とする色変換組成物は、含有されるピロメテンハウ素錯体が励起光により励起され、励起光とは異なる波長の光を発光することで、光の色変換を行う。

【0070】

一般式(1)で表される化合物がピロメテンハウ素錯体骨格にフッ素原子を含む基を有しない場合、上記の励起と発光とのサイクルが繰り返されると、色変換組成物中に含まれるピロメテンハウ素錯体と酸素との相互作用により、このピロメテンハウ素錯体は、酸化されてしまい消光する。したがって、ピロメテンハウ素錯体の酸化は、当該化合物の耐久性悪化の原因になる。一方、フッ素原子は強い電子求引性を有するため、ピロメテンハウ素錯体骨格にフッ素原子を含む基を導入することで、ピロメテンハウ素錯体骨格の電子密度を下げる可以降低。これにより、一般式(1)で表される化合物の酸素に対する安定性が向上し、この結果、当該化合物の耐久性を向上させることができる。

【0071】

以上のことから、一般式(1)で表される化合物は、分子中にピロメテンハウ素錯体骨格とフッ素原子を含む基とを有することにより、高効率の発光(色変換)および高い色純度と、高い耐久性とを両立させることが可能となる。

【0072】

また、一般式(1)において、 R^2 および R^5 のうちの少なくとも一方は、置換もしくは無置換のアリール基、置換もしくは無置換のヘテロアリール基になることがない。すなわち、 R^2 および R^5 は、上述の基のうち、置換もしくは無置換のアリール基および置換

もしくは無置換のヘテロアリール基以外の基の中から選ばれる。

【0073】

ピロメテン誘導体において、一般式(1)の R^2 および R^5 で置換される位置は、ピロメテンハウ素錯体骨格の電子密度に大きく影響を与える位置である。これらの位置が芳香族性の基で置換されると共役が拡張するため、発光スペクトルのピーク半値幅が広がってしまう。そのような化合物を含むフィルムを色変換フィルムとしてディスプレイに用いた場合には、色再現性が低くなってしまう。

【0074】

そこで、ピロメテンハウ素錯体骨格の R^2 および R^5 のうちの少なくとも一方は、置換もしくは無置換のアリール基、置換もしくは無置換のヘテロアリール基とならないようにする。これにより、ピロメテンハウ素錯体骨格における分子全体の共役の広がりを制限することができ、この結果、発光スペクトルのピーク半値幅を狭くすることができる。そのような化合物を含むフィルムを色変換フィルムとして液晶ディスプレイに用いた場合には、色再現性を高くすることができる。

10

【0075】

また、一般式(1)において、 R^2 および R^5 は、2環以上が縮合したヘテロアリール基を含まない基である。2環以上が縮合したヘテロアリール基は、可視光に吸収をもつ。2環以上が縮合したヘテロアリール基は、可視光を吸収して励起する場合、その骨格の一部にヘテロ原子を含むため、励起状態で共役に局所的な電子的な偏りが生まれやすい。ピロメテンハウ素錯体の特徴である、高い発光量子収率を得ようとする場合、ピロメテンハウ素錯体骨格内での励起および失活の電子遷移が必要となる。しかし、ピロメテンハウ素錯体の共役に大きく影響を与える R^2 および R^5 の位置に、2環以上が縮合したヘテロアリール基が含まれる場合、2環以上が縮合したヘテロアリール基が可視光を吸収して励起するため、2環以上が縮合したヘテロアリール基に電子的な偏りが生まれる。それによって、当該ヘテロアリール基とピロメテンハウ素錯体骨格との間で電子移動が生じ、この結果、ピロメテンハウ素錯体骨格内での電子遷移が阻害されることから、ピロメテンハウ素錯体の発光量子収率が低下する。よって、そのような化合物を含むフィルムを色変換フィルムとしてディスプレイに用いた場合には、発光効率が低下してしまう。

20

【0076】

なお、この発光量子収率の低下は、 R^2 および R^5 に含まれる置換基が可視光を吸収し、当該置換基とピロメテンハウ素錯体骨格との間で電子移動が生じる場合に起こる現象である。 R^2 および R^5 に含まれる置換基が単環のヘテロアリール基である場合は、当該ヘテロアリール基は、可視光を吸収しないため、励起されることはない。したがって、当該ヘテロアリール基とピロメテンハウ素錯体骨格との間の電子移動も起きず、この結果、発光量子収率の低下は見られない。

30

【0077】

また、一般式(1)において、 R^1 および R^6 は、ともに含フッ素アリール基または含フッ素アルキル基のいずれの基でもないことが好ましい。これにより、発光量子収率をより高くすることができる。そのような化合物を含むフィルムを色変換フィルムとしてディスプレイに用いた場合には、発光効率をより高くすることができる。

40

【0078】

一般式(1)で表される化合物は、高い発光量子収率を示し、かつ、発光スペクトルのピーク半値幅が小さいため、効率的な色変換と高い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、光安定性およ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。

【0079】

例えば、一般式(1)において、 $R^1 \sim R^6$ のうちの二つ以上は、フッ素原子を含む基であることが好ましい。一般式(1)で表される化合物は、フッ素原子を含む基を二つ以上有することで、ピロメテンハウ素錯体骨格の電子密度をより低減することができる。こ

50

れにより、一般式(1)で表される化合物の酸素に対する安定性が向上し、この結果、耐久性を向上させることができる。

【0080】

一般式(1)において、 R^2 および R^5 のうちの少なくとも一つは、フッ素原子を含む基であることが好ましい。この理由は、以下に示す通りである。すなわち、一般式(1)の R^2 および R^5 の各位置は、ピロメテンハウ素錯体骨格の電子密度に大きく影響を与える置換位置である。このような R^2 および R^5 にフッ素原子を含む基を導入することで、効率的にピロメテンハウ素錯体骨格の電子密度を低減することができる。これにより、一般式(1)で表される化合物の酸素に対する安定性がより向上し、この結果、耐久性をより向上させることができるからである。

10

【0081】

さらに、一般式(1)において、 R^2 および R^5 は、フッ素原子を含む基であることがより好ましい。何故ならば、この構成により、一般式(1)で表される化合物の酸素に対する安定性がさらに向上し、この結果、耐久性を大幅に向上させることができるからである。

【0082】

フッ素原子を含む基の好ましい例としては、フッ素原子、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、含フッ素アシル基、含フッ素エステル基、含フッ素アミド基、含フッ素スルホン基、含フッ素スルホン酸エステル基、含フッ素スルホンアミド基が挙げられる。これらの基は、効率的にピロメテンハウ素錯体骨格の電子密度を低減することができる。これにより、一般式(1)で表される化合物の酸素に対する安定性が向上し、この結果、耐久性をより向上させることができる。このため、これらの基は、フッ素原子を含む基として好ましい。

20

【0083】

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の具体例としては、例えば、直鎖状フルオロアルキル基、フルオロアリール基等が挙げられる。

【0084】

直鎖状フルオロアルキル基としては、例えば、トリフルオロメチル基、ペンタフルオロエチル基、ヘプタフルオロプロピル基、ノナフルオロブチル基、トリデカフルオロヘキシル基、ノナデカフルオロオクチル基、2, 2, 2-トリフルオロエチル基、2, 2, 3, 3, 3-ペンタフルオロプロピル基、2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5, 5-ノナフルオロペンチル基、2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6, 7, 7-トリデカフルオロヘプチル基、2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6, 7, 7, 8, 8, 9, 9, 9-ヘキサデカフルオロノニル基、3, 3, 3-トリフルオロプロピル基、3, 3, 4, 4, 4-ペンタフルオロブチル基、2, 2, 3, 3, 4, 4, 4-ヘプタフルオロ-1-ブチル基、3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6, 6-ノナフルオロヘキシル基、3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6, 7, 7, 8, 8, 8-トリデカフルオロオクチル基、3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6, 7, 7, 8, 8, 9, 9, 10, 10, 10-ヘプタデカフルオロデシル基、4, 4, 4-トリフルオロブチル基、4, 4, 5, 5, 5-ペンタフルオロペンチル基、4, 4, 5, 5, 6, 6, 7, 7, 7-ノナフルオロヘプチル基、4, 4, 5, 5, 6, 6, 7, 7, 8, 8, 9, 9, 9-トリデカフルオロノニル基、5, 5, 5-トリフルオロペンチル基、5, 5, 6, 6, 6-ペンタフルオロヘキシル基、5, 5, 6, 6, 7, 7, 8, 8, 8-ノナフルオロオクチル基、5, 5, 6, 6, 7, 7, 8, 8, 9, 9, 10, 10, 10-トリデカフルオロデシル基、6, 6, 6-トリフルオロヘキシル基、6, 6, 7, 7, 7-ペンタフルオロヘプチル基、6, 6, 7, 7, 8, 8, 9, 9, 9-ノナフルオロノニル基、7, 7, 7-トリフルオロヘプチル基、7, 7, 8, 8, 8-ペンタフルオロオクチル基、7, 7, 8, 8, 9, 9, 10, 10, 10-ノナフルオロデシル基、9, 9, 9-トリフルオロノニル基、9, 9, 10, 10, 10-ペンタフルオロデシル基等が挙げられる。

30

40

【0085】

50

フルオロアリール基としては、例えば、ペンタフルオロフェニル基、2, 3, 4, 5-テトラフルオロフェニル基、2, 3, 5, 6-テトラフルオロフェニル基、2, 3, 5-トリフルオロフェニル基、2, 4, 5-トリフルオロフェニル基、3, 4, 5-トリフルオロフェニル基、2, 4, 6-トリフルオロフェニル基、2, 4-ジフルオロフェニル基、3, 4-ジフルオロフェニル基、3, 5-ジフルオロフェニル基、2-フルオロフェニル基、3-フルオロフェニル基、4-フルオロフェニル基、3-トリフルオロメチルフェニル基、4-トリフルオロメチルフェニル基、2, 3-ビス(トリフルオロメチル)フェニル基、2, 4-ビス(トリフルオロメチル)フェニル基、2, 5-ビス(トリフルオロメチル)フェニル基、2, 6-ジビス(トリフルオロメチル)フェニル基、3, 5-ビス(トリフルオロメチル)フェニル基、2, 3, 4-トリス(トリフルオロメチル)フェニル基、2, 3, 5-トリス(トリフルオロメチル)フェニル基、2, 4, 5-トリス(トリフルオロメチル)フェニル基、2, 4, 6-トリス(トリフルオロメチル)フェニル基、2, 3, 4, 5-テトラキス(トリフルオロメチル)フェニル基、2, 3, 4, 6-テトラキス(トリフルオロメチル)フェニル基、2, 3, 5, 6-テトラキス(トリフルオロメチル)フェニル基、2, 3, 4, 5, 6-ペンタ(トリフルオロメチル)フェニル基、3-トリフルオロメチルナフチル基、4-トリフルオロメチルナフチル基、3, 5-ビス(トリフルオロメチル)ナフチル基等が挙げられる。

10

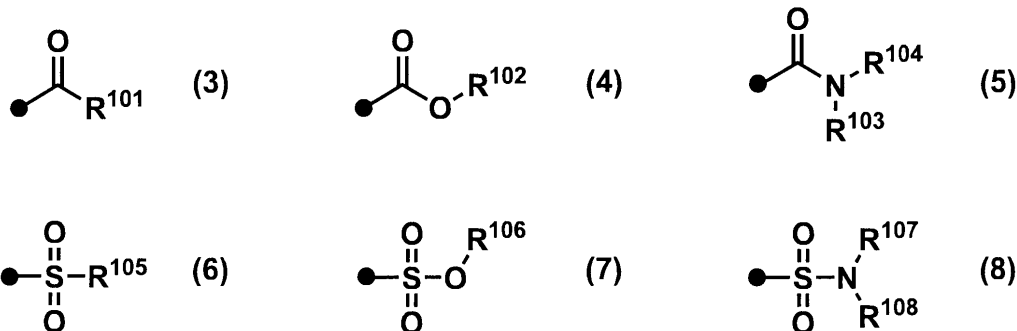
【0086】

含フッ素アシル基、含フッ素エステル基、含フッ素アミド基、含フッ素スルホニル基、含フッ素スルホン酸エステル基、含フッ素スルホンアミド基の具体例としては、例えば、一般式(3)～(8)が挙げられる。

20

【0087】

【化4】



30

【0088】

一般式(3)～(8)において、 $R^{101} \sim R^{108}$ は、それぞれ独立に、水素、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シクロアルキル基、置換もしくは無置換のアリール基、置換もしくは無置換のヘテロアリール基であり、少なくとも一つの水素原子がフッ素原子で置換された基である。

【0089】

$R^{101} \sim R^{108}$ の具体例としては、例えば、直鎖状フルオロアルキル基、フルオロアリール基等が挙げられる。

40

【0090】

直鎖状フルオロアルキル基としては、例えば、トリフルオロメチル基、ペンタフルオロエチル基、ヘプタフルオロプロピル基、ノナフルオロブチル基、トリデカフルオロヘキシル基、ノナデカフルオロオクチル基、2, 2, 2-トリフルオロエチル基、2, 2, 3, 3, 3-ペンタフルオロプロピル基、2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5, 5-ノナフルオロペンチル基、2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6, 7, 7-トリデカフルオロヘプチル基、2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6, 7, 7, 8, 8, 9, 9, 9-ヘキサデカフルオロノニル基、3, 3, 3-トリフルオロプロピル基、3, 3, 4, 4, 4-ペンタフルオロブチル基、2, 2, 3, 3, 4, 4, 4-ヘプタフルオロ-1-ブチル基、3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6, 6-ノナフルオロヘキシル基、3, 3, 4, 4,

50

5, 5, 6, 6, 7, 7, 8, 8, 8-トリデカフルオロオクチル基、3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6, 7, 7, 8, 8, 9, 9, 10, 10, 10-ヘプタデカフルオロデシル基、4, 4, 4-トリフルオロブチル基、4, 4, 5, 5, 5-ペンタフルオロペンチル基、4, 4, 5, 5, 6, 6, 7, 7, 7-ノナフルオロヘプチル基、4, 4, 5, 5, 6, 6, 7, 7, 8, 8, 9, 9, 9-トリデカフルオロノニル基、5, 5, 5-トリフルオロペンチル基、5, 5, 6, 6, 6-ペンタフルオロヘキシル基、5, 5, 6, 6, 7, 7, 8, 8, 8-ノナフルオロオクチル基、5, 5, 6, 6, 7, 7, 8, 8, 9, 9, 10, 10, 10-トリデカフルオロデシル基、6, 6, 6-トリフルオロヘキシル基、6, 6, 7, 7, 7-ペンタフルオロヘプチル基、6, 6, 7, 7, 8, 8, 9, 9, 9-ノナフルオロノニル基、7, 7, 7-トリフルオロヘプチル基、7, 7, 8, 8, 8-ペンタフルオロオクチル基、7, 7, 8, 8, 9, 9, 10, 10, 10-ノナフルオロデシル基、9, 9, 9-トリフルオロノニル基、9, 9, 10, 10, 10-ペンタフルオロデシル基等が挙げられる。

10

【0091】

フルオロアリアル基としては、例えば、ペンタフルオロフェニル基、2, 3, 4, 5-テトラフルオロフェニル基、2, 3, 5, 6-テトラフルオロフェニル基、2, 3, 5-トリフルオロフェニル基、2, 4, 5-トリフルオロフェニル基、3, 4, 5-トリフルオロフェニル基、2, 4, 6-トリフルオロフェニル基、2, 4-ジフルオロフェニル基、3, 4-ジフルオロフェニル基、3, 5-ジフルオロフェニル基、2-フルオロフェニル基、3-フルオロフェニル基、4-フルオロフェニル基、3-トリフルオロメチルフェニル基、4-トリフルオロメチルフェニル基、2, 3-ビス(トリフルオロメチル)フェニル基、2, 4-ビス(トリフルオロメチル)フェニル基、2, 5-ビス(トリフルオロメチル)フェニル基、2, 6-ジビス(トリフルオロメチル)フェニル基、3, 5-ビス(トリフルオロメチル)フェニル基、2, 3, 4-トリス(トリフルオロメチル)フェニル基、2, 3, 5-トリス(トリフルオロメチル)フェニル基、2, 4, 5-トリス(トリフルオロメチル)フェニル基、2, 4, 6-トリス(トリフルオロメチル)フェニル基、2, 3, 4, 5-テトラキス(トリフルオロメチル)フェニル基、2, 3, 4, 6-テトラキス(トリフルオロメチル)フェニル基、2, 3, 5, 6-テトラキス(トリフルオロメチル)フェニル基、2, 3, 4, 5, 6-ペンタ(トリフルオロメチル)フェニル基、3-トリフルオロメチルナフチル基、4-トリフルオロメチルナフチル基、3, 5-ビス(トリフルオロメチル)ナフチル基等が挙げられる。より好ましくは、3, 5-ビス(トリフルオロメチル)フェニル基である。

