

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局

(43) 国際公開日  
2017年9月28日(28.09.2017)



(10) 国際公開番号  
**WO 2017/164155 A1**

- (51) 国際特許分類:  
*G02B 5/20* (2006.01) *G09F 9/00* (2006.01)  
*F21S 2/00* (2016.01) *H01L 33/50* (2010.01)  
*G02F 1/13357* (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2017/011153
- (22) 国際出願日: 2017年3月21日(21.03.2017)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:  
特願 2016-061328 2016年3月25日(25.03.2016) JP  
特願 2016-061334 2016年3月25日(25.03.2016) JP  
特願 2016-224730 2016年11月18日(18.11.2016) JP
- (71) 出願人: 東レ株式会社(TORAY INDUSTRIES, INC.)  
[JP/JP]; 〒1038666 東京都中央区日本橋室町2丁目1番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 梅原 正明(UMEHARA, Masaaki); 〒5208558 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 Shiga (JP). 宇都 孝行(UTO, Takayuki); 〒5208558 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 Shiga (JP). 合田 亘(GOUDA, Wataru); 〒5208558 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 Shiga (JP). 坂本 純(SAKAMOTO, Jun); 〒4118652 静岡県三島市4845番地 東レ株式会社 三島工場内 Shizuoka (JP).

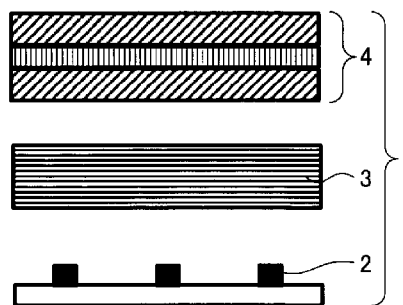
- (74) 代理人: 特許業務法人酒井国際特許事務所 (SAKAI INTERNATIONAL PATENT OFFICE); 〒1000013 東京都千代田区霞が関3丁目8番1号 虎の門三井ビルディング Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR),

[続葉有]

(54) Title: LIGHT SOURCE UNIT, LAMINATION MEMBER, AND DISPLAY AND ILLUMINATION DEVICE IN WHICH SAME IS USED

(54) 発明の名称: 光源ユニット、積層部材ならびにそれらを用いたディスプレイおよび照明装置

【図1】



(57) Abstract: A light source unit characterized by including a light source and a lamination member, the lamination member including a color conversion film that includes an organic light-emitting material for converting incident light incident from the light source into light having a wavelength greater than that of the incident light, and a lamination film in which a plurality of different thermoplastic resins are alternately laminated in at least 11 layers. In the included laminate film, light that has been converted by the organic light-emitting material to a greater wavelength than that of the incident light is reflected at a rate of at least 70%, the angle of incidence being 60°. In addition, a display and an illumination device are provided with the light source unit.

(57) 要約: 光源ユニットは、光源と、積層部材とを含み、積層部材は、光源から入射された入射光をその入射光よりも長波長の光に変換する有機発光材料を含む色変換フィルムと、異なる複数の熱可塑性樹脂が交互に11層以上積層されてなる積層フィルムと、を含むことを特徴とする。有機発光材料によって入射光よりも長波長に変換された光の、入射角度が60°における反射率が70%以上である積層フィルムを含む。また、ディスプレイおよび照明装置は、上記の光源ユニットを備える。



WO 2017/164155 A1

OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

## 明 細 書

発明の名称：

光源ユニット、積層部材ならびにそれらを用いたディスプレイおよび照明装置

### 技術分野

[0001] 本発明は、光源ユニット、積層部材ならびにそれらを用いたディスプレイおよび照明装置に関する。

### 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、照明装置等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や赤色発光へと変換することを表す。

[0003] 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）をシート化し、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バックライトユニットとし、このバックライトユニットと、液晶駆動部分と、カラーフィルターとを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。

[0004] 色変換方式を利用する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、バックライトユニットの青、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フィルム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）。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、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。

[0005] 量子ドットの代わりに有機物の発光材料を色変換フィルム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フィルムの成分として用いる技術の例としては、クマリン誘導体を用いたもの（例えば、特許文献2参照）、ローダミン誘導体を用いたもの（例えば、特許文献3参照）、ピロメテン誘導体を用いたもの（例えば、特許文献4参照）が知られている。

[0006] また、量子ドット技術や色変換フィルムを用いることで色再現性は向上するものの、その色特性や色変換フィルムの発光特性のために輝度が低下するという課題もある。その対策として、例えば、色変換フィルムを含む色変換フィルムから発光された光を反射する光波長選択性フィルターを用いたものが知られている（例えば、特許文献5参照）。

## 先行技術文献

### 特許文献

[0007] 特許文献1：特開2012-22028号公報

特許文献2：特開2007-273440号公報

特許文献3：特開2001-164245号公報

特許文献4：特開2011-241160号公報

特許文献5：特開2009-140822号公報

### 発明の概要

### 発明が解決しようとする課題

[0008] しかしこれらの有機発光材料を用いる技術では、色再現性向上と輝度向上との両立が不十分であった。特に高色純度の発光を示す有機発光材料を用いて、広い色域と高輝度を達成する技術が不十分であった。また、色変換フィルムから光が等方的に発光されるために、光がそもそもフィルム内に閉じ込められることで輝度が低下するという課題もあった。

[0009] 本発明は、上記の課題に鑑みてなされたものであり、その目的は、ディス

プレイや照明等に用いられる色変換フィルムにおいて、色再現性の向上と輝度向上を両立した光源ユニットを提供することである。

### 課題を解決するための手段

[0010] 上述した課題を解決し、上記目的を達成するために、本発明に係る光源ユニットは、光源と、前記光源から入射された入射光を前記入射光よりも長波長の光に変換する有機発光材料を含む色変換フィルムと、異なる複数の熱可塑性樹脂が交互に1層以上積層されてなる積層フィルムと、を含むことを特徴とする。

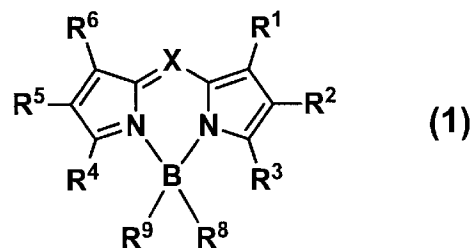
[0011] 本発明の一態様に係る光源ユニットは、上記の発明において、前記積層フィルムは、前記有機発光材料によって前記入射光よりも長波長に変換された光の、入射角度60°における反射率が70%以上である積層フィルムであることを特徴とする。

[0012] 本発明の一態様に係る光源ユニットは、上記の発明において、前記積層フィルムは、前記光源から前記積層フィルムに入射される入射光の、入射角度10°における反射率が20%以下である積層フィルムであることを特徴とする。

[0013] 本発明の一態様に係る光源ユニットは、上記の発明において、前記有機発光材料が、ピロメテン誘導体を含むことを特徴とする。

[0014] 本発明の一態様に係る光源ユニットは、上記の発明において、前記有機発光材料が一般式(1)で表される化合物を含有することを特徴とする。

[化1]

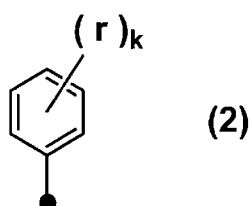


(XはC-R<sup>7</sup>またはNである。R<sup>1</sup>~R<sup>9</sup>はそれぞれ同じでも異なってもよく、水素、アルキル基、シクロアルキル基、複素環基、アルケニル基、シ

クロアルケニル基、アルキニル基、水酸基、チオール基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリールエーテル基、アリールチオエーテル基、アリール基、ヘテロアリール基、ハロゲン、シアノ基、アルデヒド基、カルボニル基、カルボキシ基、オキシカルボニル基、カルバモイル基、アミノ基、ニトロ基、シリル基、シロキサニル基、ボリル基、ホスフィンオキシド基、および隣接置換基との間に形成される縮合環および脂肪族環の中から選ばれる。) )

[0015] 本発明の一態様に係る光源ユニットは、この構成において、一般式(1)において、XがC-R<sup>7</sup>であり、R<sup>7</sup>が一般式(2)で表される基であることを特徴とする。

[化2]



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

[0016] 本発明の一態様に係る光源ユニットは、この構成において、一般式(1)において、R<sup>1</sup>、R<sup>3</sup>、R<sup>4</sup>およびR<sup>6</sup>が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フェニル基であることを特徴とする。

[0017] 本発明の一態様に係る光源ユニットは、この構成において、一般式(1)において、R<sup>1</sup>、R<sup>3</sup>、R<sup>4</sup>およびR<sup>6</sup>が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ことを特徴とする。

[0018] 本発明の一態様に係る光源ユニットは、上記の発明において、前記有機発光材料のピーク波長が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。

[0019] 本発明の一態様に係る光源ユニットは、上記の発明において、前記有機発光材料が以下の有機発光材料（a）および（b）を含有することを特徴とする。

（a）光源から入射された入射光により励起されることにより、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有機発光材料

（b）光源から入射された入射光もしくは有機発光材料（a）からの発光の少なくとも一方により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有機発光材料

[0020] 本発明の一態様に係る光源ユニットは、この構成において、前記有機発光材料（a）もしくは（b）のいずれか一方または両方が前記一般式（1）で表される化合物であることを特徴とする。

[0021] 本発明の一態様に係る光源ユニットは、上記の発明において、前記色変換フィルムが少なくとも以下の（A）層および（B）層を含む積層体であることを特徴とする。

（A）光源から入射された入射光により励起されることにより、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有機発光材料（a）を含有する層

（B）光源から入射された入射光もしくは有機発光材料（a）からの発光の少なくとも一方により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有機発光材料（b）を含有する層

[0022] 本発明の一態様に係る光源ユニットは、上記の発明において、前記色変換フィルムと前記積層フィルムとを含む積層体を有することを特徴とする。

[0023] 本発明の一態様に係る光源ユニットは、上記の発明において、前記色変換

フィルムのいずれか一方または両方の面に光拡散フィルムが積層されてなることを特徴とする。

[0024] 本発明の一態様に係る光源ユニットは、上記の発明において、前記色変換フィルムの光出射面に、プリズムシートが設けられてなることを特徴とする。

[0025] 本発明の一態様に係る光源ユニットは、上記の発明において、前記色変換フィルムまたは前記積層フィルムの表面に機能層が設けられてなり、前記積層フィルムの屈折率を  $n_1$ 、前記色変換フィルムの屈折率を  $n_2$  としたとき、前記機能層の屈折率  $n_3$  が  $n_1$  と  $n_2$  の間となることを特徴とする。

[0026] 本発明の一態様に係る光源ユニットは、上記の発明において、前記積層フィルムまたは前記色変換フィルムの表面が凹凸形状を有することを特徴とする。本発明の一態様に係る光源ユニットは、この構成において、前記凹凸形状がレンズ形状、略三角形形状、または略半円形状であることを特徴とする。

[0027] 本発明の一態様に係る光源ユニットは、上記の発明において、前記積層フィルムまたは色変換フィルムが、前記光源から前記積層フィルムまたは色変換フィルムに入射される入射光の入射角度と出射光の出射角度との差が  $5^\circ$  以上であることを特徴とする。

[0028] 本発明の一態様に係る光源ユニットは、上記の発明において、前記積層フィルムが、入射角度  $10^\circ$  において波長  $300\text{ nm}$  以上  $410\text{ nm}$  以下の光の反射率が  $20\%$  以上、または入射角度  $10^\circ$  において  $300\text{ nm}$  以上  $410\text{ nm}$  以下の光の吸収率が  $10\%$  以上であることを特徴とする。

[0029] 本発明の一態様に係る光源ユニットは、上記の発明において、前記積層フィルムが紫外線吸収剤を含むことを特徴とする。

[0030] 本発明の一態様に係る光源ユニットは、上記の発明において、前記積層フィルムの少なくとも片面に紫外線吸収剤を含む樹脂層を含むことを特徴とする。

[0031] 本発明の一態様に係る光源ユニットは、上記の発明において、前記紫外線吸収剤が、アントラキノン、アゾメチン、インドール、トリアジン、ナフタ

ルイミド、フタロシアニンのいずれかの骨格を有する紫外線吸収剤を含むことを特徴とする。

[0032] 本発明の一態様に係る光源ユニットは、上記の発明において、前記積層フィルムが、前記光源と前記色変換フィルムの間に設けられてなることを特徴とする。

[0033] 本発明の一態様に係る光源ユニットは、上記の発明において、前記光源が400nm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。

[0034] 本発明の一態様に係る光源ユニットは、この構成において、前記光源が430nm以上470nm以下の範囲に極大発光を有し、かつ発光波長領域が400nm以上500nm以下の範囲を有する発光ダイオードであって、光源の発光スペクトルが、数式(3)を満たすことを特徴とする。

[数1]

$$1 > \beta / \alpha \geq 0.15 \quad (3)$$

( $\alpha$ 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り、 $\beta$ は発光波長ピーク+15nmの波長における発光強度である。)

[0035] 本発明の一態様に係る光源ユニットは、この構成において、前記光源が455nm以上465nm以下の範囲に極大発光を有することを特徴とする。

[0036] 本発明の一態様に係る積層部材は、入射光を前記入射光よりも長波長の光に変換する有機発光材料を含む色変換フィルムと、異なる複数の熱可塑性樹脂が交互に11層以上積層されてなる積層フィルムとを含むことを特徴とする。

[0037] 本発明の一態様に係るディスプレイは、上記の発明に係る光源ユニットを備えることを特徴とする。

[0038] 本発明の一態様に係る照明装置は、上記の発明に係る光源ユニットを備えることを特徴とする。

発明の効果

[0039] 本発明に係る光源ユニットおよび積層部材は、色再現性に優れつつ低消費電力を実現でき、ディスプレイおよび照明装置に好適に用いることができる。

### 図面の簡単な説明

[0040] [図1]図1は、本発明の実施の形態に係る光源ユニットの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積層部材の一例を示す模式断面図である。

[図3]図3は、積層フィルム表面の凹凸形状の一例を示す模式断面図である。

[図4]図4は、積層フィルム表面の凹凸形状の一例を示す模式断面図である。

[図5]図5は、本発明の実施の形態に係る積層部材の一例を示す模式断面図である。

[図6]図6は、色変換フィルムの一例を示す模式断面図である。

[図7]図7は、本発明の実施の形態に係る積層部材の一例を示す模式断面図である。

[図8]図8は、本発明の実施の形態に係る積層部材の一例を示す模式断面図である。

[図9]図9は、本発明の実施の形態に係る積層部材の一例を示す模式断面図である。

[図10]図10は、本発明の実施の形態に係る光源ユニットの別の一例を示す模式断面図である。

[図11]図11は、本発明の実施例における合成例1の化合物の吸収スペクトルを例示する図である。

[図12]図12は、本発明の実施例における合成例1の化合物の発光スペクトルを例示する図である。

[図13]図13は、本発明の実施例における合成例2の化合物の吸収スペクトルを例示する図である。

[図14]図14は、本発明の実施例における合成例2の化合物の発光スペクトル

ルを例示する図である。

### 発明を実施するための形態

[0041] 以下に本発明に係る光源ユニット、積層部材、それを用いたディスプレイおよび照明装置の好適な実施の形態について詳細に述べるが、本発明は以下の実施例を含む実施の形態に限定して解釈されるものではなく、発明の目的を達成できて、かつ、発明の要旨を逸脱しない範囲内においての種々の変更は当然あり得る。

[0042] 図1は、実施の形態に係る光源ユニットの一例を示す模式断面図である。図1に示すように、本発明の光源ユニット1は、光源2、積層フィルム3、および色変換フィルム4を含んでなる必要がある。また、図2は、実施の形態に係る積層部材の一例を示す模式断面図である。図2に示すように、本発明の積層部材5は、積層フィルム3および色変換フィルム4を含んでなる必要がある。以下、これらの構成について記載する。

#### [0043] <色変換フィルム>

本発明に用いられる色変換フィルムは、少なくとも1種の有機発光材料およびバインダー樹脂を含有し、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層として機能する。

[0044] 本発明に用いられる色変換フィルムは連続層である。ここで連続層とは分断されていない層であることをいう。例えば、有機発光材料およびバインダー樹脂を含有する層が同一平面内にパターンニングされて存在している場合、それは分断された層であるため、本発明にいう連続層には該当しない。一方で、部分的に切れ目や窪みがあるが全体としては一体である構成であれば、連続層に該当する。

[0045] 色変換フィルムの膜厚は特に制限はないが、フィルムの強靱性や成形の容易さの観点から、10～1000 $\mu\text{m}$ であることが好ましい。一方で、耐熱性を高める観点からは、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。

[0046] 本発明における色変換フィルムの膜厚は、JIS K 7130 (1999) プラスチックフィルムおよ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。以下の記載においても同様である。

[0047] ((A) 有機発光材料)

本発明の実施の形態に係る積層部材および光源ユニットに用いられる色変換フィルムは、有機発光材料を含む。ここで、本発明における発光材料とは、何らかの光が照射されたときに、その光とは異なる波長の光を発する材料のことをいう。有機発光材料は、有機物の発光材料である。

[0048] 高効率な色変換を達成するためには、発光材料が発光量子収率の高い発光特性を示す材料であることが好ましい。一般に、発光材料としては無機蛍光体、蛍光顔料、蛍光染料、量子ドット等の公知の発光材料が挙げられるが、分散の均一性、使用量の低減、環境負荷の低減の観点から、有機発光材料が好ましい。

[0049] 有機発光材料としては、以下に示すもの等が挙げられる。例えば、

ナフタレン、アントラセン、フェナンスレン、ピレン、クリセン、ナフタセン、トリフェニレン、ペリレン、フルオランテン、フルオレン、インデン等の縮合アリール環を有する化合物やその誘導体；

フラン、ピロール、チオフェン、シロール、9-シラフルオレン、9, 9'-スピロビスシラフルオレン、ベンゾチオフェン、ベンゾフラン、インドール、ジベンゾチオフェン、ジベンゾフラン、イミダゾピリジン、フェナントロリン、ピリジン、ピラジン、ナフチリジン、キノキサリン、ピロロピリジン等のヘテロアリール環を有する化合物やその誘導体；

ボラン誘導体；

1, 4-ジスチリルベンゼン、4, 4'-ビス(2-(4-ジフェニルアミノフェニル)エテニル)ビフェニル、4, 4'-ビス(N-(スチルベン-4-イル)-N-フェニルアミノ)スチルベン等のスチルベン誘導体；

芳香族アセチレン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、アルダジン

誘導体、ピロメテン誘導体、ジケトピロロ [3, 4-c] ピロール誘導体；

クマリン6、クマリン7、クマリン153などのクマリン誘導体；

イミダゾール、チアゾール、チアジアゾール、カルバゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、トリアゾールなどのアゾール誘導体およびその金属錯体；

インドシアニングリーン等のシアニン系化合物；

フルオレセイン・エオシン・ローダミン等のキサンテン系化合物やチオキサンテン系化合物；

ポリフェニレン系化合物、ナフタルイミド誘導体、フタロシアニン誘導体およびその金属錯体、ポルフィリン誘導体およびその金属錯体；

ナイルレッドやナイルブルー等のオキサジン系化合物；

ヘリセン系化合物；

N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(3-メチルフェニル)-4, 4'-ジフェニル-1, 1'-ジアミン等の芳香族アミン誘導体；および

イリジウム(Ir)、ルテニウム(Ru)、ロジウム(Rh)、パラジウム(Pd)、白金(Pt)、オスミウム(Os)、およびレニウム(Re)等の有機金属錯体化合物；

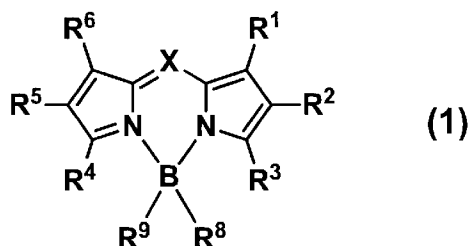
等が好適なものとして挙げられるが、これらに限定されるものではない。

[0050] 有機発光材料は、色変換フィルムの中に少なくとも1種含まれていればよく、2種以上含まれていてもよい。有機発光材料は、蛍光発光材料であっても、リン光発光材料であっても良いが、高い色純度を達成するためには、蛍光発光材料が好ましい。これらの中でも、熱的安定性および光安定性が高いことから、縮合アリール環を有する化合物やその誘導体が好ましい。また、有機発光材料としては、溶解性や分子構造の多様性の観点からは、配位結合を有する化合物が好ましい。半値幅が小さく、高効率な発光が可能である点で、フッ化ホウ素錯体などのホウ素を含有する化合物も好ましい。

[0051] 中でも、高い蛍光量子収率を与え、耐久性が良好である点で、ピロメテン誘導体が好ましい。より好ましくは、一般式(1)で表される化合物、すな

わち、ピロメテン化合物である。

[0052] [化3]



[0053] 有機発光材料として、一般式（１）で表される化合物を含有する場合、一般式（１）において、XはC－R<sup>7</sup>またはNである。R<sup>1</sup>～R<sup>9</sup>はそれぞれ同じでも異なってもよく、水素、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、および隣接置換基との間に形成される縮合環および脂肪族環の中から選ばれる。

[0054] 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。

[0055] 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。

[0056] 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。

[0057] 「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。

[0058] 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。

[0059] 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*-ブチル基など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。

[0060] 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、アダマンチル基など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。

[0061] 複素環基とは、例えば、ピラン環、ピペリジン環、環状アミドなど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。

[0062] アルケニル基とは、例えば、ビニル基、アリル基、ブタジエニル基など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。

[0063] 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など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。

[0064] アルキニル基とは、例えば、エチニル基など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。

[0065] アルコキシ基とは、例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基など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。

[0066] 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。

[0067] アリールエーテル基とは、例えば、フェノキシ基など、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。

[0068] 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。

[0069] 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、ヘリセニル基などの芳香族炭化水素基を示す。

[0070] 中でも、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基、フルオレニル基、フェナントリル基、アントラセニル基、ピレニル基、フルオランテニル基、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。

[0071]  $R^1 \sim R^9$ が置換もしくは無置換のアリール基である場合、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。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。

[0072] 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。

[0073] ヘテロアリール基とは、例えば、ピリジル基、フラニル基、チエニル基、キノリニル基、イソキノリニル基、ピラジニル基、ピリミジニル基、ピリダジニル基、トリアジニル基、ナフチリジニル基、シンノリニル基、フタラジニル基、キノキサリニル基、キナゾリニル基、ベンゾフラニル基、ベンゾチエニル基、インドリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチエニル基、カルバゾリル基、ベンゾカルバゾリル基、カルボリニル基、インドロカルバゾリル基、ベンゾフロカルバゾリル基、ベンゾチエノカルバゾリル基、ジヒドロイ

ンデノカルバゾリル基、ベンゾキノリニル基、アクリジニル基、ジベンゾアクリジニル基、ベンゾイミダゾリル基、イミダゾピリジル基、ベンゾオキサゾリル基、ベンゾチアゾリル基、フェナントロリニル基などの、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。

[0074]  $R^1 \sim R^9$ 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。

[0075] 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。

[0076] 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。

- [0077] カルボニル基、カルボキシ基、オキシカルボニル基、カルバモイル基は、置換基を有していても有していなくてもよい。ここで、置換基としては、例えばアルキル基、シクロアルキル基、アリール基、ヘテロアリール基などが挙げられ、これら置換基はさらに置換されてもよい。
- [0078] アミノ基とは、置換もしくは無置換のアミノ基である。置換する場合の置換基としては、例えば、アリール基、ヘテロアリール基、直鎖アルキル基、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。
- [0079] 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など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など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。
- [0080] シロキサニル基とは、例えばトリメチルシロキサニル基など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。
- [0081] ボリル基とは、置換もしくは無置換のボリル基である。置換する場合の置換基としては、例えば、アリール基、ヘテロアリール基、直鎖アルキル基、分岐アルキル基、アリールエーテル基、アルコキシ基、ヒドロキシ基が挙げられ、中でもアリール基、アリールエーテル基が好ましい。
- [0082] 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。
- [0083] 隣接置換基との間に形成される縮合環とは、任意の隣接する2置換基（例

例えば一般式(1)の $R^1$ と $R^2$ )が互いに結合して、共役または非共役の環状骨格を形成することをいう。このような縮合環の構成元素としては、炭素以外にも窒素、酸素、硫黄、リンおよびケイ素から選ばれる元素を含んでいてもよい。また、これらの縮合環がさらに別の環と縮合してもよい。

[0084] 一般式(1)で表される化合物は、高い蛍光量子収率を示し、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。

[0085] 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などのさまざまな特性や物性を調整することができる。

[0086] 例えば、 $R^1$ 、 $R^3$ 、 $R^4$ および $R^6$ が全て水素である場合に比べ、 $R^1$ 、 $R^3$ 、 $R^4$ および $R^6$ の少なくとも1つが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場合の方が、より良い熱的安定性および光安定性を示す。

[0087]  $R^1$ 、 $R^3$ 、 $R^4$ および $R^6$ の少なくとも1つが置換もしくは無置換のアルキル基である場合、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、蛍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。

[0088]  $R^1$ 、 $R^3$ 、 $R^4$ および $R^6$ の少なくとも1つが置換もしくは無置換のアリール基である場合、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

ニル基である。特に好ましくは、フェニル基である。

[0089]  $R^1$ 、 $R^3$ 、 $R^4$ および $R^6$ の少なくとも1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。

[0090]  $R^1$ 、 $R^3$ 、 $R^4$ 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。この場合、アルキル基としては、合成の容易さ、原料入手の容易さという観点から、メチル基が好ましい。

[0091]  $R^1$ 、 $R^3$ 、 $R^4$ 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。この場合、 $R^1$ 、 $R^3$ 、 $R^4$ 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ことがより好ましい。

[0092] 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、発光特性や色純度などにバランスの取れた化合物を得ることが可能である。

[0093] 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 $R^4 \neq R^6$ などのように、複数種類の置換基を導入することが好ましい。ここで $\neq$ は、異なる構造の基であることを示す。例えば、 $R^1 \neq R^4$ は、 $R^1$ と $R^4$ とが異なる構造の基であることを示す。上記のように複数種類の置換基を導入することにより、色純度に影響を与えるアリール基と発光効率に影響を与えるアリール基とを同時に導入することができるため、細やかな調節が可能となる。

[0094] 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

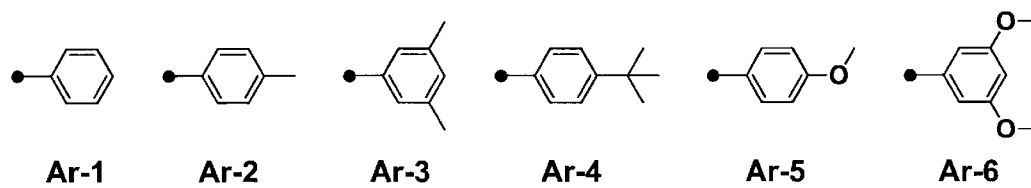
ンスよく向上させるという観点から、好ましい。この場合、一般式（１）で表される化合物に対して、色純度に影響を与えるアリール基を両側のピロール環にそれぞれ１つ以上導入し、それ以外の位置に発光効率に影響を与えるアリール基を導入することができるため、これら両方の性質を最大限に向上させることができる。また、 $R^1 \neq R^3$  または  $R^4 \neq R^6$  である場合、耐熱性と色純度との双方を向上させるという観点から、 $R^1 = R^4$  および  $R^3 = R^6$  であることがより好ましい。

[0095] 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などが挙げられる。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。

[0096] 一方、主に発光効率に影響を与えるアリール基としては、*tert*-ブチル基、アダマンチル基、メトキシ基などのかさ高い置換基を有するアリール基が好ましい。

[0097]  $R^1$ 、 $R^3$ 、 $R^4$  および  $R^6$  が、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、 $R^1$ 、 $R^3$ 、 $R^4$  および  $R^6$  は、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フェニル基であることが好ましい。このとき、 $R^1$ 、 $R^3$ 、 $R^4$  および  $R^6$  は、それぞれ以下の  $A_{r-1} \sim A_{r-6}$  から選ばれることがより好ましい。この場合、 $R^1$ 、 $R^3$ 、 $R^4$  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。

[0098] [化4]



[0099]

[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 |

[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-6 | 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 |



[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 |
| Ar-2 | Ar-1 | Ar-2 | Ar-6 |  | Ar-2 | Ar-2 | Ar-2 | Ar-7 |



[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-4 | 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 |  | Ar-2 | Ar-6 | Ar-5 | Ar-6 |

[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-2 | Ar-1 | 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 |

[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-6 | 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 |

[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 |  | Ar-4 | Ar-3 | Ar-5 | Ar-6 |

[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-2 | 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 |



から水素またはアルキル基が好ましく、発光スペクトルにおいて狭い半値幅を得やすいという観点から、水素がより好ましい。

[0111]  $R^8$ および $R^9$ は、アルキル基、アリール基、ヘテロアリール基、フッ素、含フッ素アルキル基、含フッ素ヘテロアリール基または含フッ素アリール基が好ましい。特に、光源に対して安定であって、より高い蛍光量子収率が得られることから、 $R^8$ および $R^9$ は、フッ素または含フッ素アリール基であることがより好ましい。さらに、合成の容易さから、 $R^8$ および $R^9$ は、フッ素であることがさらに好ましい。

[0112] 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り、例えばフルオロフェニル基、トリフルオロメチルフェニル基およびペンタフルオロフェニル基などがあげられる。含フッ素ヘテロアリール基とは、フッ素を含むヘテロアリール基であり、例えばフルオロピリジル基、トリフルオロメチルピリジル基およびトリフルオロピリジル基などがあげられる。含フッ素アルキル基とは、フッ素を含むアルキル基であり、例えば、トリフルオロメチル基やペンタフルオロエチル基などがあげられる。

[0113] また、一般式(1)において、 $X$ は $C-R^7$  ( $C$ :炭素)であることが、光安定性の観点から好ましい。

[0114]  $X$ が $C-R^7$ であるとき、一般式(1)で表される化合物の耐久性、すなわち、この化合物の発光強度の経時的な低下には、置換基 $R^7$ が大きく影響する。具体的には、 $R^7$ が水素である場合、この水素の反応性が高く、この部位と空気中の水分や酸素とが容易に反応してしまう。このことは、一般式(1)で表される化合物の分解を引き起こす。また、 $R^7$ 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、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、 $R^7$ は剛直で、かつ運動の自由度が小さく凝集を引き起こしにくい基であることが好ましく、具体的には、置換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。

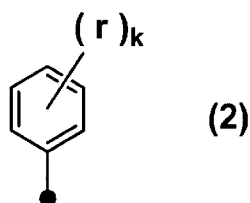
[0115] より高い蛍光量子収率を与え、より熱分解しづらい点、また光安定性の観点から、XがC-R<sup>7</sup>であり、R<sup>7</sup>が置換もしくは無置換のアリール基であることが好ましい。アリール基としては、発光波長を損なわないという観点から、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基、フルオレニル基、フェナントリル基、アントラセニル基が好ましい。

[0116] さらに、一般式(1)で表される化合物の光安定性を高めるには、R<sup>7</sup>とピロメテン骨格との炭素-炭素結合のねじれを適度に抑える必要がある。何故ならば、過度にねじれが大きいと、光源に対する反応性が高まるなど、光安定性が低下するからである。このような観点から、R<sup>7</sup>としては、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であることがより好ましい。特に好ましくは、置換もしくは無置換のフェニル基である。

[0117] また、R<sup>7</sup>は適度にかさ高い置換基であることが好ましい。R<sup>7</sup>がある程度のかさ高さを有することにより、分子の凝集を防ぐことができる。この結果、一般式(1)で表される化合物の発光効率や耐久性がより向上する。

[0118] このようなかさ高い置換基のさらに好ましい例としては、下記一般式(2)で表されるR<sup>7</sup>の構造が挙げられる。

[0119] [化5]



[0120] 一般式(2)において、rは、水素、アルキル基、シクロアルキル基、複素環基、アルケニル基、シクロアルケニル基、アルキニル基、水酸基、チオール基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリールエーテル基、アリールチオエーテル基、アリール基、ヘテロアリール基、ハロゲン、シアノ基、アル

デヒド基、カルボニル基、カルボキシ基、オキシカルボニル基、カルバモイル基、アミノ基、ニトロ基、シリル基、シロキサニル基、ボリル基、ホスフィンオキシド基からなる群より選ばれる。kは1～3の整数である。kが2以上である場合、rはそれぞれ同じでも異なっても良い。

[0121] より高い蛍光量子収率を与えることができるという観点から、rは置換もしくは無置換のアリール基であることが好ましい。このアリール基の中でも、特に、フェニル基、ナフチル基が好ましい例として挙げられる。rがアリール基である場合、一般式(2)のkは1もしくは2であることが好ましく、中でも、分子の凝集をより防ぐという観点から、kは2であることがより好ましい。さらに、kが2以上である場合、rの少なくとも1つは、アルキル基で置換されていることが好ましい。この場合のアルキル基としては、熱的安定性の観点から、メチル基、エチル基およびtert-ブチル基が特に好ましい例として挙げられる。

[0122] また、蛍光波長や吸収波長を制御したり、溶媒との相溶性を高めたりするという観点から、r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またはハロゲンであることが好ましく、メチル基、エチル基、tert-ブチル基、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。rがtert-ブチル基またはメトキシ基であることは、分子同士の凝集による消光を防ぐことについて、より有効である。

[0123] また、一般式(1)で表される化合物の別の態様として、R<sup>1</sup>～R<sup>7</sup>のうち少なくとも1つが電子求引基であることが好ましい。特に、(1) R<sup>1</sup>～R<sup>6</sup>のうち少なくとも1つが電子求引基であること、(2) R<sup>7</sup>が電子求引基であること、または(3) R<sup>1</sup>～R<sup>6</sup>のうち少なくとも1つが電子求引基であり、かつ、R<sup>7</sup>が電子求引基であること、が好ましい。このように上記化合物のピロメテン骨格に電子求引基を導入することで、ピロメテン骨格の電子密度を大幅に下げることができる。これにより、上記化合物の酸素に対する安定性がより向上し、この結果、上記化合物の耐久性をより向上させることができ

る。

[0124] 電子求引基とは、電子受容性基とも呼称し、有機電子論において、誘起効果や共鳴効果により、置換した原子団から、電子を引き付ける原子団である。電子求引基としては、ハメット則の置換基定数 ( $\sigma_p$  (パラ)) として、正の値をとるものが挙げられる。ハメット則の置換基定数 ( $\sigma_p$  (パラ)) は、化学便覧基礎編改訂5版 (II-380頁) から引用することができる。

[0125] なお、フェニル基も、上述したような正の値をとる例もあるが、本発明において、電子求引基にフェニル基は含まれない。

[0126] 電子求引基の例として、例えば、 $-F$  ( $\sigma_p$ : +0.06)、 $-Cl$  ( $\sigma_p$ : +0.23)、 $-Br$  ( $\sigma_p$ : +0.23)、 $-I$  ( $\sigma_p$ : +0.18)、 $-CO_2R^{12}$  ( $\sigma_p$ :  $R^{12}$ がエチル基の時+0.45)、 $-CONH_2$  ( $\sigma_p$ : +0.38)、 $-COR^{12}$  ( $\sigma_p$ :  $R^{12}$ がメチル基の時+0.49)、 $-CF_3$  ( $\sigma_p$ : +0.50)、 $-SO_2R^{12}$  ( $\sigma_p$ :  $R^{12}$ がメチル基の時+0.69)、 $-NO_2$  ( $\sigma_p$ : +0.81) 等が挙げられる。 $R^{12}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成原子数5~30の複素環基、置換もしくは無置換の炭素数1~30のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~30のシクロアルキル基を表す。これら各基の具体例としては、上記と同様の例が挙げられる。