20

30

【0092】

フッ素原子を含む基に含有されるフッ素原子の数は、好ましくは1~30個であり、より好ましくは1~20個である。

【0093】

フッ素原子を含む基のより好ましい例は、含フッ素アシル基(一般式(3))、含フッ素エステル基(一般式(4))、含フッ素アミド基(一般式(5))、含フッ素スルホン基(一般式(6))、含フッ素スルホン酸エステル基(一般式(7))、含フッ素スルホンアミド基(一般式(8))である。これらの基は、ピロメテンハウ素錯体骨格の共役を広げることなく、ピロメテンハウ素錯体骨格の電子密度を低減することができる。そのため、一般式(1)で表される化合物について、発光効率および色純度を損なうことなく、耐久性を向上させることができる。故に、これらの基は、フッ素原子を含む基としてより好ましい。

40

【0094】

フッ素原子を含む基の特に好ましい例は、含フッ素エステル基(一般式(4))である。フッ素原子を含む基が含フッ素エステル基である場合、ピロメテンハウ素錯体骨格の共役を広げることなく、ピロメテンハウ素錯体骨格の電子密度を程よく低減することができる。そのため、一般式(1)で表される化合物について、発光効率および色純度を損なうことなく、耐久性をより向上させることができる。故に、含フッ素エステル基は、フッ素

50

原子を含む基として特に好ましい。

【0095】

一般式(1)において、 R^1 、 R^3 、 R^4 および R^6 のうちの少なくとも一つは、置換もしくは無置換のアルキル基や置換もしくは無置換のアリール基、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い。何故ならば、 R^1 、 R^3 、 R^4 および R^6 のうちの少なくとも一つが上記のいずれかの基である場合の方が、 R^1 、 R^3 、 R^4 および R^6 が全て水素の場合に比べ、一般式(1)で表される化合物のより良い熱的安定性および光安定性を示すからである。

【0096】

一般式(1)において、 R^1 、 R^3 、 R^4 および R^6 のうちの少なくとも一つが置換もしくは無置換のアルキル基である場合、色純度の優れた発光を得られる。この場合、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、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、この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、*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、このアルキル基として、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、このアルキル基として、メチル基も好ましく用いられる。

【0097】

一般式(1)において、 R^1 、 R^3 、 R^4 および R^6 が全て、それぞれ同じでも異なってもよく、置換もしくは無置換のアルキル基である場合、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。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。

【0098】

一般式(1)において、 R^1 、 R^3 、 R^4 および R^6 のうちの少なくとも一つは、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。この場合、光安定性がより向上する。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、ナフチル基が好ましく、さらに好ましくは、フェニル基、ビフェニル基であり、フェニル基が特に好ましい。

【0099】

一般式(1)において、 R^1 、 R^3 、 R^4 および R^6 のうちの少なくとも一つが置換もしくは無置換のヘテロアリール基である場合、ヘテロアリール基としては、ピリジル基、キノリニル基、チエニル基が好ましく、ピリジル基、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。

【0100】

一般式(1)において、 R^1 、 R^3 、 R^4 および R^6 が全て、それぞれ同じでも異なってもよく、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場合、より良い熱的安定性および光安定性を示すため、好ましい。

【0101】

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。

【0102】

特に、 R^1 、 R^3 、 R^4 および R^6 が全て、それぞれ同じでも異なってもよく、置換もしくは無置換のアリール基である場合、例えば、 $R^1 \neq R^4$ 、 $R^3 \neq R^6$ 、 $R^1 \neq R^3$ または $R^4 \neq R^6$ 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

10

20

30

40

50

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。

【0103】

中でも、 $R^1 \neq R^3$ または $R^4 \neq R^6$ であることが、発光効率と色純度とをバランスよく向上させるという観点から、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一つ以上導入し、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最大限に向上させることができる。また、 $R^1 \neq R^3$ または $R^4 \neq R^6$ 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、 $R^1 = R^4$ および $R^3 = R^6$ であることがより好ましい。

10

【0104】

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。電子供与性基としては、アルキル基やアルコキシ基等が挙げられる。特に、炭素数1～8のアルキル基または炭素数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、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、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、ピロメテンホウ素錯体骨格との結合位置に対してメタ位また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

20

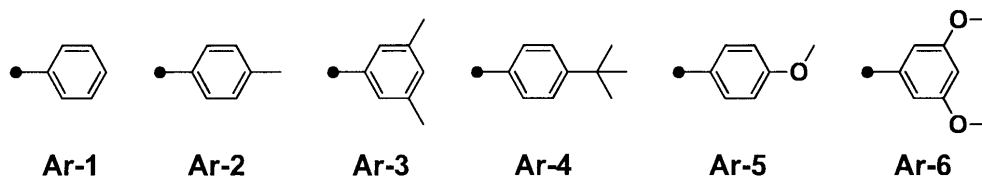
【0105】

R^1 、 R^3 、 R^4 および R^6 が全て、それぞれ同じでも異なってもよく、置換もしくは無置換のアリール基である場合、これらの R^1 、 R^3 、 R^4 および R^6 は、それぞれ以下の *Ar*-1～*Ar*-6 から選ばれることが好ましい。この場合、 R^1 、 R^3 、 R^4 および R^6 の好ましい組み合わせとしては、表1-1～表1-11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。

【0106】

【化5】

30



【0107】

【表 1 - 1】

(表1-1)

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

10

20

30

【0 1 0 8】

【表 1 - 2】

(表1-2)

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

10

20

30

【0 1 0 9】

【表 1 - 3】

(表1-3)

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

10

20

30

【0 1 1 0】

【表 1 - 4】

(表1-4)

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

10

20

30

【0 1 1 1】

【表 1 - 5】

(表1-5)

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

10

20

30

【 0 1 1 2 】

【表 1 - 6】

(表1-6)

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

10

20

30

【 0 1 1 3】

【表 1 - 7】

(表1-7)

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

10

20

30

【 0 1 1 4 】

【表 1 - 8】

(表1-8)

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

10

20

30

【0 1 1 5】

【表 1 - 9】

(表1-9)

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

10

20

30

【 0 1 1 6 】

【表 1 - 1 0】

(表1-10)

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

10

20

30

【 0 1 1 7】

【表 1 - 1 1】

(表1-11)

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

【0 1 1 8】

一般式(1)において、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の低下、すなわち、当該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が水素である場合、この水素の反応性が高いため、この水素と空気中の水分や酸素とが容易に反応してしまう。このことは、一般式(1)で表される化合物の分解を引き起こす。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、確かに反応性は低下するが、色変換組成物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。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い。例えば、R⁷として、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シクロアルキル基、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のいずれかであることが好ましい。

【0 1 1 9】

R⁷は、置換もしくは無置換のアリール基であることが、光安定性の観点から好ましい。R⁷が置換もしくは無置換のアリール基であるとき、発光波長を損なうことなく、分子の凝集を防ぐことができ、これにより、一般式(1)で表される化合物の耐久性を向上させることができる。具体的には、R⁷として、置換もしくは無置換のフェニル基、置換もしくは無置換のビフェニル基、置換もしくは無置換のターフェニル基、置換もしくは無置換のナフチル基が好ましく、置換もしくは無置換のフェニル基、置換もしくは無置換のビ

フェニル基、置換もしくは無置換のターフェニル基がより好ましい。

【0120】

また、溶媒との相溶性を高めるという観点や発光効率を向上させるという観点からは、 R^7 が置換される場合における置換基としては、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コキシ基であることが好ましく、メチル基、エチル基、イソプロピル基、tert-ブチル基、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、メトキシ基が特に好ましい。何故ならば、分子同士の凝集による消光を防ぐことができるからである。

【0121】

R^7 の特に好ましい例としては、置換もしくは無置換のフェニル基が挙げられる。具体的には、フェニル基、2-トリル基、3-トリル基、4-トリル基、2-メトキシフェニル基、3-メトキシフェニル基、4-メトキシフェニル基、4-エチルフェニル基、4-n-プロピルフェニル基、4-イソプロピルフェニル基、4-n-ブチルフェニル基、4-tert-ブチルフェニル基、2, 4-キシリル基、3, 5-キシリル基、2, 6-キシリル基、2, 4-ジメトキシフェニル基、3, 5-ジメトキシフェニル基、2, 6-ジメトキシフェニル基、2, 4, 6-トリメチルフェニル基（メシチル基）、2, 4, 6-トリメトキシフェニル基、フルオレニル基等が挙げられる。

【0122】

また、一般式(1)で表される化合物の酸素に対する安定性の向上によって耐久性を向上させるという観点から、 R^7 が置換される場合における置換基としては、電子求引基であることが好ましい。好ましい電子求引基としては、フッ素、含フッ素アルキル基、置換もしくは無置換のアシル基、置換もしくは無置換のエステル基、置換もしくは無置換のアミド基、置換もしくは無置換のスルホニル基、ニトロ基、シリル基、シアノ基または芳香族複素環基等が挙げられる。

【0123】

R^7 の特に好ましい例としては、フルオロフェニル基、トリフルオロメチルフェニル基、カルボキシラートフェニル基、アシルフェニル基、アミドフェニル基、スルホニルフェニル基、ニトロフェニル基、シリルフェニル基またはベンゾニトリル基が挙げられる。より具体的には、2-フルオロフェニル基、3-フルオロフェニル基、4-フルオロフェニル基、2, 3-ジフルオロフェニル基、2, 4-ジフルオロフェニル基、2, 5-ジフルオロフェニル基、2, 6-ジフルオロフェニル基、3, 5-ジフルオロフェニル基、2, 3, 4-トリフルオロフェニル基、2, 3, 5-トリフルオロフェニル基、2, 4, 5-トリフルオロフェニル基、2, 4, 6-トリフルオロフェニル基、2, 3, 4, 5-テトラフルオロフェニル基、2, 3, 4, 6-テトラフルオロフェニル基、2, 3, 5, 6-テトラフルオロフェニル基、2, 3, 4, 5, 6-ペンタフルオロフェニル基、2-トリフルオロメチルフェニル基、3-トリフルオロメチルフェニル基、4-トリフルオロメチルフェニル基、2, 3-ビス（トリフルオロメチル）フェニル基、2, 4-ビス（トリフルオロメチル）フェニル基、2, 5-ビス（トリフルオロメチル）フェニル基、2, 6-ジビス（トリフルオロメチル）フェニル基、3, 5-ビス（トリフルオロメチル）フェニル基、2, 3, 4-トリリス（トリフルオロメチル）フェニル基、2, 3, 5-トリリス（トリフルオロメチル）フェニル基、2, 4, 5-トリリス（トリフルオロメチル）フェニル基、2, 4, 6-トリリス（トリフルオロメチル）フェニル基、2, 3, 4, 5-テトラキス（トリフルオロメチル）フェニル基、2, 3, 4, 6-テトラキス（トリフルオロメチル）フェニル基、2, 3, 5, 6-テトラキス（トリフルオロメチル）フェニル基、2, 3, 4, 5, 6-ペンタ（トリフルオロメチル）フェニル基、2-メトキシカルボニルフェニル基、3-メトキシカルボニルフェニル基、4-メトキシカルボニルフェニル基、2, 3, 4-トリリス（トリフルオロメチル）フェニル基、2, 3, 5-トリリス（トリフルオロメチル）フェニル基、2, 4, 5-トリリス（トリフルオロメチル）フェニル基、2, 4, 6-トリリス（トリフルオロメチル）フェニル基、2, 3, 4, 5-テトラキス（トリフルオロメチル）フェニル基、2, 3, 4, 6-テトラキス（トリフルオロメチル）フェニル

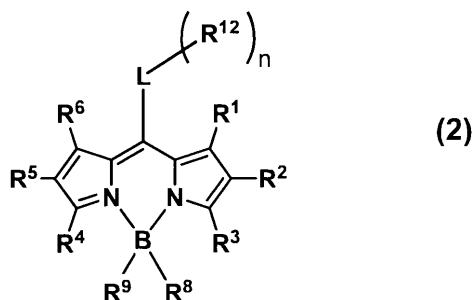
基、2, 3, 5, 6-テトラキス(トリフルオロメチル)フェニル基、2, 3, 4, 5, 6-ペンタ(トリフルオロメチル)フェニル基、3, 5-ビス(メトキシカルボニル)フェニル基、3, 5-ビス(メトキシカルボニル)フェニル基、4-ニトロフェニル基、4-トリメチルシリルフェニル基、3, 5-ビス(トリメチルシリル)フェニル基または4-ベンゾニトリル基が挙げられる。これらの中でも、より好ましいものは、3-メトキシカルボニルフェニル基、4-メトキシカルボニルフェニル基、3, 5-ビス(メトキシカルボニル)フェニル基、3-トリフルオロメチルフェニル基、4-トリフルオロメチルフェニル基、3, 5-ビス(トリフルオロメチル)フェニル基である。

【0124】

一般式(1)で表される化合物のさらに好ましい例としては、下記一般式(2)で表される構造の化合物が挙げられる。

【0125】

【化6】



【0126】

一般式(2)において、 $R^1 \sim R^6$ 、 R^8 および R^9 は、一般式(1)におけるものと同様である。 R^{12} は、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。Lは、置換もしくは無置換のアリーレン基、または置換もしくは無置換のヘテロアリーレン基である。nは1~5の整数である。nが2~5のとき、n個の R^{12} は、それぞれ同じでも異なってもよい。

【0127】

一般式(2)で表される化合物は、ピロメテンホウ素錯体骨格に置換もしくは無置換のアリーレン基、または置換もしくは無置換のヘテロアリーレン基を有する。置換もしくは無置換のアリーレン基、または置換もしくは無置換のヘテロアリーレン基は、適度な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る。この結果、一般式(2)で表される化合物の発光効率や耐久性がより向上する。

【0128】

一般式(2)において、Lは、置換もしくは無置換のアリーレン基であることが、光安定性の観点から好ましい。Lが置換もしくは無置換のアリーレン基であるとき、発光波長を損なうことなく、分子の凝集を防ぐことができる。この結果、一般式(2)で表される化合物の耐久性を向上させることができる。アリーレン基としては、具体的には、フェニレン基、ビフェニレン基、ナフチレン基が好ましい。

【0129】

また、溶媒との相溶性を高めるという観点や発光効率を向上させるという観点から、Lが置換される場合における置換基としては、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コキシ基であることが好ましく、メチル基、エチル基、イソプロピル基、tert-ブチル基、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、メトキシ基が特に好ましい。何故ならば、分子同士の凝集による消光を防ぐことができるからである。

【0130】

また、一般式(2)で表される化合物の酸素に対する安定性の向上によって耐久性を向上させるという観点から、Lが置換される場合における置換基としては、電子求引基であることが好ましい。好ましい電子求引基としては、フッ素、含フッ素アルキル基、置換も

しくは無置換のアシル基、置換もしくは無置換のエステル基、置換もしくは無置換のアミド基、置換もしくは無置換のスルホニル基、ニトロ基、シリル基、シアノ基または芳香族複素環基等が挙げられる。

【0131】

一般式(2)において、 R^{12} は、置換もしくは無置換のアリール基であることが、光安定性の観点から好ましい。 R^{12} が置換もしくは無置換のアリール基であるとき、発光波長を損なうことなく、分子の凝集を防ぐことができ、これにより、一般式(2)で表される化合物の耐久性を向上させることができる。具体的には、このアリール基として、置換もしくは無置換のフェニル基、置換もしくは無置換のビフェニル基、置換もしくは無置換のターフェニル基、置換もしくは無置換のナフチル基が好ましく、置換もしくは無置換のフェニル基、置換もしくは無置換のビフェニル基、置換もしくは無置換のターフェニル基がより好ましい。

10

【0132】

また、溶媒との相溶性を高めるという観点や発光効率を向上させるという観点から、 R^{12} が置換される場合における置換基としては、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コキシ基であることが好ましく、メチル基、エチル基、イソプロピル基、tert-ブチル基、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、メトキシ基が特に好ましい。何故ならば、分子同士の凝集による消光を防ぐことができるからである。

【0133】

R^{12} の特に好ましい例としては、置換もしくは無置換のフェニル基が挙げられる。具体的には、フェニル基、2-トリル基、3-トリル基、4-トリル基、2-メトキシフェニル基、3-メトキシフェニル基、4-メトキシフェニル基、4-エチルフェニル基、4-n-プロピルフェニル基、4-イソプロピルフェニル基、4-n-ブチルフェニル基、4-t-ブチルフェニル基、2, 4-キシリル基、3, 5-キシリル基、2, 6-キシリル基、2, 4-ジメトキシフェニル基、3, 5-ジメトキシフェニル基、2, 6-ジメトキシフェニル基、2, 4, 6-トリメチルフェニル基(メシチル基)、2, 4, 6-トリメトキシフェニル基、フルオレニル基等が挙げられる。

20

【0134】

また、一般式(2)で表される化合物の酸素に対する安定性の向上によって耐久性を向上させるという観点から、 R^{12} が置換される場合における置換基としては、電子求引基であることが好ましい。好ましい電子求引基としては、フッ素、含フッ素アルキル基、置換もしくは無置換のアシル基、置換もしくは無置換のアルコキシカルボニル基、置換もしくは無置換のアリールオキシカルボニル基、置換もしくは無置換のエステル基、置換もしくは無置換のアミド基、置換もしくは無置換のスルホニル基、ニトロ基、シリル基、シアノ基または芳香族複素環基等が挙げられる。

30

【0135】

R^{12} の特に好ましい例としては、フルオロフェニル基、トリフルオロメチルフェニル基、アルコキシカルボニルフェニル基、アリールオキシカルボニルフェニル基、アシルフェニル基、アミドフェニル基、スルホニルフェニル基、ニトロフェニル基、シリルフェニル基またはベンゾニトリル基が挙げられる。より具体的には、2-フルオロフェニル基、3-フルオロフェニル基、4-フルオロフェニル基、2, 3-ジフルオロフェニル基、2, 4-ジフルオロフェニル基、2, 5-ジフルオロフェニル基、2, 6-ジフルオロフェニル基、3, 5-ジフルオロフェニル基、2, 3, 4-トリフルオロフェニル基、2, 3, 5-トリフルオロフェニル基、2, 4, 5-トリフルオロフェニル基、2, 4, 6-トリフルオロフェニル基、2, 3, 4, 5-テトラフルオロフェニル基、2, 3, 4, 6-テトラフルオロフェニル基、2, 3, 5, 6-テトラフルオロフェニル基、2, 3, 4, 5, 6-ペンタフルオロフェニル基、2-トリフルオロメチルフェニル基、3-トリフルオロメチルフェニル基、4-トリフルオロメチルフェニル基、2, 3-ビス(トリフルオロメチル)フェニル基、2, 4-ビス(トリフルオロメチル)フェニル基、2, 5-ビス

40

50

ス（トリフルオロメチル）フェニル基、2，6－ジビス（トリフルオロメチル）フェニル基、3，5－ビス（トリフルオロメチル）フェニル基、2，3，4－トリス（トリフルオロメチル）フェニル基、2，3，5－トリス（トリフルオロメチル）フェニル基、2，4，5－トリス（トリフルオロメチル）フェニル基、2，4，6－トリス（トリフルオロメチル）フェニル基、2，3，4，5－テトラキス（トリフルオロメチル）フェニル基、2，3，4，6－テトラキス（トリフルオロメチル）フェニル基、2，3，5，6－テトラキス（トリフルオロメチル）フェニル基、2，3，4，5，6－ペンタ（トリフルオロメチル）フェニル基、2－メトキシカルボニルフェニル基、3－メトキシカルボニルフェニル基、4－メトキシカルボニルフェニル基、3，5－ビス（メトキシカルボニル）フェニル基、4－ニトロフェニル基、4－トリメチルシリルフェニル基、3，5－ビス（トリメチルシリル）フェニル基または4－ベンゾニトリル基が挙げられる。これらの中でも、より好ましいものは、4－メトキシカルボニルフェニル基、3，5－ビス（トリフルオロメチル）フェニル基である。

10

【0136】

より高い発光量子収率を与えるという観点、より熱分解しづらいという観点、および光安定性の観点から、一般式（2）のLは、置換もしくは無置換のフェニレン基であることが好ましい。

【0137】

一般式（2）において、整数nは、1または2であることが好ましい。すなわち、一般式（2）で表される化合物には、 $R^{1,2}$ が一つもしくは二つ含まれることが好ましい。嵩高い置換基もしくは電子求引性基をもつ $R^{1,2}$ が当該化合物に一つもしくは二つ含まれることにより、一般式（2）で表される化合物の高い発光量子収率を維持したまま、耐久性を向上させることができる。

20

【0138】

一般式（2）において、 $n=2$ であることが好ましい。すなわち、一般式（2）で表される化合物に $R^{1,2}$ が二つ含まれることが好ましい。嵩高い置換基もしくは電子求引性基をもつ $R^{1,2}$ が当該化合物に必ず二つ含まれることにより、一般式（2）で表される化合物の高い発光量子収率を維持したまま、耐久性をより向上させることができる。 n が2のとき、二つの $R^{1,2}$ は、それぞれ同じでも異なってもよい。

【0139】

一般式（1）、（2）において、 R^8 および R^9 は、アルキル基、アリール基、ヘテロアリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、フッ素、含フッ素アルキル基、含フッ素ヘテロアリール基、含フッ素アリール基、含フッ素アルコキシ基、含フッ素アリールオキシ基、シアノ基が好ましい。励起光に対して安定でより高い発光量子収率が得られるという観点から、 R^8 および R^9 は、フッ素、含フッ素アルキル基、含フッ素アルコキシ基または含フッ素アリール基、シアノ基であることがより好ましい。これらの中でも、合成の容易さの観点から、 R^8 および R^9 は、フッ素、シアノ基であることがさらに好ましい。

30

【0140】

ここで、含フッ素アリール基とは、フッ素を含むアリール基である。含フッ素アリール基として、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およ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る。含フッ素ヘテロアリール基として、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およ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る。含フッ素アルキル基として、例えば、トリフルオロメチル基やペンタフルオロエチル基等が挙げられる。

40

【0141】

特に、 R^8 もしくは R^9 のいずれか一つは、シアノ基であることが好ましい。シアノ基は強い電子求引性を有するため、ピロメテンハウ素錯体骨格のハウ素上の置換基としてシアノ基を導入することで、ピロメテンハウ素錯体骨格の電子密度を下げるができる。これにより、一般式（1）または一般式（2）で表される化合物の酸素に対する安定性が

50

より向上し、この結果、当該化合物の耐久性をより向上させることができる。

【0142】

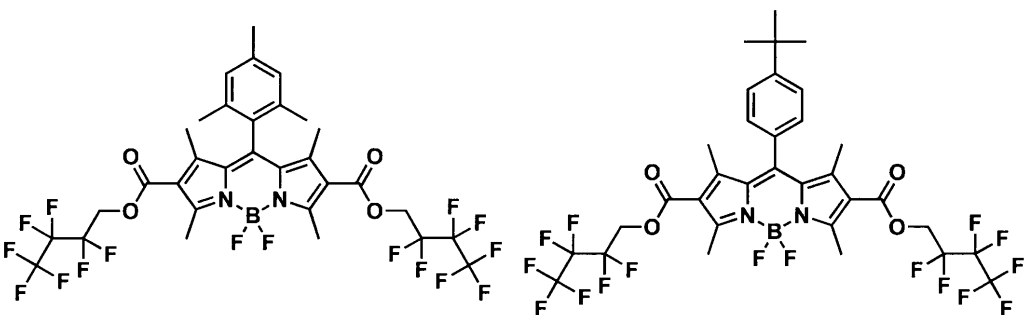
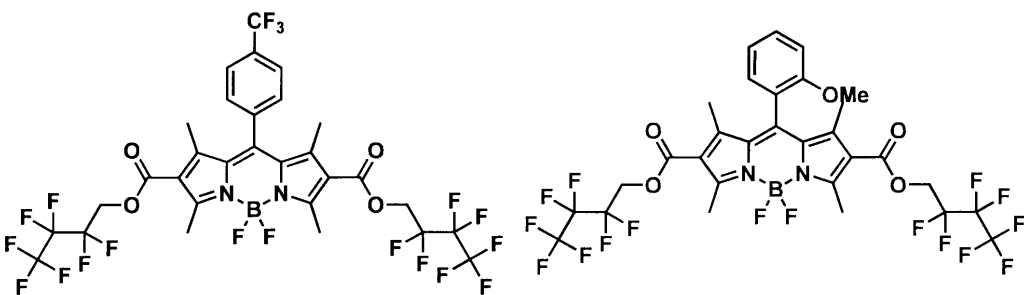
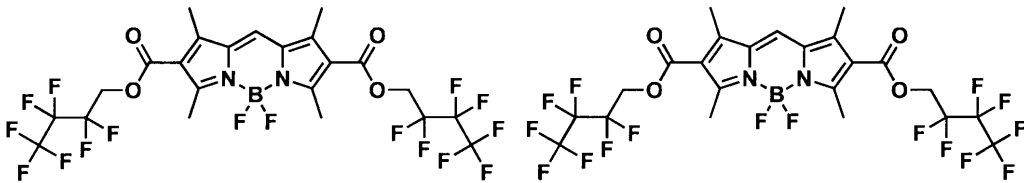
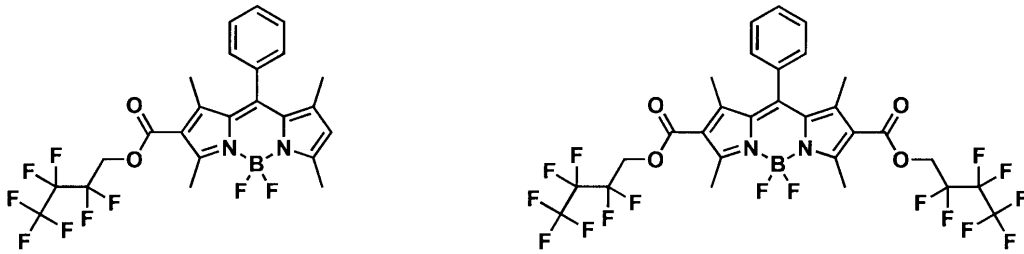
さらに、 R^8 もしくは R^9 は、いずれもシアノ基であることが好ましい。ホウ素上に二つのシアノ基を導入することで、ピロメテンホウ素錯体骨格の電子密度をさらに下げることができる。これにより、一般式(1)または一般式(2)で表される化合物の酸素に対する安定性がさらに向上し、この結果、当該化合物の耐久性を大幅に向上させることができる。

【0143】

以下に、一般式(1)で表される化合物の一例を示すが、当該化合物は、これらに限定されるものではない。

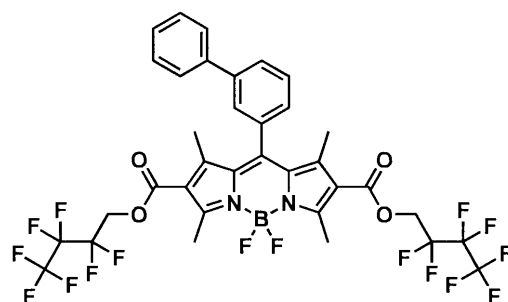
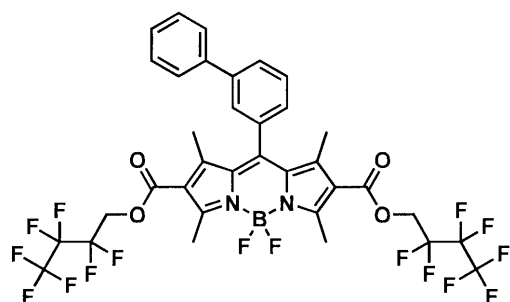
【0144】

【化7】

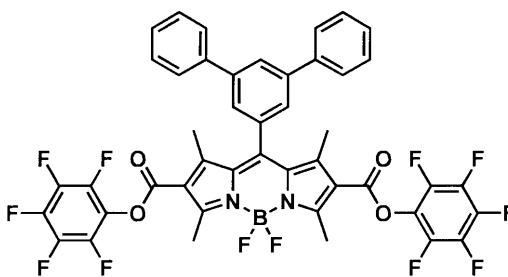
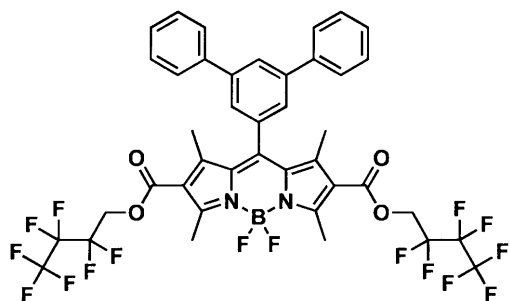


【 0 1 4 5 】

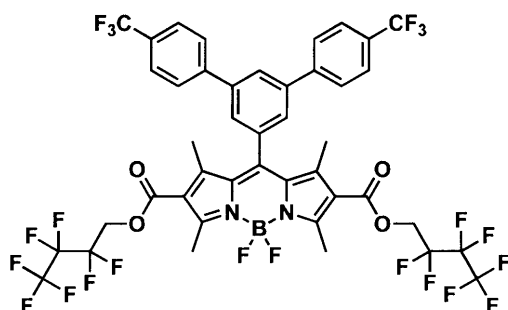
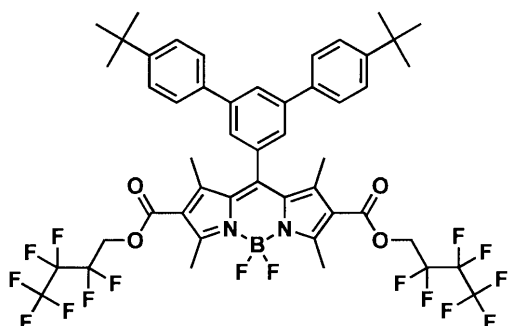
【化 8】



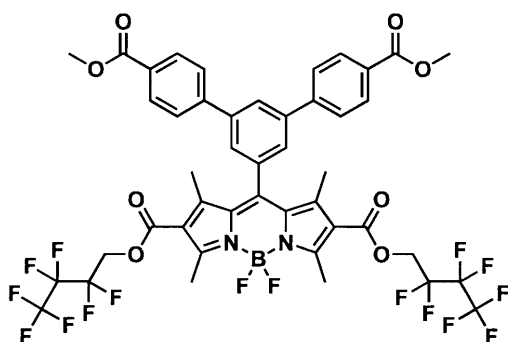
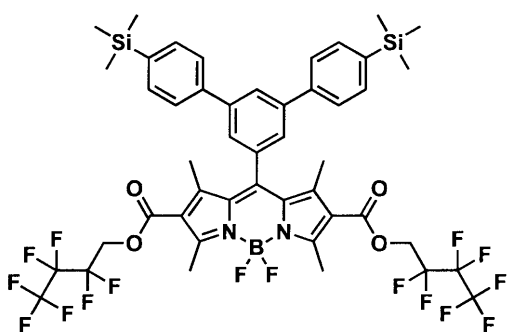
10



20



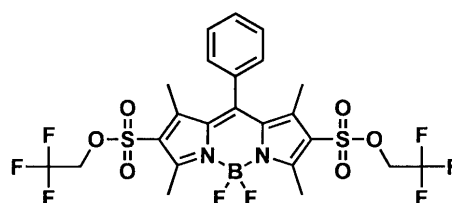
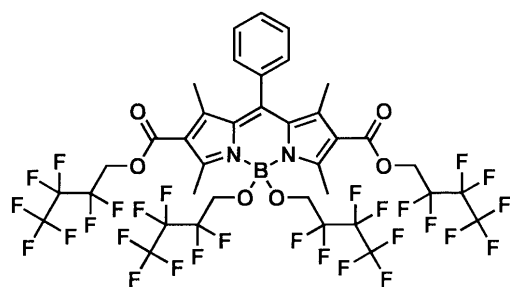
30



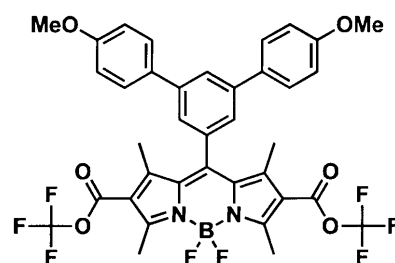
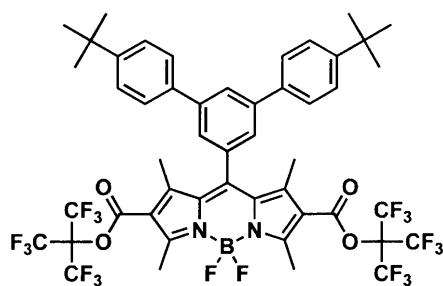
40

【 0 1 4 6 】

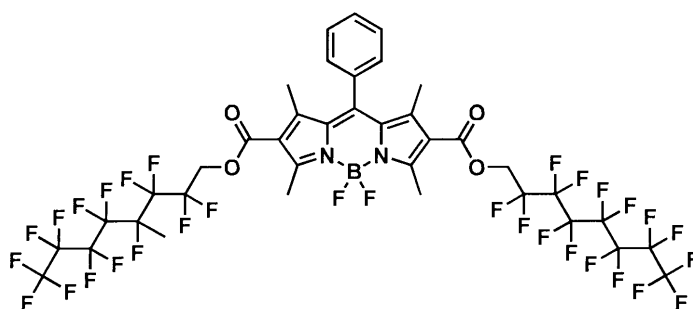
【化 9】



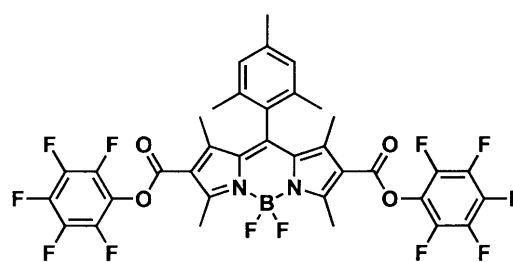
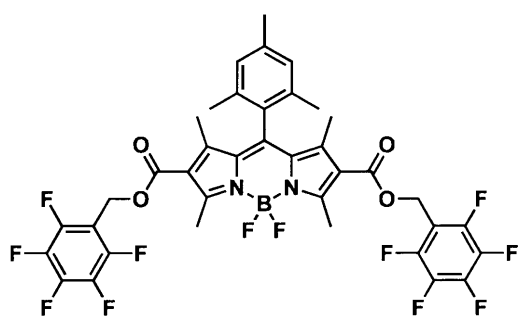
10