[0127] 好ましい電子求引基としては、フッ素、含フッ素アリール基、含フッ素ヘテロアリール基、含フッ素アルキル基、置換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またはシアノ基が挙げられる。何故なら、これらは化学的に分解しにくいからである。

[0128] より好ましい電子求引基としては、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またはシアノ基が挙げられる。何故なら、これらは濃度消光を防ぎ、発光量子収率を向上させる効果につながるからである。特に好ましい電子求引基は、置換もしくは無置換の

エステル基である。

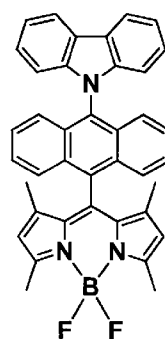
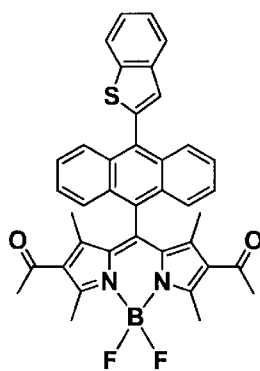
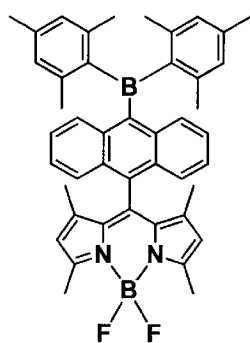
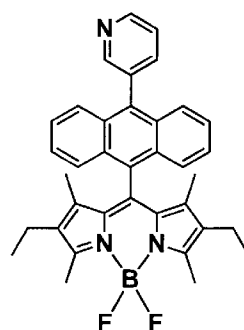
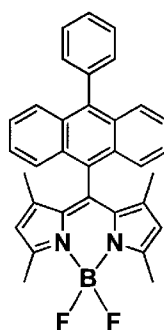
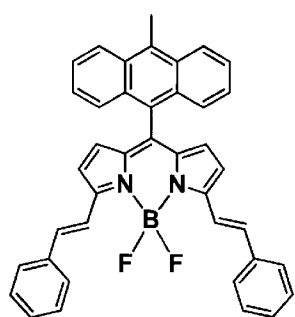
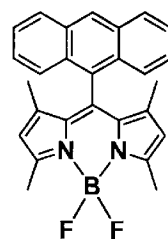
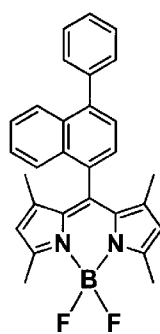
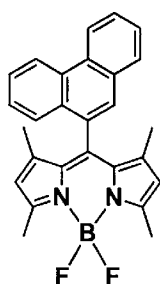
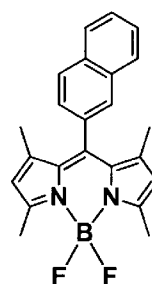
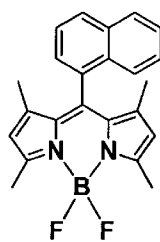
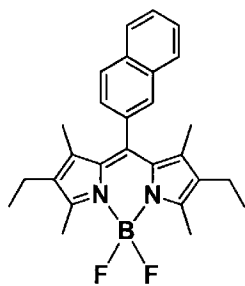
[0129] 一般式(1)で表される化合物の特に好ましい例の一つとして、 $R^1$ 、 $R^3$ 、 $R^4$ および $R^6$ が全て、それぞれ同じでも異なってもよく、置換もしくは無置換のアルキル基であって、さらに、 $X$ が $C-R^7$ であり、 $R^7$ が一般式(2)で表される基である場合が挙げられる。この場合、 $R^7$ は、 $r$ が置換もしくは無置換のフェニル基として含まれる一般式(2)で表される基であることが特に好ましい。

[0130] また、一般式(1)で表される化合物の特に好ましい例の別の一つとして、 $R^1$ 、 $R^3$ 、 $R^4$ および $R^6$ が全て、それぞれ同じでも異なってもよく、上述の $A_{r-1} \sim A_{r-6}$ から選ばれ、さらに、 $X$ が $C-R^7$ であり、 $R^7$ が一般式(2)で表される基である場合が挙げられる。この場合、 $R^7$ は、 $r$ がtert-ブチル基、メトキシ基として含まれる一般式(2)で表される基であることがより好ましく、 $r$ がメトキシ基として含まれる一般式(2)で表される基であることが特に好ましい。

[0131] 一般式(1)で表される化合物の一例を以下に示すが、この化合物は、これらに限定されるものではない。

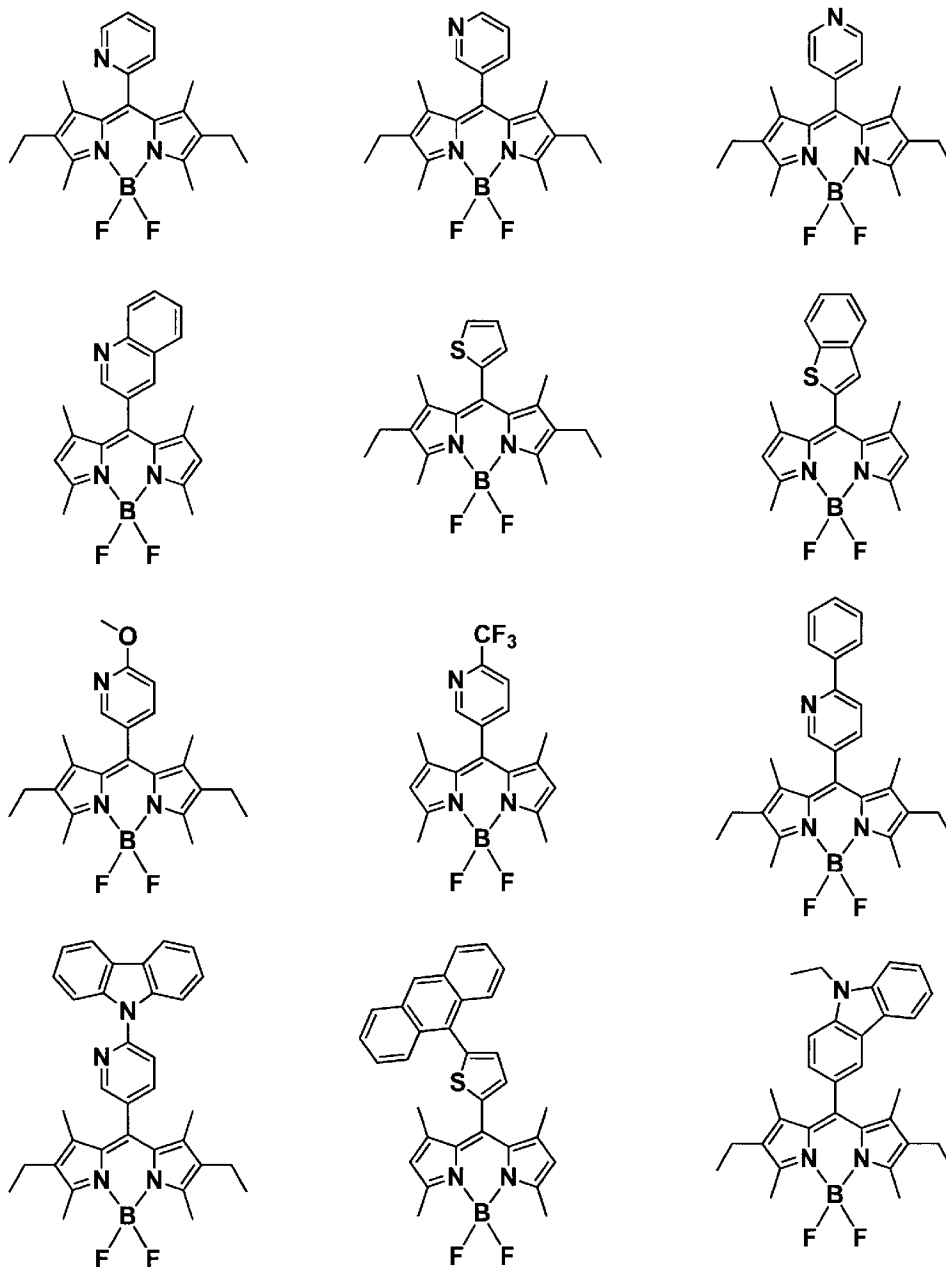
[0132]

[化6]



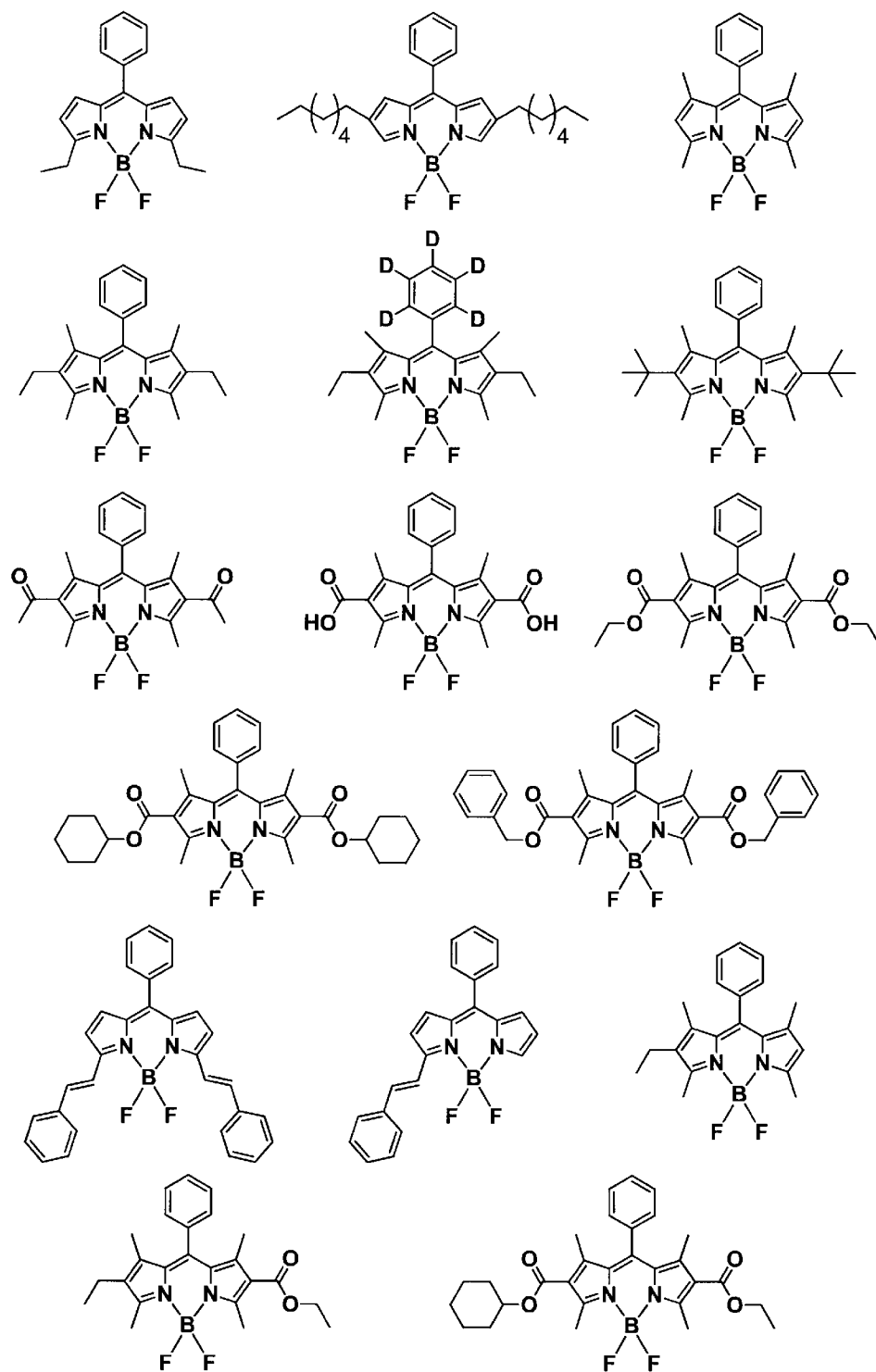
[0133]

[化7]



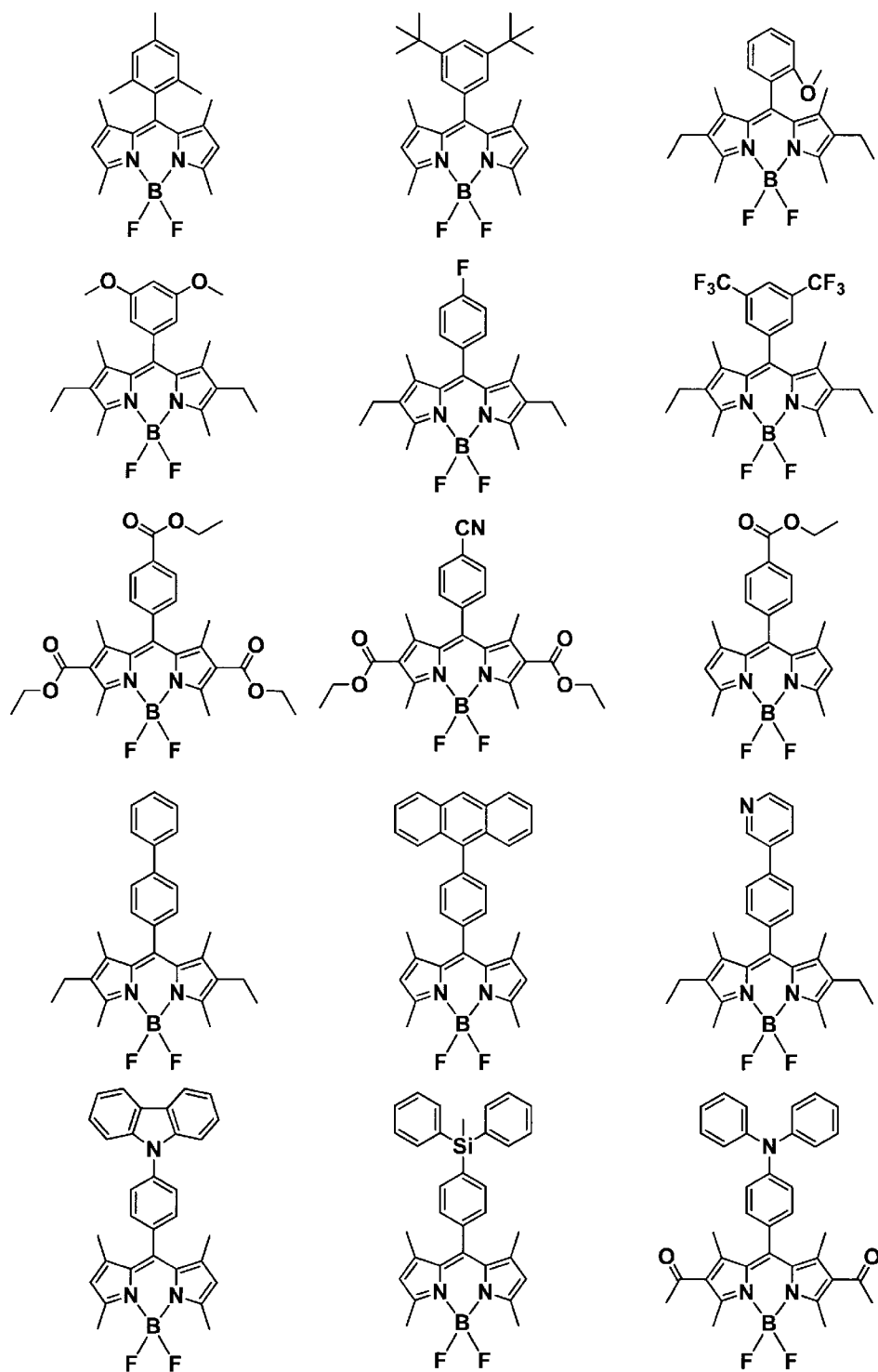
[0134]

[化8]



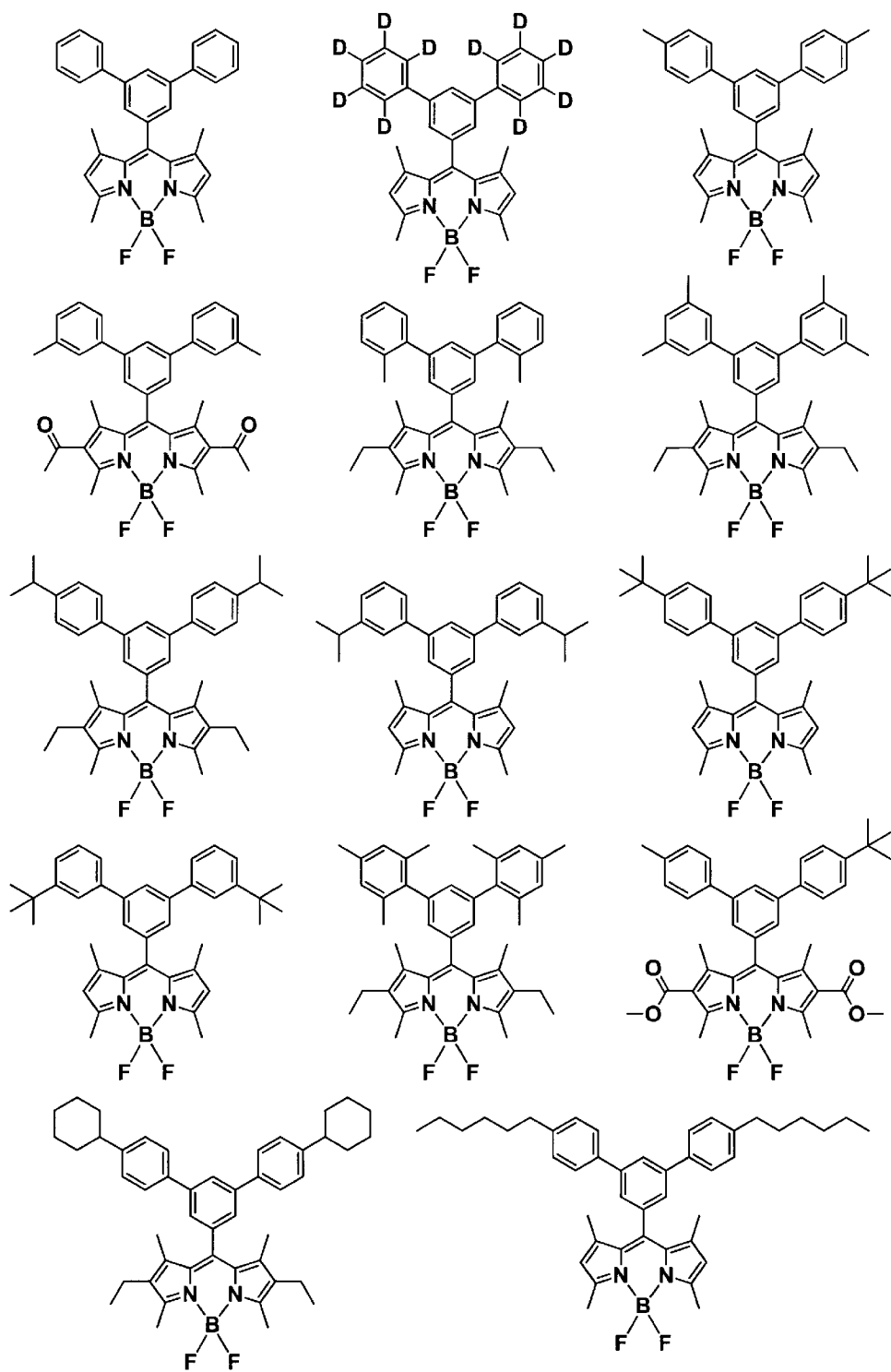
[0135]

[化9]



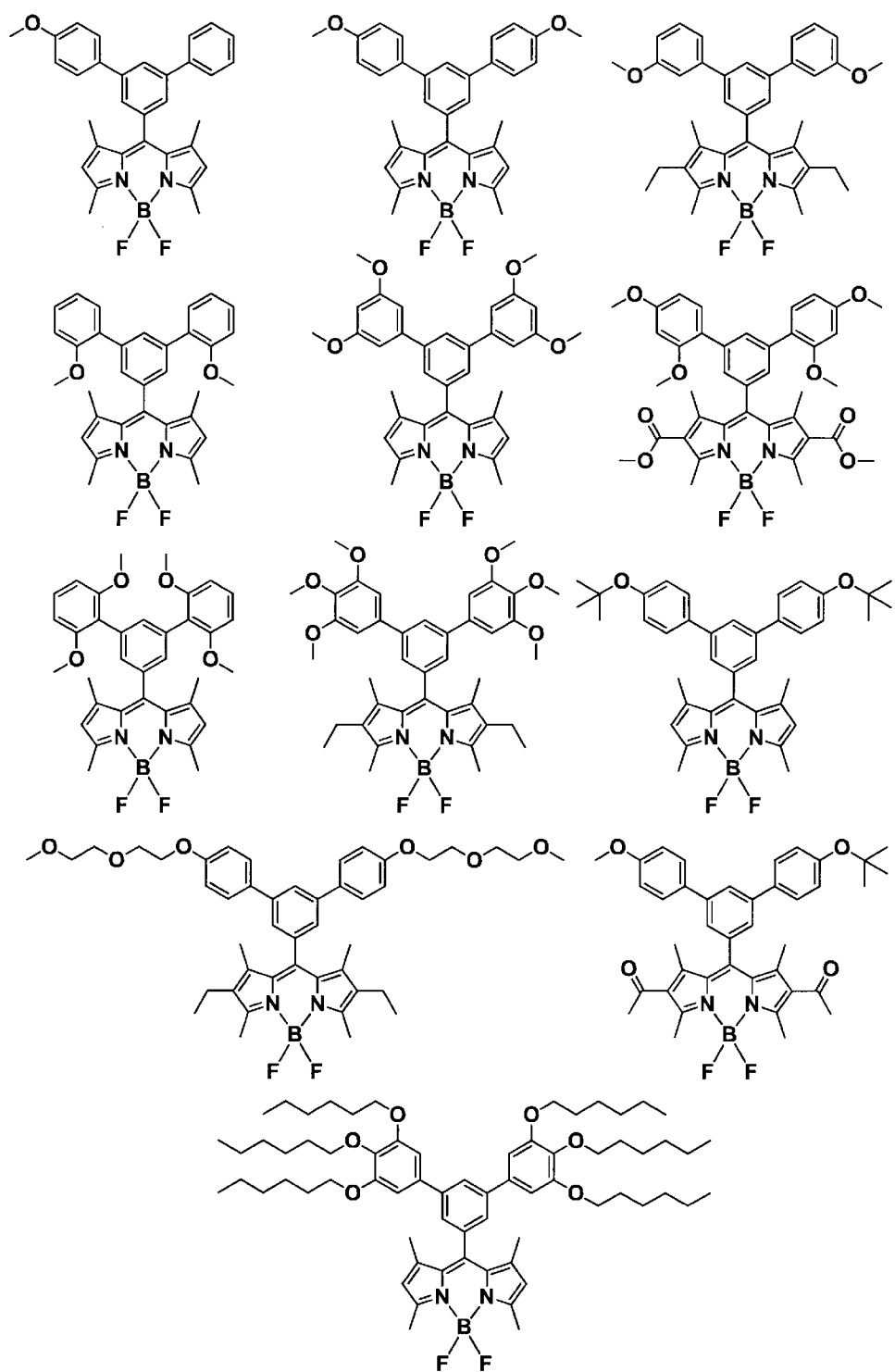
[0136]

[化10]



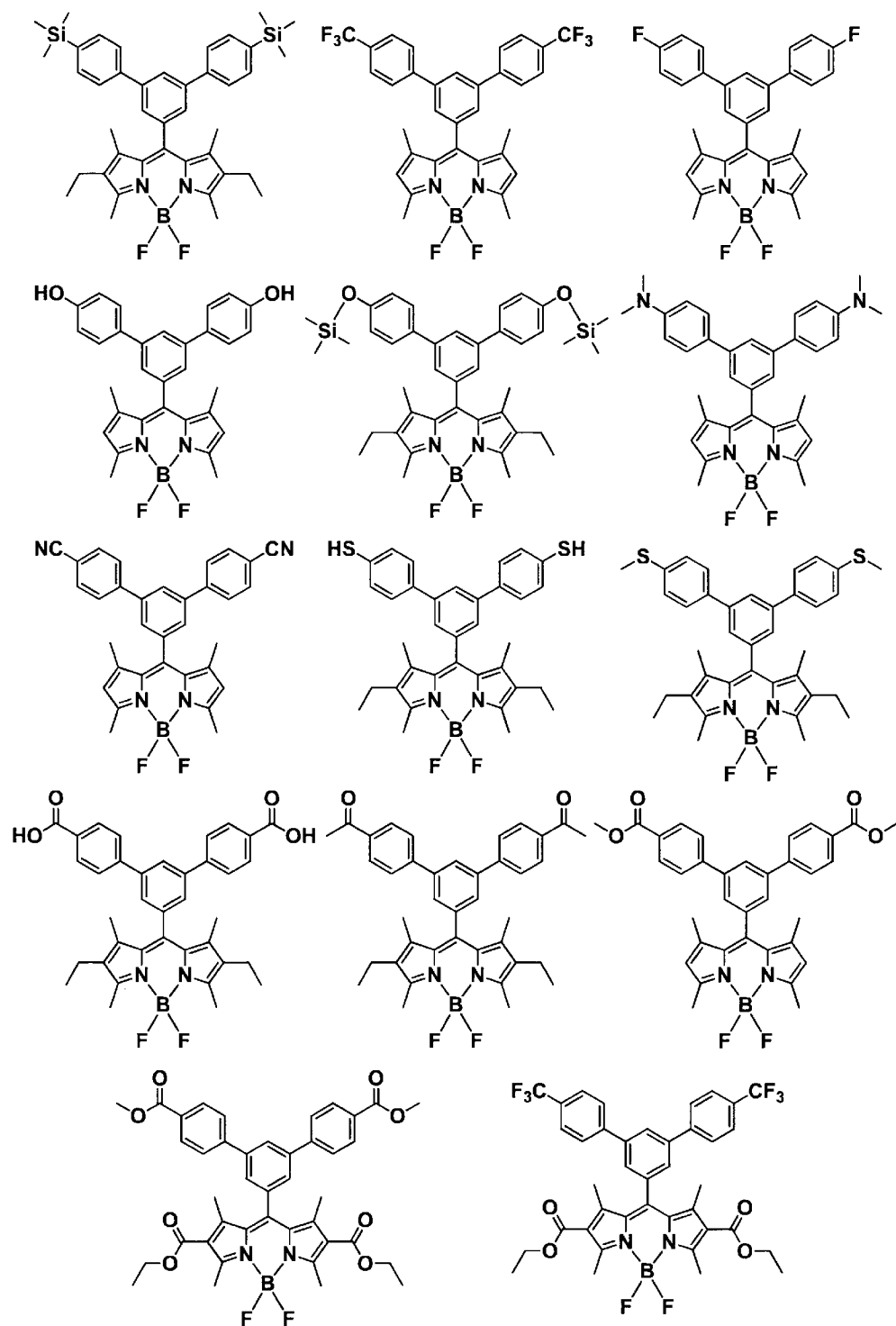
[0137]

[化11]



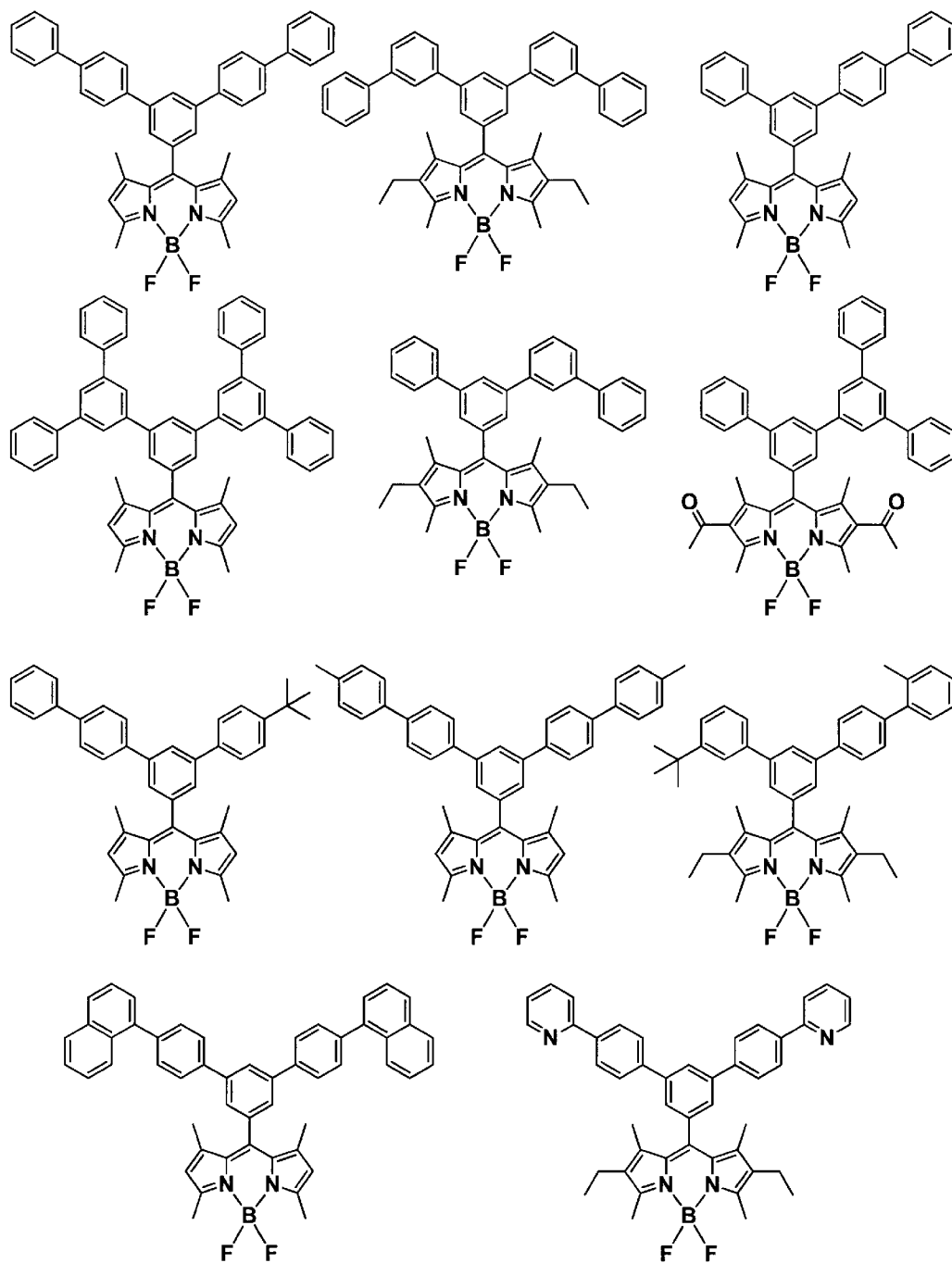
[0138]

[化12]



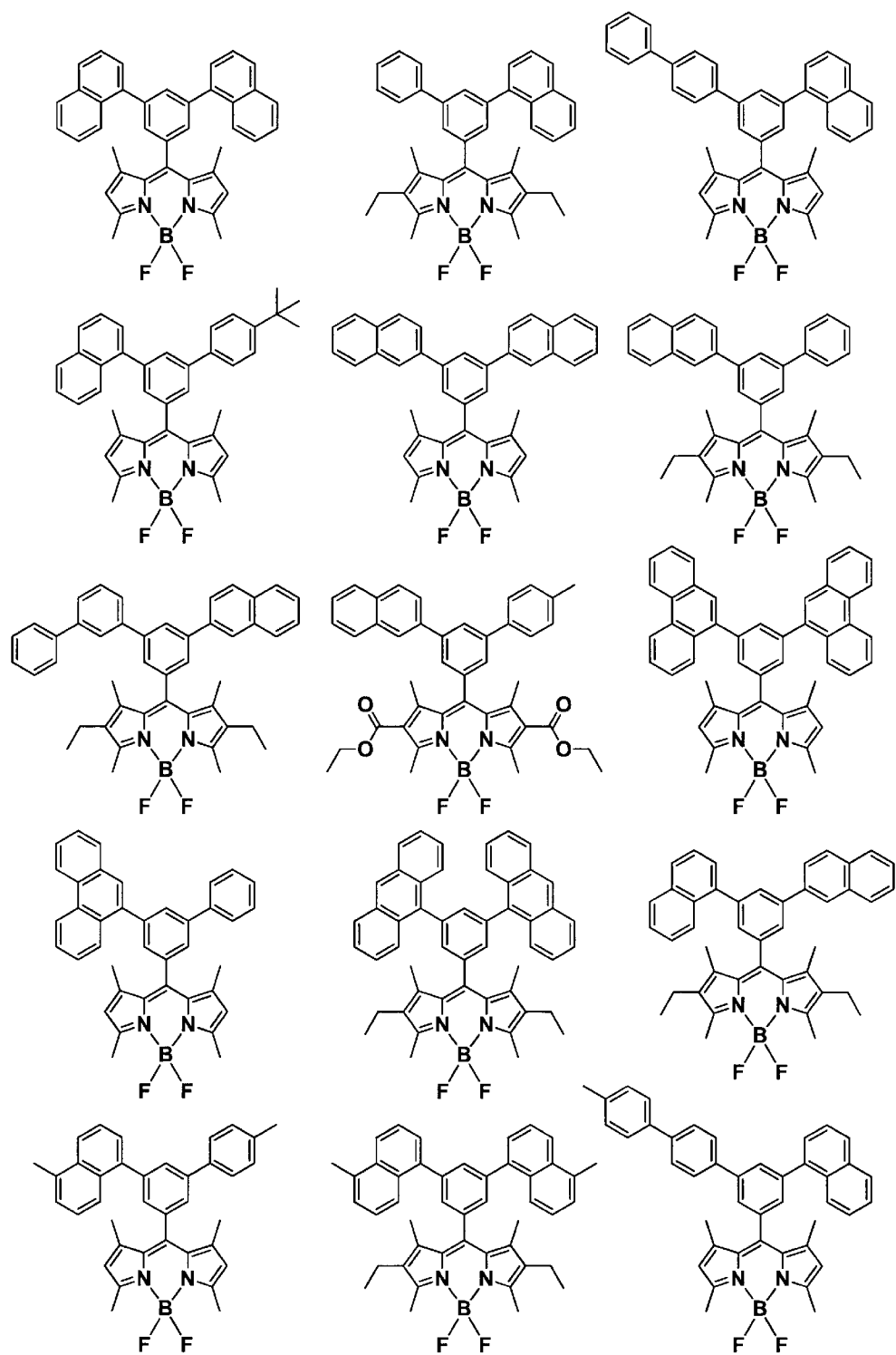
[0139]

[化13]