20

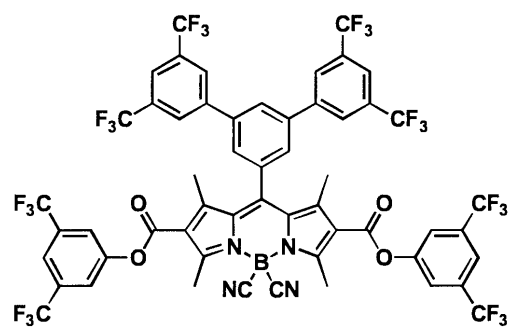
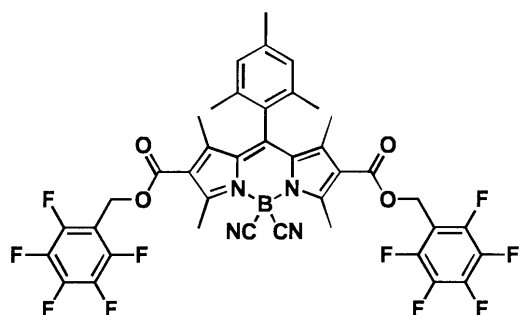


30

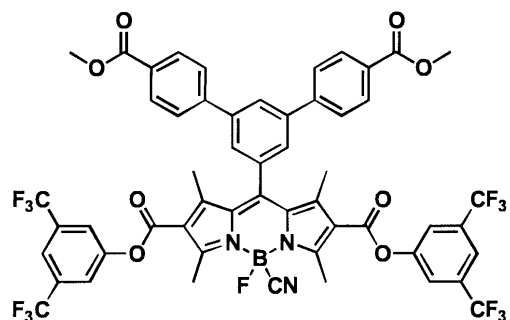
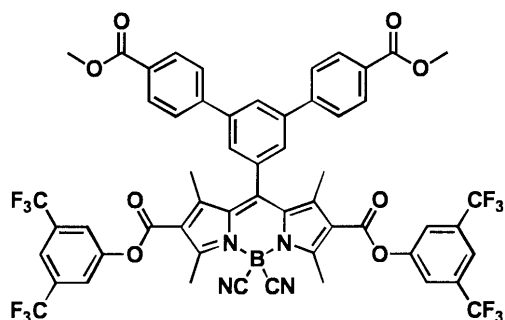


【 0 1 4 7 】

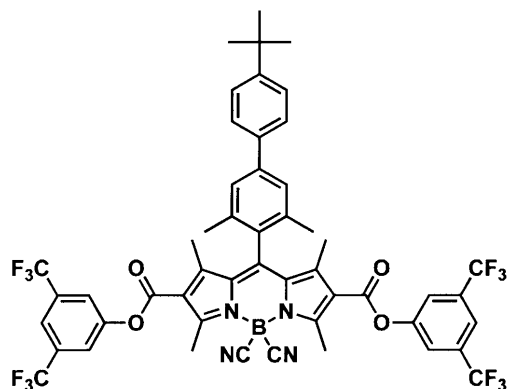
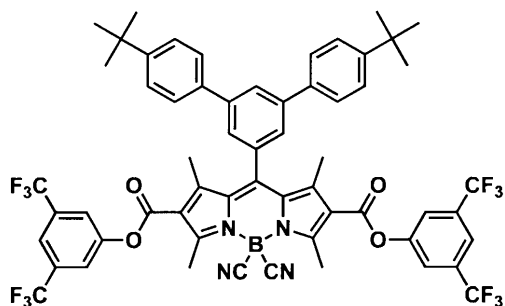
【化 10】



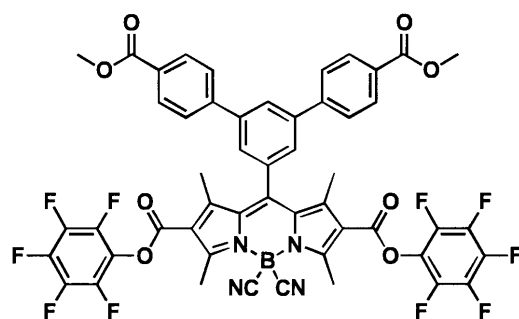
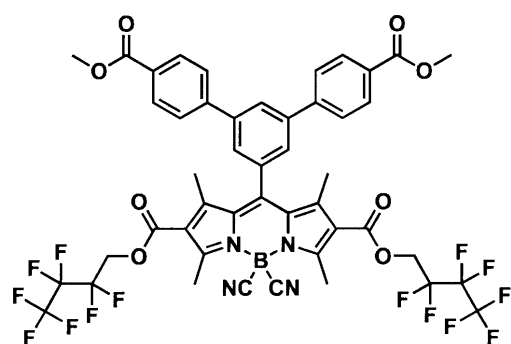
10



20



30



40

【0148】

一般式(1)で表される化合物は、例えば、特表平8-509471号公報や特開2000-208262号公報に記載の方法で製造することができる。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。

【0149】

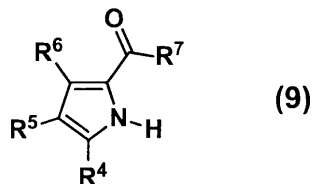
また、ピロメテンフッ化ホウ素錯体の合成については、J. Org. Chem., vol. 64, No. 21, pp. 7813-7819 (1999)、Angew. Chem., Int. Ed. Engl., vol. 36, pp. 1333-1335 (1997)

50

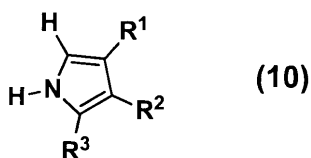
）等に記載されている方法を参考にして、一般式（１）で表される化合物を合成することができる。例えば、下記一般式（９）で表される化合物と一般式（１０）で表される化合物とをオキシ塩化リン存在下、１，２－ジクロロエタン中で加熱した後、下記一般式（１１）で表される化合物をトリエチルアミン存在下、１，２－ジクロロエタン中で反応させ、これにより、一般式（１）で表される化合物を得る方法が挙げられる。しかし、本発明は、これに限定されるものではない。ここで、 $R^1 \sim R^9$ は、上記の説明と同様である。Jは、ハロゲンを表す。

【０１５０】

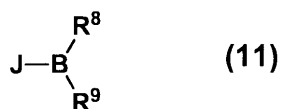
【化１１】



10



20



【０１５１】

さらに、アリール基やヘテロアリール基の導入の際は、ハロゲン化誘導体とボロン酸あるいはボロン酸エステル化誘導体とのカップリング反応を用いて炭素－炭素結合を生成する方法が挙げられるが、本発明は、これに限定されるものではない。同様に、アミノ基や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でのハロゲン化誘導体とアミンあるいはカルバゾール誘導体とのカップリング反応を用いて炭素－窒素結合を生成する方法が挙げられるが、本発明は、これに限定されるものではない。

30

【０１５２】

一般式（１）で表される化合物は、励起光を用いることによってピーク波長が５００ nm以上５８０ nm以下の領域に観測される発光を呈することが好ましい。以後、ピーク波長が５００ nm以上５８０ nm以下の領域に観測される発光は、「緑色の発光」という。

【０１５３】

一般式（１）で表される化合物は、波長４３０ nm以上５００ nm以下の範囲の励起光を用いることによって緑色の発光を呈することが好ましい。一般に、励起光は、そのエネルギーが大きいほど、発光材料の分解を引き起こしやすい。しかし、波長４３０ nm以上５００ nm以下の範囲の励起光は、比較的小さい励起エネルギーのものである。このため、色変換組成物中の発光材料の分解を引き起こすことなく、色純度の良好な緑色の発光が得られる。

40

【０１５４】

一般式（１）で表される化合物は、励起光を用いることによってピーク波長が５８０ nm以上７５０ nm以下の領域に観測される発光を呈することが好ましい。以後、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は、「赤色の発光」という。

【０１５５】

一般式（１）で表される化合物は、波長４３０ nm以上５８０ nm以下の範囲の励起光を用いることによって赤色の発光を呈することが好ましい。一般に、励起光は、そのエネルギーが大きいほど、発光材料の分解を引き起こしやすい。しかし、波長４３０ nm以上５８０ nm以下の範囲の励起光は、比較的小さい励起エネルギーのものである。このため

50

、色変換組成物中の発光材料の分解を引き起こすことなく、色純度の良好な赤色の発光が得られる。

【0156】

本発明の実施の形態に係るピロメテンハウ素錯体は、上述したように高い発光効率と高い耐久性とを両立できることから、色変換フィルタの他に、色素増感型太陽電池の色素、有機太陽電池等の光電変換色素、有機エレクトロルミネッセンスや色素レーザー等の発光性色素、農園芸用フィルム用色素、顔料等の着色材料として用いられることができる。

【0157】

＜色変換組成物＞

本発明の実施の形態に係る色変換組成物について詳細に説明する。本発明の実施の形態に係る色変換組成物は、光源等の発光体からの入射光を、その入射光よりも長波長の光に変換するものであって、一般式（1）で表される化合物（ピロメテンハウ素錯体）およびバインダー樹脂を含むことが好ましい。

10

【0158】

本発明の実施の形態に係る色変換組成物は、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、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、ルブレンなど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、クマリン誘導体やローダミン誘導体等の有機発光材料を添加することができる。その他、有機発光材料以外でも、無機蛍光体、蛍光顔料、蛍光染料、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。

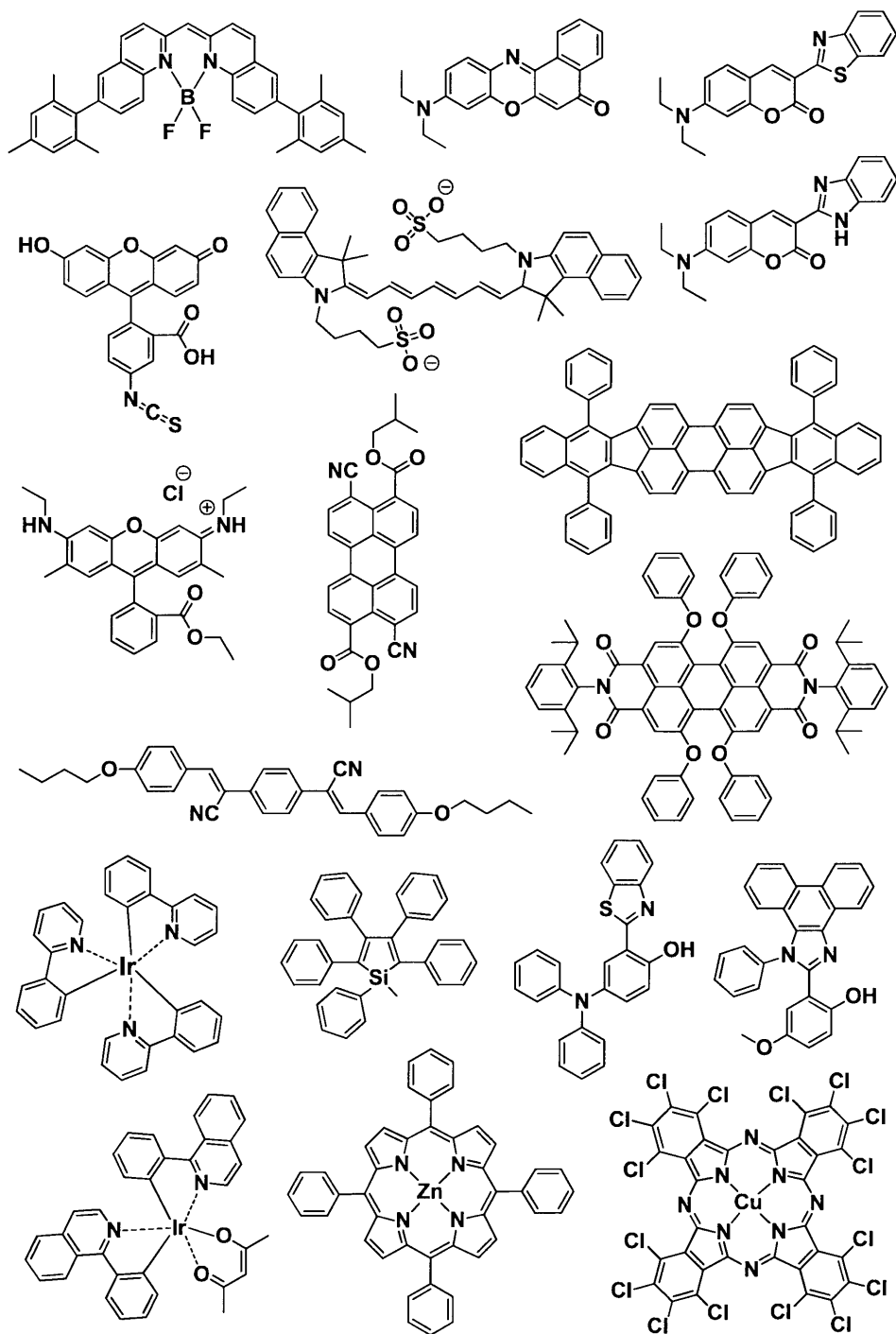
20

【0159】

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、本発明は、特にこれらに限定されるものではない。

【0160】

【化 1 2】



【0161】

本発明において、色変換組成物は、励起光を用いることにより、ピーク波長が500 nm以上580 nm以下の領域に観測される発光を呈することが好ましい。また、色変換組成物は、励起光を用いることにより、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ことが好ましい。

【0162】

すなわち、本発明の実施形態に係る色変換組成物は、以下の発光材料(a)と発光材料(b)とを含有することが好ましい。発光材料(a)は、励起光を用いることによってピーク波長が500 nm以上580 nm以下の領域に観測される発光を呈する発光材料である。発光材料(b)は、励起光もしくは発光材料(a)からの発光の少なくとも一方によって励起されることにより、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発光材料である。これらの発光材料(a)および発光材料(b)のうち

10

20

30

40

50

の少なくとも一つは、一般式(1)で表される化合物(ピロメテンハウ素錯体)であることが好ましい。また、上記の励起光として、波長430nm以上500nm以下の範囲の励起光を用いることがより好ましい。

【0163】

波長430nm以上500nm以下の範囲の励起光の一部は、本発明の実施の形態に係る色変換フィルムを一部透過するため、発光ピークが鋭い青色LEDを使用した場合、青、緑、赤の各色において鋭い形状の発光スペクトルを示し、色純度の良い白色光を得ることができる。その結果、特にディスプレイにおいては、色彩が一層鮮やかな、より大きな色域を効率的に作ることができる。また、照明用途においては、現在主流となっている青色LEDと黄色蛍光体とを組み合わせた白色LEDに比べ、特に緑色領域および赤色領域の発光特性が改善されるため、演色性が向上した好ましい白色光源を得ることができる。

10

【0164】

発光材料(a)としては、クマリン6、クマリン7、クマリン153等のクマリン誘導体、インドシアニングリーン等のシアニン誘導体、フルオレセイン、フルオレセインイソチオシアネート、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誘導体、フタロシアニングリーン等のフタロシアニン誘導体、ジイソブチル-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誘導体、他にピロメテン誘導体、スチルベン誘導体、オキサジン誘導体、ナフタルイミド誘導体、ピラジン誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、ベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾチアゾール誘導体、イミダゾピリジン誘導体、アゾール誘導体、アントラセン等の縮合アリアル環を有する化合物やその誘導体、芳香族アミン誘導体、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、発光材料(a)は、特にこれらに限定されるものではない。これらの化合物の中でも、ピロメテン誘導体は、高い発光量子収率を与え、色純度の高い発光を示すことから、特に好適な化合物である。ピロメテン誘導体の中でも、一般式(1)で表される化合物は、耐久性が大幅に向上するため、好ましい。

20

【0165】

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ルリル)-4H-ピラン等のシアニン誘導体、ローダミンB、ローダミン6G、ローダミン101、スルホローダミン101等のローダミン誘導体、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誘導体、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誘導体、他にポルフィリン誘導体、ピロメテン誘導体、オキサジン誘導体、ピラジン誘導体、ナフタセンやジベンゾジインデノペリレン等の縮合アリアル環を有する化合物やその誘導体、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、発光材料(b)は、特にこれらに限定されるものではない。これらの化合物の中でも、ピロメテン誘導体は、高い発光量子収率を与え、色純度の高い発光を示すことから、特に好適な化合物である。ピロメテン誘導体の中でも、一般式(1)で表される化合物は、耐久性が飛躍的に向上するため、好ましい。

30

【0166】

また、発光材料(a)および発光材料(b)は、双方とも一般式(1)で表される化合物である場合、高効率発光および高色純度と、高い耐久性とを両立することが可能となるため、好ましい。

40

【0167】

本発明の実施の形態に係る色変換組成物における一般式(1)で表される化合物の含有量は、化合物のモル吸光係数、発光量子収率および励起波長における吸収強度、ならびに作製するフィルムの厚みや透過率にもよるが、通常はバインダー樹脂の100重量部に対して、 1.0×10^{-4} 重量部~30重量部である。この化合物の含有量は、バインダー樹脂の100重量部に対して、 1.0×10^{-3} 重量部~10重量部であることがさらに好ましく、 1.0×10^{-2} 重量部~5重量部であることが特に好ましい。