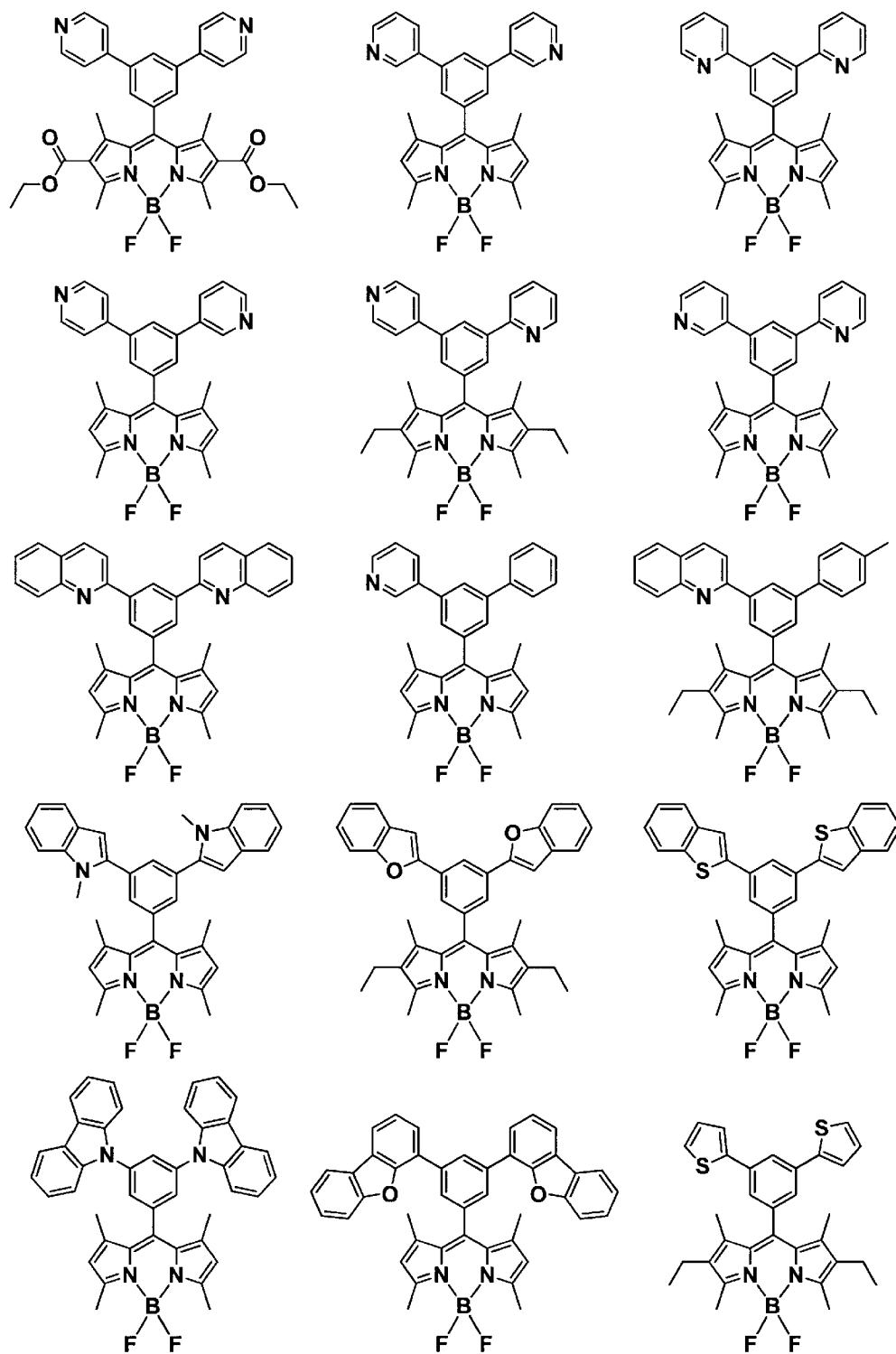
[0140]

[化14]



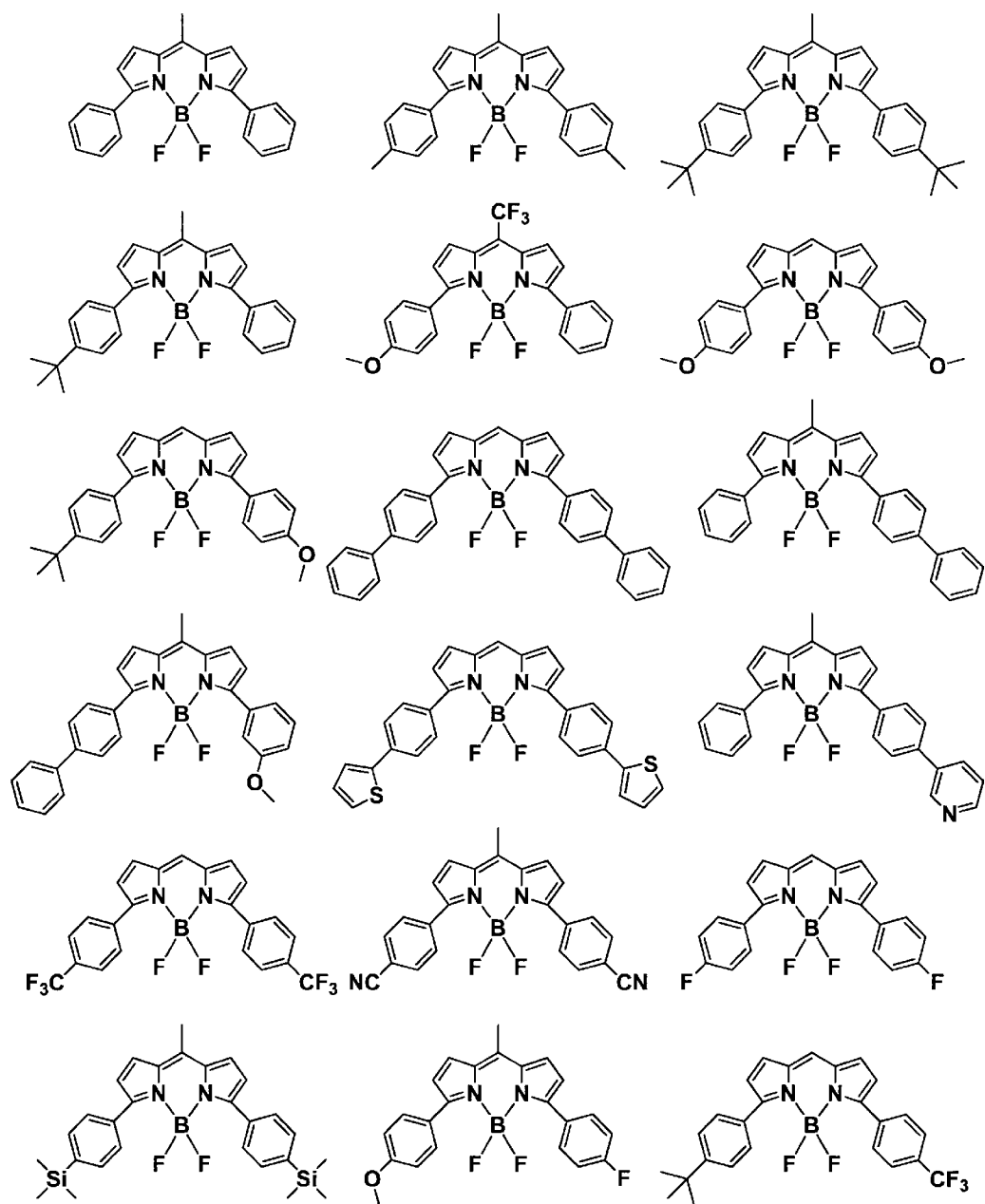
[0141]

[化15]



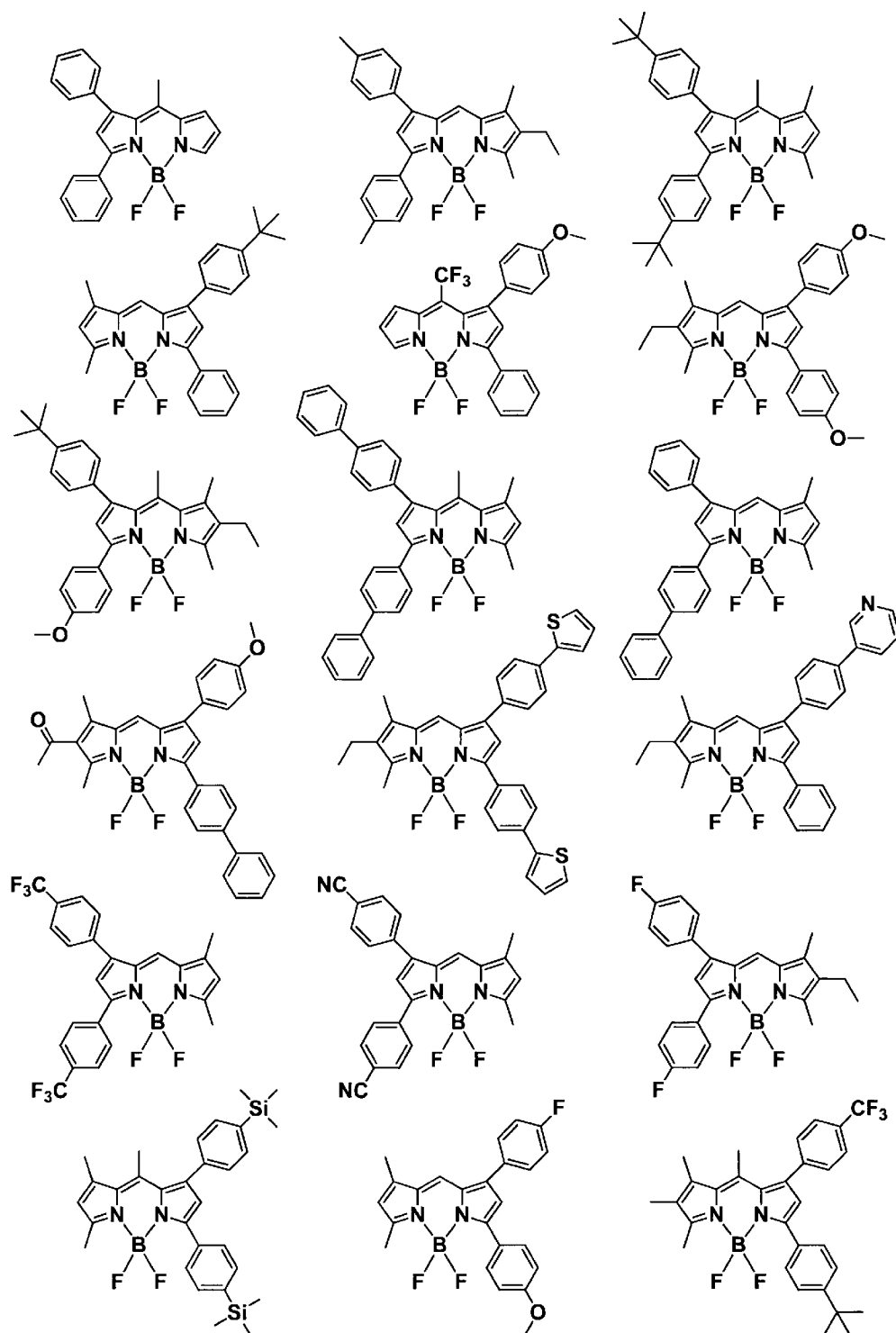
[0142]

[化16]



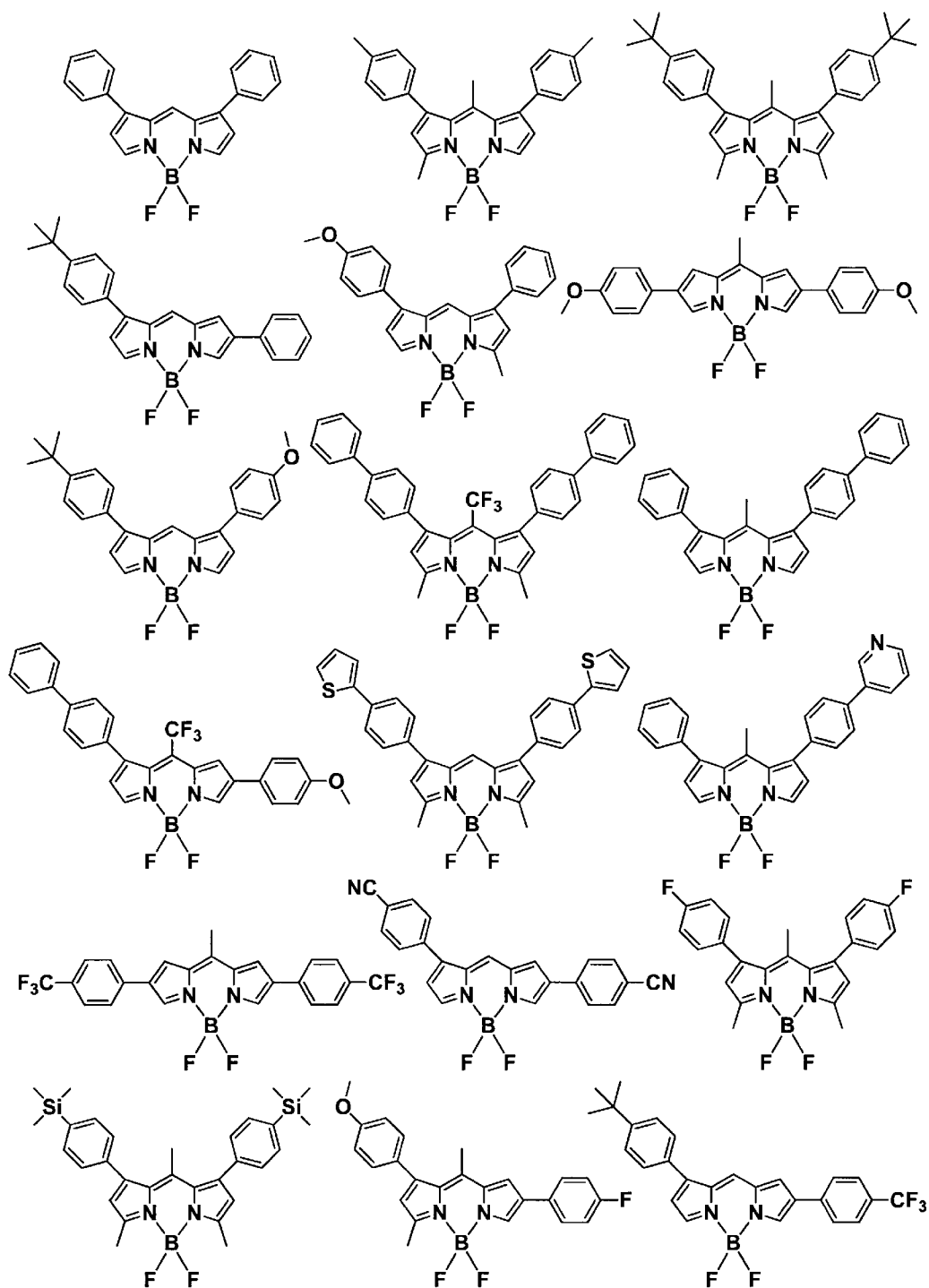
[0143]

[化17]



[0144]

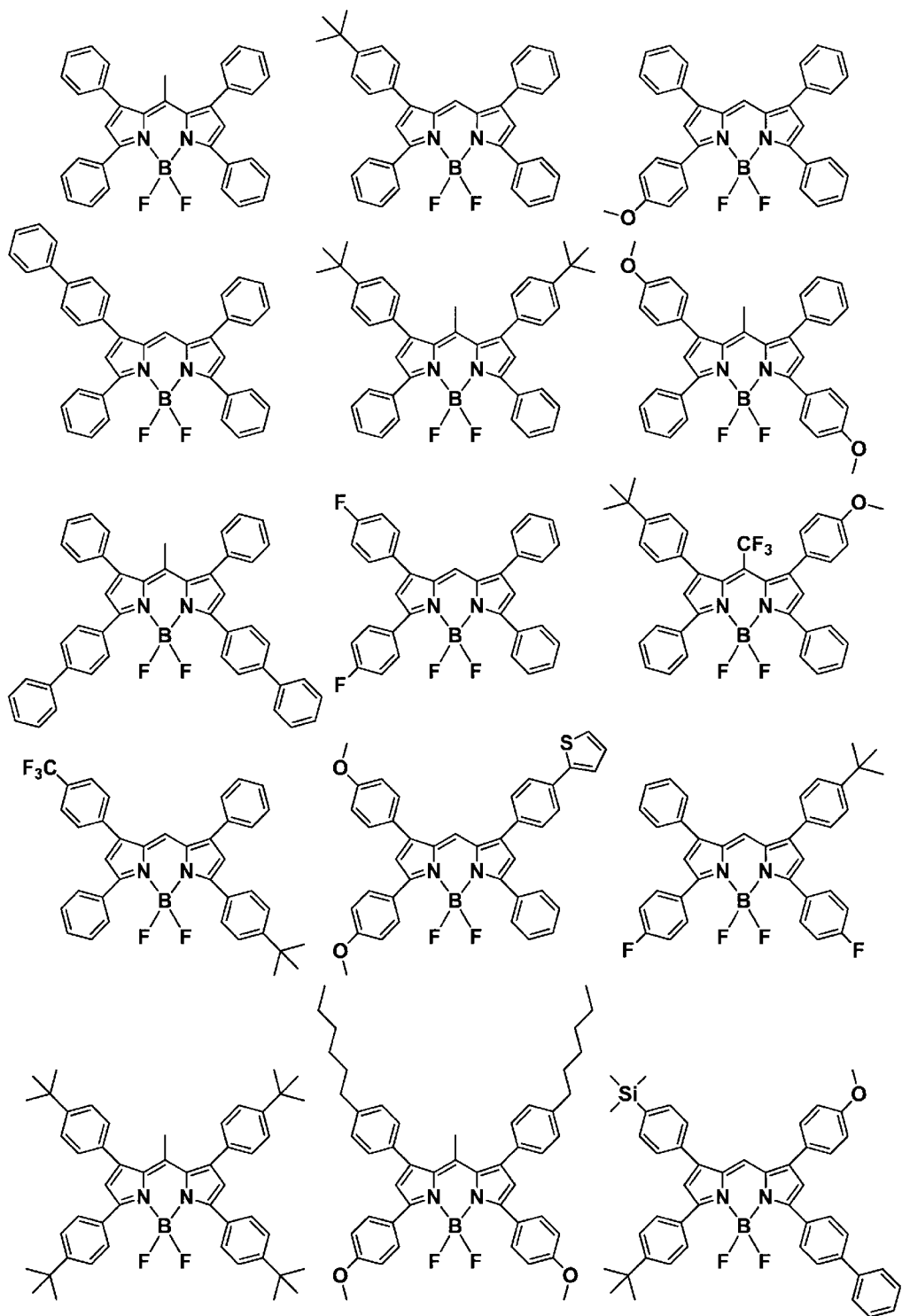
[化18]



[0145]

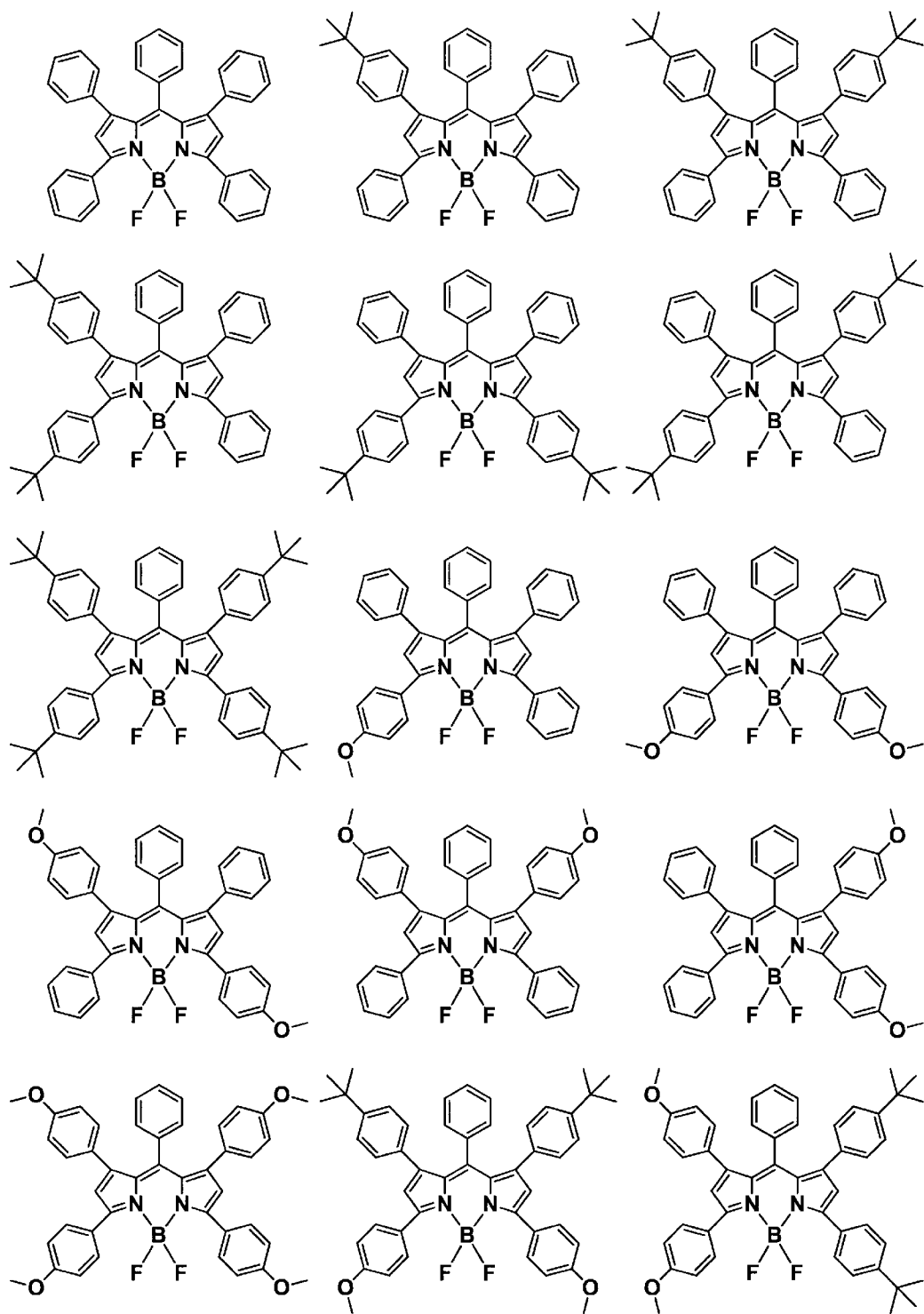


[化20]



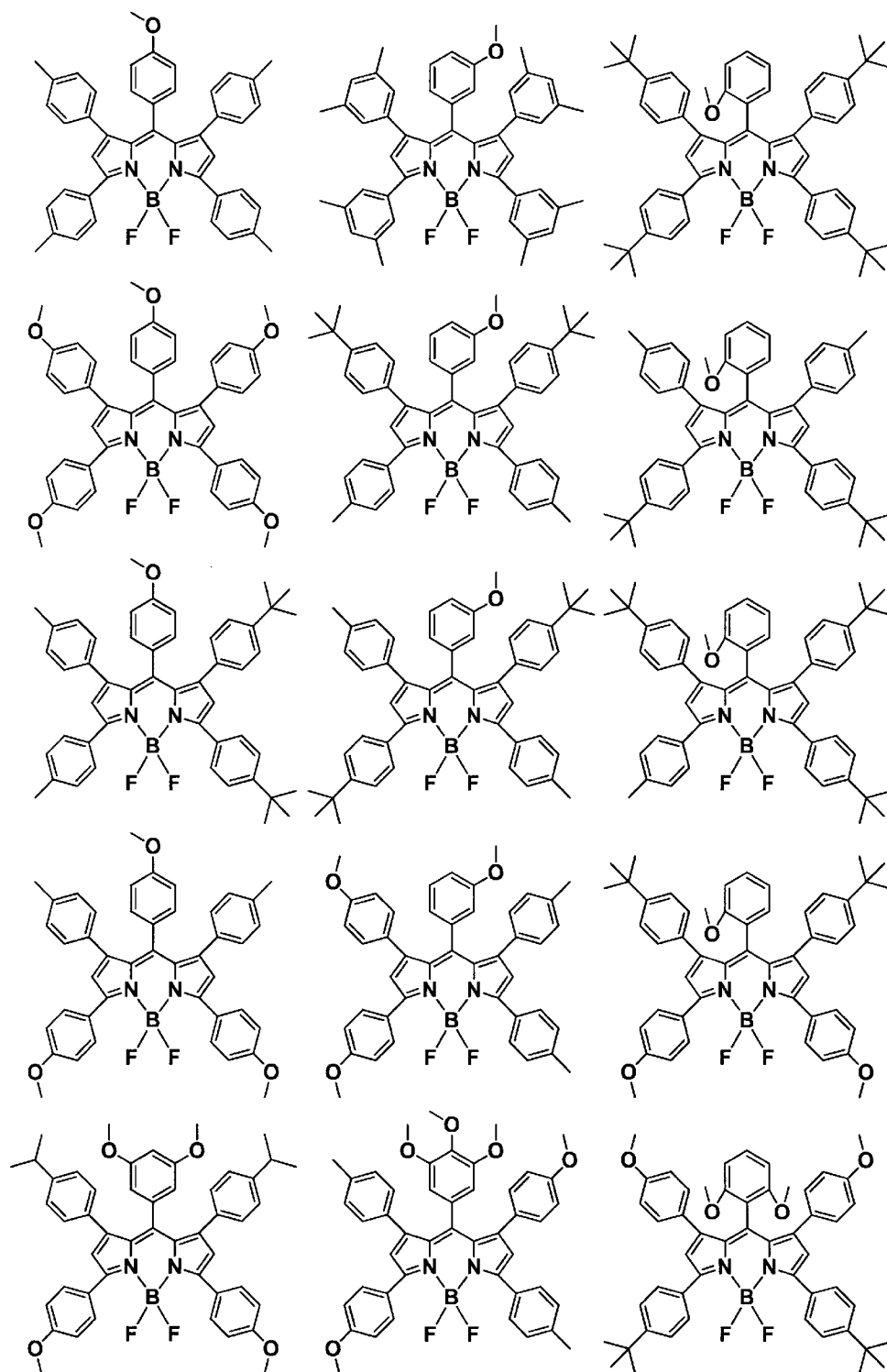
[0147]

[化21]



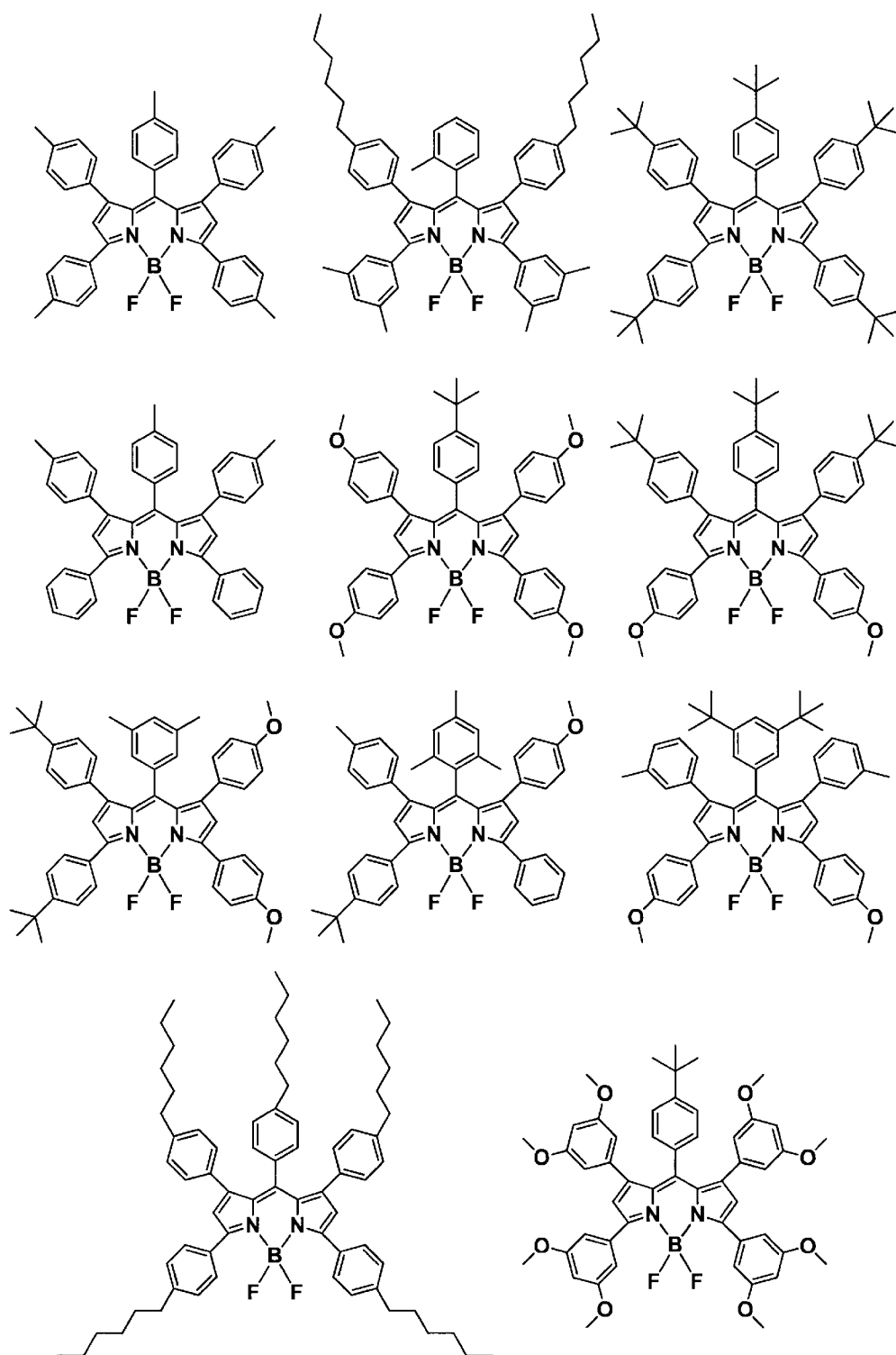
[0148]

[化22]



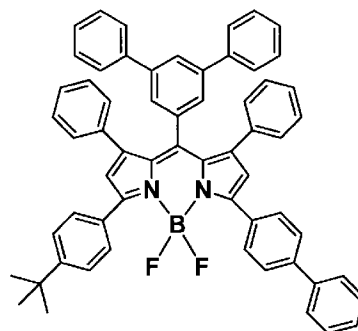
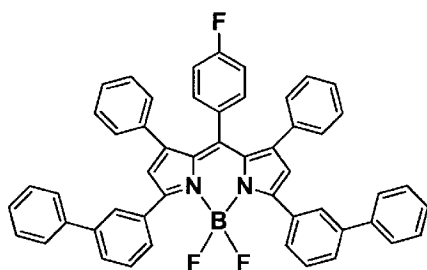
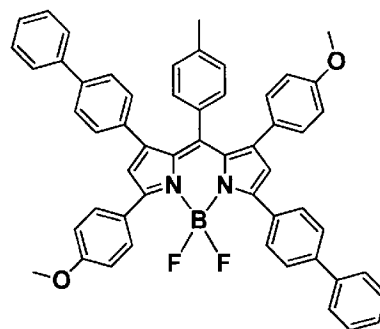
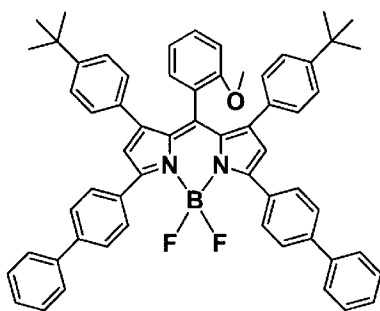
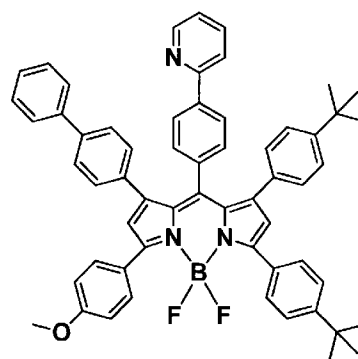
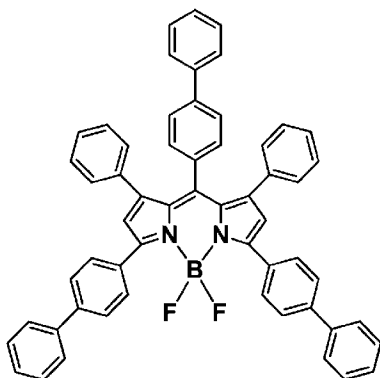
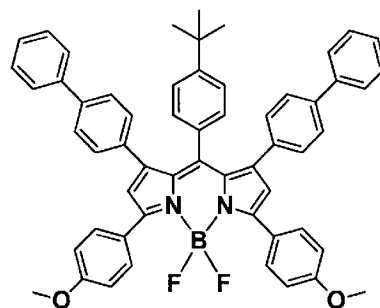
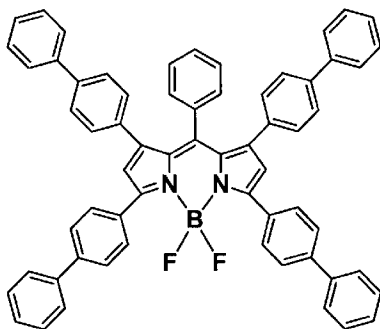
[0149]

[化23]



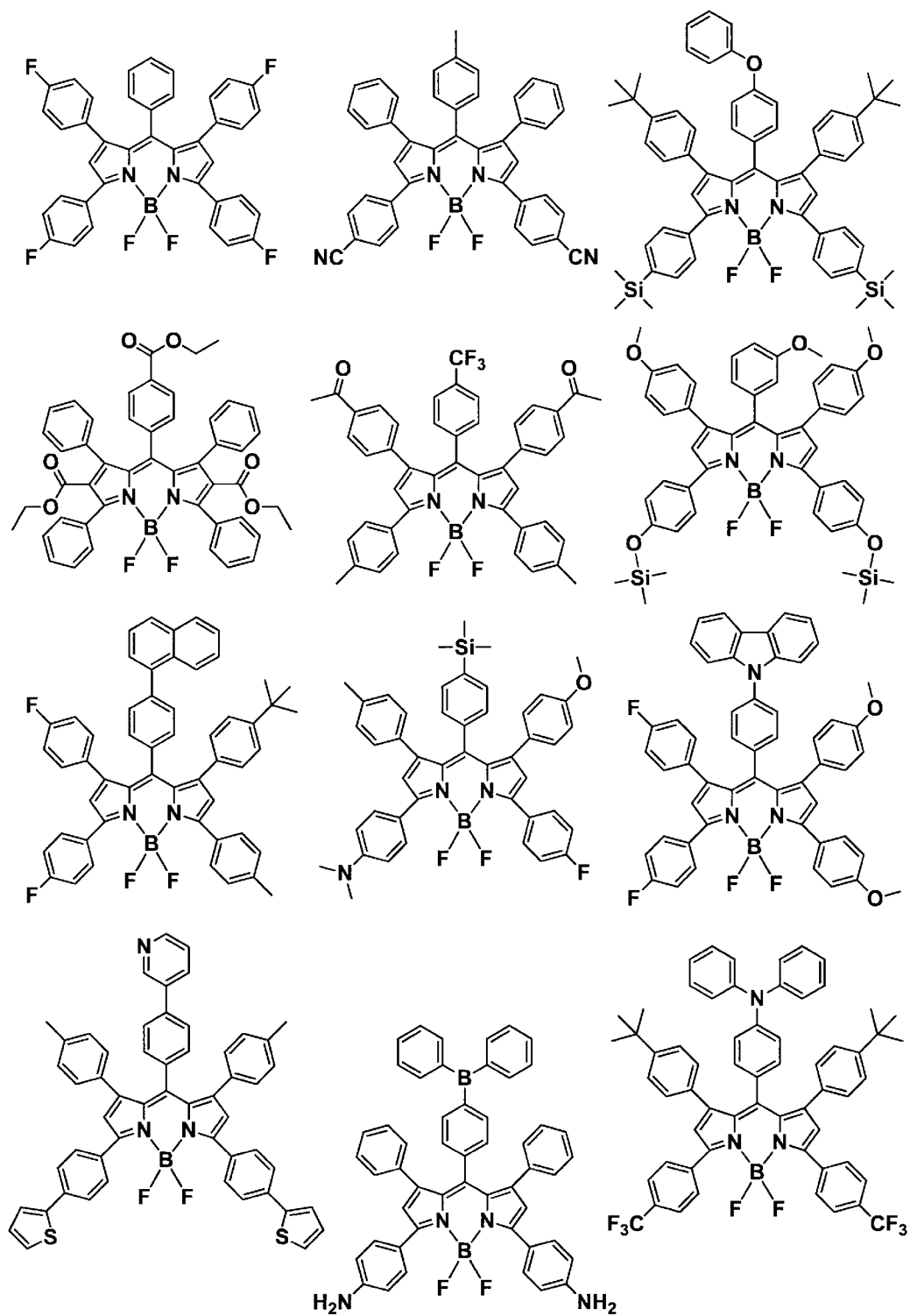
[0150]

[化24]



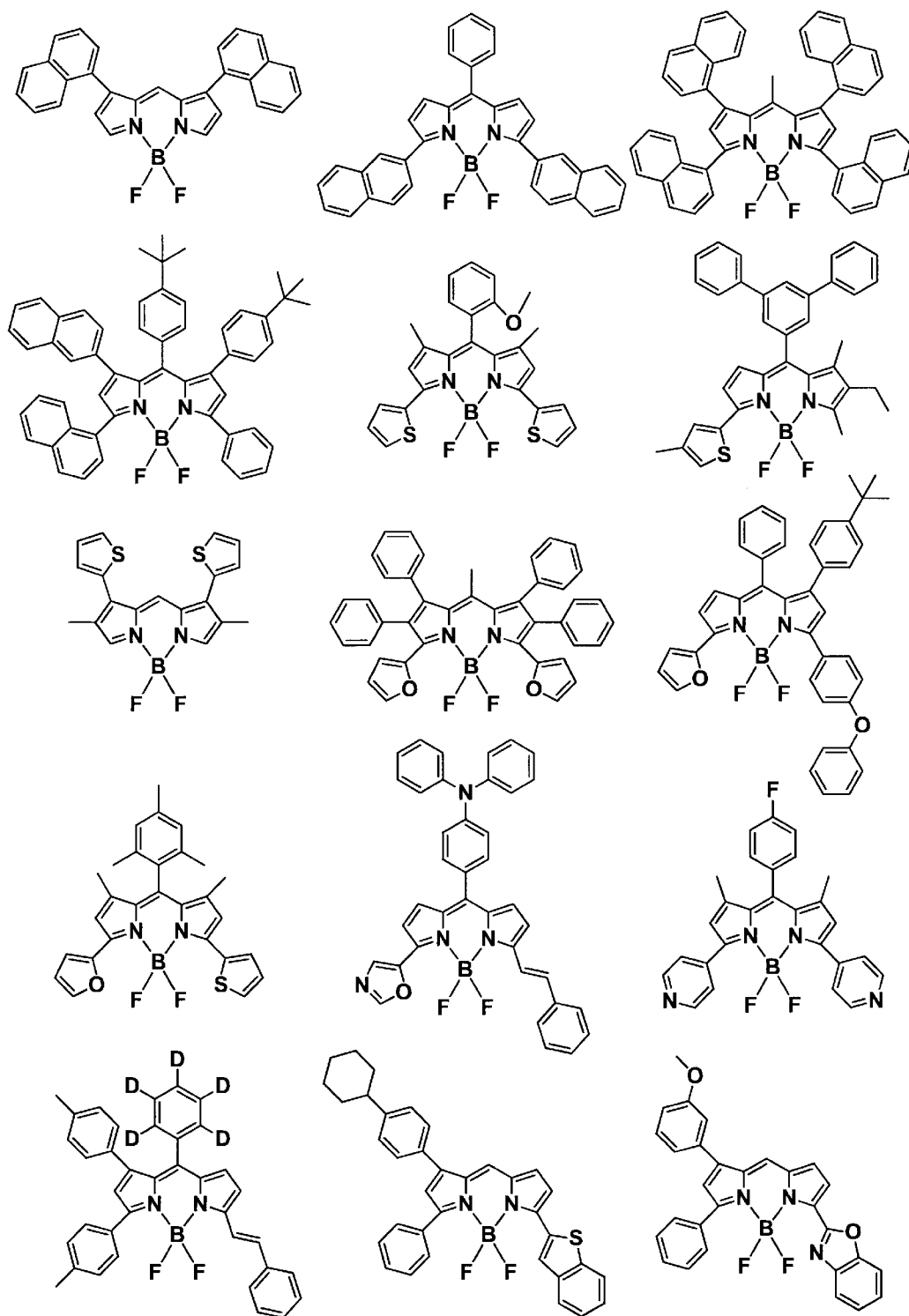
[0151]

[化25]



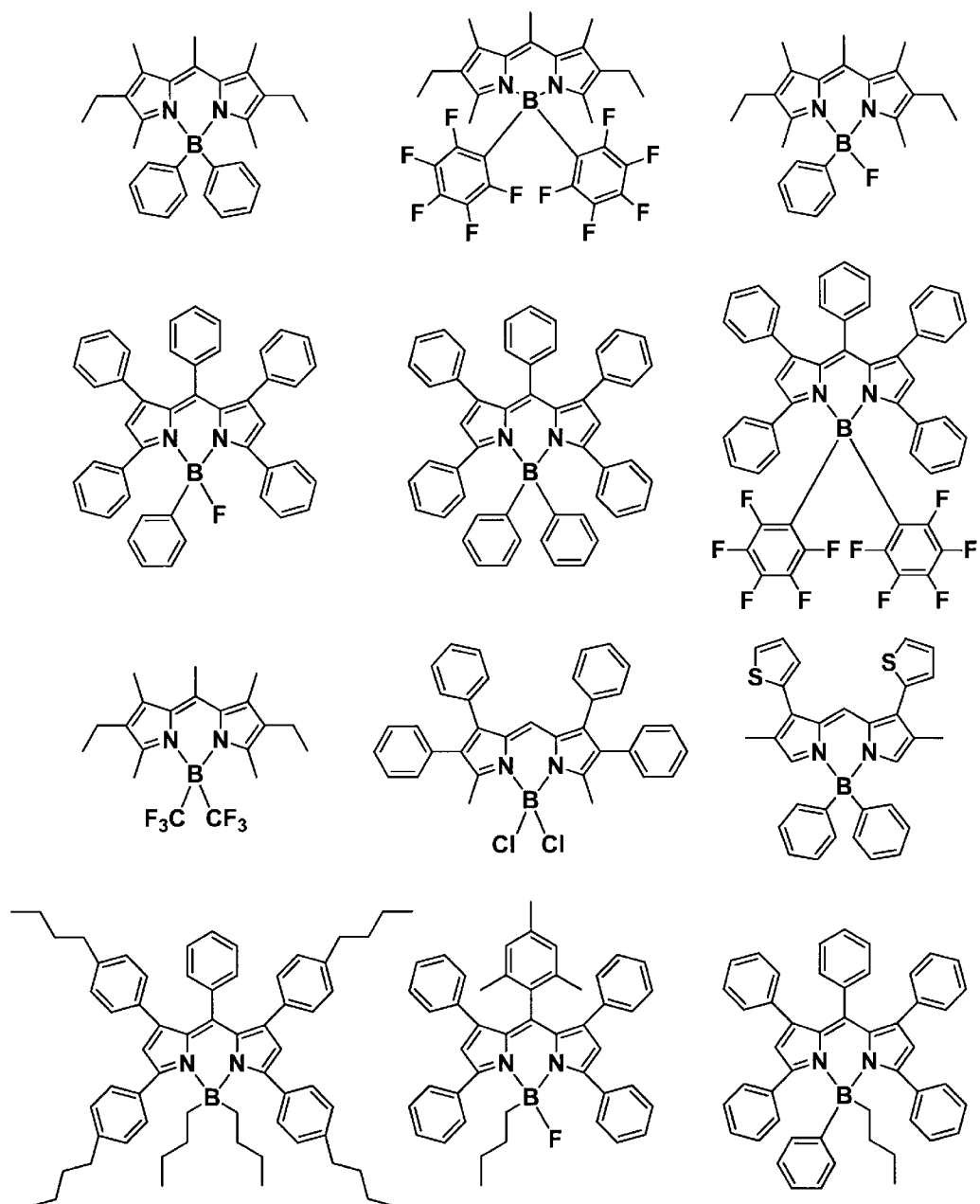
[0152]

[化26]



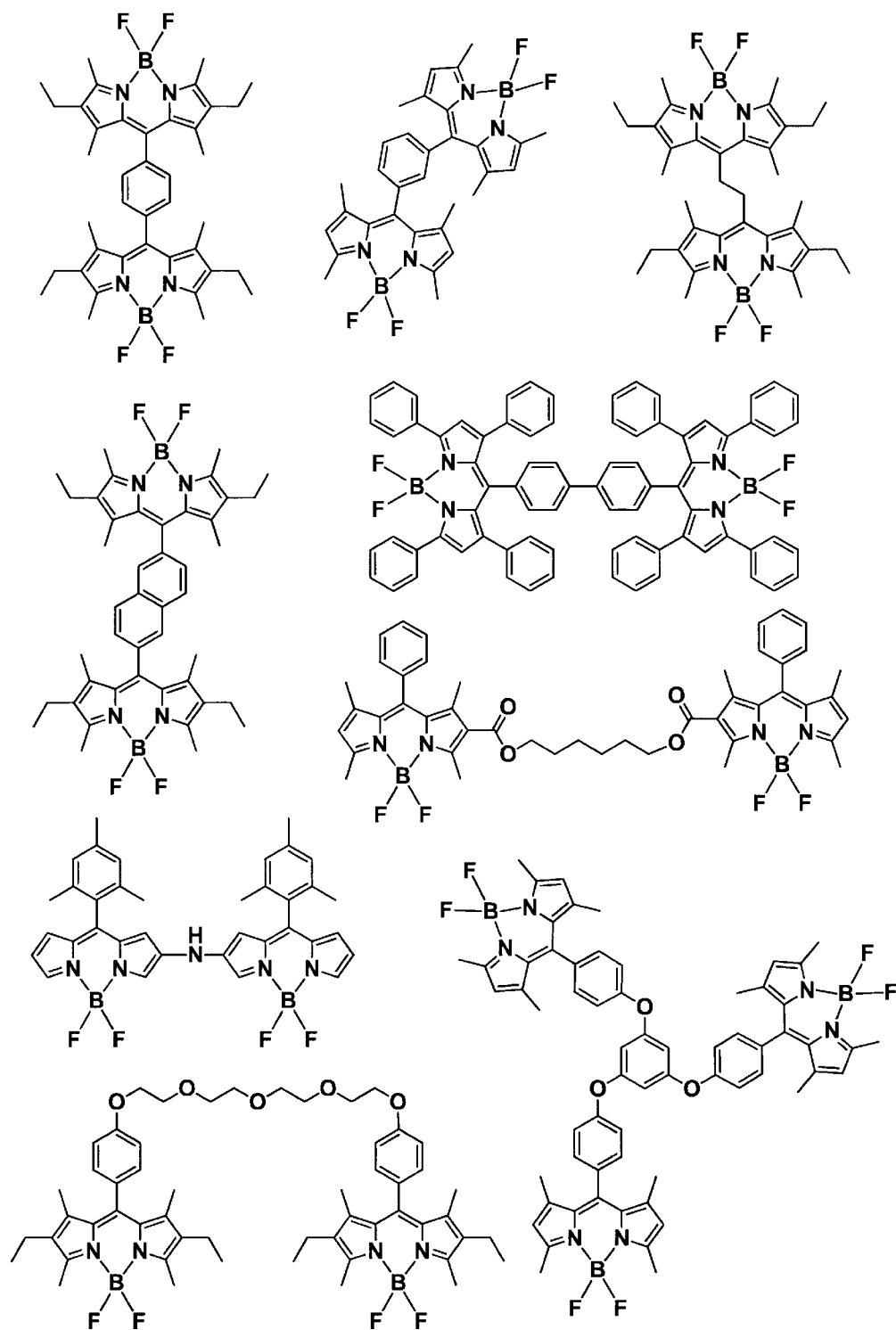
[0153]

[化27]



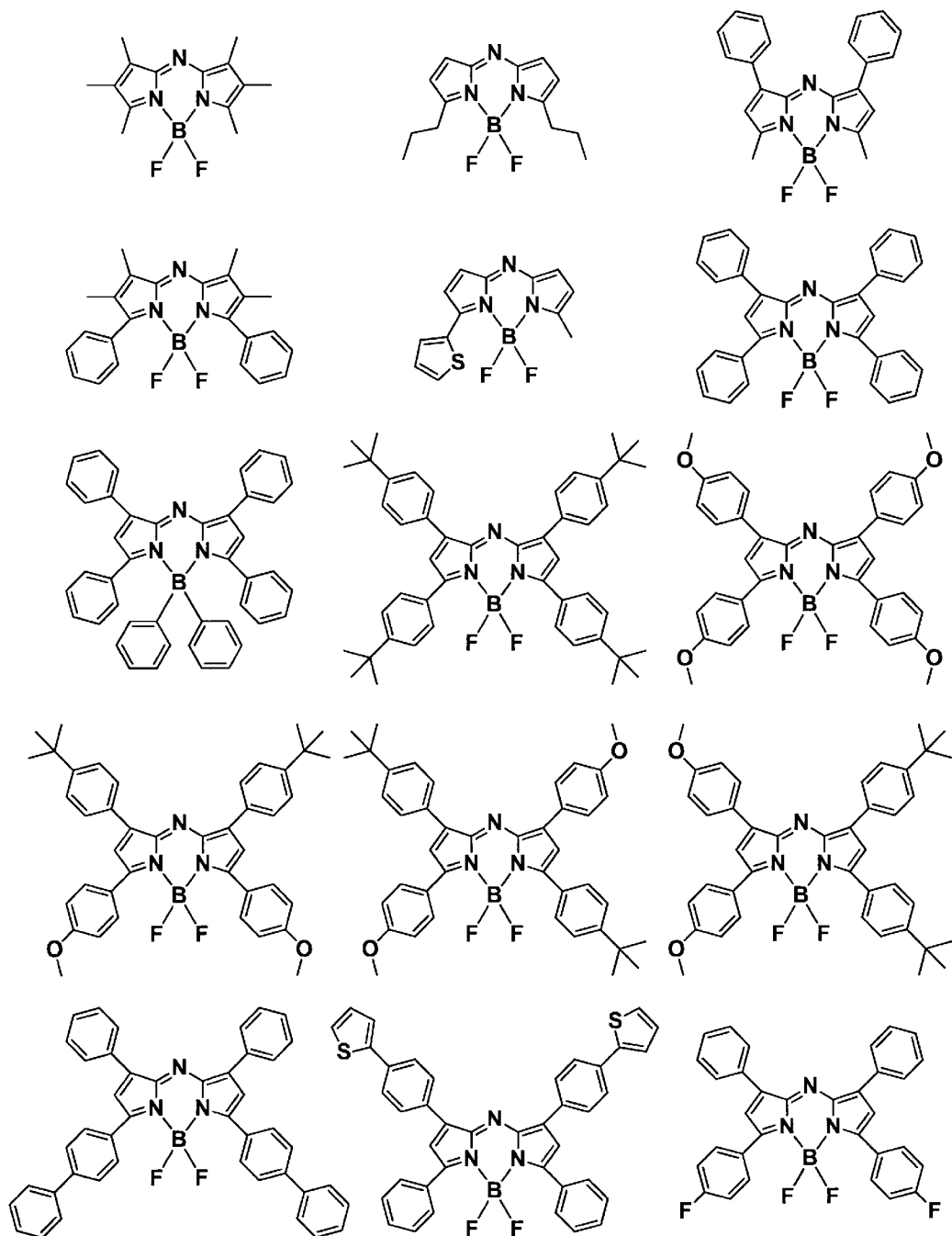
[0154]

[化28]



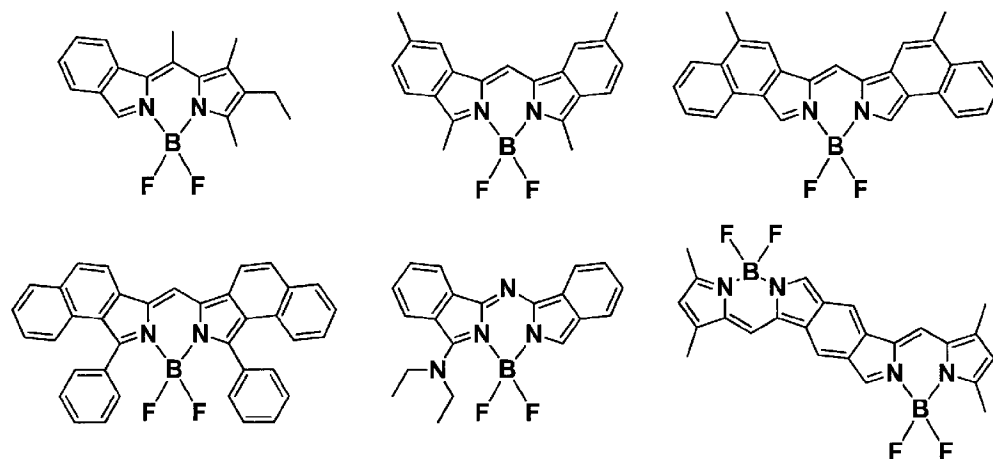
[0155]

[化29]



[0156]

[化30]

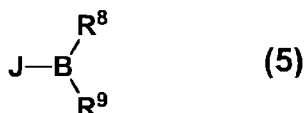
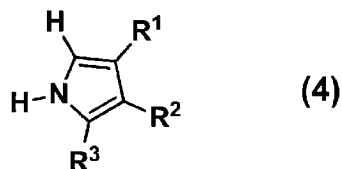
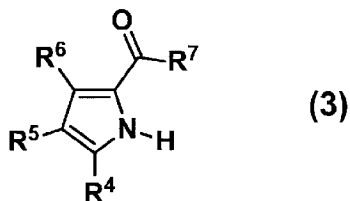


[0157] 一般式(1)で表される化合物は、例えば特表平8-509471号公報や特開2000-208262号公報に記載の方法で作製することができる。すなわち、ピロメテン化合物と金属塩とを塩基共存下で反応することにより、目的とするピロメテン系金属錯体が得られる。

[0158] 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)などに記載されている方法を参考に、一般式(1)で表される化合物を作製することができる。例えば、下記一般式(3)で表される化合物と一般式(4)で表される化合物をオキシ塩化リン存在下、1,2-ジクロロエタン中で加熱した後、下記一般式(5)で表される化合物をトリエチルアミン存在下、1,2-ジクロロエタン中で反応させ、これにより、一般式(1)で表される化合物を得る方法が挙げられる。しかし、本発明は、これに限定されるものではない。ここで、 $R^1 \sim R^9$ は上記説明と同様である。Jはハロゲンを表す。

[0159]

[化31]



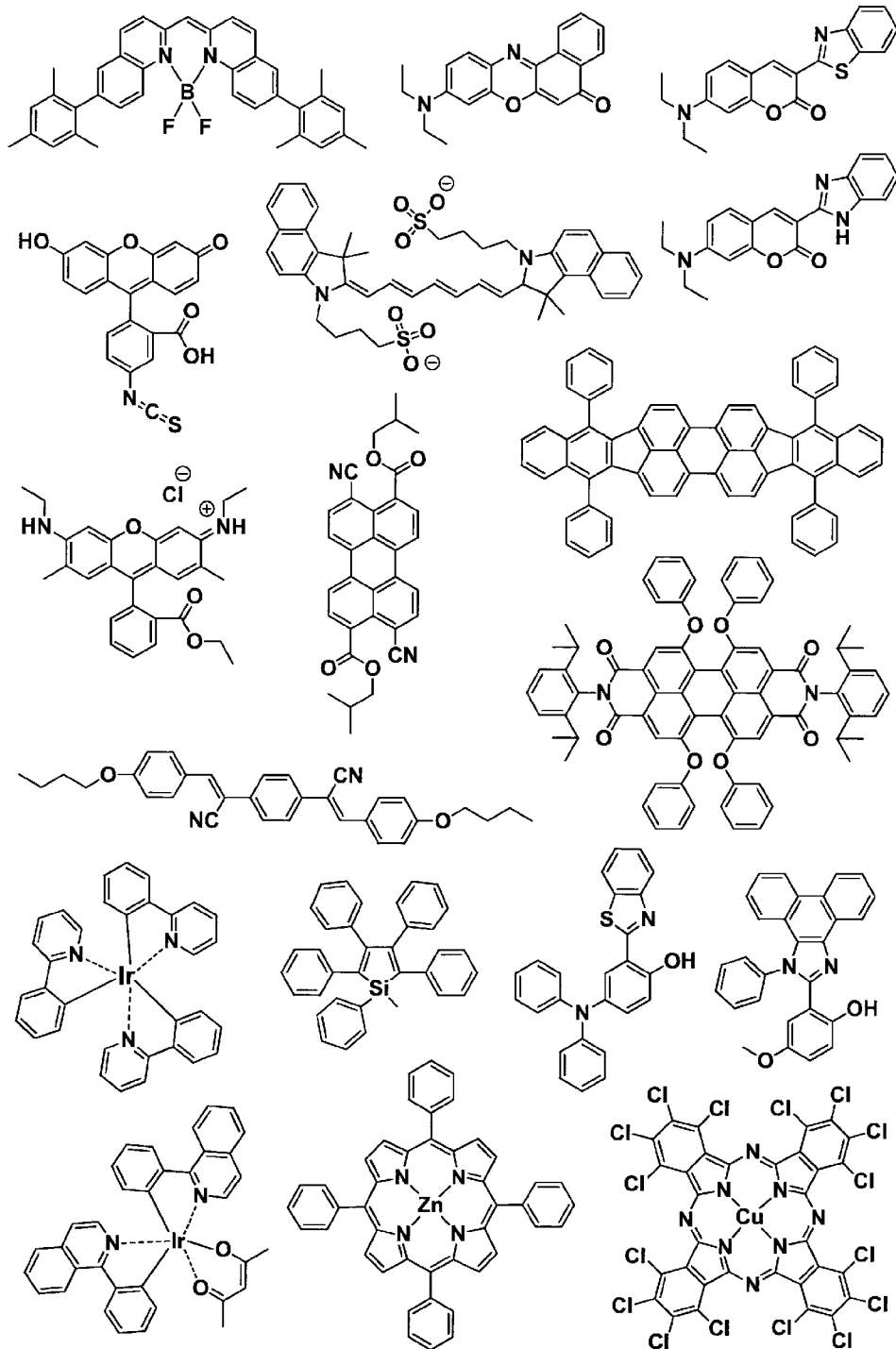
[0160] さらに、アリール基やヘテロアリール基の導入の際は、ハロゲン化誘導体とボロン酸あるいはボロン酸エステル化誘導体とのカップリング反応を用いて炭素－炭素結合を生成する方法が挙げられるが、本発明は、これに限定されるものではない。同様に、アミノ基やカルバゾリル基の導入の際にも、例えば、パラジウムなどの金属触媒下でのハロゲン化誘導体とアミンあるいはカルバゾール誘導体とのカップリング反応を用いて炭素－窒素結合を生成する方法が挙げられるが、本発明は、これに限定されるものではない。

[0161] 本発明に用いられる色変換フィルムは、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、光源から一般式（１）で表される化合物へのエネルギー移動効率をさらに高めるために、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、クマリン系色素、ローダミン系色素等の有機発光材料を添加することができる。その他、これらの有機発光材料以外でも、無機蛍光体、蛍光顔料、蛍光染料、量子ドットなどの公知の発光材料を組み合わせることも可能である。

[0162] 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以下

に示すが、本発明は、特にこれらに限定されるものではない。

[0163] [化32]



[0164] 本発明に用いられる色変換フィルムは、波長400nm以上、500nm以下の範囲の光を発する光源からの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有機発光材

料（以下、「有機発光材料（a）」という）を含むことが好ましい。以後、ピーク波長が500nm以上、580nm以下の領域に観測される発光を「緑色の発光」という。一般に、光源からの光は、そのエネルギーが大きいほど材料の分解を引き起こしやすい。しかし、波長400nm以上、500nm以下の範囲の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、色変換フィルム中の有機発光材料（a）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。

[0165] 本発明に用いられる色変換フィルムは、以下の有機発光材料（a）および有機発光材料（b）を含有することが好ましい。有機発光材料（a）は、上述したように、波長400nm以上、500nm以下の範囲の光を発する光源を用いることによってピーク波長が500nm以上、580nm以下の発光を呈する発光材料である。有機発光材料（b）は、波長400nm以上、500nm以下の範囲の光を発する光源からの光または有機発光材料（a）からの発光のいずれかまたは両方により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である。以後、ピーク波長が580nm以上、750nm以下の領域に観測される発光を「赤色の発光」という。

[0166] 波長400nm以上、500nm以下の範囲の光源の一部は、本発明に用いられ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、色彩がもっとも鮮やかな、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、特に緑色領域と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。

[0167] 色域を拡大し、色再現性を向上させるためには、青・緑・赤の各色の発光スペクトルの重なりが小さいことが好ましい。

- [0168] 適度な励起エネルギーを有する波長400nm以上、500nm以下の範囲の青色光を励起光として用いる場合、ピーク波長が500nm以上の領域に観測される発光を緑色の発光として利用すると、スペクトルの重なりが小さくなり、色再現性が向上するため、好ましい。その効果をより大きくする上で、有機発光材料(a)のピーク波長の下限値は、より好ましくは510nm以上であり、さらに好ましくは515nm以上であり、特に好ましくは520nm以上である。
- [0169] また、赤色光とのスペクトルの重なりを小さくするため、ピーク波長が580nm以下の領域に観測される発光を緑色の発光として利用することが好ましい。その効果をより大きくする上で、有機発光材料(a)のピーク波長の上限値は、より好ましくは550nm以下であり、さらに好ましくは540nm以下であり、特に好ましくは530nm以下である。
- [0170] さらに、ピーク波長が500nm以上、580nm以下の領域に観測される発光を緑色の発光として利用する場合、ピーク波長が580nm以上の領域に観測される発光を赤色の発光として利用すると、スペクトルの重なりが小さくなり、色再現性が向上するため、好ましい。その効果をより大きくする上で、有機発光材料(b)のピーク波長の下限値は、より好ましくは620nm以上であり、さらに好ましくは630nm以上であり、特に好ましくは635nm以上である。
- [0171] 赤色光のピーク波長の上限は、可視域の上界付近である750nm以下であればよいが、700nm以下である場合、視感度が大きくなるため、より好ましい。その効果をより大きくする上で、有機発光材料(b)のピーク波長の上限値は、さらに好ましくは680nm以下であり、特に好ましくは660nm以下である。
- [0172] すなわち、波長400nm以上、500nm以下の範囲の青色光を励起光として用いる場合、緑色光のピーク波長は500nm以上、580nm以下の領域に観測されることが好ましく、510nm以上、550nm以下であることがより好ましく、515nm以上、540nm以下であることがさら

に好ましく、520 nm以上、530 nm以下であることが特に好ましい。  
また、赤色光のピーク波長は580 nm以上、750 nm以下の領域に観測されることが好ましく、620 nm以上、700 nm以下であることがより好ましく、630 nm以上、680 nm以下であることがさらに好ましく、635 nm以上、660 nm以下であることが特に好ましい。

[0173] 発光スペクトルの重なりを小さくし、色再現性を向上させるためには、青・緑・赤の各色の発光スペクトルの半値幅が小さいことが好ましい。特に、緑色光および赤色光の発光スペクトルの半値幅が小さいことが、色再現性の向上のためには効果的である。

[0174] 緑色光の発光スペクトルの半値幅としては、50 nm以下であることが好ましく、40 nm以下であることがより好ましく、35 nm以下であることがさらに好ましく、30 nm以下であることが特に好ましい。

[0175] 赤色光の発光スペクトルの半値幅としては、80 nm以下であることが好ましく、70 nm以下であることがより好ましく、60 nm以下であることがさらに好ましく、50 nm以下であることが特に好ましい。

[0176] 発光スペクトルの形状に関しては特に制限されるものではないが、励起エネルギーの効率的な利用が可能であり、色純度も高くなることから、単一ピークであることが好ましい。ここで、単一ピークとは、ある波長領域で、最も強度の強いピークに対して、その強度の5%以上の強度を持つピークがない状態を示す。

[0177] 有機発光材料(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、ジイソブチルー4,10-ジシアノペリレン-3,9-ジカルボキシレート等のペリレン誘導体、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ー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、有機発光材料（a）は、特にこれらに限定されるものではない。これらの化合物の中でも、ピロメテン誘導体は高い蛍光量子収率を与え、耐久性が良好なので特に好適な化合物である。ピロメテン誘導体の中でも、一般式（1）で表される化合物は、色純度の高い発光を示すことから好ましい。

[0178] 有機発光材料（b）としては、4-ジシアノメチレン-2-メチル-6-（p-ジメチルアミノスチルリル）-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など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-パークロレートなどのピリジン誘導体、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фтаセンやジベンゾジインデノペリレン等の縮合アリール環を有する化合物やその誘導体、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、有機発光材料（b）は、特にこれらに限定されるものではない。これらの化合物の中でも、ピロメテン誘導体は高い蛍光量子収率を与え、耐久性が良好なので特に好適な化合物である。ピロメテン誘導体の中でも、一般式（1）で表される化合物は、色純度の高い発光を示すことから好ましい。

[0179] 本発明に用いられる色変換フィルムにおける（A）有機発光材料成分の含有量は、化合物のモル吸光係数、蛍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（B）バインダー樹脂成分の100重量部に対して、 $1.0 \times 10^{-4}$ 重量部～30重量部である。この（A）成分の含有量は、（B）成分の100重量部に対して、 $1.0 \times 10^{-3}$ 重量部～10重量部であることがさらに好ましく、1

、 $0 \times 10^{-2}$ 重量部～5重量部であることが特に好ましい。

[0180] (B) バインダー樹脂)

本発明に用いられる色変換フィルムにおけるバインダー樹脂は、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良い。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、ポリビニルブチラル樹脂、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など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、本発明に用いられる色変換フィルムに有用なバインダー樹脂が得られる。

[0181] 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、熱硬化性樹脂がさらに好ましい。熱硬化性樹脂の中でも、特に、透明性、耐熱性などの観点から、エポキシ樹脂、シリコーン樹脂、アクリル樹脂、ポリエステル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。

[0182] 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。

[0183] バインダー樹脂は、耐熱性の観点から、シリコーン樹脂が特に好ましい。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 $50^{\circ}\text{C}$ ～ $200^{\circ}\text{C}$ の温度で、加

熱、硬化し、透明性、耐熱性、接着性に優れる。

[0184] 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-C O-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-C O-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 2 0 1 0 - 1 5 9 4 1 1 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。

[0185] 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や信越化学工業株式会社製のSCR-1012A/B、SCR-1016A/B等が挙げられる。

[0186] 本発明に用いられる色変換フィルム作製用の組成物において、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など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、必要に応じてフュームドシリカ、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などの接着性付与剤等を配合してもよい。

[0187] 特に、色変換層の表面平滑性の点から、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、シリコーンオイルなどを添加することが好ましい。このような成分は、このシリコーン樹脂組成物の全体組成物に対して、100ppm～2,000ppm添加することが好ましく、500ppm～1,000ppm添加することがさらに好ましい。

[0188] ((C) . その他の成分)

本発明に用いられる色変換フィルムは、上述した有機発光材料とバインダー樹脂以外に、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、塗布膜安定化のための分散剤やレベリング剤、可塑剤、エポキシ化合物などの架橋剤、アミン・酸無水物・イミダゾールなどの硬化剤、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、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およびシランカップリング剤など、その他の添加剤を含有することができる。

[0189] 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く、複数併用してもよい。

[0190] 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く、複数併用してもよい。

[0191] 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( $\alpha$ 、 $\alpha$ -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く、複数併用し

てもよい。

[0192] これらの添加剤は、光源からの光や発光材料の発光を阻害しないという観点から、これらの添加剤は可視域での吸光係数が小さいことが好ましい。具体的には、波長400nm以上800nm以下の波長域全域で、これらの添加剤のモル吸光係数 $\epsilon$ は、1000以下であることが好ましく、500以下であることがより好ましい。さらに好ましくは200以下であり、100以下であることが特に好ましい。

[0193] また、耐光性安定化剤としては、一重項酸素クエンチャーとしての役割を持つ化合物も好適に用いることができる。

[0194] 一重項酸素クエンチャーは、酸素分子が光のエネルギーにより活性化してできた一重項酸素をトラップして不活性化する材料である。組成物中に一重項酸素クエンチャーが共存することで、発光材料が一重項酸素により劣化することを防ぐことができる。

[0195] 一重項酸素は、ローズベンガルやメチレンブルーのような色素の三重項励起状態と、基底状態の酸素分子との間で電子とエネルギーの交換が起こることで生じることが知られている。

[0196] 本発明の色変換フィルムは、含有される有機発光材料が光源により励起され、光源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。この励起-発光のサイクルが繰り返されるため、生じた励起種と、組成物中に含まれる酸素との相互作用により一重項酸素が生成する確率は高まる。そのため、有機発光材料と一重項酸素との衝突確率も高まるため、有機発光材料の劣化が進みやすい。

[0197] 有機発光材料は、無機発光材料と比べ一重項酸素の影響を受けやすい。特に一般式(1)で表される化合物は、ペリレン等の縮合アリール環を有する化合物やその誘導体に比べて一重項酸素との反応性が高く、一重項酸素による耐久性への影響が大きい。

[0198] そこで、発生した一重項酸素を、一重項酸素クエンチャーによって速やかに不活性化させることで、発光量子収率および色純度に優れた一般式(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。

- [0199] 一重項酸素クエンチャーとしての役割を持つ化合物としては、例えば、特定の、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、特にこれらに限定されるものではない。また、これらの化合物（耐光性安定化剤）は、単独で使用してもよく、複数併用してもよい。
- [0200] 3級アミンとは、アンモニアのN-H結合がすべてN-C結合に置き換わった構造を持つ化合物を示す。窒素原子上の置換基としては、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、アリール基、ヘテロアリール基、アルデヒド基、カルボニル基、カルボキシ基、オキシカルボニル基、カルバモイル基および隣接置換基との間に形成される縮合環および脂肪族環の中から選ばれる。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。
- [0201] 上記3級アミンの窒素原子上の置換基としては、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が、光安定性の観点から好ましい。中でも、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がより好ましい。
- [0202] この場合のアリール基としては、光源からの光や発光材料の発光を阻害しないため、フェニル基またはナフチル基が好ましく、フェニル基がより好ましい。また、窒素原子上のアリール基が増加すると、可視域の光の吸収が増加する懸念があるため、窒素原子上の3つの置換基のうち、アリール基は2つ以下が好ましく、1つ以下であることがより好ましい。
- [0203] 窒素原子上の3つの置換基のうち、少なくとも1つが置換もしくは無置換のアルキル基である場合、より効率的に一重項酸素をトラップすることができるため、好ましい。中でも、3つの置換基のうち2つ以上が置換もしくは無置換のアルキル基であることが好ましい。
- [0204] 好ましい3級アミンとしては、トリエチルアミン、1,4-ジアザビシクロ[2.2.2.]オクタン、トリ-n-ブチルアミン、N,N-ジエチル

アニリン、2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジン等が挙げられるが、特にこれらに限定されるものではない。