50

【0168】

また、色変換組成物に、緑色の発光を呈する発光材料（a）と、赤色の発光を呈する発光材料（b）とを両方含有する場合、緑色の発光の一部が赤色の発光に変換されることから、上記の発光材料（a）の含有量 w_a と、発光材料（b）の含有量 w_b とは、 $w_a \geq w_b$ の関係であることが好ましい。また、これらの発光材料（a）および発光材料（b）の含有比率は、 $w_a : w_b = 1000 : 1 \sim 1 : 1$ であり、 $500 : 1 \sim 2 : 1$ であることがさらに好ましく、 $200 : 1 \sim 3 : 1$ であることが特に好ましい。ただし、含有量 w_a および含有量 w_b は、バインダー樹脂の重量に対する重量パーセントである。

【0169】

<バインダー樹脂>

バインダー樹脂は、連続相を形成するものであり、成型加工性、透明性、耐熱性等に優れる材料であればよい。バインダー樹脂の例としては、例えば、アクリル酸系、メタクリル酸系、ポリケイ皮酸ビニル系、環ゴム系等の反応性ビニル基を有する光硬化型レジスト材料、エポキシ樹脂、シリコーン樹脂（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）、ウレア樹脂、フッ素樹脂、ポリカーボネート樹脂、アクリル樹脂、ウレタン樹脂、メラミン樹脂、ポリビニル樹脂、ポリアミド樹脂、フェノール樹脂、ポリビニルアルコール樹脂、セルロース樹脂、脂肪族エステル樹脂、芳香族エステル樹脂、脂肪族ポリオレフィン樹脂、芳香族ポリオレフィン樹脂等の公知のものが挙げられる。また、バインダー樹脂としては、これらの共重合樹脂を用いても構わない。これらの樹脂を適宜設計することで、本発明の実施の形態に係る色変換組成物および色変換フィルムに有用なバインダー樹脂が得られる。これらの樹脂の中でも、フィルム化のプロセスが容易であることから、熱可塑性樹脂がさらに好ましい。熱硬化性樹脂の中でも、透明性、耐熱性等の観点から、エポキシ樹脂、シリコーン樹脂、アクリル樹脂、エステル樹脂、オレフィン樹脂またはこれらの混合物を好適に用いることができる。また、耐久性の観点から特に好ましい熱可塑性樹脂は、アクリル樹脂、エステル樹脂、シクロオレフィン樹脂である。

【0170】

また、バインダー樹脂には、添加剤として、塗布膜安定化のための分散剤やレベリング剤等を添加することも、フィルム表面の改質剤として、シランカップリング剤等の接着補助剤等を添加することも可能である。また、バインダー樹脂には、色変換材沈降抑制剤として、シリカ粒子やシリコーン微粒子等の無機粒子を添加することも可能である。

【0171】

また、バインダー樹脂は、耐熱性の観点から、シリコーン樹脂であることが特に好ましい。シリコーン樹脂の中でも、付加反応硬化型シリコーン組成物が好ましい。付加反応硬化型シリコーン組成物は、常温または $50^\circ\text{C} \sim 200^\circ\text{C}$ の温度で、加熱、硬化し、透明性、耐熱性、接着性に優れる。付加反応硬化型シリコーン組成物は、一例として、ケイ素原子に結合したアルケニル基を含有する化合物と、ケイ素原子に結合した水素原子を有する化合物とのヒドロシリル化反応により、形成される。このような材料のうち、「ケイ素原子に結合したアルケニル基を含有する化合物」としては、例えば、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、アリルトリメトキシシラン、プロペニルトリメトキシシラン、ノルボルネニルトリメトキシシラン、オクテニルトリメトキシシラン等が挙げられる。「ケイ素原子に結合した水素原子を有する化合物」としては、例えば、メチルヒドロジェンポリシロキサン、ジメチルポリシロキサンーCOーメチルヒドロジェンポリシロキサン、エチルヒドロジェンポリシロキサン、メチルヒドロジェンポリシロキサンーCOーメチルフェニルポリシロキサン等が挙げられる。また、付加反応硬化型シリコーン組成物としては、他にも、例えば特開2010-159411号公報に記載されているような公知のものを利用することができる。

【0172】

また、付加反応硬化型シリコーン組成物としては、市販されているもの、例えば、一般的なLED用途のシリコーン封止材を使用することも可能である。この具体例としては、

東レ・ダウコーニング社製のOE-6630A/B、OE-6336A/Bや信越化学工業社製のSCR-1012A/B、SCR-1016A/B等が挙げられる。

【0173】

本発明の実施の形態に係る色変換フィルム作製用の色変換組成物において、バインダー樹脂には、その他の成分として、常温での硬化を抑制してポットライフを長くするためにアセチレンアルコール等のヒドロシリル化反応遅延剤を配合することが好ましい。また、バインダー樹脂には、本発明の効果が損なわれない範囲で、必要に応じて、フェームドシリカ、ガラス粉末、石英粉末等の微粒子、酸化チタン、酸化ジルコニア、チタン酸バリウム、酸化亜鉛等の無機充填剤や顔料、難燃剤、耐熱剤、酸化防止剤、分散剤、溶剤、シランカップリング剤やチタンカップリング剤等の接着性付与剤等を配合してもよい。

10

【0174】

特に、色変換フィルムの表面平滑性の観点から、色変換フィルム作製用の組成物には、低分子量のポリジメチルシロキサン成分、シリコンオイル等を添加することが好ましい。このような成分は、この組成物の全体に対して、100ppm~2000ppm添加することが好ましく、500ppm~1000ppm添加することがさらに好ましい。

【0175】

<その他の成分>

本発明の実施の形態に係る色変換組成物は、上述した一般式(1)で表される化合物およびバインダー樹脂以外に、光安定化剤、酸化防止剤、加工および熱安定化剤、紫外線吸収剤等の耐光性安定化剤、シリコン微粒子およびシランカップリング剤等、その他の成分(添加剤)を含有してもよい。

20

【0176】

光安定化剤としては、例えば、3級アミン、カテコール誘導体およびニッケル化合物を挙げることができるが、特に限定されるものではない。また、これらの光安定化剤は、単独で使用してもよいし、複数併用してもよい。

【0177】

酸化防止剤としては、例えば、2,6-ジ-tert-ブチル-p-クレゾール、2,6-ジ-tert-ブチル-4-エチルフェノール等のフェノール系酸化防止剤を挙げることができるが、特にこれらに限定されるものではない。また、これらの酸化防止剤は、単独で使用してもよいし、複数併用してもよい。

30

【0178】

加工および熱安定化剤としては、例えば、トリブチルホスファイト、トリシクロヘキシルホスファイト、トリエチルホスフィン、ジフェニルブチルホスフィン等のリン系安定化剤を挙げることができるが、特にこれらに限定されるものではない。また、これらの安定化剤は、単独で使用してもよいし、複数併用してもよい。

【0179】

耐光性安定化剤としては、例えば、2-(5-メチル-2-ヒドロキシフェニル)ベンゾトリアゾール、2-[2-ヒドロキシ-3,5-ビス(α,α-ジメチルベンジル)フェニル]-2H-ベンゾトリアゾール等のベンゾトリアゾール類を挙げることができるが、特にこれらに限定されるものではない。また、これらの耐光性安定化剤は、単独で使用してもよいし、複数併用してもよい。

40

【0180】

本発明の実施の形態に係る色変換組成物において、これらの添加剤の含有量は、化合物のモル吸光係数、発光量子収率および励起波長における吸収強度、ならびに作製する色変換フィルムの厚みや透過率にもよるが、通常はバインダー樹脂の100重量部に対して、 1.0×10^{-3} 重量部以上30重量部以下であることが好ましい。また、これらの添加剤の含有量は、バインダー樹脂の100重量部に対して、 1.0×10^{-2} 重量部以上15重量部以下であることがさらに好ましく、 1.0×10^{-1} 重量部以上10重量部以下であることが特に好ましい。

【0181】

50

<溶剤>

本発明の実施の形態に係る色変換組成物は、溶剤を含んでいてもよい。溶剤は、流動状態の樹脂の粘度を調整でき、発光物質の発光および耐久性に過度な影響を与えないものであれば、特に限定されない。このような溶媒として、例えば、トルエン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、ヘキサン、アセトン、テルピネオール、テキサノール、メチルセルソルブ、ブチルカルビトール、ブチルカルビトールアセテート、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート等が挙げられる。これらの溶剤を2種類以上混合して使用することも可能である。これらの溶剤の中で特にトルエンは、一般式(1)で表される化合物の劣化に影響を与えず、乾燥後の残存溶媒が少ない点で好適に用いられる。

【0182】

10

<色変換組成物の製造方法>

以下に、本発明の実施の形態に係る色変換組成物の製造方法の一例を説明する。この製造方法では、前述した一般式(1)で表される化合物、バインダー樹脂、溶剤等を所定量混合する。上記の成分を所定の組成になるよう混合した後、ホモジナイザー、自公転型攪拌機、3本ローラー、ボールミル、遊星式ボールミル、ビーズミル等の攪拌・混練機で均質に混合分散することで、色変換組成物が得られる。混合分散後、もしくは混合分散の過程で、真空もしくは減圧条件下で脱泡することも好ましく行われる。また、ある特定の成分を事前に混合することや、エージング等の処理をしても構わない。エバポレーターによって溶剤を除去して所望の固形分濃度にすることも可能である。

【0183】

20

<色変換フィルムの作製方法>

本発明において、色変換フィルムは、上述した色変換組成物、またはその色変換組成物を硬化した硬化物を含んでいれば、その構成に限定はない。色変換組成物の硬化物は、色変換組成物を硬化することによって得られる層(色変換組成物の硬化物からなる層)として色変換フィルムに含まれることが好ましい。色変換フィルムの代表的な構造例として、例えば、以下の四つが挙げられる。

【0184】

図1は、本発明の実施の形態に係る色変換フィルムの第一例を示す模式断面図である。図1に示すように、この第一例の色変換フィルム1Aは、色変換層11によって構成される単層のフィルムである。色変換層11は、上述した色変換組成物またはその硬化物からなる層である。

30

【0185】

図2は、本発明の実施の形態に係る色変換フィルムの第二例を示す模式断面図である。図2に示すように、この第二例の色変換フィルム1Bは、基材層10と色変換層11との積層体である。この色変換フィルム1Bの構造例では、色変換層11が、基材層10の上に積層されている。

【0186】

図3は、本発明の実施の形態に係る色変換フィルムの第三例を示す模式断面図である。図3に示すように、この第三例の色変換フィルム1Cは、複数の基材層10と、色変換層11との積層体である。この色変換フィルム1Cの構造例では、色変換層11が、複数の基材層10によって挟まれている。

40

【0187】

図4は、本発明の実施の形態に係る色変換フィルムの第四例を示す模式断面図である。図4に示すように、この第四例の色変換フィルム1Dは、複数の基材層10と、色変換層11と、複数のバリアフィルム12との積層体である。この色変換フィルム1Dの構造例では、色変換層11が、複数のバリアフィルム12によって挟まれ、さらに、これら色変換層11と複数のバリアフィルム12との積層体が、複数の基材層10によって挟まれている。すなわち、色変換フィルム1Dは、色変換層11の酸素、水分や熱による劣化を防ぐために、図4に示すようにバリアフィルム12を有していてもよい。

【0188】

50

(基材層)

基材層（例えば図2～4に示す基材層10）としては、特に制限無く公知の金属、フィルム、ガラス、セラミック、紙等を使用することができる。具体的には、基材層として、アルミニウム（アルミニウム合金も含む）、亜鉛、銅、鉄等の金属板や箔、セルロースアセテート、ポリエチレンテレフタレート（PET）、ポリエチレン、ポリエステル、ポリアミド、ポリイミド、ポリフェニレンサルファイド、ポリスチレン、ポリプロピレン、ポリカーボネート、ポリビニルアセタール、アラミド、シリコーン、ポリオレフィン、熱可塑性フッ素樹脂で、テトラフルオロエチレンとエチレンとの共重合体（ETFE）等のプラスチックのフィルム、 α -ポリオレフィン樹脂、ポリカプロラクトン樹脂、アクリル樹脂、シリコーン樹脂およびこれらとエチレンとの共重合樹脂からなるプラスチックのフィルム、前記プラスチックがラミネートされた紙、または前記プラスチックによりコーティングされた紙、前記金属がラミネートまたは蒸着された紙、前記金属がラミネートまたは蒸着されたプラスチックフィルム等が挙げられる。また、基材層が金属板である場合、その表面にクロム系やニッケル系等のメッキ処理やセラミックが施されていてもよい。

10

【0189】

これらの中でも、色変換フィルムの作製のし易さや色変換フィルムの成形のし易さから、ガラスや樹脂フィルムが好ましく用いられる。また、フィルム状の基材層を取り扱う際に破断等の恐れがないように、強度が高いフィルムが好ましい。それらの要求特性や経済性の面で樹脂フィルムが好ましく、これらの中でも、経済性、取り扱い性の面でPET、ポリフェニレンサルファイド、ポリカーボネート、ポリプロピレンからなる群より選ばれるプラスチックフィルムが好ましい。また、色変換フィルムを乾燥させる場合や色変換フィルムを押し出し機により200℃以上の高温で圧着成形する場合は、耐熱性の面でポリイミドフィルムが好ましい。フィルムの剥離のし易さから、基材層は、予め表面が離型処理されていてもよい。

20

【0190】

基材層の厚さは、特に制限はないが、下限としては25 μ m以上が好ましく、38 μ m以上がより好ましい。また、上限としては5000 μ m以下が好ましく、3000 μ m以下がより好ましい。

【0191】

(色変換層)

つぎに、本発明の実施の形態に係る色変換フィルムの色変換層の製造方法の一例を説明する。この色変換層の製造方法では、上述した方法で作製した色変換組成物を、基材層やバリアフィルム等の下地上に塗布し、乾燥させる。このようにして、色変換層（例えば図1～4に示す色変換層11）が形成される。塗布は、リバースロールコーター、ブレードコーター、スリットダイコーター、ダイレクトグラビアコーター、オフセットグラビアコーター、キスコーター、ナチュラルロールコーター、エアナイフコーター、ロールブレードコーター、リバースロールブレードコーター、トゥーストリームコーター、ロッドコーター、ワイヤーバーコーター、アプリケーター、ディップコーター、カーテンコーター、スピンコーター、ナイフコーター等により、行うことができる。色変換層の膜厚均一性を得るためには、スリットダイコーターで塗布することが好ましい。

30

40

【0192】

色変換層の乾燥は、熱風乾燥機や赤外線乾燥機等の一般的な加熱装置を用いて行うことができる。色変換フィルムの加熱には、熱風乾燥機や赤外線乾燥機等の一般的な加熱装置が用いられる。この場合、加熱条件は、通常、40℃～250℃で1分～5時間、好ましくは60℃～200℃で2分～4時間である。また、ステップキュア等の段階的に加熱硬化することも可能である。

【0193】

色変換層を作製した後、必要に応じて基材層を変更することも可能である。この場合、簡易的な方法としては、例えば、ホットプレートを用いて貼り替えを行なう方法や、真空ラミネーターやドライフィルムラミネーターを用いた方法等が挙げられるが、これらに限

50

定されない。

【0194】

色変換層の厚みは、特に制限はないが、 $10\mu\text{m}\sim 1000\mu\text{m}$ であることが好ましい。色変換層の厚みが $10\mu\text{m}$ より小さいと、色変換フィルムの強靱性が小さくなるという問題がある。色変換層の厚みが $1000\mu\text{m}$ を超えると、クラックが生じやすくなり、色変換フィルム成形が難しい。色変換層の厚みとして、より好ましくは、 $30\mu\text{m}\sim 100\mu\text{m}$ である。

【0195】

一方で、色変換フィルムの耐熱性を高めるという観点からは、色変換フィルムの膜厚は、 $200\mu\text{m}$ 以下であることが好ましく、 $100\mu\text{m}$ 以下であることがより好ましく、 $50\mu\text{m}$ 以下であることがさらに好ましい。

10

【0196】

本発明における色変換フィルムの膜厚は、JIS K7130(1999)プラスチックフィルム及びシート厚さ測定方法における機械的走査による厚さの測定方法A法に基づいて測定される膜厚(平均膜厚)のことをいう。

【0197】

(バリアフィルム)

バリアフィルム(例えば図4に示すバリアフィルム12)は、色変換層に対してガスバリア性を向上する場合等において適宜用いられる。このバリアフィルムとしては、例えば、酸化ケイ素、酸化アルミニウム、酸化チタン、酸化タンタル、酸化亜鉛、酸化スズ、酸化インジウム、酸化イットリウム、酸化マグネシウム等の無機酸化物や、窒化ケイ素、窒化アルミニウム、窒化チタン、炭化窒化ケイ素等の無機窒化物、またはこれらの混合物、またはこれらに他の元素を添加した金属酸化物薄膜や金属窒化物薄膜、あるいはポリ塩化ビニリデン、アクリル系樹脂、シリコン系樹脂、メラミン系樹脂、ウレタン系樹脂、フッ素系樹脂、酢酸ビニルのケン化物等のポリビニルアルコール系樹脂等の各種樹脂から成る膜を挙げることができる。また、水分に対してバリア機能を有するバリアフィルムとしては、例えば、ポリエチレン、ポリプロピレン、ナイロン、ポリ塩化ビニリデン、塩化ビニリデンと塩化ビニル、塩化ビニリデンとアクリロニトリルの共重合体、フッ素系樹脂、酢酸ビニルのケン化物等のポリビニルアルコール系樹脂等の各種樹脂から成る膜を挙げることができる。