[0205] カテコール誘導体とは、レゾルシノールやヒドロキノン等の異性体を含む、ベンゼン環上に2つ以上の水酸基を有する化合物を示す。これらの化合物は、ベンゼン環上の水酸基が1つであるフェノール誘導体と比較して、より効率的に一重項酸素をトラップすることができる。

[0206] カテコール誘導体のベンゼン環上の置換基としては、水酸基以外にも、水素、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、チオール基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリールエーテル基、アリールチオエーテル基、アリール基、ヘテロアリール基、ハロゲン、シアノ基、アルデヒド基、カルボニル基、カルボキシ基、オキシカルボニル基、カルバモイル基、アミノ基、ニトロ基、シリル基、シロキサニル基、ボリル基、ホスフィンオキシド基、および隣接置換基との間に形成される縮合環および脂肪族環の中から選ばれる。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。

[0207] 中でも、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、ハロゲンが光安定性の観点から好ましく、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、ハロゲンがより好ましい。さらに、一重項酸素クエンチャーとの反応後の変色が小さいことから、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、ハロゲンがより好ましい。特に好ましくは置換もしくは無置換のアルキル基である。

[0208] カテコール誘導体におけるベンゼン環上の水酸基の位置としては、少なくとも2つの水酸基が隣接することが好ましい。これは、レゾルシノール（1, 3-置換）やヒドロキノン（1, 4-置換）に比べて光酸化されにくいためである。また、酸化された後も可視域の光の吸収が小さいため、組成物の変色を防ぐことができる。

- [0209] 好ましいカテコール誘導体としては、4-tert-ブチルベンゼン-1,2-ジオール、3,5-ジ-tert-ブチルベンゼン-1,2-ジオール等が挙げられるが、特にこれらに限定されるものではない。
- [0210] ニッケル化合物とは、ニッケルを含む化合物である。ニッケル化合物としては、例えば、塩化ニッケルなどの無機塩やビスアセチルアセトナトニッケルなどの錯体、カルバミン酸ニッケル塩などの有機酸塩等が挙げられるが、特にこれらに限定されるものではない。ここで、有機酸とは、カルボキシル基、スルホン基、フェノール性水酸基、チオール基を有する有機化合物を示す。
- [0211] 中でも、ニッケル化合物としては、組成物中で均一に分散するという観点から、錯体および有機酸塩が好ましい。
- [0212] 一重項酸素クエンチャーとして好適に用いることができるニッケル錯体および有機酸のニッケル塩としては、例えば、アセチルアセトナート系ニッケル錯体、ビスジチオ- $\alpha$ -ジケトン系ニッケル錯体、ジチオレート系ニッケル錯体、アミノチオレート系ニッケル錯体、チオカテコール系ニッケル錯体、サリチルアルデヒドオキシム系ニッケル錯体、チオビスフェノレート系ニッケル錯体、インドアニリン系ニッケル化合物、カルボン酸系ニッケル塩、スルホン酸系ニッケル塩、フェノール系ニッケル塩、カルバミン酸系ニッケル塩、ジチオカルバミン酸系ニッケル塩等が挙げられるが、特にこれらに限定されるものではない。
- [0213] これらの中でも、合成の容易さ、および安価であるという観点から、有機酸のニッケル塩が好ましい。
- [0214] さらに、可視域におけるモル吸光係数が小さく、光源や発光材料の発光を吸収することがないという観点からは、スルホン酸系ニッケル塩が好ましい。さらに、より良い一重項クエンチ効果を示すという観点からは、アリールスルホン酸のニッケル塩がより好ましく、幅広い種類の溶媒への溶解性の観点からは、アルキルスルホン酸のニッケル塩が好ましい。
- [0215] アリールスルホン酸のアリール基としては、置換もしくは無置換のフェニ

ル基が好ましく、溶媒への溶解性および分散性の観点から、アルキル基で置換されたフェニル基がより好ましい。

[0216] 耐光性安定化剤としては、ラジカルクエンチャーとしての役割を持つ化合物も好適に用いることができる。中でも、ヒンダードアミン系化合物が好適な例として挙げられる。ヒンダードアミン系化合物の例としては、例えば、2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジン、4-ヒドロキシ-2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジン、4-ヒドロキシ-1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチルピペリジン、4-メトキシ-2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジン、4-メトキシ-1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチルピペリジン、セバシン酸ビス(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジル)、セバシン酸ビス(1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジル)、メタクリル酸2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジル、メタクリル酸1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジルなどのピペリジン誘導体やその酸化物が挙げられる。

[0217] <積層フィルム>

本発明の積層部材および光源ユニットを構成する積層フィルムは、熱可塑性樹脂からなる必要がある。熱可塑性樹脂は一般的に熱硬化性樹脂や光硬化性樹脂と比べて安価であり、かつ公知の溶融押出により簡便かつ連続的にシート化することができることから、低コストで積層フィルムを得ることが可能となる。

[0218] 本発明の積層部材および光源ユニットを構成する積層フィルムは、異なる複数の熱可塑性樹脂が交互に1層以上積層されてなる必要がある。ここでいう異なる複数の熱可塑性樹脂とは、フィルムの面内で任意に選択される直交する2方向および該面に垂直な方向のいずれかにおいて、屈折率が0.01以上異なることを指す。

[0219] また、ここでいう交互に積層されてなるとは、異なる熱可塑性樹脂からなる層が厚み方向に規則的な配列で積層されていることをいい、熱可塑性樹脂X、Yからなる場合、各々の層をX層、Y層と表現すれば、X(YX) $n$ (

nは自然数)のように積層されたものである。熱可塑性樹脂X、Y、Zからなる場合は、Z(XYZ)n(nは自然数)のように積層されたものである。このように光学的性質の異なる樹脂が交互に積層されることにより、各層の屈折率の差と層厚みとの関係より設計した波長の光を反射させることができる干渉反射を発現させることが可能となる。

[0220] また、積層する層数がそれぞれ10層以下の場合には、所望する帯域において高い反射率を得られない。積層する層数は、好ましくは100層以上、より好ましくは200層以上、さらに好ましくは600層以上である。

[0221] また、上述した干渉反射は、層数が増えるほどより波長帯域を広げたり、高い反射率を達成できるようになり、所望する帯域の光を反射する積層フィルムが得られるようになる。

[0222] また、層数に上限はないものの、層数が増えるに従い製造装置の大型化に伴う製造コストの増加や、フィルム厚みが厚くなることでのハンドリング性の悪化が生じるために、現実的には10000層程度が実用範囲となる。

[0223] 熱可塑性樹脂からなる各層の厚みは、使用方法により適切に調整されるべきであるが、厚み1 $\mu$ m以上になると光の反射特性の効果を示さないことから、少なくとも厚み1 $\mu$ m未満の層を複数含んでいることが好ましい。なお、厚み1 $\mu$ m未満の層以外にも、光学特性に影響を及ぼさない厚み1 $\mu$ m以上の層をさらに含んでもよい。

[0224] 本発明の積層部材および光源ユニットを構成する積層フィルムは、後述する光源から積層フィルムに入射される入射光の、入射角度10°における反射率が20%以下であることが好ましい。ここでいう光源から積層フィルムに入射される光とは、光源から発光される光の波長に対する強度分布における半値幅を範囲とする。入射角度10°における反射率が20%以下であることは、前記の半値幅の範囲での平均反射率とする。

[0225] 光源から積層フィルムに入射される入射光の、入射角度10°における反射率が20%以下であると、光源から入射された光が積層フィルムを透過して色変換フィルムに到達する光量が増大し、色変換フィルムでの発光を容易

に高めることが可能となる。一例として、本発明の実施例に示す青色発光ダイオードを光源とするのであれば、光源から積層フィルムに入射される光のピーク波長は400～500nmである。さらに、青色発光の純度を高めるには、ピーク波長が430～470nmであることが好ましい。

[0226] また、青色発光ダイオードに限定されるものではなく、近紫外線（400～420nm）の光を発光する発光ダイオードや、緑、赤の光を発光する発光ダイオードでもよく、同様に半値となる帯域幅を算出して光源から積層フィルムに入射される入射光の反射率の算出範囲とする。より好ましくは、光源から積層フィルムに入射される入射光の、入射角度10°における反射率が15%以下であり、さらに好ましくは、10%以下である。反射率を抑制することで、より効率的に色変換フィルムでの発光を高めることが容易となる。

[0227] このような積層フィルムを得るためには、フィルムの各層の層厚みを制御することによる反射帯域の最適化に加えて、表面への低屈折率の樹脂からなる層を設けることで表面反射を抑えることで達成できる。

[0228] 本発明の積層部材および光源ユニットを構成する積層フィルムは、後述する光源から前記色変換フィルムに入射されて長波長の光に変換された光の、入射角度60°における反射率が70%以上であることが好ましい。具体的には色変換フィルムはピーク波長が500nm以上580nm以下の領域に観測される緑色の発光と、ピーク波長が580nm以上750nm以下の領域に観測される赤色の発光を呈することが白色光を出力する上で好ましいので、500～750nmの範囲の光において、入射角度60°における反射率が70%以上であることが好ましい。

[0229] ここでいう光源から前記色変換フィルムに入射されて長波長の光に変換された光とは、具体的には、光源ユニットに含まれる光源の発光強度がピークとなる波長を励起波長として、発光材料の蛍光スペクトルの波長に対する強度分布における半値幅を範囲とする。また、入射角度60°における反射率が70%以上であることは、前記の半値幅の範囲での平均反射率とする。

[0230] 発光材料を含む色変換フィルムを用いた光源ユニットにおいて輝度が低下する原因の一つは、色変換フィルムからの光が等方的に発光することによる迷光でのロスである。特に、色変換フィルムから光源側に発光された光が光源ユニット内で迷光することがロスの主因となるが、本発明の通り光源と色変換フィルムと間に、光源から前記有機発光材料に入射されて長波長の光に変換された光の、入射角度  $60^\circ$  における反射率が  $70\%$  以上である積層フィルムを含む場合、色変換フィルムからの光を直下にて反射することができ、光源側でのキャビティー内での迷光による輝度低下を抑制することが容易になる。好ましくは、入射角度  $60^\circ$  における反射率が  $90\%$  以上であり、さらに好ましくは  $95\%$  以上である。反射率が大きくなるに従い、積層フィルムを透過する光量が減り、輝度向上効果を得られる。

[0231] また、さらに後述の光源から前記色変換フィルムに入射されて長波長の光に変換された光の、入射角度  $10^\circ$  における反射率が  $70\%$  以上であることも好ましい。入射角度  $60^\circ$  の光のみならず、入射角度  $10^\circ$  の光を反射することで、色変換フィルムからの発光のほぼすべてを積層フィルムにて光源側から表示側へと反射することになり、輝度向上の効果が絶大なものとなる。

[0232] 本発明では、入射光をその入射光よりも長波長の光に変換する有機発光材料を含む色変換フィルムと、異なる複数の熱可塑性樹脂が交互に  $11$  層以上積層されてなる積層フィルムを含む積層部材として用いることも好ましい。ここで色変換フィルムと積層フィルムを含む積層部材とは、直接ないし接着層などを介して色変換フィルムと積層フィルムが固定されていることを指す。この場合、色変換フィルムと積層フィルムとの空間が無くなるため迷光による光のロスを抑制することと、色変換フィルム表面の空気との間の反射をなくすことで、輝度向上の効果が顕著になる。

[0233] さらに好ましい形態として、積層フィルム上に有機発光材料からなる層を直接設けることで、積層フィルムを色変換フィルムの一部と為すことである。この場合、色変換フィルムを形成する際に用いられる基材を代替すること

ができ、コストダウンとなることに加えて、さらに色変換フィルム中の有機発光材料と積層フィルムとの空間が無くなるため迷光による光のロスを抑制する効果が顕著となる。

[0234] 本発明の積層部材および光源ユニットに用いられる積層フィルムは、下記の数式(6)を満足することも好ましい。下記の数式(6)は、光を反射する波長帯と透過する波長帯との間での反射率の変化が急峻であることを示し、 $|\lambda_1 - \lambda_2|$ が小さくなるにつれて、より急峻に反射する波長帯から透過する波長帯へと変化する。このように反射する波長帯から透過する波長帯、すなわち光源の発光帯域から色変換フィルムの出光帯域への反射率の変化が急峻に行われることによって、光源からの光のみを選択的、効率的に透過しつつ、色変換フィルムから出光される光を効率的に反射でき、反射フィルムの効果を最大限得やすくなる。 $|\lambda_1 - \lambda_2|$ は、より好ましくは30 nm以下であり、 $|\lambda_1 - \lambda_2|$ が小さくなるに従って、輝度向上効果が向上する。また、所望とする $|\lambda_1 - \lambda_2|$ を達成するためには、異なる複数の熱可塑性樹脂が交互に1層以上積層されてなる積層フィルムであることが必要である。一方、金属薄膜のスパッタや液晶技術などでは、反射する波長帯から透過する波長帯への反射率の変換が緩やかであるため、望むべき輝度向上効果が得られない場合がある。

$$|\lambda_1 - \lambda_2| \leq 50 \quad (\text{ただし、}\lambda_1 < \lambda_2) \quad (6)$$

$\lambda_1$  (nm) : 反射フィルムの反射帯域の低波長端近傍で反射率が最大反射率の1/4となる波長 (nm)、 $\lambda_2$  (nm) : 反射フィルムの反射帯域の低波長端近傍で反射率が最大反射率の3/4となる波長 (nm)

[0235] 本発明の積層部材および光源ユニットを構成する積層フィルムまたは色変換フィルムの表面に、凹凸形状が設けられてなることも好ましい。ここでの凹凸形状とはフィルム表面または界面の形状を測定した際の最大高さが1  $\mu$ m以上となるものを指す。図3および図4は、積層フィルム表面の凹凸形状の一例を示す模式断面図である。図3および図4において、符号31、32は凹凸形状の一例を示す。以下に、凹凸を形成する効果を説明する。

- [0236] 第1の効果は易滑性である。表面に凹凸形状を設けることにより易滑性が発現するため、積層フィルムならびに色変換フィルムを光源ユニットに組み込む際の傷の発生を抑制することが可能となる。
- [0237] 第2の効果は光の取り出しである。本発明者らは、有機発光材料を含む色変換フィルムにおいては、光が色変換フィルム内にて反射することで光ファイバーのごとくシート内に閉じ込められる現象が発生し、結果として有機発光材料そのものの発光効率は高いものの輝度が低下するという現象を見出したものである。その対策として、積層フィルムまたは色変換フィルムの表面に、凹凸形状が設けられてなることで、その凹凸界面から光が取り出されるため、色変換フィルム内に取り込まれる光を減少させ、輝度向上の効果を得られるものである。第2の効果を効率的に得るためには、好ましくは最大高さが $10\mu\text{m}$ 以上であることが好ましい。凹凸形状が大きくなるに従って、光の取り出し効率も向上するとともに、光源のムラを抑制する効果も得られるようになる。この効果をより効率的に得るためには、積層フィルム上に有機発光材料からなる層を直接設けることで、積層フィルムを色変換フィルムの一部と為し、かつ色積層フィルムの有機発光材料からなる層側の表面に凹凸が形成されることが好ましい。この場合、効率的に光を取り出すことができることに加えて、効率的に表示側へ光を反射できるため輝度向上の効果が顕著となる。
- [0238] 第3の効果は、光の光路の調整である。光源、特に発光ダイオードから光は表示側へと比較的高い指向性を持って進むのに対して、色変換フィルムからの光は等方的に発光するために、光源正面での輝度が低下する原因となる。積層フィルムまたは色変換フィルムの表面に、凹凸形状が設けられてなることで、凹凸界面にて光の方向を調整し、特に正面方向に集光することで輝度向上を達成することが容易になるほか、光源ユニット、ディスプレイを形成する際に他の光学部材を省くこともできるため低コスト化にも寄与する。
- [0239] 上記第2、第3の効果をより効率的に得るために、本発明の積層部材および光源ユニットを構成する積層フィルムまたは色変換フィルムの表面の凹凸

形状がレンズ形状、略三角形状または略半円形状であることも好ましい。マイクロレンズ形状とは略半球状の凹凸を、プリズム形状とは略三角状の凹凸を指す。このような形状を備える場合、光は表示側へ光路を集光されるため光源ユニットならびにディスプレイとした場合の正面輝度がより顕著に向上するようになる。

[0240] 本発明の積層部材および光源ユニットでは、前記光源から前記積層フィルムまたは色変換フィルムに入射される、入射光の入射角度と出射光の出射角度の差が $5^{\circ}$ 以上である積層フィルムまたは色変換フィルムを含むことが好ましい。ここでいう光源からの入射角度と出射角度の差とは、変角光度計にて入射角度 $60^{\circ}$ で入射した光の出射角度をもってなし、 $0^{\circ}$ がフィルム面に対して垂直な方向とする。この場合、光は表示側へ光路を集光されるため光源ユニットならびにディスプレイとした場合の正面輝度がより顕著に向上するようになる。これは、上述の通り凹凸形状がレンズ形状、略三角形状または略半円形状であることによって達成できるものである。

[0241] 図5は、実施の形態に係る積層部材の一例を示す模式断面図である。図5に示すように、本発明の積層部材および光源ユニットは、積層部材5および光源ユニット1を構成する積層フィルム3または色変換フィルム4の表面に機能層33を有しており、積層フィルム3の屈折率を $n_1$ 、色変換フィルム4の屈折率を $n_2$ 、機能層33の屈折率を $n_3$ としたとき、機能層33の屈折率 $n_3$ が $n_1$ と $n_2$ の間であることが好ましい。ここでいう積層フィルム3ならびに色変換フィルム4の屈折率とは、フィルムの最表層となる層の面内平均屈折率を指す。この場合、機能層33の屈折率の効果により、従来屈折率の異なる積層フィルム3と色変換フィルム4との間での反射を抑制でき、光源2からの光が効率的に透過するため輝度向上が容易となる。

[0242] 積層フィルムは、紫外線を吸収または反射することが好ましい。ここでいう紫外線を吸収または反射するとは、波長 $300\text{ nm}$ 以上 $410\text{ nm}$ 以下において、少なくとも透過率が $50\%$ 以下となる帯域を $30\text{ nm}$ 以上備えてなることを示す。

[0243] 本発明の光源ユニットおよび液晶ディスプレイのように、色変換フィルムを用いる際に用いる光源は、青色LEDや近紫外線LEDのように通常の白色光源より低波長で高エネルギーな光源を使用する。そのため、色変換フィルムやその他積層フィルムの劣化の原因となる紫外線を多く含んでおり、長期の使用に際して色や輝度の変化が生じる場合があった。特に、色変換フィルムに含まれる樹脂に紫外線を照射すると、樹脂にラジカルが発生し、発生したラジカルが起因となって、色変換フィルム中に含まれる有機発光材料がラジカル反応により分解する場合があった。

[0244] 積層フィルムが紫外線を吸収または反射することで、色変換フィルムやその他積層フィルムの劣化を抑制することが可能となり、長期の使用に適した光源ユニットおよび液晶ディスプレイが得られる。具体的には、後述する光源から積層フィルムに入射される入射光の、入射角度 $10^\circ$ において波長 $300\text{ nm}$ 以上 $410\text{ nm}$ 以下の光の反射率が $20\%$ 以上、または入射角度 $10^\circ$ において波長 $300\text{ nm}$ 以上 $410\text{ nm}$ 以下の光の吸収率が $10\%$ 以上であることが好ましい。

[0245] 積層フィルムとしては、好ましくは、入射角度 $10^\circ$ において波長 $300\text{ nm}$ 以上 $380\text{ nm}$ 以下での透過率が $10\%$ 以下である。この場合、色変換フィルムやその他積層フィルムが吸収し劣化する原因となる紫外線をほとんどカットできるため、色や輝度の変化はほとんど見られなくなる。また、近紫外LEDを用いて赤、緑、青の光を発光する色変換フィルムを用いる場合に好適なものとなる。

[0246] さらに好ましくは入射角度 $10^\circ$ において波長 $300\text{ nm}$ 以上 $410\text{ nm}$ 以下での透過率が $10\%$ 以下である。青色の光を用いて赤、緑の光を発光する色変換フィルムでは、色変換効率にはあまり寄与しないものの劣化の原因となる吸収が波長 $410\text{ nm}$ 付近にも存在する。波長 $410\text{ nm}$ 以下での透過率を $10\%$ 以下とすることで、このような色変換フィルムの劣化を抑制することが容易となる。

[0247] また、光源の発光帯域の低波長端から $20\text{ nm}$ 短い波長よりも短波長の光

の透過率が10%以下であることも好ましい。上述のとおり、光源の光は色変換のために重要である反面、色変換フィルムそのものを劣化させるものでもある。そこで、実際に色変換に重要な波長の光は透過するものの、色変換にはほとんど寄与しない低波長の光をカットする積層フィルムを用いて色変換フィルムを保護することで、色変換フィルムでの発光効率を損なうことなく、長期使用時の劣化をほぼ抑制できるようになる。

[0248] 積層フィルムは、光源と色変換フィルムの間に設けられてなることが好ましい。ここでいう光源と色変換フィルムの間とは、図1に示すように光源2と色変換フィルム4が直線上に配置されてなる直下型の構成の場合は光源2と色変換フィルム4の間であることを示す。また、図10は、実施の形態に係る光源ユニットの別の一例を示す模式断面図である。図10に示すように側面に設けられた光源2からの光を導光板6を介して一旦面状に拡散し、直上へ出射する構成の場合には、光源と色変換フィルムの間とは、導光板6と色変換フィルム4との間をさす。

[0249] また、光源と色変換フィルムとの間に設けられるとは、積層フィルムが光源または導光板や色変換フィルムと必ずしも隣接する必要は無く、その間に他の構成部材を介してもよい。積層フィルムが、前記光源と前記色変換フィルムの間に設けられてなる場合、光源に含まれる色変換フィルムの劣化の原因となる低波長かつ高エネルギーの光が色変換フィルムに到達することを抑制できるものである。

[0250] 本発明の光源ユニットにおいては、光源、積層フィルム、色変換フィルムが光源、色変換フィルム、積層フィルムの順に配置してなることも好ましい。この場合、光源ユニットならびに液晶ディスプレイの外部から照射される紫外線からも色変換フィルムを保護できるため、色目や輝度の変化が生じない光源ユニットや液晶ディスプレイが得られるものである。

[0251] 好ましくは、本構成で用いる積層フィルムの波長410nm以下での透過率を10%以下である。この場合、光源ユニットや液晶ディスプレイに用いるほかの光学フィルムではカバーできない波長380～410nmの紫外線

もカットできるため、外光に含まれる色変換フィルムの劣化の原因となる光をカットでき、特に屋外や自動車など日光にさらされる箇所での長期使用に際して優れた色・輝度安定性を示すようになる。

[0252] さらに好ましくは、紫外線を吸収または反射する2枚の積層フィルムを含んでなり、光源、積層フィルム、色変換フィルム、積層フィルムの順に配置してなることである。この場合、光源からの紫外線と光源ユニットならびに液晶ディスプレイの外部から照射される紫外線のいずれもカットできるため、屋外や自動車など日光にさらされる箇所での長期の使用において非常に優れた色目、輝度の安定性を示すものとなる。

[0253] 積層フィルムは、その最長反射波長が700nm以上であることが好ましい。さらに、そのような積層フィルムは、交互に11層以上積層されてなる部分の熱可塑性樹脂層が熱可塑性樹脂X、Yの2種類からなることが好ましい。また、その場合において、熱可塑性樹脂X、Yの各層のうち厚み1 $\mu$ m未満の部分については、以下の関係にあることが好ましい。すなわち、熱可塑性樹脂Xからなる層のうち厚み1 $\mu$ m未満の全ての層の厚みの総和xと、熱可塑性樹脂Yからなる層のうち厚み1 $\mu$ m未満の全ての層の厚みの総和yが、 $x/y \geq 1.5$ の関係にあることが好ましい。ただし、 $x > y$ となるようにX、Yを選択するものとする。また、厚み1 $\mu$ m以上の熱可塑性樹脂X、Yの層は光の反射特性に寄与しないので、xおよびyの算出には含めないものとする。

[0254] 上述の積層フィルムは隣接する層において、各層の屈折率と層厚みの積（光学厚み）が1より大きくなるに従い、主となる1次の反射波長の約1/2の波長において2次の反射が生じるようになる。ここで、最長反射波長が700nm以上であることにより、波長300~410nmの紫外領域に2次の反射が生じるようになり、さらに隣接する層の層厚みの比が1.5以上であることで生じる2次の反射を強めることができるため、所望の紫外線カット性能を付与することが容易にできるようになる。

[0255] 好ましくは積層フィルムの最長反射波長が800nm以上である。この場

合、波長410nm以下の紫外線をカットできるようになるため、色変換フィルムの劣化を抑制する効果が大きくなる。さらに好ましくは隣接する層の層厚みの比が2.0以上であり、2次の反射が大きくなるに従い高い紫外線カット性能が得られ、色変換フィルムやその他積層フィルムの劣化を抑制しやすくなるものである。

[0256] 積層フィルムは、複数の熱可塑性樹脂の少なくともいずれかに紫外線吸収剤を含むことが好ましい。ここでいう紫外線吸収剤とは、波長300～410nmの光を吸収する成分であって熱可塑性樹脂以外のものを示す。紫外線吸収剤を含むことにより、入射角度10°において波長300nm以上410nm以下における透過率－反射率（≒吸収率）が10%以上となることが好ましい。

[0257] 紫外線吸収剤を含むことで紫外線をカットすることが容易となる。さらに好ましくは、入射角度10°において波長300nm以上410nm以下の光の反射率が20%以上であることである。

[0258] 本発明における積層フィルムでは、隣接する層の界面にて層の厚みに対応する波長の光を反射するが、その際にフィルム内を光が何度も反射した上でフィルム外に光がもたらされる。このようなフィルム中に紫外線吸収剤を添加することにより、フィルム内での反射の無い数層レベルのフィルムの場合と違い、紫外線吸収剤を含む層を光が通過する回数が増える。これによって、少量の紫外線吸収剤にて効率的に高い紫外線カット効果が得られるようになり、低コストな紫外線カットフィルムが得られる。

[0259] また、10層以下の層数のフィルムを用いる場合には長期信頼性試験において紫外線吸収剤が析出する場合があるが、11層以上の積層フィルムを用いることで、各層の界面や層の内部で紫外線吸収剤がトラップされ、フィルム表面に析出するのを抑制できるようになるというメリットもある。

[0260] 本明細書において紫外線吸収剤は、一般的な380nm以下の波長領域の紫外線を吸収する汎用紫外線吸収剤と、紫外線領域と可視光領域の境界近傍（380～430nm付近）の光までカットできる可視光線吸収色素の2種

と定義される。

[0261] 汎用紫外線吸収剤は一般的に380nm以下の波長領域の紫外線を吸収する能力が、紫外線領域と可視光領域の境界近傍（380～430nm付近）の光線を吸収する能力に比べ優れている。そのため、汎用紫外線吸収剤を含有させることのみで、紫外線領域と可視光領域の境界近傍（380～430nm）の光線をカットするためには、後述する一部の長波長紫外線吸収を除いて、高濃度に含有させることにより効果が現れる。

[0262] 紫外線領域、および、紫外線領域と可視光領域の境界近傍（380～430nm）の波長カットを、単独の汎用紫外線吸収剤により達成可能な紫外線吸収剤としては、あくまで一例であるが、市販の汎用紫外線吸収剤としては2-（5-クロロ-2H-ベンゾトリアゾール-2-イル）-6-第三ブチル-4-メチルフェノールや、2, 4, 6-トリス（2-ヒドロキシ-4-ヘキシルオキシ-3-メチルフェニル）-1, 3, 5-トリアジンの構造で記される化合物などが挙げられる。

[0263] 一方、可視光線吸収色素は、一般に可視光短波長領域のカット性能が、380nm以下の紫外線領域のカット能力に比べ優れている。そのため、可視光線吸収色素を含有させることのみで、汎用紫外線領域の光線をカットするためには、後述する一部の可視光線吸収色素を除いて、高濃度に含有させることにより効果が現れる。また、可視光線吸収色素は、一般的に広範囲にわたる波長領域をブロードにカットする性質のものが多く、高濃度に含有させる場合、目的とする波長領域よりもさらに長波長側の可視光領域を吸収するため、色変換フィルムから発光される可視光線の吸収に影響しない程度に添加することが好ましい。また、特に波長380～440nmの領域における紫外線領域と可視光領域の境界近傍を狭帯域でカットする性質を有する可視光線吸収色素は種類が多くなく、特定の構造をもつ可視光線吸収色素を選定して使用することが望まれる。

[0264] 紫外線領域、および、紫外線領域と可視光領域の境界近傍（380nm～430nm）の波長カットを、単独添加により達成可能な可視光線吸収色素

としては、例えば、BASF（株）製の「Lumogen F Violet 570」などが挙げられる。汎用紫外線吸収剤および／または可視光線吸収色素にはそれぞれ得意とする領域が存在していることから、高濃度添加によるブリードアウト、それに伴う工程汚染を防ぐためには、1種類以上の紫外線吸収剤と1種類以上の可視光線吸収色素を効果的に組み合わせる手法がより好ましい。

[0265] 積層フィルムは、1種類以上の汎用紫外線吸収剤と、1種類以上の可視光線吸収色素を含有させると、透明性、ブリードアウト抑制性を維持したまま、上述した光線透過率を容易に達成できるため好ましい。その場合において利用可能な汎用紫外線吸収剤としては、上述した2種類の汎用紫外線吸収剤以外にも、ベンゾトリアゾール系、ベンゾフェノン系、ベンゾエート系、トリアジン系、ベンゾオキサジノン系、サリチル酸系、ベンゾオキサジン系をはじめとする、多種骨格構造の紫外線吸収剤が挙げられる。

[0266] 2種以上の汎用紫外線吸収剤および／または可視光線吸収色素を併用する場合は、互いに同じ骨格構造の紫外線吸収剤であってもよく、異なる骨格構造を有する紫外線吸収剤を組み合わせてもよい。

[0267] 本発明で利用する紫外線吸収剤は、波長320～380nmの間に極大吸収波長を有する汎用紫外線吸収剤であることが好ましい。極大波長が320nmより小さい場合、長波長側の紫外線領域を十分にカットすることは難しく、また、380nmを超えて430nm以下の可視光短波長領域に最大となる極大波長を有する色素との組み合わせを行った場合であっても、波長300～380nmにおける領域内において10%以上の光線透過率を示す領域が発生してしまうことが多い。そのため、波長300～380nmの紫外線領域における光線透過率の最大値を10%以下とするためには上記紫外線吸収剤を利用することが好ましい。

[0268] 以下より具体例を例示するが、極大波長が320nm～380nmの波長領域に存するものに対しては化合物名の後に（※）を付している。

[0269] ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤としては、特に限定されないが、例え

ば、2-(2'-ヒドロキシ-5'-メチルフェニル)ベンゾトリアゾール(※)、2-(2'-ヒドロキシ-3', 5'-ジ第三ブチルフェニル)ベンゾトリアゾール(※)、2-(2'-ヒドロキシ-3', 5'-ジ第三ブチルフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール(※)、2-(2'-ヒドロキシ-3'-第三ブチル-5'-メチルフェニル)ベンゾトリアゾール(※)、2-(2'-ヒドロキシ-3'-第三ブチル-5'-メチルフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール(※)、2-(2'-ヒドロキシ-3', 5'-ジ第三アミルフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール(※)、2-(2'-ヒドロキシ-3'-(3'', 4'', 5'', 6''-テトラヒドロフタルイミドメチル)-5'-メチルフェニル)-ベンゾトリアゾール(※)、2-(5-クロロ-2H-ベンゾトリアゾール-2-イル)-6-第三ブチル-4-メチルフェノール(※)、2, 2'-メチレンビス(4-(1, 1, 3, 3-テトラメチルブチル)-6-(2H-ベンゾトリアゾール-2-イル)フェノール(※)、2-(2'-ヒドロキシ-3', 5'-ジ第三ペンチルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-5'-第三オクチルフェニル)ベンゾトリアゾール、2, 2'-メチレンビス(4-第三オクチル-6-ベンゾトリアゾリル)フェノール(※)、などが挙げられる。

[0270] ベンゾフェノン系紫外線吸収剤としては、特に限定されないが、例えば、2, 4-ジヒドロキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-オクトキシベンゾフェノン、2, 2'-ジヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノン(※)、2, 2'-ジヒドロキシ-4, 4'-ジメトキシベンゾフェノン、2, 2', 4, 4'-テトラヒドロキシベンゾフェノン、5, 5'-メチレンビス(2-ヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノン)、などが挙げられる。

[0271] ベンゾエート系紫外線吸収剤としては、特に限定されないが、例えば、レゾルシノールモノベンゾエート、2, 4-ジ第三ブチルフェニル-3, 5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシベンゾエート、2, 4-ジ第三アミルフェニ

ルー 3, 5-ジ第三ブチルー 4-ヒドロキシベンゾエート、2, 6-ジ第三ブチルフェニルー 3', 5'-ジ第三ブチルー 4'-ヒドロキシベンゾエート、ヘキサデシル-3, 5-ジ第三ブチルー 4-ヒドロキシベンゾエート、オクタデシル-3, 5-ジ第三ブチルー 4-ヒドロキシベンゾエートなどが挙げられる。

[0272] トリアジン系紫外線吸収剤としては、特に限定されないが、2-(2-ヒドロキシ-4-ヘキシルオキシフェニル)-4, 6-ジフェニルー s-トリアジン、2-(2-ヒドロキシ-4-プロポキシ-5-メチルフェニル)-4, 6-ビス(2, 4-ジメチルフェニル)-s-トリアジン、2-(2-ヒドロキシ-4-ヘキシルオキシフェニル)-4, 6-ジビフェニルー s-トリアジン、2, 4-ジフェニルー 6-(2-ヒドロキシ-4-メトキシフェニル)-s-トリアジン、2, 4-ジフェニルー 6-(2-ヒドロキシ-4-エトキシフェニル)-s-トリアジン、2, 4-ジフェニルー 6-(2-ヒドロキシ-4-プロポキシフェニル)-s-トリアジン、2, 4-ジフェニルー 6-(2-ヒドロキシ-4-ブトキシフェニル)-s-トリアジン、2, 4-ビス(2-ヒドロキシ-4-オクトキシフェニル)-6-(2, 4-ジメチルフェニル)-s-トリアジン、2, 4, 6-トリス(2-ヒドロキシ-4-ヘキシルオキシ-3-メチルフェニル)-s-トリアジン(※)、2, 4, 6-トリス(2-ヒドロキシ-4-オクトキシフェニル)-s-トリアジン、2-(4-イソオクチルオキシカルボニルエトキシフェニル)-4, 6-ジフェニルー s-トリアジン、2-(4, 6-ジフェニルー s-トリアジン-2-イル)-5-(2-(2-エチルヘキサノイルオキシ)エトキシ)フェノールなどが挙げられる。

[0273] ベンゾオキサジノン系紫外線吸収剤としては、特に限定されないが、2, 2'-p-フェニレンビス(4H-3, 1-ベンゾオキサジン-4-オン)(※)、2, 2'-p-フェニレンビス(6-メチルー 4H-3, 1-ベンゾオキサジン-4-オン)、2, 2'-p-フェニレンビス(6-クロロー 4H-3, 1-ベンゾオキサジン-4-オン)(※)、2, 2'-p-フェ

ニレンビス（6-メトキシ-4H-3，1-ベンゾオキサジン-4-オン）、2，2'-p-フェニレンビス（6-ヒドロキシ-4H-3，1-ベンゾオキサジン-4-オン）、2，2'-（ナフタレン-2，6-ジイル）ビス（4H-3，1-ベンゾオキサジン-4-オン）（※）、2，2'-（ナフタレン-1，4-ジイル）ビス（4H-3，1-ベンゾオキサジン-4-オン）（※）、2，2'-（チオフェン-2，5-ジイル）ビス（4H-3，1-ベンゾオキサジン-4-オン）（※）などを挙げることができる。

[0274] その他の紫外線吸収剤として、サリチル酸系では、例えば、フェニルサリチレート、t-ブチルフェニルサリチレート、p-オクチルフェニルサリチレート等、その他では、天然物系（例えば、オリザノール、シアバター、バイカリン等）、生体系（例えば、角質細胞、メラニン、ウロカニン等）なども利用することができる。

[0275] これらの紫外線吸収剤には、安定剤としてヒンダードアミン系化合物も併用することができる。

[0276] 本発明において用いられる紫外線吸収剤は、少なくとも1種類がトリアジン骨格構造を有する紫外線吸収剤であることが好ましい。トリアジン骨格構造は、その他一般的に紫外線吸収剤に利用されるベンゾトリアゾール骨格構造やベンゾフェノン骨格構造と比較して熱分解温度が高く、長期の安定性に優れることが知られており、長期で性能保持が要求されるディスプレイ用途の積層フィルムに好適である。また、融点が低いことから紫外線吸収剤自身の固体成分としての表面析出が抑制されるだけでなく、オリゴマーやその他昇華性の高い紫外線吸収剤を析出させにくくする効果を奏することから好ましく利用することができる。

[0277] 本発明の積層フィルムにおいて、1種類以上の汎用紫外線吸収剤と1種類以上の可視光線吸収色素を組み合わせ、上述の光線透過率を達成する場合において利用可能な可視光線吸収色素として、先に述べた可視光線吸収色素以外も選択可能である。

[0278] 本発明に用いられる可視光線吸収色素としては、後述する硬化性樹脂への

添加目的として、溶剤に溶解可能で彩度に優れた染料を利用してもよく、樹脂への練り混み目的として、染料よりも耐熱性や耐湿熱性に優れている顔料を用いてもよい。

[0279] 顔料は、有機顔料、無機顔料、クラシカル顔料に大別することができるが、添加対象である熱可塑性樹脂や硬化性樹脂との相溶性の観点から鑑みて、有機顔料を利用することが好ましい。可視光線吸収色素の構造としては、特に限定されないが、 $\beta$ ナフトール系、ナフトールAS系、アセト酢酸アリールアミド系、アセト酢酸アリールアミド系、ピラゾロン系、 $\beta$ オキシナフトエ酸系などのアゾ系、銅フタロシアニン、ハロゲン化銅フタロシアニン、無金属フタロシアニン、銅フタロシアニンレーキなどのフタロシアニン系、その他、アゾメチン系、アニリン系、アリザリン系、アントラキノ系、イソインドリノン系、イソインドリン系、インドール系、キナクリドン系、キノフタロン系、ジオキサジン系、チオインジゴ系、トリアジン系、ナフタルイミド系、ニトロン系、ペリノン系、ペリレン系、ベンゾオキサジン系、ベンゾトリアゾール系、その他天然有機色素が挙げられる。

[0280] 可視光線吸収色素は、390nm以上410nm以下に極大波長を有することがより好ましい。410nmより長波長領域に極大波長を有するものを選択した場合、非常に狭帯域のカット性能を有する色素を選択しない限り、光源の発光帯域における平均透過率が80%を下回る場合がある。390nm以上410nm以下の波長帯域に極大波長を有し、狭い帯域で吸収性能を発揮可能な可視光線吸収色素としては、アントラキノ系、アゾメチン系、インドール系、トリアジン系、ナフタルイミド系、フタロシアニンのいずれかの骨格を有する紫外線吸収剤を好ましく用いることができる。

[0281] 積層フィルムに含有させる汎用紫外線吸収剤、可視光線吸収色素の処方として、汎用紫外線吸収剤と可視光線吸収色素の含有量の和 $c$  [wt%]とフィルム厚み $t$  [ $\mu$ m]との積で表される吸収性能の指標 $c \times t$ が、80 [wt% $\cdot\mu$ m]以下を満足することが好ましい。より好ましくは50 [wt% $\cdot\mu$ m]以下、さらに好ましくは30 [wt% $\cdot\mu$ m]以下である。これに

より、汎用紫外線吸収剤および／または可視光線吸収色素の添加による透過率の低下やフィルムの白濁度（ヘイズ値）の上昇に影響を与えることがなく、光源ユニットおよび液晶ディスプレイなどに実装した場合に視認性が向上する。

[0282] 積層フィルムは、紫外線の吸収効率を高めるために、少なくとも片面に紫外線吸収剤を含む樹脂層を含んでなることが好ましい。さらに、少なくとも片面に硬化性樹脂からなる層を有し、かつ硬化性樹脂からなる層に紫外線吸収剤を含んでなることが好ましい。この場合、硬化性樹脂の組成に応じて、耐擦傷や寸法安定性などの機能を付加することができることに加えて、硬化性樹脂からなる層の架橋性が高いため、積層フィルムの内部に含まれているオリゴマーや添加剤などの析出を抑制することができる。特に、光源ユニットに用いる積層フィルムであるので、過酷な条件での長期信頼性試験においてフィルムの性状が変化しないことが要求される。具体的に、過酷な条件での長期信頼性試験とは、後述する温度 85℃ の促進耐熱試験、および温度 60℃、湿度 90%RH での促進耐湿熱試験を指す。

[0283] 積層フィルムに硬化性樹脂からなる層を積層することで耐擦傷性や寸法安定性をさらに良好にできる。硬化性樹脂からなる層は積層フィルムの上に直接コーティングされてもよい。硬化性樹脂からなる層は積層フィルムの片面のみに設けてもよく、硬化性樹脂の収縮応力による積層フィルムのカールを防止する観点で両面に設けても良い。

[0284] 硬化性樹脂は、高透明で耐久性があるものが好ましく、例えば、アクリル樹脂、ウレタン樹脂、フッ素樹脂、シリコーン樹脂、ポリカーボネート樹脂、塩化ビニル樹脂を単独または混合して使用できる。硬化性や可撓性、生産性の点において、硬化性樹脂はポリアクリレート樹脂に代表されるアクリル樹脂などの活性エネルギー線硬化型樹脂からなることが好ましい。

[0285] 硬化性樹脂からなる層の構成成分として用いられる活性エネルギー線硬化型樹脂は、該活性エネルギー線硬化型樹脂を構成するモノマー成分として、例えば、ペンタエリスリトールトリ（メタ）アクリレート、ペンタエリスリ

トールテトラ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールトリ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールペンタ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレート、トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、ビス（メタクロイルチオフェニル）スルフィド、2, 4-ジブロモフェニル（メタ）アクリレート、2, 3, 5-トリブロモフェニル（メタ）アクリレート、2, 2-ビス（4-（メタ）アクリロイルオキシフェニル）プロパン、2, 2-ビス（4-（メタ）アクリロイルオキシエトキシフェニル）プロパン、2, 2-ビス（4-（メタ）アクリロイルオキシジエトキシフェニル）プロパン、2, 2-ビス（4-（メタ）アクリロイルペンタエトキシフェニル）プロパン、2, 2-ビス（4-（メタ）アクリロイルオキシエトキシ-3, 5-ジブロモフェニル）プロパン、2, 2-ビス（4-（メタ）アクリロイルオキシジエトキシ-3, 5-ジブロモフェニル）プロパン、2, 2-ビス（4-（メタ）アクリロイルオキシペンタエトキシ-3, 5-ジブロモフェニル）プロパン、2, 2-ビス（4-（メタ）アクリロイルオキシエトキシ-3, 5-ジメチルフェニル）プロパン、2, 2-ビス（4-（メタ）アクリロイルオキシエトキシ-3-フェニルフェニル）プロパン、ビス（4-（メタ）アクリロイルオキシフェニル）スルホン、ビス（4-（メタ）アクリロイルオキシエトキシフェニル）スルホン、ビス（4-（メタ）アクリロイルオキシペンタエトキシフェニル）スルホン、ビス（4-（メタ）アクリロイルオキシエトキシ-3-フェニルフェニル）スルホン、ビス（4-（メタ）アクリロイルオキシエトキシ-3, 5-ジメチルフェニル）スルホン、ビス（4-（メタ）アクリロイルオキシフェニル）スルフィド、ビス（4-（メタ）アクリロイルオキシエトキシフェニル）スルフィド、ビス（4-（メタ）アクリロイルオキシペンタエトキシフェニル）スルフィド、ビス（4-（メタ）アクリロイルオキシエトキシ-3-フェニルフェニル）スルフィド、ビス（4-（メタ）アクリロイルオキシエトキシ-3, 5-ジメチルフェニル）スルフィド、ジ（（メタ）アクリロイルオキシエトキシ

シ) フォスフェート、トリ ((メタ) アクリロイルオキシエトキシ) フォスフェートなどの多官能 (メタ) アクリル系化合物を用いることができ、これらは1種もしくは2種以上を用いることができる。

[0286] また、これら多官能 (メタ) アクリル系化合物とともに、活性エネルギー線硬化型樹脂の硬度、透明性、強度、屈折率などをコントロールするため、スチレン、クロロスチレン、ジクロロスチレン、ブロモスチレン、ジブロモスチレン、ジビニルベンゼン、ビニルトルエン、1-ビニルナフタレン、2-ビニルナフタレン、N-ビニルピロリドン、フェニル (メタ) アクリレート、ベンジル (メタ) アクリレート、ビフェニル (メタ) アクリレート、ジアリルフタレート、ジメタリルフタレート、ジアリルビフェニレート、あるいはバリウム、鉛、アンチモン、チタン、錫、亜鉛などの金属と (メタ) アクリル酸との反応物などを用いることができる。これらは1種もしくは2種以上を用いてもよい。

[0287] 活性エネルギー線硬化型樹脂を硬化させる方法として、例えば、紫外線を照射する方法を用いることができるが、この場合、前記硬化性樹脂に対し、0.01～10重量部程度の光重合開始剤を加えることが望ましい。

[0288] 本発明に用いる活性エネルギー線硬化型樹脂には、塗工時の作業性の向上、塗工膜厚のコントロールを目的として、本発明の効果を損なわない範囲において、イソプロピルアルコール、酢酸エチル、メチルエチルケトン、トルエンなどの有機溶剤を配合することができる。

[0289] 本発明において活性エネルギー線とは、紫外線、電子線、放射線 ( $\alpha$  線、 $\beta$  線、 $\gamma$  線など) などアクリル系のビニル基を重合させる電磁波を意味し、実用的には、紫外線が簡便であり好ましい。紫外線源としては、紫外線蛍光灯、低圧水銀灯、高圧水銀灯、超高圧水銀灯、キセノン灯、炭素アーク灯などを用いることができる。また、電子線方式は、装置が高価で不活性気体下での操作が必要ではあるが、光重合開始剤や光増感剤などを含有させなくてもよい点から有利である。

[0290] 硬化性樹脂からなる層の厚みは、使用方法により適切に調整されるべきで

あるが、通常は1～6  $\mu\text{m}$ であることが好ましく、より好ましくは1～3  $\mu\text{m}$ であり、さらに好ましくは1～1.5  $\mu\text{m}$ の範囲である。

[0291] 耐擦傷性を付加するために硬化性樹脂からなる層の構成成分として用いられる熱硬化性ウレタン樹脂としては、ポリカプロラクトンセグメントならびにポリシロキサンセグメントおよび／またはポリジメチルシロキサンセグメントを有する共重合体樹脂を、イソシアネート基を有する化合物と熱反応により架橋させた樹脂が好ましい。熱硬化性ウレタン樹脂を適用することで、硬化性樹脂からなる層を強靱にすると同時に弾性回復性を助長することが可能となり、耐擦傷性を積層フィルムに付加することが可能となる。

[0292] 熱硬化性ウレタン樹脂を構成するポリカプロラクトンセグメントは、弾性回復の効果を奏するものであり、ポリカプロラクトンジオール、ポリカプロラクトントリオールや、ラクトン変性ヒドロキシエチルアクリレートなどのラジカル重合性ポリカプロラクトンを用いることができる。

[0293] 熱硬化性ウレタン樹脂を構成するポリシロキサンおよび／またはポリジメチルシロキサンセグメントは、これらの成分が表面配位することで表面の潤滑性を向上し、摩擦抵抗を低減する効果を奏する。ポリシロキサンセグメントを有する樹脂としては、テトラアルコキシシラン、メチルトリアルコキシシラン、ジメチルジアルコキシシラン、 $\gamma$ -グリシドキシプロピルトリアルコキシシラン、 $\gamma$ -メタクリロキシプロピルトリアルコキシシランなどを用いることができる。一方、ポリジメチルシロキサンセグメントを有する樹脂としては、ポリジメチルシロキサンセグメントに種々のビニルモノマー、例えば、メチルアクリレート、イソブチルアクリレート、メチルメタクリレート、*n*-ブチルメタクリレート、スチレン、 $\alpha$ -メチルスチレン、アクリロニトリル、酢酸ビニル、塩化ビニル、フッ化ビニル、アクリルアミド、メタクリルアミド、*N,N*-ジメチルアクリルアミド、などが共重合された共重合体を好ましく用いることができる。

[0294] 積層フィルムが片面に硬化性樹脂からなる層を設けてある場合、汎用紫外線吸収剤、可視光線吸収色素は、積層フィルム、硬化性樹脂からなる層のい

ずれに含有させても良い。硬化性樹脂からなる層は架橋性が強いため、層の内部に添加した場合に紫外線吸収剤の析出が抑制されるだけでなく、積層フィルム内部に紫外線吸収剤を添加した場合でも、層が当該添加剤の析出抑制のための蓋としての効果を奏するため、硬化性樹脂からなる層を積層すること自体で光源ユニットや液晶ディスプレイに実装した場合に視認性を悪化させる問題は発生しにくくなる。

[0295] 積層フィルムに、紫外線吸収剤を添加する場合、汎用紫外線吸収剤、可視光線吸収色素を、積層フィルムと硬化性樹脂からなる層とに分けて含有させることが好ましい。積層フィルムに紫外線吸収剤を含み、熱硬化性樹脂からなる層に可視光線吸収色素を含んでなることがより好ましい。

[0296] また、個々の層に汎用紫外線吸収剤および／または可視光線吸収剤をフィルム全体での総添加濃度が一定となるように分けて添加することが好ましい。これにより、一部の層に局所的に高濃度の紫外線吸収剤を添加することによる、フィルムの熱処理時や、信頼性試験後のフィルム品位の悪化を防ぐことができる。

[0297] この手法を用いる場合、積層フィルムに練り混みに強い耐熱性のある汎用紫外線吸収剤、硬化性樹脂からなる層に溶剤用途に適した可視光線吸収色素を添加して含有せしめる手法、もしくは積層フィルムに練り混みに強い耐熱性のある可視光線吸収色素、硬化性樹脂からなる層に溶剤用途に適した汎用紫外線吸収剤を添加して含有せしめる手法のいずれかを用いることが好ましい。この手法を用いることにより、汎用紫外線吸収剤および可視光線吸収色素それぞれの、練り混み用途、塗布用途における弱点を補うことが可能となる。

[0298] 特に、積層フィルムの押出製膜での生産効率、塗布時の積層フィルムの生産効率、可視光線吸収色素が汎用紫外線吸収剤と比較して一般的に高価であることなどを鑑みると、積層フィルムに練り混みに強い高耐熱性の汎用紫外線吸収剤を、硬化性樹脂からなる層に塗布用途として適した可視光線吸収色素を添加して含有せしめる手法が最も好ましい。

[0299] 積層フィルムの少なくとも片面に硬化性樹脂からなる層を積層した場合の汎用紫外線吸収剤および／または可視光線吸収色素の含有量は、以下の通りであることが好ましい。すなわち、積層フィルムおよび硬化性樹脂からなる層のそれぞれに添加される、汎用紫外線吸収剤および／または可視光線吸収色素の各層の含有濃度を  $c_X$ ,  $c_Y$  [wt %]、各層の厚みを  $t_X$ ,  $t_Y$  [ $\mu\text{m}$ ] とした場合、和の形で表記される吸収性能の指標  $c_X \times t_X + c_Y \times t_Y$  が、80 [wt %  $\cdot \mu\text{m}$ ] 以下を満足することが好ましい。より好ましくは50 [wt %  $\cdot \mu\text{m}$ ] 以下、さらに好ましくは30 [wt %  $\cdot \mu\text{m}$ ] 以下である。

[0300] 添加量は、添加剤の吸収性能や各層の厚みを鑑みて適宜調節されるべきであるが、80 [wt %  $\cdot \mu\text{m}$ ] を超える場合、信頼性試験において各種添加剤の表面析出による光学性能への影響が懸念されるため、問題となる場合がある。

[0301] 本発明の積層部材および光源ユニットを構成する積層フィルムは、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリ(4-メチルペンテン-1)、ポリアセタールなどの鎖状ポリオレフィン、ノルボルネン類の開環メタセシス重合、付加重合、他のオレフィン類との付加共重合体である脂環族ポリオレフィン、ポリ乳酸、ポリブチルサクシネートなどの生分解性ポリマー、ナイロン6、ナイロン11、ナイロン12、ナイロン66などのポリアミド、アラミド、ポリメチルメタクリレート、ポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデン、ポリビニルアルコール、ポリビニルブチラール、エチレン酢酸ビニルコポリマー、ポリアセタール、ポリグルコール酸、ポリスチレン、スチレン共重合ポリメタクリル酸メチル、ポリカーボネート、ポリプロピレンテレフタレート、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレン-2,6-ナフタレートなどのポリエステル、ポリエーテルサルホン、ポリエーテルエーテルケトン、変性ポリフェニレンエーテル、ポリフェニレンサルファイド、ポリエーテルイミド、ポリイミド、ポリアリレート、4フッ化エチレン樹脂、3フッ化エチレン樹脂、3フッ化塩化エチレン樹脂、4フッ

化エチレンー6フッ化プロピレン共重合体、ポリフッ化ビニリデンなどを用いることができる。この中で、強度・耐熱性・透明性および汎用性の観点から、特にポリエステルを用いることがより好ましい。これらは、共重合体であっても、2種以上の樹脂の混合物であってもよい。

[0302] このポリエステルとしては、芳香族ジカルボン酸または脂肪族ジカルボン酸とジオールを主たる構成成分とする単量体からの重合により得られるポリエステルが好ましい。ここで、芳香族ジカルボン酸として、例えば、テレフタル酸、イソフタル酸、フタル酸、1,4-ナフタレンジカルボン酸、1,5-ナフタレンジカルボン酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸、4,4'-ジフェニルジカルボン酸、4,4'-ジフェニルエーテルジカルボン酸、4,4'-ジフェニルスルホンジカルボン酸などを挙げることができる。脂肪族ジカルボン酸としては、例えば、アジピン酸、スベリン酸、セバシン酸、ダイマー酸、ドデカンジオン酸、シクロヘキサンジカルボン酸とそれらのエステル誘導体などが挙げられる。中でも高い屈折率を発現するテレフタル酸と2,6-ナフタレンジカルボン酸が好ましい。これらの酸成分は1種のみ用いてもよく、2種以上併用してもよく、さらには、ヒドロキシ安息香酸等のオキシ酸などを一部共重合してもよい。

[0303] また、ジオール成分としては、例えば、エチレングリコール、1,2-プロパンジオール、1,3-プロパンジオール、ネオペンチルグリコール、1,3-ブタンジオール、1,4-ブタンジオール、1,5-ペンタンジオール、1,6-ヘキサンジオール、1,2-シクロヘキサンジメタノール、1,3-シクロヘキサンジメタノール、1,4-シクロヘキサンジメタノール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ポリアルキレングリコール、2,2-ビス(4-ヒドロキシエトキシフェニル)プロパン、イソソルベート、スピログリコールなどを挙げることができる。中でもエチレングリコールが好ましく用いられる。これらのジオール成分は1種のみ用いてもよく、2種以上併用してもよい。

[0304] 本発明の積層部材および光源ユニットを構成する積層フィルムにおいては

、熱可塑性樹脂が、例えば、上記ポリエステルのうち、ポリエチレンテレフタレートおよびその重合体、ポリエチレンナフタレートおよびその共重合体、ポリブチレンテレフタレートおよびその共重合体、ポリブチレンナフタレートおよびその共重合体、さらにはポリヘキサメチレンテレフタレートおよびその共重合体、ポリヘキサメチレンナフタレートおよびその共重合体などを用いることが好ましい。

[0305] 本発明の積層部材および光源ユニットを構成する積層フィルムにおいては、熱可塑性樹脂XからなるX層と熱可塑性樹脂YからなるY層の面内平均屈折率の差が0.03以上であることが好ましい。より好ましくは0.05以上であり、さらに好ましくは0.1以上である。面内平均屈折率の差が0.03より小さい場合には、十分な反射率が得られないために輝度向上性能が不足する場合がある。この達成方法としては、熱可塑性樹脂Xが結晶性樹脂であり、熱可塑性樹脂Yが非晶性樹脂を用いることが挙げられる。この場合、積層フィルムの製造における延伸、熱処理工程において容易に屈折率差を設けることが可能となる。

[0306] 本発明の積層部材および光源ユニットを構成する積層フィルムにおいては、熱可塑性樹脂Xと熱可塑性樹脂Yの好ましい組み合わせとしては、各熱可塑性樹脂のSP値の差の絶対値が、1.0以下であることが第一に好ましい。SP値の差の絶対値が1.0以下であると層間剥離が生じにくくなる。より好ましくは、熱可塑性樹脂Xと熱可塑性樹脂Yが同一の基本骨格を供えた組み合わせからなることが好ましい。ここでいう基本骨格とは、樹脂を構成する繰り返し単位のことであり、例えば、熱可塑性樹脂Xとしてポリエチレンテレフタレートを用いる場合は、熱可塑性樹脂Yは高精度な積層構造が実現しやすい観点から、ポリエチレンテレフタレートと同一の基本骨格であるエチレンテレフタレートを含むことが好ましい。熱可塑性樹脂Xと熱可塑性樹脂Yが同一の基本骨格を含む樹脂であると、積層精度が高く、さらに積層界面での層間剥離が生じにくくなるものである。

[0307] ここで、溶解パラメータ（SP値）は、一般的に用いられている、Poly.En

g. Sci., vol. 14, No. 2, pp147-154 (1974) などに記載の F e d o r s の推算法を用い、樹脂を構成するモノマーの種類と比率から算出される値である。複数種類の樹脂の混合物に関しても、同様の方法により算出できる。例えば、ポリメタクリル酸メチルの S P 値は  $9.5 \text{ (cal/cm}^3\text{)}^{0.5}$ 、ポリエチレンテレフタレート (P E T) の S P 値は  $10.7 \text{ (cal/cm}^3\text{)}^{0.5}$ 、ビスフェノール A 系エポキシ樹脂の S P 値は  $10.9 \text{ (cal/cm}^3\text{)}^{0.5}$  と算出できる。

[0308] 本発明の積層部材および光源ユニットを構成する積層フィルムにおいては、熱可塑性樹脂 X と熱可塑性樹脂 Y の好ましい組み合わせとしては、各熱可塑性樹脂のガラス転移温度差が  $20^{\circ}\text{C}$  以下である熱可塑性樹脂の組合せである。ガラス転移温度の差が  $20^{\circ}\text{C}$  より大きい場合には積層フィルムを製膜する際の厚み均一性が不良となり、輝度・色目のムラとなったり、色変換フィルムと貼り合わせる際に気泡やしわが生じたりする原因となる。また、熱可塑性樹脂 X が結晶性、熱可塑性樹脂 Y が非晶性であり、熱可塑性樹脂 X のガラス転移温度が熱可塑性樹脂 Y のガラス転移温度よりも低いこともまた好ましい。この場合、積層フィルムにおいて結晶性樹脂を配向・結晶化させるのに適当な延伸温度で延伸したときに、結晶性樹脂と比べて非晶性樹脂の配向を抑制することができ、容易に屈折率差を設けることが可能となる。なお、ここでいう結晶性樹脂とは、具体的には、J I S K 7 1 2 2 (1999) に準じて示差走査熱量測定（以下、D S C と称することがある。）を行い、昇温速度  $20^{\circ}\text{C}/\text{分}$  で樹脂を  $25^{\circ}\text{C}$  から  $300^{\circ}\text{C}$  の温度まで  $20^{\circ}\text{C}/\text{分}$  の昇温速度で加熱 (1 s t R U N) し、その状態で 5 分間保持後、次いで  $25^{\circ}\text{C}$  以下の温度となるように急冷し、再度  $25^{\circ}\text{C}$  から  $20^{\circ}\text{C}/\text{分}$  の昇温速度で  $300^{\circ}\text{C}$  まで昇温を行って得られた 2 n d R U N の示差走査熱量測定チャートにおいて、融解ピークのピーク面積から求められる融解エンタルピー ( $\Delta H_m$ ) が、 $15 \text{ J/g}$  以上である樹脂のことを指す。また、非晶性樹脂とは、上記と同じ条件で求められる融解エンタルピー ( $\Delta H_m$ ) が、 $5 \text{ J/g}$  以下の樹脂のことを指す。

[0309] 上記の条件を満たすための熱可塑性樹脂の組合せの一例として、本発明の積層部材および光源ユニットを構成する積層フィルムにおいては、熱可塑性樹脂Xがポリエチレンテレフタレートまたはポリエチレンナフタレートを含んでなり、熱可塑性樹脂Yがスピログリコール由来のポリエステルを含んでなるポリエステルであることが好ましい。スピログリコール由来のポリエステルとは、スピログリコールをジオール成分として用いたポリエステルであって、他のエステル構造単位との共重合体、スピログリコールを単一のジオール成分として用いたポリエステル、またはそれらを他のポリエステル樹脂とブレンドし、好ましくスピログリコール残基がポリエステル樹脂中の全ジオール残基の半数以上を占めるポリエステルのことを言う。スピログリコール由来のポリエステルは、ポリエチレンテレフタレートやポリエチレンナフタレートとのガラス転移温度差が小さいため、フィルム製膜時に過延伸になりにくく、かつ層間剥離もしにくいために好ましい。より好ましくは、熱可塑性樹脂Xがポリエチレンテレフタレートまたはポリエチレンナフタレートを含んでなり、熱可塑性樹脂Yがスピログリコールとシクロヘキサンジカルボン酸とが用いられたポリエステルであることが好ましい。スピログリコールとシクロヘキサンジカルボン酸とを用いて得たポリエステルであると、ポリエチレンテレフタレートやポリエチレンナフタレートとの面内屈折率差が大きくなるため、高い反射率が得られやすくなる。また、ポリエチレンテレフタレートやポリエチレンナフタレートとのガラス転移温度差が小さく、接着性にも優れるため、製膜時に過延伸になりにくく、かつ層間剥離もしにくい。

[0310] また、本発明の積層部材および光源ユニットを構成する積層フィルムにおいては、熱可塑性樹脂Xがポリエチレンテレフタレートまたはポリエチレンナフタレートを含んでなり、熱可塑性樹脂Yがシクロヘキサンジメタノール由来のポリエステルであることも好ましい。シクロヘキサンジメタノール由来のポリエステルとは、シクロヘキサンジメタノールをジオール成分として用いたポリエステルであって、他のエステル構造単位との共重合体、シクロ

ヘキサンジメタノールを単一のジオール成分として用いたポリエステル、またはそれらを他のポリエステル樹脂とブレンドし、好ましくはシクロヘキサンジメタノール残基がポリエステル樹脂中の全ジオール残基の半数以上を占めるポリエステルのことを言う。シクロヘキサンジメタノール由来のポリエステルは、ポリエチレンテレフタレートやポリエチレンナフタレートとのガラス転移温度差が小さいため、成形時に過延伸になることがなりにくく、かつ層間剥離もしにくいために好ましい。より好ましくは、少なくともひとつの熱可塑性樹脂がシクロヘキサンジメタノールの共重合量が15mol%以上60mol%以下であるエチレンテレフタレート重縮合体である。このようにすることにより、高い反射性能を有しながら、特に加熱や経時による光学特性の変化が小さく、層間での剥離も生じにくくなる。シクロヘキサンジメタノールの共重合量が15mol%以上60mol%以下であるエチレンテレフタレート重縮合体は、ポリエチレンテレフタレートと非常に強く接着する。また、そのシクロヘキサンジメタノール基は幾何異性体としてシス体あるいはトランス体があり、また配座異性体としてイス型あるいはボート型もあるので、ポリエチレンテレフタレートと共延伸しても配向結晶化しにくく、高反射率で、熱履歴による光学特性の変化もさらに少なく、製膜時のやぶれも生じにくいものである。

[0311] <色変換組成物の作製方法>

以下に、本発明に用いられる色変換フィルムの原料である色変換組成物の作製方法の一例を説明する。この作製方法では、上述した有機発光材料、バインダー樹脂、溶媒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、有機発光材料が得られる。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媒を除去して所望の固形分濃度にすることも可

能である。

[0312] 色変換組成物に用いる溶媒は、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。例えば、水、2-プロパノール、エタノール、トルエン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノン、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、これらの溶媒を2種類以上混合して使用することも可能である。

[0313] <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、上述した有機発光材料またはその硬化物層（すなわち、色変換組成物の硬化物層）を含んでいればその構成に限定はない。その一例を図6～図9に示す。図6は、色変換フィルム4の一例を示す模式断面図であり、図7、図8、および図9はそれぞれ、実施の形態に係る積層部材5の一例を示す模式断面図である。図6～図9に示す符号41、42、および43はそれぞれ、基材層、色変換フィルムの有機発光材料からなる層（以下、色変換層と呼称する場合もある）、およびバリアフィルムである。

[0314] （基材層）

基材層としては、特に制限無く公知の金属、フィルム、ガラス、セラミックス、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、鉄などの金属板や箔、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、テトラフルオロエチレンとエチレンとの共重合体（ETFE）などのプラスチックのフィルム、 $\alpha$ -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などが挙げられる。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などのメッキ処理やセラミック処理が施されていてもよい。

[0315] 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など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、あらかじめ表面が離型処理されていてもよい。

[0316] 基材層の厚さは特に制限はないが、下限としては25  $\mu\text{m}$ 以上が好ましく、38  $\mu\text{m}$ 以上がより好ましい。また、上限としては5000  $\mu\text{m}$ 以下が好ましく、3000  $\mu\text{m}$ 以下がより好ましい。

[0317] また、本発明での好ましい形態として、異なる複数の熱可塑性樹脂が交互に11層以上積層されてなる積層フィルムを基材として用いることも好ましい。この効果は上述した通りである。また、基材の表面に凹凸形状を付与することも好ましい。その形状の形成方法は後述の積層フィルムの場合と同様である。

[0318] (色変換層)

次に、本発明に用いられる色変換フィルムの有機発光材料からなる層（以下、色変換層とも称する）の作製方法の一例を説明する。この色変換層の作製方法では、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

ルム層等の下地上に塗布し、乾燥させる。このようにして、色変換層を作製する。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、エアーナイフコーター、ロールブレードコーター、バリバー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、アプリーケーター、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。

[0319] 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。

[0320] 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などが挙げられるが、これらに限定されない。

[0321] また、有機発光材料(a)を含有する(A)層と有機発光材料(b)を含有する(B)層の、2層以上の色変換層の形態をとることも好ましい。有機発光材料(a)および(b)は、異なる層に含有されることで材料間の相互作用が抑制されるため、同一層中に分散させた場合よりも高い色純度の発光を示すからである。また、材料間の相互作用が抑制されることで、有機発光材料(a)および(b)が各層中でそれぞれの独立に発光するため、緑色および赤色の発光ピーク波長や発光強度の調整が容易である。

[0322] (バリアフィルム)

バリアフィルムとしては、色変換層に対してガスバリア性を向上させる場

合など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、酸化マグネシウムなどの無機酸化物や、窒化ケイ素、窒化アルミニウム、窒化チタン、炭化窒化ケイ素などの無機窒化物、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ル系樹脂、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などの各種樹脂から成る膜を挙げることができる。

[0323] 本発明で好適に用いられるバリア性樹脂としては、例えば、ポリエステル、ポリ塩化ビニル、ナイロン、ポリフッ化ビニル、ポリ塩化ビニリデン、ポリアクリロニトリル、ポリビニルアルコール、エチレンービニルアルコール共重合体等の樹脂およびこれらの樹脂の混合物が挙げられる。中でも、ポリ塩化ビニリデン、ポリアクリロニトリル、エチレンービニルアルコール共重合体、ポリビニルアルコールは酸素透過係数が非常に小さいため、これらの樹脂を含むことが好ましい。変色しにくさから、ポリ塩化ビニリデン、ポリビニルアルコール、エチレンービニルアルコール共重合体を含むことがさらに好ましく、環境負荷の小ささから、ポリビニルアルコールまたはエチレンービニルアルコール共重合体を含むことが特に好ましい。

[0324] これらの樹脂は単いで用いても良いし、異なる樹脂と混合して用いても良いが、フィルムの均一性およびコストの観点から、単一樹脂からなるフィルムがより好ましい。

[0325] ポリビニルアルコールとしては、例えば、アセチル基を98モル%以上ケン化したポリ酢酸ビニルのケン化物を用いることができる。また、エチレンービニルアルコール共重合体としては、例えば、アセチル基を98モル%以上ケン化したエチレン含有率20～50%のエチレンー酢酸ビニル共重合体のケン化物を用いることができる。

[0326] また、市販されている樹脂やフィルムを使用することも可能である。具体

例としては、株式会社クラレ製のポリビニルアルコール樹脂PVA117や株式会社クラレ製のエチレンービニルアルコール共重合体（“EVAL”（登録商標））樹脂L171B、F171BやフィルムEF-XLなどがある。

[0327] バリアフィルムには、色変換層の発光および耐久性に過度な影響を与えない範囲で、必要に応じて、酸化防止剤、硬化剤、架橋剤、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等を添加しても良い。

[0328] バリアフィルムの厚みは特に制限はないが、色変換フィルム全体の柔軟性やコストの観点から、100 $\mu$ m以下であることが好ましい。より好ましくは50 $\mu$ m以下であり、さらに好ましくは20 $\mu$ m以下である。特に好ましくは、10 $\mu$ m以下であり、1 $\mu$ m以下であってもよい。ただし、層形成の容易さの観点から、0.01 $\mu$ m以上であることが好ましい。

[0329] バリアフィルムは、色変換層の両面に設けられてもよいし、片面だけに設けられてもよい。

[0330] また、バリアフィルムの表面に凹凸形状を付与することも好ましい。その形状の形成方法は後述の積層フィルムの場合と同様である。

[0331] 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。

[0332] （接着層）

本発明の色変換フィルムにおいてそれぞれの層の間には、必要に応じて接着層を設けても良い。

[0333] 接着層としては、色変換フィルム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、特に制限無く公知の材料を用いることができる。強固な接着が必要な場合、光硬化材料や熱硬化材料、嫌気性硬化材料、熱可塑性材料を好ましく用いることができるが、中でも、熱硬化材料がより好ましく、特に、0℃～150℃での硬化が可能である材料が好ましい。

[0334] 接着層の厚みは特に制限はないが、 $0.01 \sim 100 \mu\text{m}$ であることが好ましく、より好ましくは $0.01 \sim 25 \mu\text{m}$ である。さらに好ましくは、 $0.05 \sim 5 \mu\text{m}$ であり、特に好ましくは、 $0.05 \sim 1 \mu\text{m}$ である。

[0335] (積層フィルムとの貼り合せ)