20

30

【0198】

バリアフィルムは、図4に例示したバリアフィルム12のように色変換層11の両面に設けられてもよいし、色変換層11の片面だけに設けられてもよい。また、色変換フィルムの要求される機能に応じて、反射防止機能、防眩機能、反射防止防眩機能、ハードコート機能(耐摩擦機能)、帯電防止機能、防汚機能、電磁波シールド機能、赤外線カット機能、紫外線カット機能、偏光機能、調色機能を有した補助層をさらに設けてもよい。

【0199】

<励起光>

励起光の種類は、一般式(1)で表される化合物等の混合する発光物質が吸収可能な波長領域に発光を示すものであれば、いずれの励起光でも用いることができる。例えば、熱陰極管や冷陰極管、無機エレクトロルミネッセンス(EL)等の蛍光性光源、有機EL素子光源、LED光源、白熱光源、あるいは太陽光等、いずれの励起光でも原理的には利用可能である。特に、LED光源からの光が好適な励起光である。ディスプレイや照明用途では、青色光の色純度を高められる点で、 $430\text{nm}\sim 500\text{nm}$ の波長範囲の励起光を持つ青色LED光源からの光が、さらに好適な励起光である。

40

【0200】

励起光は、1種類の発光ピークを持つものでもよく、2種類以上の発光ピークを持つものでもよいが、色純度を高めるためには、1種類の発光ピークを持つものが好ましい。また、発光ピークの種類異なる複数の励起光源を任意に組み合わせて使用することも可能である。

50

【0201】

＜光源ユニット＞

本発明の実施の形態に係る光源ユニットは、少なくとも光源および上述の色変換フィルムを備える構成である。光源と色変換フィルムとの配置方法については特に限定されず、光源と色変換フィルムとを密着させた構成を取ってもよいし、光源と色変換フィルムとを離したりモートフォスファー形式を取ってもよい。また、光源ユニットは、色純度を高める目的で、さらにカラーフィルターを備える構成を取ってもよい。

【0202】

前述の通り、430nm～500nmの波長範囲の励起光は、比較的小さい励起エネルギーであり、一般式（1）で表される化合物等の発光物質の分解を防止できる。したがって、光源ユニットに用いる光源は、波長430nm以上500nm以下の範囲に極大発光を有する発光ダイオードであることが好ましい。さらに、この光源は、波長440nm以上470nm以下の範囲に極大発光を有することが好ましい。

10

【0203】

また、光源は、その発光波長ピークが430nm～470nmの範囲にあり、かつ発光波長領域が400nm～500nmの範囲にある発光ダイオードであって、発光スペクトルが、数式（1）を満たす発光ダイオードであることが好ましい。

【0204】

【数1】

$$1 > \beta/\alpha \geq 0.15 \quad \dots (1)$$

20

【0205】

数式（1）において、 α は、発光スペクトルの発光波長ピークにおける発光強度である。 β は、発光波長ピークに15nmを加算した波長における発光強度である。

【0206】

本発明における光源ユニットは、ディスプレイ、照明、インテリア、標識、看板等の用途に使用できるが、特にディスプレイや照明用途に好適に用いられる。

【0207】

＜ディスプレイ、照明装置＞

本発明の実施の形態に係るディスプレイは、少なくとも、上述した色変換フィルムを備える。例えば、液晶ディスプレイ等のディスプレイには、バックライトユニットとして、上述した光源および色変換フィルム等を有する光源ユニットが用いられる。また、本発明の実施の形態に係る照明装置は、少なくとも、上述した色変換フィルムを備える。例えば、この照明装置は、光源ユニットとしての青色LED光源と、この青色LED光源からの青色光をこれよりも長波長の光に変換する色変換フィルムとを組み合わせて、白色光を発光するように構成される。

30

【実施例】

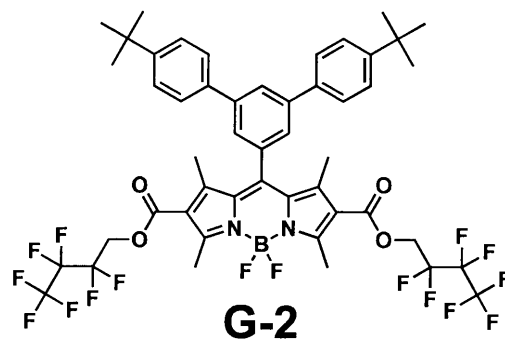
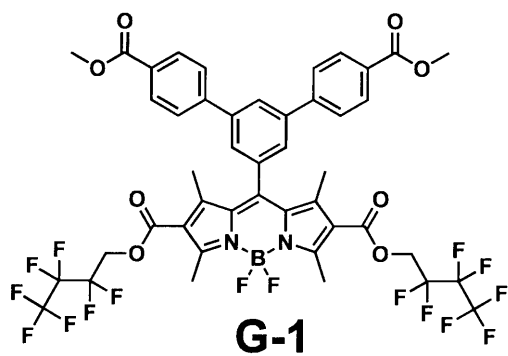
【0208】

以下、実施例を挙げて本発明を説明するが、本発明は下記の実施例によって限定されるものではない。下記の実施例および比較例において、化合物G-1～G-51、G-101～G-106は、以下に示す化合物である。

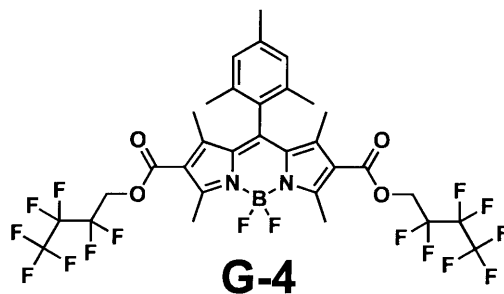
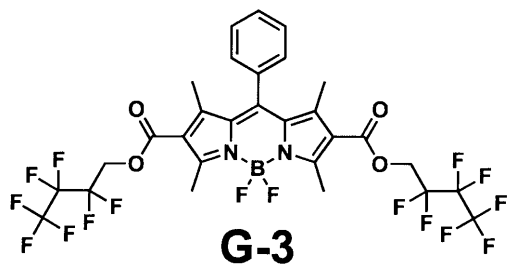
40

【0209】

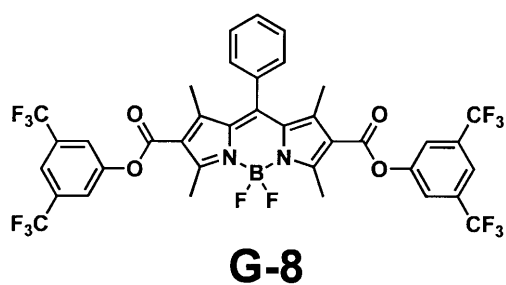
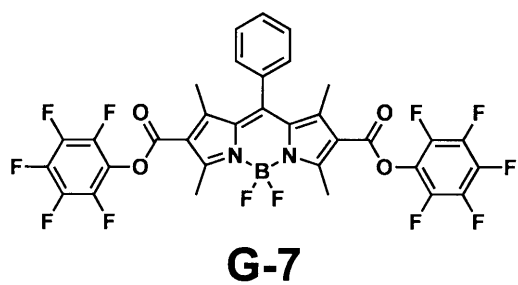
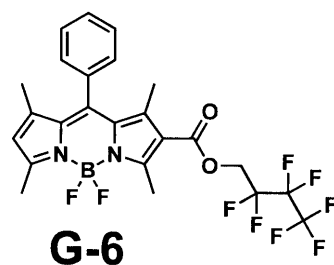
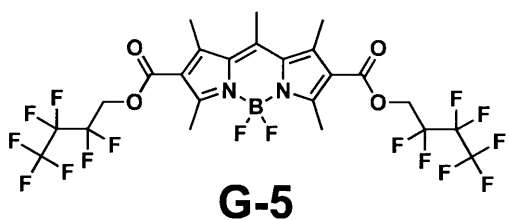
【化 1 3】



10



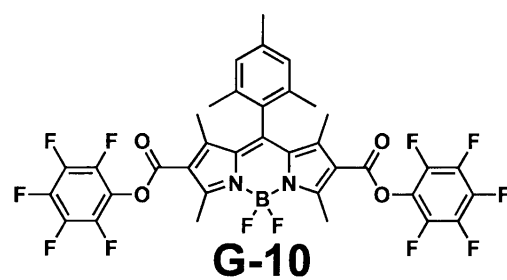
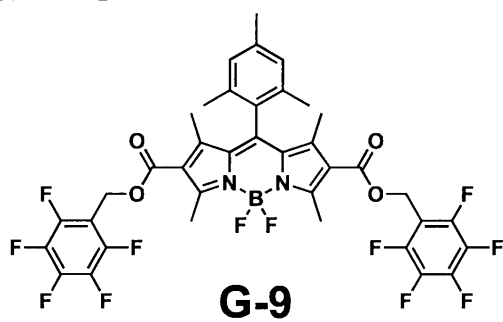
20



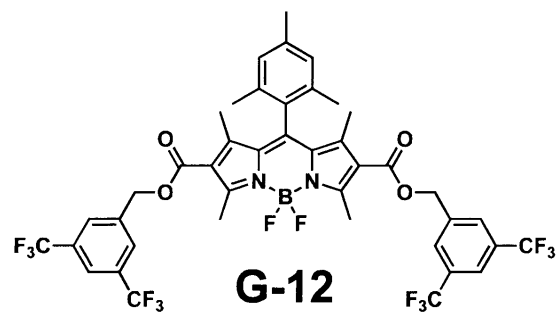
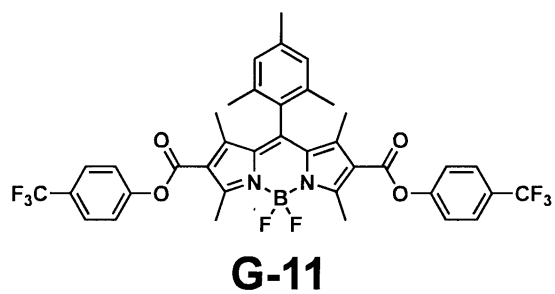
30

【 0 2 1 0 】

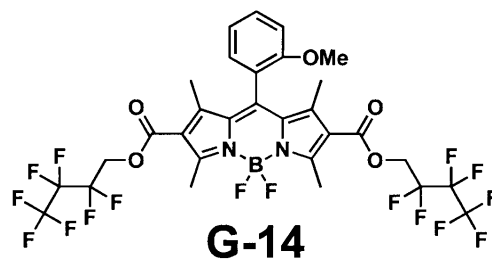
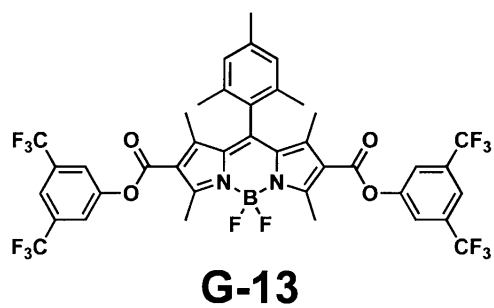
【化 1 4】



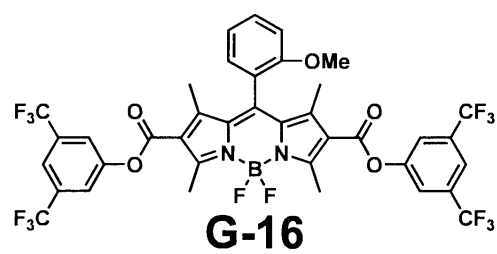
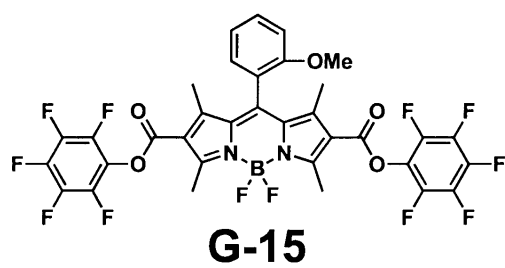
10



20

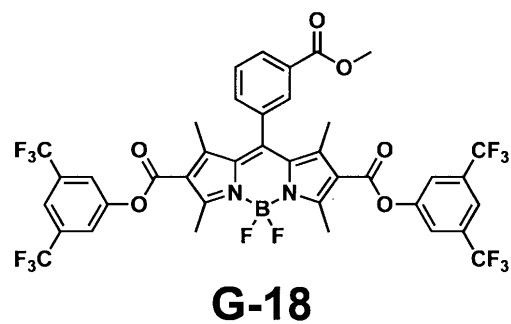
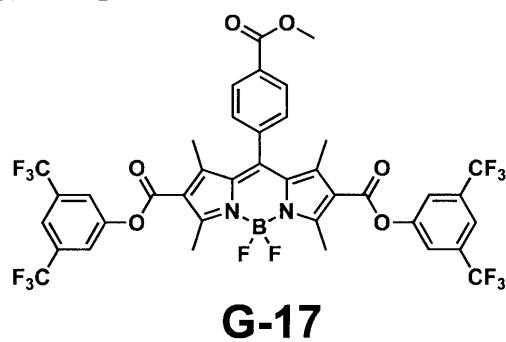


30

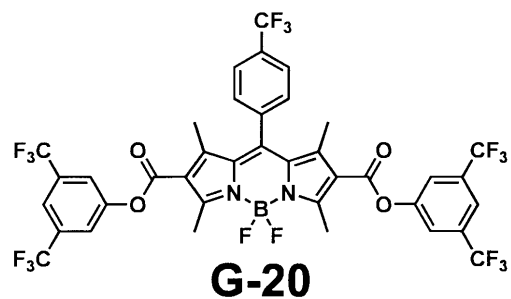
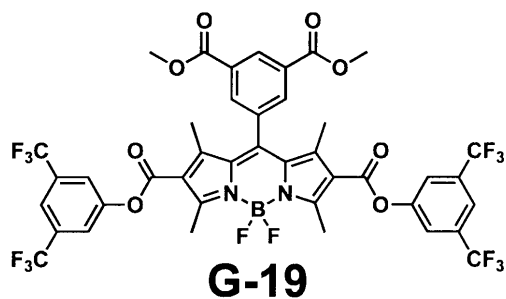


【 0 2 1 1 】

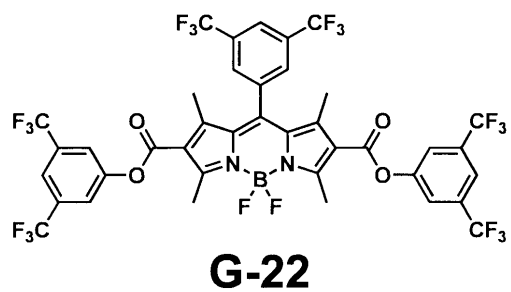
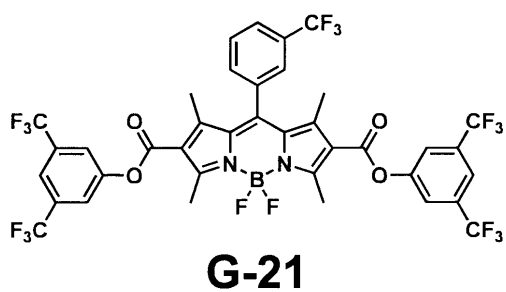
【化 1 5】



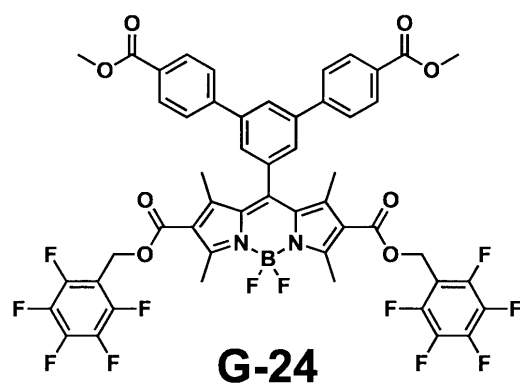
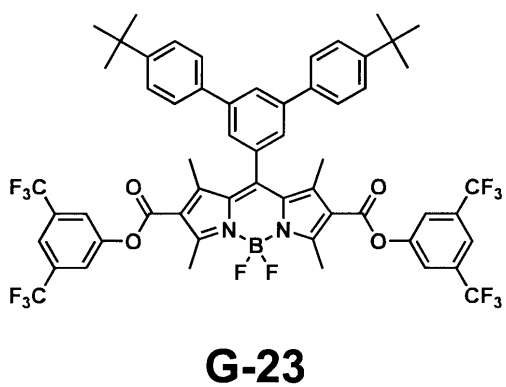
10



20



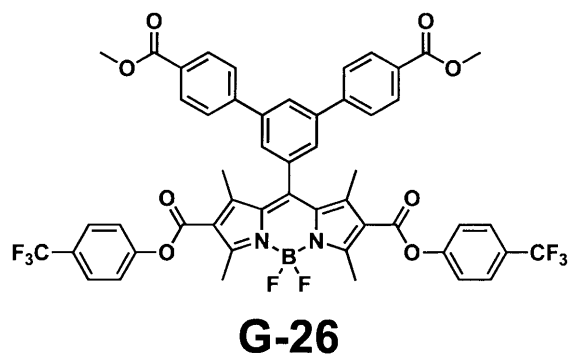
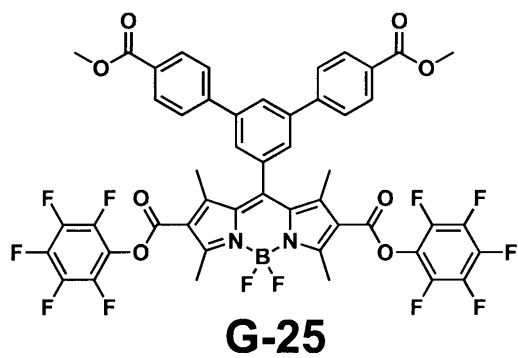
30



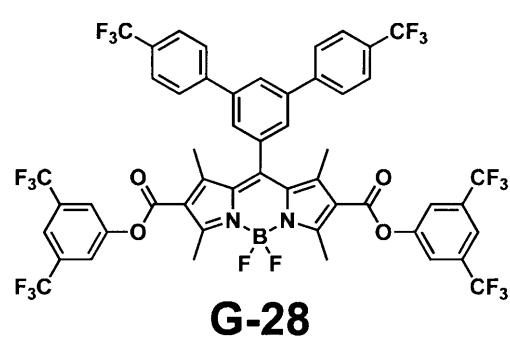
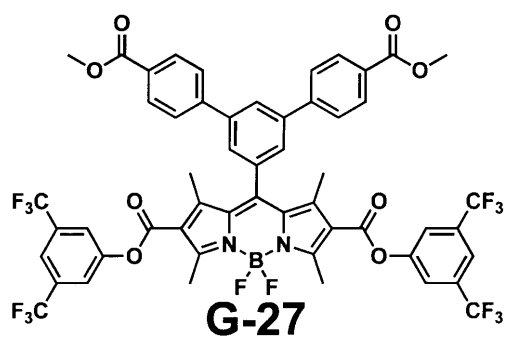
40

【 0 2 1 2 】

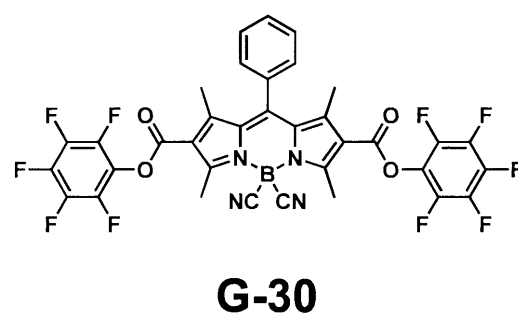
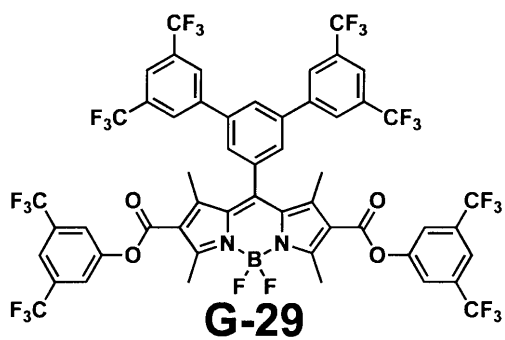
【化 1 6】



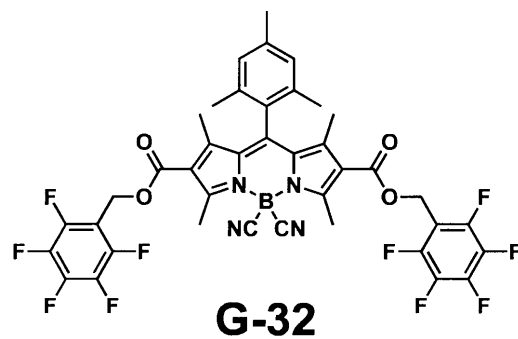
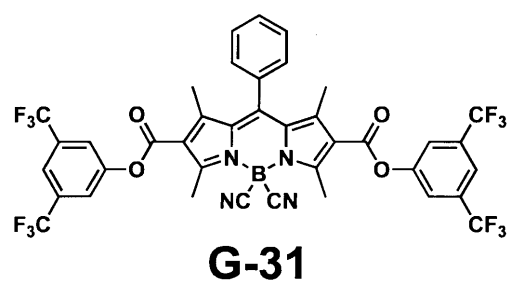
10



20



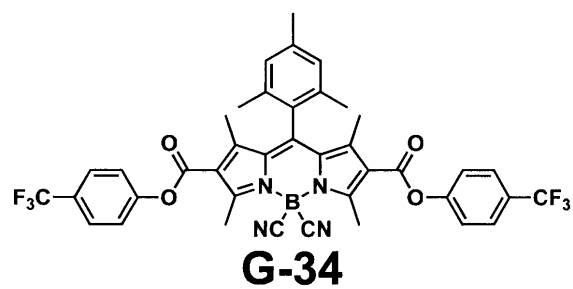
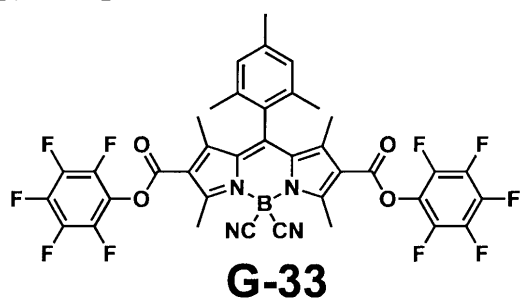
30



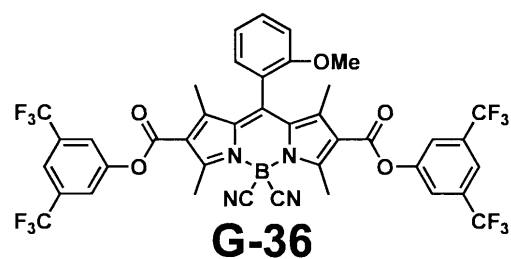
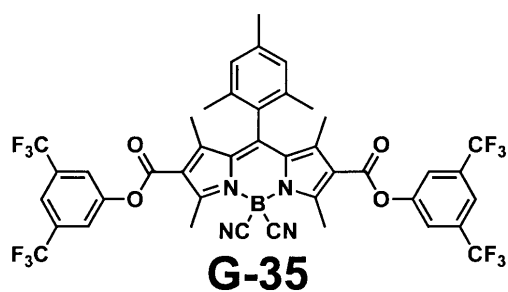
40

【 0 2 1 3 】

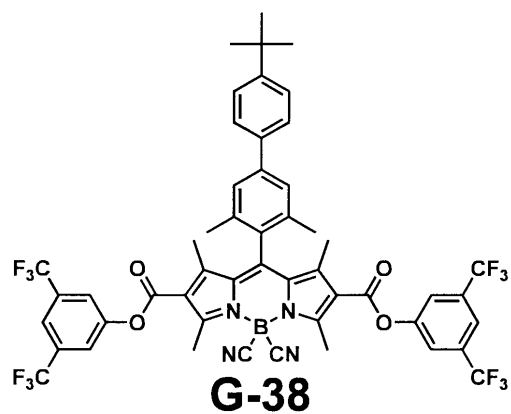
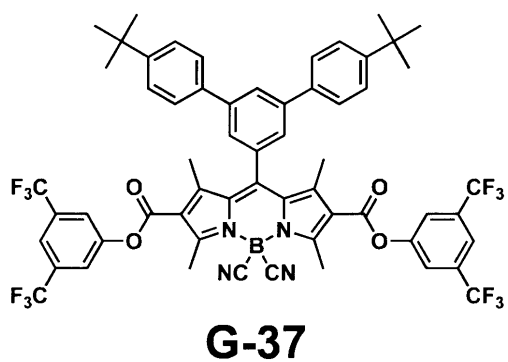
【化 1 7】



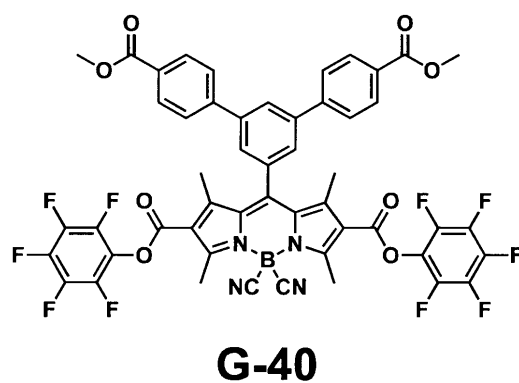
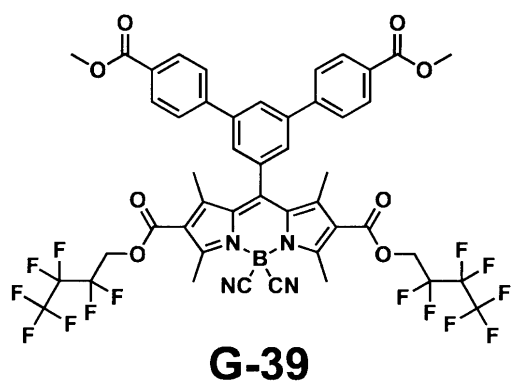
10



20



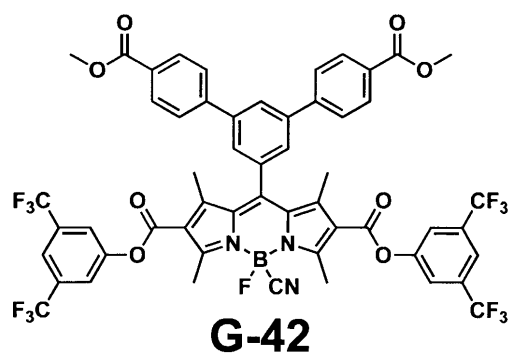
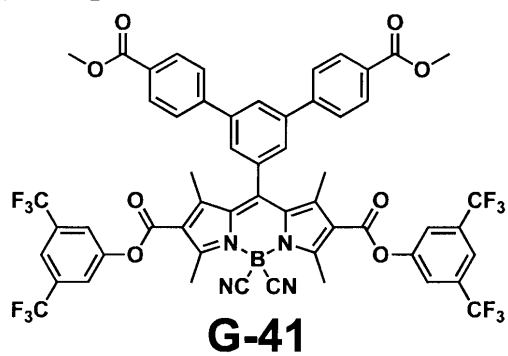
30



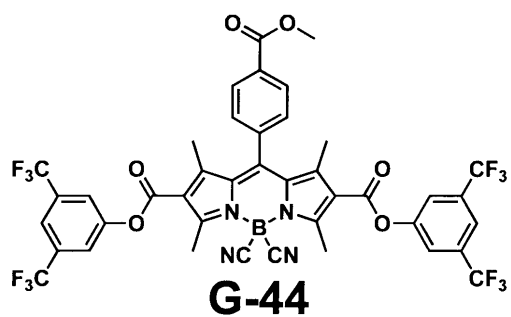
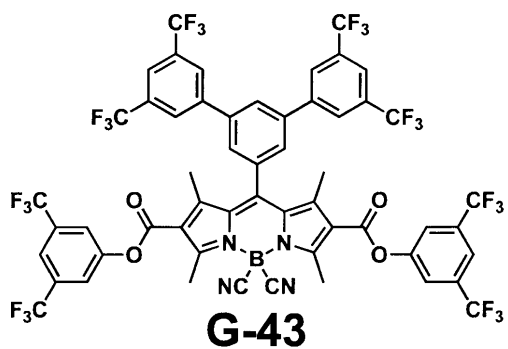
40

【 0 2 1 4 】

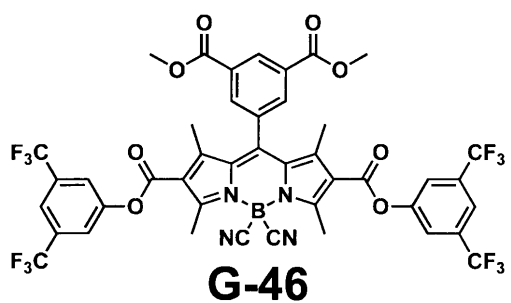
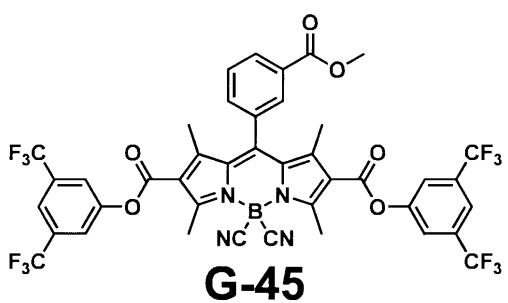
【化 1 8】



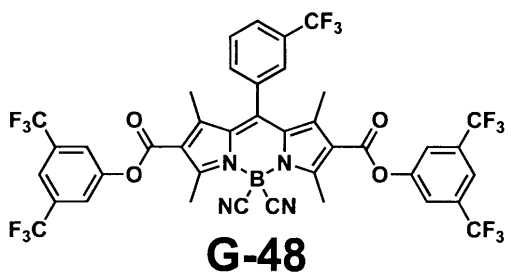
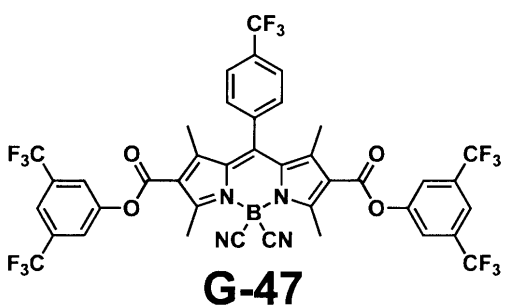
10



20



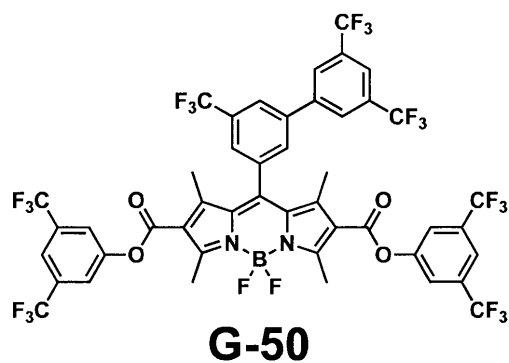
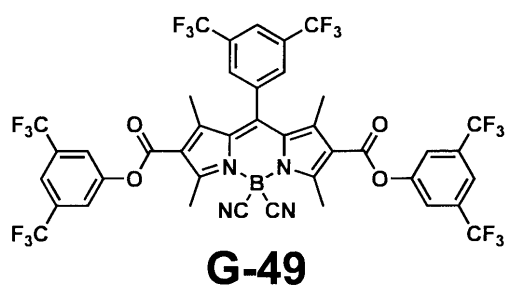
30



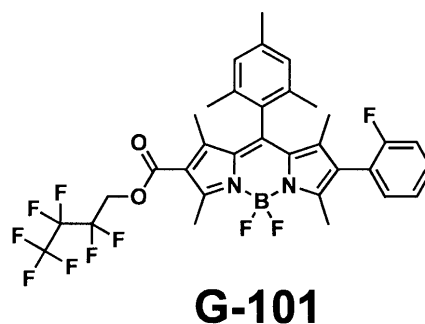
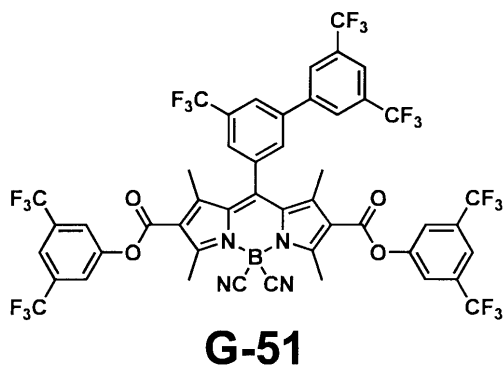
40

【 0 2 1 5 】

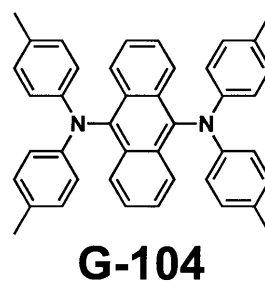
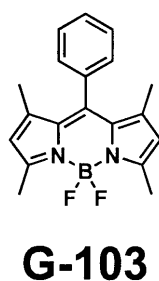
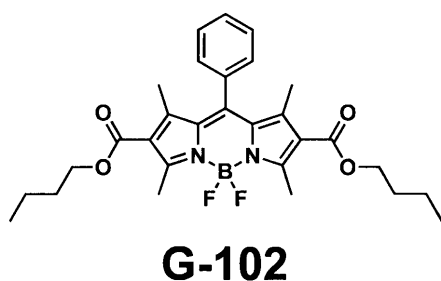
【化 1 9】