本発明の積層部材においては、個別に作成した色変換フィルムと積層フィルムを接着層を介して貼り合わせることも好ましい。接着層の好ましい形態は上述と同様である。

[0336] <積層フィルムの作製方法>

次に、本発明の実施の形態に係る積層部材および光源ユニットを構成する積層フィルムの好ましい作製方法を熱可塑性樹脂X、Yからなる積層フィルムを例にとり以下に説明する。もちろん本発明は係る例に限定して解釈されるものではない。また、本発明に用いる積層フィルムの積層構造は、特開2007-307893号公報の段落[0053]～[0063]に記載の内容と同様の方法により簡便に実現できるものである。

[0337] 熱可塑性樹脂X、Yをペレットなどの形態で用意する。ペレットは、必要に応じて、熱風中あるいは真空中で乾燥された後、別々の押出機に供給される。また、積層フィルム中に紫外線吸収剤を含む場合には、あらかじめ熱可塑性樹脂X、Y中に紫外線吸収剤を混練したペレットを準備したり、熱可塑性樹脂X、Yと紫外線吸収剤とを押出機中にて混練したりする。押出機内において、融点以上に加熱溶融された樹脂は、ギアポンプ等で樹脂の押出量を均一化され、フィルター等を介して異物や変性した樹脂などを取り除かれる。これらの樹脂はダイにて目的の形状に成形された後、吐出される。そして、ダイから吐出された多層に積層されたシートは、キャストイングドラム等の冷却体上に押し出され、冷却固化され、キャストイングフィルムが得られる。この際、ワイヤー状、テープ状、針状あるいはナイフ状等の電極を用いて、静電気力によりキャストイングドラム等の冷却体に密着させ急冷固化させることが好ましい。また、スリット状、スポット状、面状の装置からエアを吹き出してキャストイングドラム等の冷却体に密着させ急冷固化させた

り、ニップロールにて冷却体に密着させ急冷固化させたりする方法も好ましい。

[0338] また、X層に用いられる熱可塑性樹脂とそれと異なる熱可塑性樹脂Yの複数の樹脂を2台以上の押出機を用いて異なる流路から送り出し、多層積層装置に送り込まれる。多層積層装置としては、マルチマニホールドダイやフィードブロックやスタティックミキサー等を用いることができるが、特に、本発明の構成を効率よく得るためには、51個以上の微細スリットを有するフィードブロックを用いることが好ましい。このようなフィードブロックを用いると、装置が極端に大型化することがないため、熱劣化による異物が少なく、積層数が極端に多い場合でも、高精度な積層が可能となる。また、幅方向の積層精度も従来技術に比較して格段に向上する。また、この装置では、各層の厚みをスリットの形状（長さ、幅）で調整できるため、任意の層厚みを達成することが可能となったものである。

[0339] このようにして所望の層構成に形成した溶融多層積層体をダイへと導き、上述と同様にキャストینگフィルムが得られる。

[0340] このようにして得られたキャストینگフィルムは、二軸延伸することが好ましい。ここで、二軸延伸とは、長手方向および幅方向に延伸することをいう。延伸は、逐次に二方向に延伸しても良いし、同時に二方向に延伸してもよい。また、さらに長手方向および／または幅方向に再延伸を行ってもよい。

[0341] 逐次二軸延伸の場合についてまず説明する。ここで、長手方向への延伸とは、フィルムに長手方向の分子配向を与えるための延伸を言い、通常は、ロールの周速差により施され、この延伸は1段階で行ってもよく、また、複数本のロール対を使用して多段階に行っても良い。延伸の倍率としては樹脂の種類により異なるが、通常、2～15倍が好ましく、積層フィルムを構成する樹脂のいずれかにポリエチレンテレフタレートを用いた場合には、2～7倍が特に好ましく用いられる。また、延伸温度としては積層フィルムを構成する樹脂のガラス転移温度～ガラス転移温度+100℃が好ましい。

- [0342] このようにして得られた一軸延伸されたフィルムに、必要に応じてコロナ処理やフレイム処理、プラズマ処理などの表面処理を施した後、易滑性、易接着性、帯電防止性などの機能をインラインコーティングにより付与してもよい。特に、積層フィルムと色変換フィルムを含む積層部材を形成する際には、積層フィルムの最表層となる熱可塑性樹脂Xよりも低く、色変換フィルムの最表層となるフィルムの屈折率よりも高い屈折率となる樹脂をインラインコーティングすることが好ましい。
- [0343] つづいて幅方向の延伸とは、フィルムに幅方向の配向を与えるための延伸をいい、通常は、テンターを用いて、フィルムの両端をクリップで把持しながら搬送して、幅方向に延伸する。延伸の倍率としては樹脂の種類により異なるが、通常、2～15倍が好ましく、積層フィルムを構成する樹脂のいずれかにポリエチレンテレフタレートを用いた場合には、2～7倍が特に好ましく用いられる。また、延伸温度としては積層フィルムを構成する樹脂のガラス転移温度～ガラス転移温度+120℃が好ましい。
- [0344] こうして二軸延伸されたフィルムは、平面性、寸法安定性を付与するために、テンター内で延伸温度以上融点以下の熱処理を行うのが好ましい。熱処理を行うことにより、成形用フィルムの寸法安定性が向上する。このようにして熱処理された後、均一に徐冷後、室温まで冷やして巻き取られる。また、必要に応じて、熱処理から徐冷の際に弛緩処理などを併用してもよい。
- [0345] 同時二軸延伸の場合について次に説明する。同時二軸延伸の場合には、得られたキャストフィルムに、必要に応じてコロナ処理やフレイム処理、プラズマ処理などの表面処理を施した後、易滑性、易接着性、帯電防止性などの機能をインラインコーティングにより付与してもよい。
- [0346] 次に、キャストフィルムを、同時二軸テンターへ導き、フィルムの両端をクリップで把持しながら搬送して、長手方向と幅方向に同時および／または段階的に延伸する。同時二軸延伸機としては、パンタグラフ方式、スクリュエー方式、駆動モーター方式、リニアモーター方式があるが、任意に延伸倍率を変更可能であり、任意の場所で弛緩処理を行うことができる駆動モーター

方式もしくはリニアモーター方式が好ましい。延伸の倍率としては樹脂の種類により異なるが、通常、面積倍率として6～50倍が好ましく、積層フィルムを構成する樹脂のいずれかにポリエチレンテレフタレートを用いた場合には、面積倍率として8～30倍が特に好ましく用いられる。特に同時二軸延伸の場合には、面内の配向差を抑制するために、長手方向と幅方向の延伸倍率を同一とするとともに、延伸速度もほぼ等しくなるようにすることが好ましい。また、延伸温度としては積層フィルムを構成する樹脂のガラス転移温度～ガラス転移温度+120℃が好ましい。

[0347] こうして二軸延伸されたフィルムは、平面性、寸法安定性を付与するために、引き続きテンター内で延伸温度以上融点以下の熱処理を行うのが好ましい。この熱処理の際に、幅方向での主配向軸の分布を抑制するため、熱処理ゾーンに入る直前および／または直後に瞬時に長手方向に弛緩処理することが好ましい。このようにして熱処理された後、均一に徐冷後、室温まで冷やして巻き取られる。また、必要に応じて、熱処理から徐冷の際に長手方向および／あるいは幅方向に弛緩処理を行っても良い。熱処理ゾーンに入る直前および／あるいは直後に瞬時に長手方向に弛緩処理する。

[0348] 得られた積層フィルムを下記のとおり表面に凹凸形状を形成することも好ましい。凹凸形状を形成する方法としては、(a) 金型を用いた金型転写方法、(b) 基材表面を直接加工する方法、等が挙げられる。(a) 金型転写方法についてさらに詳述すると、(a1) 金型または／および上記基材を加熱した状態で金型を加圧、圧着させ賦形する方法、(a2) 上記基材の表面に光または熱硬化性樹脂を積層し、その表面に金型を押しあて、活性エネルギー線の照射、または加熱により樹脂を硬化させて賦形する方法、(a3) 予め金型の凹部に充填された樹脂を、基材上に転写する方法等が挙げられる。

[0349] また、(b) 基材表面を直接加工する方法としては、(b1) 機械的に切削器具などを用いて所望形状に削る方法、(b2) サンドブラスト法により削る方法、(b3) レーザーにより削る方法、(b4) 基材表面に光硬化性

樹脂を積層し、該基材の表面をリソグラフィーや光干渉露光法などの手法を用いて所望形状に加工する方法、等が挙げられる。

[0350] これらのうちでは、生産性の観点から（a）金型転写方法がより好ましい製造方法であるが、これらのプロセスを組み合わせることも可能であり、適宜プロセスを選択することで、求める凹凸形状を備えた積層フィルムを得ることができる。

[0351] ＜光拡散フィルム＞

本発明の光源ユニットは、色変換フィルムのいずれか一方または両方の面に光拡散フィルムが積層されていることが好ましい。光源からの光のムラを軽減し、光を均一に拡散させる効果があると同時に、後述のプリズムシートと同様に集光の効果を示し、正面方向の輝度向上に寄与するからである。また、光源からの発光の指向性を軽減し、有機発光材料からの発光を色変換フィルムの外部へ取り出しやすくすることによって、光源からの発光と有機発光材料からの発光の比率を、最適な状態に調整する効果もある。

[0352] 光拡散フィルムは、モアレ防止や光沢抑制の目的でプリズムシートの上部に配置される上拡散フィルムと、透明度が高くプリズムシートの下部に配置される下拡散フィルムに分類される。ディスプレイや照明用途では一般的には下拡散フィルムのみが使用されるが、目的に応じて上拡散フィルムと組み合わせる構成をとっても良い。

[0353] 光拡散フィルムとしては、例えば、ライトアップならびにケミカルマット（（株）きもと製）、オパルス（（株）恵和製）、Dシリーズ（（株）ツジデン製）、CH/J S（SKC Haas Display Films製）などが挙げられる。

[0354] ＜プリズムシート＞

本発明の光源ユニットは、色変換フィルムの光出射面に、プリズムシートが設けられていることが好ましい。光源側から照射された光を集光することにより正面方向の輝度を向上させるとともに、バックライトの明るさを均一にするからである。ここで光出射面とは、ディスプレイ用途においては表示

面側のことを指し、照明用途においては発光面側のことを指す。

[0355] プリズムシートは一般的に光学用の透明PETフィルム上に、頂角90°の二等辺三角形形状やマイクロレンズ形状のプリズムパターンを形成した構造になっている。プリズムシートの使用枚数は1枚以上であれば特に制限はないが、正面輝度をより向上させるには2枚のプリズムシートを直交させて使用することが好ましい。上述した光拡散フィルムと組み合わせて使用することにより、正面輝度向上の効果がより強く発揮される。

[0356] プリズムシートとしては、例えば、BEFシリーズ（3M製）、ダイヤモンド（三菱レイヨン(株)製）GTL5000・GTL6000シリーズ（五洋紙工(株)製）などが挙げられる。

[0357] <光源>

光源の種類は、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光源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ELなどの蛍光性光源、有機エレクトロルミネッセンス素子光源、LED、白熱光源、あるいは太陽光などいずれの光源でも原理的には利用可能であるが、特にLEDが好適な光源であり、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、400～500nmの範囲の光源を持つ青色LEDがさらに好適な光源である。

[0358] 光源は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光源を任意に組み合わせて使用することも可能である。

[0359] さらに青色光の色純度を高めるためには、その発光波長ピークは、430～470nm、より好ましくは450～470nm、さらに好ましくは455nm～465nmの範囲内にあり、かつ該パッケージの輝度を両立させるため、発光波長領域は400～500nmの範囲内であり、数式（7）、より好ましくは数式（8）を満たすことが必要である。

[0360] [数2]

$$1 > \beta / \alpha \geq 0.15 \quad (7)$$

[0361] [数3]

$$0.9 > \beta / \alpha \geq 0.25 \quad (8)$$

[0362]  $\alpha$ 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り、 $\beta$ は発光波長ピーク+15nmの波長における発光強度である。青色LEDの発光波長ピークをこれらの範囲に設定することにより、色再現性を向上させつつ、比視感度の効果を利用して輝度を上げることができる。

[0363] 青色LEDが、青色の色純度を保ちながら、比視感度の効果を利用して輝度を上げるためには、前記発光波長ピークにおける発光強度を、前記発光波長ピークより15nm長波長側の発光強度で割った値が、0.15以上であり、好ましくは0.25以上ある。

[0364] LEDの発光は、pn接合された半導体による発光であるため、その発光スペクトルは、上に凸の波形をとる。そのため、発光波長ピークにおける発光強度を、発光波長ピークより15nm長波長側の発光強度で割った場合、1よりも小さい値となり、0.9未満であることが好ましい。一方、発光波長ピークにおける発光強度を、発光波長ピークより15nm長波長側の発光強度で割った値が、0.15未満であった場合、前記発光スペクトルの形状は裾が短いシャープな形を示す。

[0365] <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、上述した色変換フィルムおよび上述した積層フィルムを備える構成である。光源と色変換フィルム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良いし、光源と色変換フィルムを離したりリモートフォスファー形式を取っても良い。また、光源ユニットは、上述した色変換フィルムと上述した積層フィルムとを含む積層体を備えていてもよい。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良い。

[0366] 本発明の実施の形態に係る光源ユニットは、このほかにも、導光板、拡散板、偏光反射性フィルムなどの光学フィルムが挿入されてなることが好ましい。

[0367] 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、などの用途に使用できるが、特にディスプレイや照明用途に特に好適に用いられる。

[0368] <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、上述したように光源および色変換フィルム等を含む光源ユニットを備える。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、上述の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、上述したように光源および色変換フィルム等を含む光源ユニットを備える。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または色変換組成物とを組み合わせ、白色光を発光するように構成される。

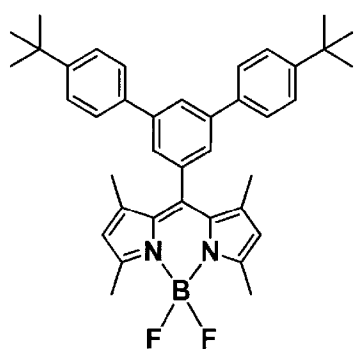
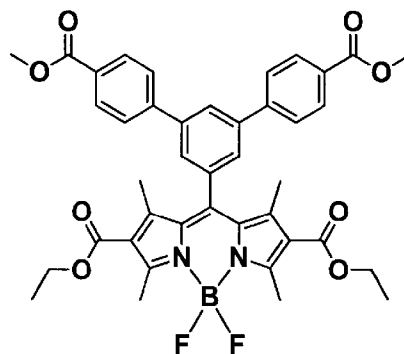
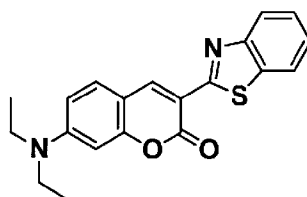
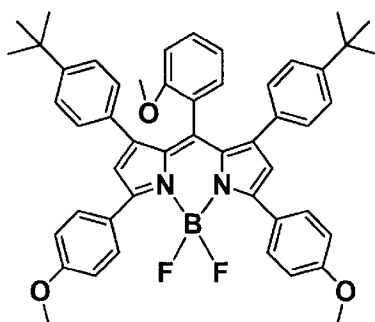
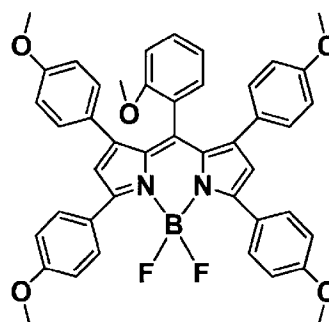
## 実施例

[0369] 以下、実施例をあ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。

[0370] 下記の実施例および比較例において、化合物G-1、G-2、G-3、R-1、R-2は以下に示す化合物である。

[0371]

[化33]

**G-1****G-2****G-3****R-1****R-2**

[0372] また、実施例および比較例における構造分析に関する評価方法は、以下に示す通りである。

[0373] < $^1\text{H}$ -NMRの測定>

化合物の $^1\text{H}$ -NMRは、超伝導FTNMR EX-270（日本電子（株）製）を用い、重クロロホルム溶液にて測定を行った。

[0374] <吸収スペクトルの測定>

化合物の吸収スペクトルは、U-3200形分光光度計（日立製作所（株）製）を用い、化合物をトルエンに $1 \times 10^{-6} \text{ mol/L}$ の濃度で溶解させ

て測定を行った。

[0375] <蛍光スペクトルの測定>

化合物の蛍光スペクトルは、F-2500形分光蛍光光度計（日立製作所（株）製）を用い、化合物をトルエンに $1 \times 10^{-6} \text{ mol/L}$ の濃度で溶解させ、波長460 nmで励起させた際の蛍光スペクトルを測定した。

[0376] <層数>

フィルムの層構成は、ミクロトームを用いて断面を切り出したサンプルについて、透過型電子顕微鏡（TEM）を用いて観察することにより求めた。すなわち、透過型電子顕微鏡H-7100FA型（（株）日立製作所製）を用い、加速電圧75 kVの条件でフィルムの断面写真を撮影し、層構成を測定した。

[0377] <積層フィルムの反射率の測定>

日立製作所製 分光光度計（U-4100 Spectrophotometer）に付属の角度可変透過付属装置を取り付け、入射角度 $\phi = 10^\circ$ および $60^\circ$ における波長250～800 nmの絶対反射率を測定した。測定条件：スリットは2 nm（可視）／自動制御（赤外）とし、ゲインは2と設定し、走査速度を600 nm／分とした。サンプルをフィルム幅方向中央部から5 cm×10 cmで切り出し測定した。

[0378] <光源の発光強度の測定>

浜松ホトニクス製ミニ分光光度器（C10083MMD）にNAO.22の光ファイバーを取り付け、光源の光を計測した。

[0379] <輝度測定>

評価用の光源を含む光源ユニットとして、Kindle Fire HD X 7のバックライトを用いた。本バックライトの発光におけるピーク波長は446 nmである。この光源ユニットを用い、拡散板、積層フィルム、色変換フィルム（積層フィルムと色変換フィルムを含む積層部材の場合もある）、プリズムシート、偏光反射フィルムとした場合の輝度をコニカミノルタセンシング株式会社製分光放射輝度計を用いて測定した。比較例1における

輝度を100としたときの相対的な輝度を表2に、比較例3における輝度を100としたときの相対的な輝度を表3に記載した。また、実施例26～33における相対輝度は、本測定方法で輝度測定を行い、実施例22と比較した値である。

[0380] <色域の算出>

輝度測定により得られた発光スペクトルデータと、カラーフィルターの透過率のスペクトルデータから、カラーフィルターにより色純度を向上させた場合の $(u', v')$ 色空間における色域を算出した。また、算出された $(u', v')$ 色空間における色域の面積は、BT. 2020規格の色域面積を100%とした場合の割合により評価した。この割合が高いほど色再現性が良好である。

[0381] <色変換フィルムのラジカル測定>

紫外線照射時に色変換フィルムで発生するラジカルの測定には、電子スピン共鳴装置JES-X3（日本電子(株)製）を用いた。超高圧水銀灯USH-250D（ウシオライティング(株)製）の波長365nmにおける照度を80mW/cm<sup>2</sup>に設定し、超高圧水銀灯、積層フィルム、色変換フィルムの順に配置させた後、液体窒素温度にて10分間紫外線を照射した。その後、温度40Kに調整した電子スピン共鳴装置に色変換フィルムを入れて、g値およびラジカル発生量を測定した。

[0382] ここで、g値とは、ラジカル種固有の値であり、実験より得られたマイクロ波周波数 $(\nu)$ と共鳴磁場 $(H)$ を以下の条件式、

$$g = (h\nu) / (\mu_B H)$$

に代入して求められる。ここで、 $h$ はプランク定数、 $\mu_B$ はボーア磁子である。

[0383] <耐光性試験>

評価用の光源を含む光源ユニットとして、Sony製KD-65X9500Bの光源ユニットと液晶ディスプレイを用いた。本バックライトの発光における発光帯域は430～485nmである。本液晶ディスプレイを50℃

雰囲気下光源点灯条件で1000h試験し、試験前後での色目、輝度の評価をコニカミノルタセンシング株式会社製分光放射輝度計を用いた。判定基準は以下のとおりである。

◎：試験前後での $\Delta u' v'$  0.03未満、輝度変化3%未満

○：試験前後での $\Delta u' v'$  0.10未満、輝度変化10%未満

×：試験前後での $\Delta u' v'$  0.10以上、輝度変化10%以上。

[0384] (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、3,5-ジブロモベンズアルデヒド(3.0g)、4-tert-ブチルフェニルボロン酸(5.3g)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)(0.4g)、炭酸カリウム(2.0g)をフラスコに入れ、窒素置換した。これに、脱気したトルエン(30mL)および脱気した水(10mL)を加え、4時間還流した。この反応溶液を室温まで冷却し、有機層を、分液した後に飽和食塩水で洗浄した。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、3,5-ビス(4-tert-ブチルフェニル)ベンズアルデヒド(3.5g)を白色固体として得た。

[0385] つぎに、3,5-ビス(4-tert-ブチルフェニル)ベンズアルデヒド(1.5g)と2,4-ジメチルピロール(0.7g)とを反応溶液に入れ、脱水ジクロロメタン(200mL)およびトリフルオロ酢酸(1滴)を加えて、窒素雰囲気下、4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(0.85g)の脱水ジクロロメタン溶液を加え、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(7.0mL)およびジイソプロピルエチルアミン(7.0mL)を加えて、4時間攪拌した後、さらに水(100mL)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（0.4 g）を得た（収率18%）。この得られた化合物の<sup>1</sup>H-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。

[0386] <sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, ppm) : 7.95 (s, 1H)、7.63–7.48 (m, 10H)、6.00 (s, 2H)、2.58 (s, 6H)、1.50 (s, 6H)、1.37 (s, 18H)。

[0387] なお、この化合物G-1の吸収スペクトルは図11に示す通りとなり、青色の光源（460 nm）に光の吸収特性を示した。また、この化合物G-1の蛍光スペクトルは図12に示す通りとなり、緑色領域に鋭い発光ピークを示した。蛍光量子収率は83%を示し、この化合物G-1は効率的な色変換が可能な化合物であった。

[0388] （合成例2）

以下に、本発明における合成例2の化合物R-1の合成方法について説明する。化合物R-1の合成方法では、4-（4-tert-ブチルフェニル）-2-（4-メトキシフェニル）ピロール（300 mg）、2-メトキシベンゾイルクロリド（201 mg）およびトルエン（10 mL）の混合溶液を窒素気流下、120℃で6時間加熱した。この加熱溶液を室温に冷却後、エバポレートした。ついで、エタノール（20 mL）で洗浄し、真空乾燥した後、2-（2-メトキシベンゾイル）-3-（4-tert-ブチルフェニル）-5-（4-メトキシフェニル）ピロール（260 mg）を得た。

[0389] 次に、2-（2-メトキシベンゾイル）-3-（4-tert-ブチルフェニル）-5-（4-メトキシフェニル）ピロール（260 mg）、4-（4-tert-ブチルフェニル）-2-（4-メトキシフェニル）ピロール（180 mg）、メタンスルホン酸無水物（206 mg）および脱気したトルエン（10 mL）の混合溶液を窒素気流下、125℃で7時間加熱した。この加熱溶液を室温に冷却後、水（20 mL）を注入し、ジクロロメタン（30 mL）で有機層を抽出した。この有機層を水（20 mL）で2回洗浄し、エバポレートし、真空乾燥して、ピロメテン体を得た。

[0390] 次に、得られたピロメテン体とトルエン（10 mL）との混合溶液を、窒素気流下、ジイソプロピルエチルアミン（305 mg）および三フッ化ホウ素ジエチルエーテル錯体（670 mg）を加えて室温で3時間、攪拌した。その後、水（20 mL）を注入し、ジクロロメタン（30 mL）で有機層を抽出した。この有機層を水（20 mL）で2回洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥後、エバポレートした。続いて、シリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、真空乾燥した後、赤紫色粉末（0.27 g）を得た。得られた赤紫色粉末の<sup>1</sup>H-NMR分析結果は次の通りであり、上記のようにして得られた赤紫色粉末が化合物R-1であることが確認された。

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, ppm) : 1.19 (s, 18H)、3.42 (s, 3H)、3.85 (s, 6H)、5.72 (d, 1H)、6.20 (t, 1H)、6.42–6.97 (m, 16H)、7.89 (d, 4H)。

[0391] なお、この化合物R-1の吸収スペクトルは図13に示す通りとなり、青色と緑色の光源に光の吸収特性を示した。また、この化合物R-1の蛍光スペクトルは図14に示す通りとなり、赤色領域に鋭い発光ピークを示した。蛍光量子収率は90%を示し、この化合物R-1は効率的な色変換が可能な化合物であった。

[0392] （実施例1）

積層フィルムは以下に示す方法にて得た。

[0393] 熱可塑性樹脂Xとして、融点が258℃のポリエチレンテレフタレート（PET）を用いた。また熱可塑性樹脂Yとして融点を持たない非晶性樹脂であるスピログリコール25mol%、シクロヘキサジカルボン酸30mol%共重合したエチレンテレフタレート（PE/SPG・T/CHDC）を用いた。準備した結晶性ポリエステルと熱可塑性樹脂Yとをそれぞれ、2台の単軸押出機に投入し、280℃で溶融させて、混練した。次いで、それぞれFSSタイプのリーフディスクフィルタを5枚介した後、ギアポンプにて計量しながら、スリット数11個の積層装置にて合流させて、厚み方向に交互に11層積層された積層体とした。積層体とする方法は、特開2007-

307893号公報の段落[0053]～[0056]の記載に従って行った。ここでは、スリット長さ、間隔は全て一定とした。得られた積層体は、熱可塑性樹脂Xが6層、熱可塑性樹脂Yが5層であり、厚み方向に交互に積層された積層構造を有していた。口金内部での拡幅比である口金リップのフィルム幅方向長さを口金の流入口部でのフィルム幅方向の長さで割った値を2.5となるようにした。

[0394] 得られたキャストフィルムを、80℃に設定したロール群で加熱した後、延伸区間長100mmの間で、フィルム両面からラジエーションヒーターにより急速加熱しながら、フィルム長手方向に3.3倍延伸し、その後一旦冷却した。つづいて、この一軸延伸フィルムの両面に空气中でコロナ放電処理を施し、基材フィルムの濡れ張力を55mN/mとし、その処理面に（ガラス転移温度が18℃のポリエステル樹脂）／（ガラス転移温度が82℃のポリエステル樹脂）／（平均粒径100nmのシリカ粒子）からなる積層形成膜塗液を塗布し、透明・易滑・易接着層を形成した。該易接着層の屈折率は1.57であった。

[0395] この一軸延伸フィルムをテンターに導き、100℃の熱風で予熱後、110℃の温度でフィルム幅方向に3.6倍延伸した。ここでの延伸速度と温度は一定とした。延伸したフィルムは、そのまま、テンター内で240℃の熱風にて熱処理を行い、続いて同温度条件で幅方向に2%の弛緩処理を、さらに100℃まで急冷した後に幅方向に5%の弛緩処理を施し、その後、巻き取り積層フィルムを得た。

[0396] 続いて、有機発光材料を含む色変換フィルム、ならびに積層部材を以下の方法にて得た。

[0397] バインダー樹脂としてポリエステル樹脂（SP値＝10.7（cal/cm<sup>3</sup>）<sup>0.5</sup>）を用い、バインダー樹脂100重量部に対して、有機発光材料（a）として化合物G-1を0.20重量部、有機発光材料（b）として化合物R-1を0.08重量部、溶剤としてトルエンを300重量部混合した後、遊星式攪拌・脱泡装置“マゼルスターKK-400”（クラボウ製）を用い

、300rpmで20分間攪拌・脱泡してフィルム作製用樹脂液としての色変換層となる部材を得た。

[0398] スリットダイコーターを用いて色変換層となる部材を上記の通り得た積層フィルム上に塗布し、100℃で1時間加熱、乾燥して平均膜厚10μmの色変換層を形成した。

[0399] 次に、上記色変換層の上に、PETフィルム（“ルミラー”U48、厚さ50μm）を加温ラミネートすることで、色変換フィルムを含む積層部材を得た。

[0400] この積層部材ならびにそれを含む光源ユニットの評価結果を表2に示すが、輝度も積層フィルムを用いない比較例1と比較すると輝度がわずかに向上した。

[0401] （実施例2）

熱可塑性樹脂XからなるX層の層数を51層、熱可塑性樹脂YからなるY層の層数を50層とした以外は、実施例1と同様にして積層フィルム、色変換フィルムならびに積層部材を得た。

[0402] この積層部材ならびにそれを含む光源ユニットの評価結果を表2に示すが、層数の少ない実施例1と比較すると顕著な輝度の向上が見られるものの、色味や輝度の均一性がやや低いものであった。

[0403] （実施例3）

熱可塑性樹脂XからなるX層の層数を101層、熱可塑性樹脂YからなるY層の層数を100層とした以外は、実施例1と同様にして積層フィルム、色変換フィルムならびに積層部材を得た。

[0404] この積層部材ならびにそれを含む光源ユニットの評価結果を表2に示すが、層数の少ない実施例2と比較すると顕著な輝度の向上が見られ、かつ色味や輝度の均一性にも優れるものであった。

[0405] （実施例4）

熱可塑性樹脂XからなるX層の層数を301層、熱可塑性樹脂YからなるY層の層数を300層とした以外は、実施例1と同様にして積層フィルム、

色変換フィルムならびに積層部材を得た。

[0406] この積層部材ならびにそれを含む光源ユニットの評価結果を表2に示すが、顕著な輝度の向上が見られ、かつ色味や輝度の均一性にも優れるものであった。

[0407] (実施例5)

易接着層をインラインコートにて設けないこと以外は、実施例4と同様にして積層フィルム、色変換フィルムならびに積層部材を得た。

[0408] この積層部材ならびにそれを含む光源ユニットの評価結果を表2に示すが、比較例1に対比して高い輝度向上率を示すものの、実施例4よりも光源波長での反射率が高いことを反映して、わずかに輝度の低いものとなっていた。

[0409] (実施例6)

実施例1と同様に作製した色変換層となる部材を、PETフィルム(“ルミラー”U48、厚さ50 $\mu$ m)上に塗布し、100℃で1時間加熱、乾燥して平均膜厚10 $\mu$ mの色変換層を形成した。次に、上記色変換層の上に、PETフィルム(“ルミラー”U48、厚さ50 $\mu$ m)を加温ラミネートすることで、色変換フィルムを作成した。積層フィルムと上記色変換フィルムとを貼り合わせることなく積層部材としないこと以外は、実施例5と同様に積層フィルムならびに色変換フィルムを得た。

[0410] 積層フィルム、色変換フィルムならびにそれらを含む光源ユニットの評価結果を表2に示すが、比較例1に対比して高い輝度向上率を示すものの、実施例5よりも積層フィルムと色変換フィルムとを貼り合わせることなく用いたことを反映して、わずかに輝度の低いものとなっていた。

[0411] (実施例7)

実施例4と同様に得られた積層フィルム上に、以下の方法で表面凹凸を設けた。

[0412] まず、積層フィルムに、塗剤1をコーティングし、膜厚5 $\mu$ mの塗膜を形成した。

(塗剤 1)

アデカオプトマー KRM-2199 (旭電化工業 (株) 製) 10 質量部

アロンオキセタン OXT-221 (東亜合成 (株) 製) 1 質量部

アデカオプトマー SP170 (旭電化工業 (株) 製) 0.25 質量部

この塗剤 1 をコーティングした面に、長手方向に垂直な断面形状が凹型の溝が複数掘り込まれた金型を押しあて、コーティングした面の裏面から超高圧水銀灯により  $1 \text{ J/m}^2$  照射して塗剤を硬化させ、金型を離型しレンズ形状を得た。ここで得られたレンズ形状は、ピッチ  $2 \mu\text{m}$ 、高さ  $1 \mu\text{m}$  のプリズム形状を有するものであった。

[0413] 続いて、形成されたレンズ形状が上面となるように色変換フィルムを含む積層部材とした。この積層部材ならびにそれを含む光源ユニットの評価結果を表 2 に示すが、プリズム形状を形成したことを反映して、実施例 4 よりも高い輝度をとなっていた。

[0414] (実施例 8)

熱可塑性樹脂 X として PEN を用いた以外は、実施例 3 と同様にして積層フィルム、色変換フィルムならびに積層部材を得た。この積層部材ならびにそれを含む光源ユニットの評価結果を表 2 に示すが、実施例 3 と同等の発光材料の発光波長での反射率を示すものの、光源波長での反射率の高さを反映して、わずかに輝度の低いものとなっていた。

[0415] (比較例 1)

積層フィルムを用いない構成とした以外は実施例 1 と同様に色変換フィルムを用いて光源ユニットを形成した。

[0416] 光源ユニットの評価結果を表 2 に示すが、実施例 1 ～ 8 のいずれと比較しても低い輝度となっていた。

[0417] (比較例 2)

色変換フィルムとして、Kindle Fire HDX 7 にもともと搭載されていた無機材料からなる色変換フィルムを用いて、実施例 6 と同様に積層フィルムならびに色変換フィルムを得た。

[0418] 積層フィルム、色変換フィルムならびにそれらを含む光源ユニットの評価結果を表2に示すが、実施例6に対比して輝度が低下しており、有機発光材料との組み合わせが優れることを示す結果となった。

[0419]

[表2]

|                           |                                     | 実施例1    | 実施例2 | 実施例3 | 実施例4 | 実施例5 | 実施例6 | 実施例7 | 実施例8 | 比較例1 | 比較例2 |
|---------------------------|-------------------------------------|---------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|
| 光源波長                      | nm                                  | 430~485 |      |      |      |      |      |      |      |      |      |
|                           | nm                                  | 506~529 |      |      |      |      |      |      |      |      |      |
| 発光波長                      | 有機発光材料(a)                           | 506~529 |      |      |      |      |      |      |      |      |      |
|                           | 有機発光材料(b)                           | 611~653 |      |      |      |      |      |      |      |      |      |
| 積層フィルム<br>反射率<br>@入射角度10° | 光源からの光に対する反射率                       | 9       | 9    | 9    | 9    | 12   | 12   | 9    | 16   | -    | 9    |
|                           | 光源から有機発光材料(a)に入射されて波長が変換された光に対する反射率 | 18      | 71   | 73   | 95   | 95   | 95   | 96   | 75   | -    | 95   |
|                           | 光源から有機発光材料(b)に入射されて波長が変換された光に対する反射率 | 9       | 9    | 72   | 96   | 95   | 95   | 95   | 72   | -    | 95   |
|                           | 光源から有機発光材料(a)に入射されて波長が変換された光に対する反射率 | 21      | 83   | 84   | 100  | 100  | 100  | 100  | 88   | -    | 100  |
| 積層フィルム<br>反射率<br>@入射角度60° | 光源から有機発光材料(b)に入射されて波長が変換された光に対する反射率 | 11      | 11   | 83   | 100  | 100  | 100  | 100  | 86   | -    | 100  |
|                           | 入射角度と出射角度の差                         | 0       | 0    | 0    | 0    | 0    | 0    | 5    | 0    | 0    | 0    |
| 相対輝度                      |                                     | 101     | 103  | 105  | 108  | 107  | 105  | 110  | 104  | 100  | 95   |

## [0420] (実施例 9)

まず、積層フィルムを実施例 1 と同様の方法にて得た。続いて、有機発光材料を含む色変換フィルム、ならびに積層部材を以下の方法にて得た。

[0421] バインダー樹脂としてアクリル樹脂 (SP 値 =  $9.5 (\text{cal}/\text{cm}^3)^{0.5}$ ) を用い、バインダー樹脂 100 重量部に対して、有機発光材料 (a) 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 重量部混合した後、遊星式攪拌・脱泡装置 “マゼルスター KK-400” (クラボウ製) を用い、300 rpm で 20 分間攪拌・脱泡して (A) 層作製用の色変換組成物を得た。