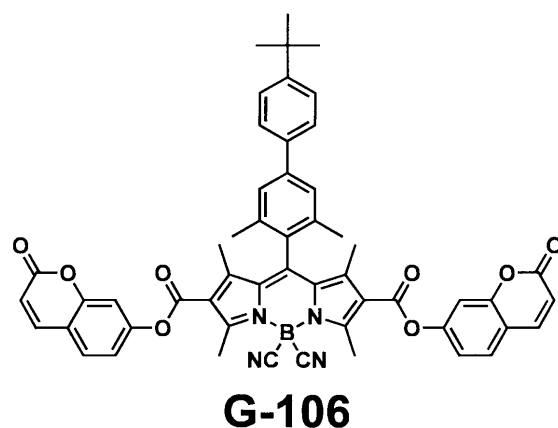
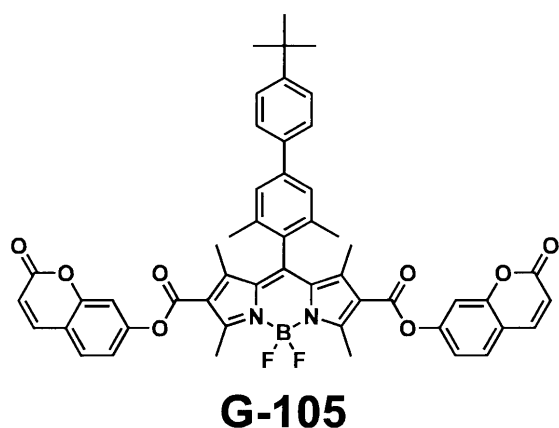
10



20



30



40

【0 2 1 6】

(合成例 1)

以下に、本発明における合成例 1 の化合物 G-1 の合成方法について説明する。化合物 G-1 の合成方法では、2, 4-ジメチルピロール-3-カルボン酸エチル (100 g)、メタノール (522 mL)、水 (261 mL) に水酸化カリウム (166 g) を溶かした水溶液をフラスコに入れ、4 時間還流した。その後、蒸留によりメタノールを留去し、このメタノール留去後の溶液を、氷浴を用いて内温 10℃以下に冷却した。この溶液に氷浴中で濃塩酸 (247 mL) を滴下し、この溶液の pH を「1」にした。これによって析

50

出した茶色固体をろ過し、得られた茶色固体を水で洗浄し、2, 4-ジメチルピロール-3-カルボン酸 (74 g) を淡茶色固体として得た。

【0217】

ついで、得られた2, 4-ジメチルピロール-3-カルボン酸 (30.3 g)、2, 2, 3, 3, 4, 4, 4-ヘプタフルオロ-1-ブタノール (56.5 g)、DCC (44.9 g)、DMAP (2.13 g)、酢酸エチル (725 mL) をフラスコに入れ、2時間還流した。この溶液を、氷浴を用いて内温10℃以下に冷却した後、ろ過し、得られたろ液に水 (500 mL) を加え、10分攪拌した後、有機層を分液した。さらに、得られた有機層を水 (500 mL) で2回洗浄し、この有機層を硫酸マグネシウムで乾燥し、ろ過後、溶媒を留去した。得られた固体をトルエン (500 mL) に溶解し、シリカゲルクロマトグラフィーにより精製し、2, 4-ジメチルピロール-3-カルボン酸2, 2, 3, 3, 4, 4, 4-ヘプタフルオロ-1-ブチル (39.0 g) を得た。

【0218】

ついで、3, 5-ビス (4-メトキシカルボニルフェニル) ベンズアルデヒド (1.0 g) と、得られた2, 4-ジメチルピロール-3-カルボン酸2, 2, 3, 3, 4, 4, 4-ヘプタフルオロ-1-ブチル (3.6 g) とをフラスコに入れ、ジクロロメタン (28 mL) およびトリフルオロ酢酸 (1滴) を加えて、窒素雰囲気下、15時間攪拌した。続いて、2, 3-ジクロロ-5, 6-ジシアノ-1, 4-ベンゾキノン (2.5 g) を加え、さらに1時間攪拌した。反応終了後、三フッ化ホウ素ジエチルエーテル錯体 (2.1 mL) およびジイソプロピルエチルアミン (3.2 mL) を加えて、4時間攪拌した後、さらに水 (100 mL) を加えて攪拌し、有機層を分液した。この有機層を硫酸マグネシウムで乾燥し、ろ過後、溶媒を留去した。得られた反応生成物をシリカゲルクロマトグラフィーにより精製し、化合物 (1.1 g) を得た。この得られた化合物の¹H-NMR分析結果は次の通りであり、これが化合物G-1であることが確認された。

¹H-NMR (CDCl₃, ppm) : 8.16 (d, 4H)、8.07 (s, 1H)、7.73 (d, 4H)、7.60 (s, 2H)、4.72 (t, 4H)、3.96 (s, 6H)、2.87 (s, 6H)、1.83 (s, 6H)

【0219】

(合成例2)

以下に、本発明における合成例2の化合物G-27の合成方法について説明する。化合物G-27の合成方法では、2, 4-ジメチルピロール-3-カルボン酸 (23.3 g)、3, 5-ビス (トリフルオロメチル) フェニル (50.0 g)、DCC (34.5 g)、DMAP (1.63 g)、トルエン (550 mL) をフラスコに入れ、2時間還流した。得られた溶液を、氷浴を用いて内温10℃以下に冷却した後、ろ過し、ろ液に水 (250 mL) を加え、10分攪拌した後、有機層を分液した。さらに、得られた有機層を水 (250 mL) で2回洗浄し、この有機層を硫酸マグネシウムで乾燥し、ろ過後、溶媒を留去した。得られた固体をトルエン (250 mL) に溶解し、シリカゲルクロマトグラフィーにより精製し、2, 4-ジメチルピロール-3-カルボン酸3, 5-ビス (トリフルオロメチル) フェニル (27.7 g) を得た。

【0220】

ついで、3, 5-ビス (4-メトキシカルボニルフェニル) ベンズアルデヒド (2.4 g) と、得られた2, 4-ジメチルピロール-3-カルボン酸3, 5-ビス (トリフルオロメチル) フェニル (5.0 g) とをフラスコに入れ、ジクロロメタン (64 mL) およびトリフルオロ酢酸 (5滴) を加えて、窒素雰囲気下、15時間攪拌した。続いて、2, 3-ジクロロ-5, 6-ジシアノ-1, 4-ベンゾキノン (1.75 g) を加え、さらに1時間攪拌した。反応終了後、三フッ化ホウ素ジエチルエーテル錯体 (3.2 mL) およびジイソプロピルエチルアミン (4.6 mL) を加えて、4時間攪拌した後、さらに水 (100 mL) を加えて攪拌し、有機層を分液した。この有機層を硫酸マグネシウムで乾燥し、ろ過後、溶媒を留去した。得られた反応生成物をシリカゲルクロマトグラフィーにより精製し、化合物 (1.95 g) を得た。この得られた化合物の¹H-NMR分析を行っ

た結果、これが化合物 G-27 であることが確認された。

【0221】

(合成例3)

以下に、本発明における合成例3の化合物 G-41 の合成方法について説明する。化合物 G-41 の合成方法では、化合物 G-27 (1.95 g) をフラスコに入れ、ジクロロメタン (25 mL) とトリメチルシリルシアニド (3.5 mL) と三フッ化ホウ素ジエチルエーテル錯体 (0.75 mL) とを加えて、18時間攪拌した。その後、さらに水 (25 mL) を加えて攪拌し、有機層を分液した。この有機層を硫酸マグネシウムで乾燥し、ろ過後、溶媒を留去した。得られた反応生成物をシリカゲルクロマトグラフィーにより精製し、化合物 (1.20 g) を得た。この得られた化合物の¹H-NMR分析結果は次の通りであり、これが化合物 G-41 であることが確認された。

¹H-NMR (CDCl₃, ppm): 8.16 (d, 4H)、8.07 (s, 1H)、7.77 (s, 2H)、7.73 (d, 4H)、7.64 (s, 4H)、7.60 (s, 2H)、3.97 (s, 6H)、3.19 (s, 6H)、1.99 (s, 6H)

【0222】

上記以外の化合物 G-2~G-26、G-28~G-40、G-42~G-51、G-101~G-106 も、アルコール原料、アルデヒド原料等の種々の原料を変更することにより、容易に合成することができる。

【0223】

以下の実施例および比較例では、各色変換フィルム、青色LED素子（発光ピーク波長：445 nm）および導光板を備えたバックライトユニットに対し、導光板の一面に色変換フィルムを積層し且つ色変換フィルム上にプリズムシートを積層した後、電流を流して、この青色LED素子を点灯させ、分光放射輝度計（CS-1000、コニカミノルタ社製）を用いて初期発光特性を測定した。なお、初期発光特性の測定時は色変換フィルムを挿入せず、青色LED素子からの光の明るさが800 cd/m²となるように初期値を設定した。その後、室温下で青色LED素子からの光を連続照射し、発光強度が一定量低下するまでの時間を観測することで、光耐久性を評価した。

【0224】

(実施例1)

本発明の実施例1では、バインダー樹脂としてアクリル樹脂を用い、このアクリル樹脂の100重量部に対して、発光材料として化合物 G-1 を0.25重量部、溶剤としてトルエンを400重量部、混合した。その後、これらの混合物を、遊星式攪拌・脱泡装置“マゼルスターKK-400”（クラボウ社製）を用いて300 rpmで20分間攪拌・脱泡し、これにより、色変換組成物を得た。

【0225】

同様に、バインダー樹脂としてポリエステル樹脂を用い、このポリエステル樹脂の100重量部に対して、溶剤としてトルエンを300重量部、混合した。その後、この溶液を、遊星式攪拌・脱泡装置“マゼルスターKK-400”（クラボウ社製）を用いて300 rpmで20分間攪拌・脱泡し、これにより、接着剤組成物を得た。

【0226】

つぎに、上述したように得られた色変換組成物を、スリットダイコーターを用いて第一の基材層である“ルミラー”U48（東レ社製、厚さ50 μm）上に塗布し、100℃で20分加熱、乾燥して、平均膜厚16 μmの（A）層を形成した。

【0227】

同様に、上述したように得られた接着剤組成物を、スリットダイコーターを用いて第二の基材層である光拡散フィルム“ケミカルマット”125PW（きもと社製、厚さ138 μm）のPET基材層側に塗布し、100℃で20分加熱、乾燥して、平均膜厚48 μmの（B）層を形成した。

【0228】

つぎに、これら二つの（A）層および（B）層を、（A）層の色変換層と（B）層の接

着層とが直接積層されるように加温ラミネートすることで、「第一の基材層／色変換層／接着層／第二の基材層／光拡散層」という積層構成の色変換フィルムを作製した。

【0229】

この色変換フィルムを用いて青色LED素子からの光（青色光）を色変換させたところ、緑色光の発光領域のみを抜粋すると、ピーク波長528nm、ピーク波長における発光スペクトルの半値幅27nmの高色純度緑色発光が得られた。ピーク波長における発光強度は、後述の比較例1における発光強度を1.00としたときの相対値である。実施例1の当該発光強度は、1.19であった。また、室温下で青色LED素子からの光を連続照射したところ、輝度が5%低下する時間は、320時間であった。実施例1の発光材料および評価結果は、後述の表2に示す。

10

【0230】

（実施例2～51および比較例1～6）

本発明の実施例2～51および本発明に対する比較例1～6では、発光材料として表2～4に記載した化合物（化合物G-2～G-51、G-101～G-106）を適宜用いた以外は、実施例1と同様にして、色変換フィルムを作製して評価した。実施例2～25の発光材料および評価結果は、表2に示す。実施例26～51の発光材料および評価結果は、表3に示す。比較例1～6の発光材料および評価結果は、表4に示す。ただし、表中の発光強度（相対値）は、ピーク波長における発光強度であり、実施例1と同様に、比較例1における強度を1.00としたときの相対値である。

【0231】

20

【表 2】

(表2)

	発光材料	ピーク波長 (nm)	半値幅 (nm)	発光強度 (相対値)	光耐久性 (h)
実施例1	G-1	528	27	1.19	320
実施例2	G-2	527	28	1.22	300
実施例3	G-3	529	28	1.11	330
実施例4	G-4	528	28	1.15	320
実施例5	G-5	527	27	1.01	330
実施例6	G-6	527	28	1.15	210
実施例7	G-7	527	28	1.10	330
実施例8	G-8	527	28	1.12	340
実施例9	G-9	528	28	1.14	300
実施例10	G-10	527	28	1.14	320
実施例11	G-11	529	27	1.14	310
実施例12	G-12	528	28	1.13	310
実施例13	G-13	527	27	1.15	330
実施例14	G-14	527	28	1.15	320
実施例15	G-15	529	28	1.15	320
実施例16	G-16	528	28	1.14	330
実施例17	G-17	527	27	1.14	340
実施例18	G-18	527	28	1.14	330
実施例19	G-19	529	28	1.13	350
実施例20	G-20	530	27	1.14	350
実施例21	G-21	530	28	1.14	340
実施例22	G-22	532	28	1.14	350
実施例23	G-23	527	28	1.20	320
実施例24	G-24	528	27	1.21	300
実施例25	G-25	527	28	1.20	350

【 0 2 3 2 】

【表 3】
(表3)

	発光材料	ピーク波長 (nm)	半値幅 (nm)	発光強度 (相対値)	光耐久性 (h)
実施例26	G-26	529	28	1.20	350
実施例27	G-27	528	27	1.21	360
実施例28	G-28	527	28	1.21	370
実施例29	G-29	527	28	1.22	380
実施例30	G-30	528	28	1.10	520
実施例31	G-31	527	28	1.11	540
実施例32	G-32	527	27	1.12	500
実施例33	G-33	527	28	1.11	520
実施例34	G-34	528	28	1.11	520
実施例35	G-35	527	28	1.12	530
実施例36	G-36	529	27	1.12	520
実施例37	G-37	528	27	1.21	520
実施例38	G-38	528	28	1.21	530
実施例39	G-39	527	28	1.22	570
実施例40	G-40	529	28	1.22	580
実施例41	G-41	528	27	1.23	650
実施例42	G-42	527	28	1.21	500
実施例43	G-43	527	28	1.23	660
実施例44	G-44	531	28	1.13	580
実施例45	G-45	530	28	1.14	570
実施例46	G-46	534	27	1.14	610
実施例47	G-47	534	28	1.13	660
実施例48	G-48	531	28	1.14	650
実施例49	G-49	539	27	1.14	660
実施例50	G-50	536	28	1.13	370
実施例51	G-51	536	28	1.13	650

【 0 2 3 3 】

【表 4】
(表4)

	発光材料	ピーク波長 (nm)	半値幅 (nm)	発光強度 (相対値)	光耐久性 (h)
比較例1	G-101	535	40	1.00	100
比較例2	G-102	528	28	1.13	100
比較例3	G-103	527	27	1.13	10
比較例4	G-104	540	58	1.13	20
比較例5	G-105	529	29	0.89	110
比較例6	G-106	530	30	0.88	120

10

【産業上の利用可能性】

【0234】

以上のように、本発明に係るピロメテンホウ素錯体、色変換組成物、色変換フィルム、光源ユニット、ディスプレイおよび照明装置は、色再現性の向上と高い耐久性との両立に適している。

【符号の説明】

20

【0235】

1 A、1 B、1 C、1 D 色変換フィルム

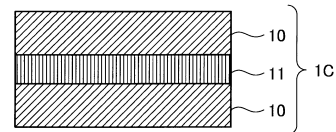
10 基材層

11 色変換層

12 バリアフィルム

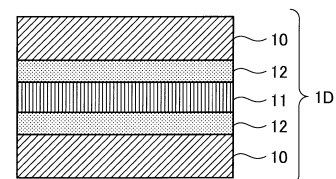
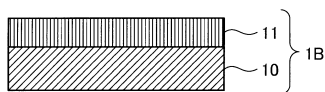
【図 1】

【図 3】



【図 2】

【図 4】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.		F I	
G 0 2 F	1/1335	(2006.01)	G 0 2 F 1/1335 5 0 0
G 0 2 F	1/13357	(2006.01)	G 0 2 F 1/13357
F 2 1 Y	115/10	(2016.01)	F 2 1 Y 115:10

(56)参考文献 特許第6 2 9 9 8 7 0 (J P, B 2)
 特開平1 1－0 4 3 4 9 1 (J P, A)
 特開平1 1－3 5 2 6 8 6 (J P, A)
 特開平1 1－3 1 5 2 6 8 (J P, A)
 特開2 0 0 8－0 8 3 4 1 6 (J P, A)
 特開2 0 0 9－0 3 1 7 1 3 (J P, A)
 特開2 0 1 0－0 1 8 7 8 8 (J P, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
 G 0 2 B 5／2 0
 C 0 7 F 5／0 2
 F 2 1 S 2／0 0
 F 2 1 V 9／0 8
 G 0 2 F 1／1 3 3 5
 G 0 2 F 1／1 3 3 5 7
 F 2 1 Y 1 1 5／1 0
 C A p l u s／R E G I S T R Y (S T N)