[0422] 同様に、バインダー樹脂としてポリエステル樹脂 (SP 値 =  $10.7 (\text{cal}/\text{cm}^3)^{0.5}$ ) を用い、バインダー樹脂 100 重量部に対して、有機発光材料 (b) として化合物 R-1 を 0.017 重量部、溶剤としてトルエンを 300 重量部混合した後、遊星式攪拌・脱泡装置 “マゼルスター KK-400” (クラボウ製) を用い、300 rpm で 20 分間攪拌・脱泡して (B) 層作製用の色変換組成物を得た。

[0423] 次に、スリットダイコーターを用いて (A) 層作製用の色変換組成物を、上記で得た積層フィルム上に塗布し、100℃で20分加熱、乾燥して平均膜厚  $16 \mu\text{m}$  の (A) 層を形成した。

[0424] 同様に、スリットダイコーターを用いて (B) 層作製用の色変換組成物を、基材層 B である光拡散フィルム “ケミカルマット” 125PW (株) きもと製、厚さ  $138 \mu\text{m}$  の PET 基材層側に塗布し、100℃で20分加熱、乾燥して平均膜厚  $48 \mu\text{m}$  の (B) 層を形成した。

[0425] 次に、上記 2 つのユニットを、(A) 層と (B) 層が直接積層するように加温ラミネートすることで、「積層フィルム / (A) 層 / (B) 層 / 基材層 / 光拡散層」という構成の色変換フィルムを作製した。

[0426] この積層部材ならびにそれを含む光源ユニットの評価結果を表 3 に示す。積層フィルムを用いない比較例 3 と比較すると輝度がわずかに向上した。一方、面内での色味や輝度の均一性がやや低いものであった。また、(u'、

v') 色空間における色域の面積は、B T. 2020規格の色域面積に対して95%であり優れた特性を示した。

[0427] (実施例10)

熱可塑性樹脂XからなるX層の層数を51層、熱可塑性樹脂YからなるY層の層数を50層とした以外は、実施例9と同様にして積層フィルム、色変換フィルムならびに積層部材を得た。

[0428] この積層部材ならびにそれを含む光源ユニットの評価結果を表3に示す。層数の少ない実施例9と比較すると顕著な輝度の向上が見られ、面内での色味や輝度の均一性も改善が見られた。また、色域面積は実施例9と同等であった。

[0429] (実施例11)

熱可塑性樹脂XからなるX層の層数を101層、熱可塑性樹脂YからなるY層の層数を100層とした以外は、実施例9と同様にして積層フィルム、色変換フィルムならびに積層部材を得た。

[0430] この積層部材ならびにそれを含む光源ユニットの評価結果を表3に示す。層数の少ない実施例10と比較すると顕著な輝度の向上が見られ、かつ色味や輝度の均一性にも優れるものであった。また、色域面積は実施例9と同等であった。

[0431] (実施例12)

熱可塑性樹脂XからなるX層の層数を301層、熱可塑性樹脂YからなるY層の層数を300層とした以外は、実施例9と同様にして積層フィルム、色変換フィルムならびに積層部材を得た。

[0432] この積層部材ならびにそれを含む光源ユニットの評価結果を表3に示す。顕著な輝度の向上が見られ、かつ色味や輝度の均一性にも優れるものであった。また、色域面積は実施例9と同等であった。

[0433] (実施例13)

易接着層をインラインコートにて設けないこと以外は、実施例12と同様にして積層フィルム、色変換フィルムならびに積層部材を得た。

[0434] この積層部材ならびにそれを含む光源ユニットの評価結果を表3に示す。比較例3に対比して高い輝度向上率を示すものの、実施例12よりも光源波長での反射率が高いことを反映して、わずかに輝度の低いものとなっていた。また、色域面積は実施例9と同等であった。

[0435] (実施例14)

スリットダイコーターを用いて実施例9と同様に作製した(A)層作製用の色変換組成物を、PETフィルム(“ルミラー”U48、厚さ50 $\mu$ m)上に塗布し、100℃で20分加熱、乾燥して平均膜厚16 $\mu$ mの(A)層を形成した。同様に、スリットダイコーターを用いて実施例9と同様に作製した(B)層作製用の色変換組成物を、基材層Bである光拡散フィルム“ケミカルマット”125PW((株)きもと製、厚さ138 $\mu$ m)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 $\mu$ mの(B)層を形成した。次に、上記2つのユニットを、(A)層と(B)層とが直接積層するように加温ラミネートすることで、「PETフィルム/(A)層/(B)層/基材層/光拡散層」という構成の色変換フィルムを作製した。積層フィルムと上記色変換フィルムとを貼り合わせることなく積層部材としないこと以外は、実施例13と同様に積層フィルムならびに色変換フィルムを得た。

[0436] 積層フィルム、色変換フィルムならびにそれらを含む光源ユニットの評価結果を表3に示す。比較例3に対比して高い輝度向上率を示すものの、実施例13よりも積層フィルムと色変換フィルムとを貼り合わせることなく用いたことを反映して、わずかに輝度の低いものとなっていた。また、色域面積は実施例9と同等であった。

[0437] (実施例15)

色変換フィルムの有機発光材料(a)として化合物G-2を用いた以外は、実施例12と同様にして積層フィルム、色変換フィルムならびに積層部材を得た。

[0438] この積層部材ならびにそれを含む光源ユニットの評価結果を表3に示す。

実施例 1 2 と同様に顕著な輝度の向上が見られ、かつ色味や輝度の均一性にも優れるものであった。また、色域面積は実施例 9 と同等であった。

[0439] (実施例 1 6)

色変換フィルムの有機発光材料 (b) として化合物 R-2 を用いた以外は、実施例 1 2 と同様にして積層フィルム、色変換フィルムならびに積層部材を得た。

[0440] この積層部材ならびにそれを含む光源ユニットの評価結果を表 3 に示す。実施例 1 2 と同様に顕著な輝度の向上が見られ、かつ色味や輝度の均一性にも優れるものであった。また、(u'、v') 色空間における色域の面積は、B T. 2 0 2 0 規格の色域面積に対して 9 6 % であり優れた特性を示した。

[0441] (実施例 1 7)

色変換フィルムの有機発光材料 (a) として化合物 G-3 を用いた以外は、実施例 1 2 と同様にして積層フィルム、色変換フィルムならびに積層部材を得た。

[0442] この積層部材ならびにそれを含む光源ユニットの評価結果を表 3 に示す。実施例 1 2 よりも光源波長での反射率が高いことを反映して、わずかに輝度が低く、色域面積は若干低い結果となった。

[0443] (実施例 1 8)

光拡散フィルムの代わりに P E T フィルム “ルミラー” U 4 8 (東レ (株) 製、厚さ 5 0  $\mu$  m) を用いたこと以外は、実施例 1 2 と同様にして積層フィルム、色変換フィルムならびに積層部材を作製した。

[0444] この積層部材ならびにそれを含む光源ユニットを、プリズムシートを用いずに評価した評価結果を表 3 に示す。輝度も積層フィルムを用いない比較例 3 と比較すると輝度がわずかに向上したものの、青味がかった白色光となり、色域面積も若干低い結果となった。

[0445] (実施例 1 9)

光源として、ピーク波長が 4 5 8 n m の青色 L E D を用いた以外は、実施

例 1 2 と同様にして積層フィルム、色変換フィルムならびに積層部材を得た。

[0446] この積層部材ならびにそれを含む光源ユニットの評価結果を表 3 に示す。実施例 1 2 よりもさらに顕著な輝度の向上が見られ、かつ色味や輝度の均一性にも優れるものであった。また、 $(u', v')$  色空間における色域の面積は、B T. 2 0 2 0 規格の色域面積に対して 9 6 % であり優れた特性を示した。

[0447] (比較例 3)

積層フィルムを用いない構成とした以外は実施例 9 と同様に色変換フィルムを用いて光源ユニットを形成した。

[0448] 光源ユニットの評価結果を表 3 に示すが、実施例 9 ~ 1 9 のいずれと比較しても低い輝度となっていた。

[0449] (比較例 4)

色変換フィルムとして、Kindle Fire HDX 7 にもともと搭載されていた無機材料からなる色変換フィルムを用いて、実施例 1 4 と同様に積層フィルムならびに色変換フィルムを得た。

[0450] 積層フィルム、色変換フィルムならびにそれらを含む光源ユニットの評価結果を表 3 に示す。実施例 1 4 に対比して輝度が低下しており、有機発光材料との組み合わせが優れることを示す結果となった。

[0451] (比較例 5)

色変換フィルムの発光材料として、 $Y_3Al_5O_{12}$  (YAG) および  $CaAlSiN_3$  (CASN) を用いた以外は、実施例 1 2 と同様に積層フィルムならびに色変換フィルムを得た。評価結果を表 3 に示す。実施例 1 2 に対比して色域の面積が低下しており、有機発光材料との組み合わせが優れることを示す結果となった。

[0452]

[表3]

|                               | 光源の極大発光波長<br>nm                             | 実施例9 | 実施例10 | 実施例11 | 実施例12 | 実施例13 | 実施例14 | 実施例15 | 実施例16 | 実施例17 | 実施例18 | 実施例19 | 比較例3 | 比較例4 | 比較例5 |
|-------------------------------|---------------------------------------------|------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|------|------|------|
|                               |                                             | 446  |       |       |       |       |       |       |       |       |       |       |      |      |      |
| 有機発光材料                        | (A)層                                        | G-1  |       |       |       |       |       |       |       |       |       |       |      |      |      |
|                               | (B)層                                        | R-1  |       |       |       |       |       |       |       |       |       |       |      |      |      |
| ピーク波長                         | Green                                       | 527  |       |       |       |       |       |       |       |       |       |       |      |      |      |
|                               | Red                                         | 641  |       |       |       |       |       |       |       |       |       |       |      |      |      |
| 半値幅                           | Green                                       | 27   |       |       |       |       |       |       |       |       |       |       |      |      |      |
|                               | Red                                         | 49   |       |       |       |       |       |       |       |       |       |       |      |      |      |
| 積層フィルム<br>反射率<br>@入射角度<br>10° | 光源からの光に対する<br>反射率                           | 9    | 9     | 9     | 9     | 12    | 12    | 12    | 12    | 12    | 12    | 12    | -    | 9    | 10   |
|                               | 光源から有機発光材料(a)<br>に入射されて波長が変換<br>された光に対する反射率 | 18   | 71    | 73    | 95    | 95    | 95    | 95    | 95    | 95    | 95    | 95    | -    | 95   | 94   |
|                               | 光源から有機発光材料(b)<br>に入射されて波長が変換<br>された光に対する反射率 | 9    | 9     | 72    | 96    | 95    | 95    | 95    | 95    | 95    | 95    | 95    | -    | 95   | 94   |
|                               | 光源から有機発光材料(a)<br>に入射されて波長が変換<br>された光に対する反射率 | 21   | 83    | 84    | 100   | 100   | 100   | 100   | 100   | 100   | 100   | 100   | -    | 100  | 100  |
| 積層フィルム<br>反射率<br>@入射角度<br>60° | 光源から有機発光材料(b)<br>に入射されて波長が変換<br>された光に対する反射率 | 11   | 11    | 83    | 100   | 100   | 100   | 100   | 100   | 100   | 100   | 100   | -    | 100  | 100  |
|                               | 相対輝度                                        | 101  | 103   | 105   | 108   | 107   | 105   | 108   | 108   | 107   | 101   | 112   | 100  | 95   | 107  |
|                               | X                                           | 0.25 | 0.25  | 0.25  | 0.25  | 0.25  | 0.25  | 0.25  | 0.25  | 0.25  | 0.22  | 0.25  | 0.25 | 0.25 | 0.25 |
|                               | Y                                           | 0.22 | 0.22  | 0.22  | 0.22  | 0.22  | 0.22  | 0.22  | 0.22  | 0.21  | 0.19  | 0.23  | 0.22 | 0.22 | 0.22 |
| 色域(u,v)の面積                    |                                             | 95%  | 95%   | 95%   | 95%   | 95%   | 95%   | 95%   | 96%   | 87%   | 88%   | 96%   | 95%  | 95%  | 75%  |

[0453] (実施例20)

以下に示す方法にて紫外線カット型の積層フィルムを得た。熱可塑性樹脂Xとして、融点が258℃のポリエチレンテレフタレート（PET）を用いた。また熱可塑性樹脂Yとして融点を持たない非晶性樹脂であるスピログリコール25mol%、シクロヘキサジカルボン酸30mol%共重合したエチレンテレフタレート（PE/SPG・T/CHDC）を用いた。また、熱可塑性樹脂Yには、紫外線吸収剤として分子量が650g/mol、吸収最大波長が346nmであるベンゾトリアゾール系の紫外線吸収剤（2, 2'-メチレンビス（4-（1, 1, 3, 3-テトラメチルブチル）-6-（2H-ベンゾトリアゾール-2-イル）フェノール）を20wt%となるように添加した。

[0454] 準備した熱可塑性樹脂Xと熱可塑性樹脂Yとをそれぞれ、2台の単軸押出機に投入し、280℃で熔融させて、混練した。次いで、それぞれFSSタイプのリーフディスクフィルタを5枚介した後、ギアポンプにて計量しながら、スリット数11個で最表層厚みがフィルム厚みの5%となるように設計された積層装置にて合流させて、厚み方向に交互に11層積層された積層体とした。積層体とする方法は、特開2007-307893号公報の段落[0053]～[0056]の記載に従って行った。ここでは、スリット長さ、間隔は全て一定とした。

[0455] 得られた積層体は、熱可塑性樹脂Xが6層、熱可塑性樹脂Yが5層であり、隣接する層の厚みの比が1：1となるように厚み方向に交互に積層された積層構造を有していた。口金内部での拡幅比である口金リップのフィルム幅方向長さを口金の流入口部でのフィルム幅方向の長さで割った値を2.5となるようにした。

[0456] 得られたキャストフィルムを、100℃に設定したロール群で加熱した後、延伸区間長100mmの間で、フィルム両面からラジエーションヒーターにより急速加熱しながら、フィルム長手方向に3.3倍延伸し、その後一旦冷却した。つづいて、この一軸延伸フィルムの両面に空气中でコロナ放電処理を施し、基材フィルムの濡れ張力を55mN/mとし、その処理面に（ガ

ラス転移温度が18℃のポリエステル樹脂)／(ガラス転移温度が82℃のポリエステル樹脂)／(平均粒径100nmのシリカ粒子)からなる積層形成膜塗液を塗布し、透明・易滑・易接着層を形成した。該易接着層の屈折率は1.57であった。

[0457] この一軸延伸フィルムをテンターに導き、900℃の熱風で予熱後、140℃の温度でフィルム幅方向に3.5倍延伸した。ここでの延伸速度と温度は一定とした。延伸したフィルムは、そのまま、テンター内で200℃の熱風にて熱処理を行い、続いて同温度条件で幅方向に3%の弛緩処理を施し、その後、巻き取り積層フィルムを30μmの厚みにて得た。

[0458] 得られた積層フィルムを光源、積層フィルム、色変換フィルムとなるように配置させて耐光性試験を実施した。評価結果を表4に示す。紫外線カット能の低い比較例6と比較して顕著な耐光性向上効果が確認された。

[0459] また、得られた積層フィルムを用いて色変換フィルムのラジカル測定を行った結果、ラジカルは検出されなかった。

[0460] (実施例21)

熱可塑性樹脂XからなるX層の層数を301層、熱可塑性樹脂YからなるY層の層数を300層とした以外は、実施例20と同様にして積層フィルムならびに色変換フィルムを得た。

[0461] 得られた積層フィルム、色変換フィルムを光源、積層フィルム、色変換フィルムとなるように配置させて耐光性試験を実施した。評価結果を表4に示す。耐光性向上効果は実施例20と同様であったが、実施例20ではわずかに見られた析出物が全く見られないものとなった。

[0462] また、得られた積層フィルムを用いて色変換フィルムのラジカル測定を行った結果、ラジカルは検出されなかった。

[0463] (実施例22)

分子量が700g/molで吸収最大波長が355nmであるトリアジン系紫外線吸収剤(2,4,6-トリス(2-ヒドロキシ-4-ヘキシルオキシ-3-メチルフェニル)-s-トリアジン)を、熱可塑性樹脂Y全体に対

して16wt%となるように添加した以外は、実施例21と同様にして積層フィルムならびに色変換フィルムを得た。

[0464] 得られた積層フィルム、色変換フィルムを光源、積層フィルム、色変換フィルムとなるように配置させて耐光性試験を実施した。評価結果を表4に示す。実施例21と比較してさらに長波長の紫外線までカットできることから優れた耐光性を示すものとなっていた。

[0465] また、得られた積層フィルムを用いて色変換フィルムのラジカル測定を行った結果、ラジカルは検出されなかった。

[0466] (実施例23)

分子量が700g/molで吸収最大波長が355nmであるトリアジン系紫外線吸収剤(2,4,6-トリス(2-ヒドロキシ-4-ヘキシルオキシ-3-メチルフェニル)-s-トリアジン)を、熱可塑性樹脂Y全体に対して3wt%となるように添加した以外は、実施例21と同様にして積層フィルムならびに色変換フィルムを得た。

[0467] 得られた積層フィルムは、吸収最大波長が393nmであるインドール系色素を活性エネルギー線硬化型アクリル樹脂(アイカ工業(株)製 アイカアイトロンZ-850[屈折率:1.518])に、硬化性樹脂からなる層を構成する樹脂組成物全体に対して3wt%となるように添加してハードコート剤を作成し、バーコーターを用いて均一に塗布した。ハードコート剤の固形分濃度は全体で30wt%となるようにメチルエチルケトン溶媒を加えることで適宜調整した。作成したハードコート剤をワイヤーバーで塗布後、80℃で保たれたオーブン内で1~2分間乾燥してメチルエチルケトン溶媒を揮発させ、次いで、硬化性樹脂層の表面から13cmの高さにセットした120W/cm<sup>2</sup>の照射強度を有する集光型高圧水銀灯(アイグラフィックス(株)製 H04-L41)で、積算照射強度が180mJ/cm<sup>2</sup>となるように紫外線を照射し、硬化させ、積層フィルム上にハードコート層が塗膜厚み2μmで積層された積層フィルムを得た。

[0468] 得られた積層フィルム、色変換フィルムを光源、積層フィルム、色変換フ

ィルムとなるように配置させて耐光性試験を実施した。評価結果を表4に示す。実施例21と比較してさらに長波長の紫外線までカットできることから優れた耐光性を示すものとなっていた。

[0469] また、得られた積層フィルムを用いて色変換フィルムのラジカル測定を行った結果、ラジカルは検出されなかった。

[0470] (実施例24)

実施例23において、2,4-ビス(2-ヒドロキシ-4-ブトキシフェニル)-6-(2,4-ジブトキシフェニル)-s-トリアジンを硬化性樹脂からなる層に3wt%添加し、吸収最大波長が378nmのアゾメチン系色素を熱可塑性樹脂Y内に3wt%添加した以外は、実施例23と同様にして積層フィルムを得た。

[0471] 得られた積層フィルム、色変換フィルムを光源、積層フィルム、色変換フィルムとなるように配置させて耐光性試験を実施した。評価結果を表4に示す。実施例21と比較してさらに長波長の紫外線までカットできることから優れた耐光性を示すものとなっていた。

[0472] また、得られた積層フィルムを用いて色変換フィルムのラジカル測定を行った結果、ラジカルは検出されなかった。

[0473] (実施例25)

実施例23において、熱可塑性樹脂Yにトリアジン系紫外線吸収剤(2,4,6-トリス(2-ヒドロキシ-4-ヘキシルオキシ-3-メチルフェニル)-s-トリアジン)(熱可塑性樹脂Y全体に対して1wt%)とベンゾトリアゾール系の紫外線吸収剤(2,2'-メチレンビス(4-(1,1,3,3-テトラメチルブチル)-6-(2H-ベンゾトリアゾール-2-イル)フェノール)(熱可塑性樹脂Y全体に対して1wt%)を、硬化性樹脂にインドール系可視光線吸収色素(硬化性樹脂全体に対して1wt%)と吸収最大波長が384nmのアントラキノン系可視光線吸収色素(硬化性樹脂全体に対して7wt%)を添加した以外は、実施例23と同様に積層フィルムを得た。

[0474] 得られた積層フィルム、色変換フィルムを光源、積層フィルム、色変換フィルムとなるように配置させて耐光性試験を実施した。評価結果を表4に示す。実施例21と比較してさらに長波長の紫外線までカットできることから優れた耐光性を示すものとなっていた。

[0475] また、得られた積層フィルムを用いて色変換フィルムのラジカル測定を行った結果、ラジカルは検出されなかった。

[0476] (実施例26)

フィルム厚みを65  $\mu\text{m}$ とし、トリアジン系紫外線吸収剤の熱可塑性樹脂Yへの添加量を6 wt %とした以外は、実施例22と同様に積層フィルムを得た。

[0477] 得られた積層フィルム、色変換フィルムを光源、積層フィルム、色変換フィルムとなるように配置させて耐光性試験を実施した。評価結果を表4に示す。積層フィルムは紫外線領域以外にも波長490～810 nmに反射を示すものとなっていた。また、その効果を反映して実施例22と比較して同等の耐光性を示しつつも輝度が14%高いものとなっており液晶ディスプレイとして使用するのにさらに好ましいものとなっていた。

[0478] また、得られた積層フィルムを用いて色変換フィルムのラジカル測定を行った結果、ラジカルは検出されなかった。

[0479] (実施例27)

隣接する層厚みの比を1.5とし、かつトリアジン系紫外線吸収剤の熱可塑性樹脂Yへの添加量を4 wt %とした以外は、実施例22と同様に積層フィルムを得た。

[0480] 得られた積層フィルム、色変換フィルムを光源、積層フィルム、色変換フィルムとなるように配置させて耐光性試験を実施した。評価結果を表4に示す。積層フィルムは紫外線領域以外にも波長490～810 nmに反射を示すものとなっていた。また、隣接する層厚みの比を1.5としたことを反映して紫外線領域にも反射が生じており、そのため紫外線吸収剤の添加量を少なくしても実施例26とほぼ同様の結果を得た。また、実施例26同様、実

施例 2 2 と比較して同等の耐光性を示しつつも輝度が 1 4 % 高いものとなっており液晶ディスプレイとして使用するのにさらに好ましいものとなっていた。

[0481] また、得られた積層フィルムを用いて色変換フィルムのラジカル測定を行った結果、ラジカルは検出されなかった。

[0482] (実施例 2 8)

フィルム厚みを 6 5  $\mu\text{m}$  とし、熱可塑性樹脂 Y にトリアジン系紫外線吸収剤 (2, 4, 6 - トリス (2 - ヒドロキシ - 4 - ヘキシルオキシ - 3 - メチルフェニル) - s - トリアジン) (熱可塑性樹脂 Y 全体に対して 0. 4 w t %) とベンゾトリアゾール系の紫外線吸収剤 (2, 2' - メチレンビス (4 - (1, 1, 3, 3 - テトラメチルブチル) - 6 - (2 H - ベンゾトリアゾール - 2 - イル) フェノール) (熱可塑性樹脂 Y 全体に対して 0. 4 w t %) を添加した以外は、実施例 2 5 と同様に積層フィルムを得た。

[0483] 得られた積層フィルム、色変換フィルムを光源、積層フィルム、色変換フィルムとなるように配置させて耐光性試験を実施した。評価結果を表 4 に示すが、積層フィルムは紫外線領域以外にも波長 4 9 0 ~ 8 1 0 n m に反射を示すものとなっていた。また、その効果を反映して実施例 2 2 と比較して同等の耐光性を示しつつも輝度が 1 4 % 高いものとなっており液晶ディスプレイとして使用するのにさらに好ましいものとなっていた。

[0484] また、得られた積層フィルムを用いて色変換フィルムのラジカル測定を行った結果、ラジカルは検出されなかった。

[0485]

[表4]

|                       |                              |                              |  | 実施例20 | 実施例21 | 実施例22 | 実施例23 | 実施例24 | 実施例25 | 実施例26 | 実施例27 | 実施例28 |
|-----------------------|------------------------------|------------------------------|--|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
| 電子スピン<br>共鳴装置<br>測定結果 | A層                           | ラジカル帰属                       |  | 非検出   | 非検出   | 非検出   | 非検出   | 非検出   | 非検出   | 非検出   | 非検出   | 非検出   |
|                       |                              | g値                           |  | -     | -     | -     | -     | -     | -     | -     | -     | -     |
|                       |                              | ラジカル定量値<br>個/cm <sup>2</sup> |  | -     | -     | -     | -     | -     | -     | -     | -     | -     |
|                       | B層                           | ラジカル帰属                       |  | 非検出   | 非検出   | 非検出   | 非検出   | 非検出   | 非検出   | 非検出   | 非検出   | 非検出   |
|                       |                              | g値                           |  | -     | -     | -     | -     | -     | -     | -     | -     | -     |
| 積層フィルム                | ラジカル定量値<br>個/cm <sup>2</sup> |                              |  | -     | -     | -     | -     | -     | -     | -     | -     | -     |
|                       | 発光帯域での平均透過率<br>%             |                              |  | 90    | 90    | 90    | 90    | 85    | 88    | 90    | 90    | 90    |
|                       | 出光帯域での最大反射率<br>%             |                              |  | 10    | 10    | 10    | 10    | 10    | 10    | 97    | 97    | 97    |
|                       | 出光帯域での平均反射率<br>%             |                              |  | 10    | 10    | 10    | 10    | 10    | 10    | 96    | 96    | 96    |
|                       | 最大<br>透過率                    | 波長300～380nm                  |  | 0     | 0     | 0     | 3     | 0     | 3     | 0     | 0     | 3     |
|                       |                              | 波長380～410nm                  |  | 74    | 74    | 10    | 4     | 4     | 2     | 9     | 8     | 2     |
|                       | 最大<br>反射率                    | 波長300～380nm                  |  | 9     | 90    | 81    | 73    | 74    | 65    | 51    | 48    | 53    |
| 耐光性試験                 |                              |                              |  | ○     | ○     | ◎     | ◎     | ◎     | ◎     | ◎     | ◎     | ◎     |

## [0486] (実施例 29)

実施例 22 と同様にして得られた積層フィルムを第 1 の積層フィルムとした。また、フィルム厚みを  $65\ \mu\text{m}$  とし紫外線吸収剤を用いず実施例 22 と同様にして得た積層フィルムを第 2 の積層フィルムとした。

[0487] 得られた第 1 および第 2 積層フィルム、色変換フィルムを光源、第 1 の積層フィルム、第 2 の積層フィルム、色変換フィルムとなるように配置させて耐光性試験を実施した。評価結果を表 5 に示す。第 2 の積層フィルムは波長  $490\sim 810\ \text{nm}$  に反射を示すものとなっており、実施例 26 と同様に実施例 22 と比較して同等の耐光性を示しつつも輝度が 13% 高いものとなっており液晶ディスプレイとして使用するのにさらに好ましいものとなっていた。

## [0488] (実施例 30)

フィルム厚みを  $65\ \mu\text{m}$  とし紫外線吸収剤を用いず実施例 22 と同様にして得た積層フィルムを第 1 の積層フィルムとした。また、実施例 22 と同様に得た積層フィルムを第 2 の積層フィルムとした。

[0489] 得られた第 1 および第 2 積層フィルム、色変換フィルムを光源、第 1 の積層フィルム、色変換フィルム、第 2 の積層フィルムとなるように配置させて耐光性試験を実施した。評価結果を表 5 に示す。第 1 の積層フィルムは波長  $490\sim 810\ \text{nm}$  に反射を示すものとなっており、実施例 26 と同様に実施例 22 と比較して同等の耐光性を示しつつも輝度が 13% 高いものとなっており液晶ディスプレイとして使用するのにさらに好ましいものとなっていた。一方、比較例 6 と比較すると優れた耐光性を示すものの、光源からの紫外線のカット機能を備えないため、若干耐光性が低下する傾向が見られた。

## [0490] (実施例 31)

実施例 30 にて得られた第 1 および第 2 積層フィルム、色変換フィルムを光源、第 1 の積層フィルム、色変換フィルム、第 2 の積層フィルムとなるように配置させ、特に第 2 の積層フィルムを液晶ディスプレイの外側に粘着フィルムを介して貼り付けて耐光性試験を実施した。評価結果を表 5 に示す。

実施例 30 とほぼ同様の輝度向上性能と耐光性を示すものであった。

[0491] (実施例 32)

色変換フィルムを製造する際に、PETフィルムに代わり実施例 26 で得られた積層フィルムを用いて色変換フィルムを得た。

[0492] 得られた積層フィルムを含む色変換フィルムを光源、積層フィルム、色変換フィルムとなるように配置させて耐光性試験を実施した。評価結果を表 5 に示す。積層フィルムは紫外線領域以外にも波長 490～810 nm に反射を示すものとなっていた。また、その効果を反映して実施例 22 と比較して同等の耐光性を示しつつも輝度が 15% 高いものとなっており液晶ディスプレイとして使用するのにさらに好ましいものとなっていた。

[0493] (実施例 33)

色変換フィルムを製造する際に、PETフィルムに代わり実施例 15 で得られた積層フィルム（第 1 の積層フィルム）を用いて色変換フィルムを得、さらに実施例 22 で得られた積層フィルム（第 2 の積層フィルム）を粘着フィルムを介して貼り合わせた。

[0494] 得られた第 1 および第 2 積層フィルムを含む色変換フィルムを光源、第 1 の積層フィルム、色変換フィルム、第 2 の積層フィルムとなるように配置させて耐光性試験を実施した。評価結果を表 5 に示す。第 1 の積層フィルムは波長 490～810 nm に反射を示すものとなっており、実施例 26 と同様に実施例 22 と比較して同等の耐光性を示しつつも輝度が 15% 高いものとなっており液晶ディスプレイとして使用するのにさらに好ましいものとなっていた。また、光源、外光のいずれの紫外線についても 410 nm までカットされることから優れた耐光性を示すものとなっていた。

[0495] (比較例 6)

積層フィルムを用いない構成とした以外は実施例 20 と同様に色変換フィルムを用いて光源ユニットを形成し耐光性試験を実施した。評価結果を表 5 に示す。耐光性が著しく低く、実使用には適さないものであった。

[0496] また、得られた積層フィルムを用いて色変換フィルムのラジカル測定を行

った結果、色変換フィルムのA層由来の炭素ラジカル、およびB層由来の過酸化ラジカルが検出され、いずれの層からも有機発光材料の劣化の起因となるものが検出された。

[0497] (比較例7)

積層フィルムの代わりに、ポリエチレンテレフタレート(PET)にベンゾトリアゾール系の紫外線吸収剤を10wt%添加し、1層のフィルムとして実施例20と同様に厚みが30 $\mu$ mの単層フィルムを得た。

[0498] 評価結果を表5に示す。得られた積層フィルムを用いて色変換フィルムのラジカル測定を行った結果、ラジカルは検出されなかった。

[0499] しかしながら、得られた単層フィルム、色変換フィルムを光源、単層フィルム、色変換フィルムとなるように配置させて耐光性試験を実施したところ、耐光性試験時の表面への析出物が非常に多く、実使用に適さないものであった。

[0500]

[表5]

|                       |                               | 実施例29 | 実施例30 | 実施例31 | 実施例32 | 実施例33 | 比較例6                   | 比較例7 |
|-----------------------|-------------------------------|-------|-------|-------|-------|-------|------------------------|------|
| 電子スピン<br>共鳴装置<br>測定結果 | ラジカル帰属                        | -     | -     | -     | -     | -     | 炭素ラジカル                 | 非検出  |
|                       | g値                            | -     | -     | -     | -     | -     | 2.0021                 | -    |
|                       | ラジカル定量値<br>個/cm <sup>2</sup>  | -     | -     | -     | -     | -     | 5.5 × 10 <sup>13</sup> | -    |
|                       | ラジカル帰属                        | -     | -     | -     | -     | -     | 過酸化ラジカル                | 非検出  |
|                       | g値                            | -     | -     | -     | -     | -     | 2.034、2.0055           | -    |
|                       | ラジカル定量値<br>個/cm <sup>2</sup>  | -     | -     | -     | -     | -     | 1.4 × 10 <sup>14</sup> | -    |
| 第1の<br>積層フィルム         | 発光帯域での平均透過率<br>%              | 90    | 91    | 91    | 90    | 90    | -                      | 90   |
|                       | 出光帯域での最大反射率<br>%              | 10    | 97    | 97    | 97    | 97    | -                      | 10   |
|                       | 出光帯域での平均反射率<br>%              | 10    | 96    | 96    | 96    | 96    | -                      | 10   |
|                       | 最大<br>透過率<br>波長300～380nm<br>% | 0     | 73    | 73    | 3     | 3     | -                      | 0    |
|                       | 最大<br>透過率<br>波長380～410nm<br>% | 10    | 81    | 81    | 2     | 2     | -                      | 74   |
|                       | 最大<br>反射率<br>波長300～380nm<br>% | 81    | 63    | 63    | 53    | 53    | -                      | 9    |
| 第2の<br>積層フィルム         | 発光帯域での平均透過率<br>%              | 91    | 90    | 90    | -     | 90    | -                      | -    |
|                       | 出光帯域での最大反射率<br>%              | 97    | 10    | 10    | -     | 10    | -                      | -    |
|                       | 出光帯域での平均反射率<br>%              | 96    | 10    | 10    | -     | 10    | -                      | -    |
|                       | 最大<br>透過率<br>波長300～380nm<br>% | 73    | 0     | 0     | -     | 0     | -                      | -    |
|                       | 最大<br>透過率<br>波長380～410nm<br>% | 81    | 10    | 10    | -     | 10    | -                      | -    |
|                       | 最大<br>反射率<br>波長300～380nm<br>% | 63    | 81    | 81    | -     | 81    | -                      | -    |
| 耐光性試験                 |                               | ◎     | ○     | ○     | ◎     | ◎     | ×                      | ×    |

## 産業上の利用可能性

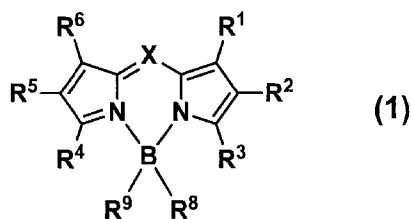
[0501] 以上のように、本発明に係る光源ユニットおよび積層部材は、色再現性に優れつつ低消費電力であるため、ディスプレイおよび照明装置に好適に用いられる。

## 符号の説明

- [0502]
- 1 光源ユニット
  - 2 光源
  - 3 積層フィルム
  - 4 色変換フィルム
  - 5 積層部材
  - 6 導光板
  - 3 1 凹凸形状の例
  - 3 2 凹凸形状の例
  - 3 3 機能層
  - 4 1 基材層
  - 4 2 色変換層
  - 4 3 バリアフィルム

## 請求の範囲

- [請求項1] 光源と、  
前記光源から入射された入射光を前記入射光よりも長波長の光に変換する有機発光材料を含む色変換フィルムと、  
異なる複数の熱可塑性樹脂が交互に11層以上積層されてなる積層フィルムと、  
を含むことを特徴とする光源ユニット。
- [請求項2] 前記積層フィルムは、前記有機発光材料によって前記入射光よりも長波長に変換された光の、入射角度60°における反射率が70%以上である積層フィルムであることを特徴とする請求項1に記載の光源ユニット。
- [請求項3] 前記積層フィルムは、前記光源から前記積層フィルムに入射される入射光の、入射角度10°における反射率が20%以下である積層フィルムであることを特徴とする請求項1または2に記載の光源ユニット。
- [請求項4] 前記有機発光材料が、ピロメテン誘導体を含むことを特徴とする請求項1～3のいずれか1項に記載の光源ユニット。
- [請求項5] 前記有機発光材料が一般式(1)で表される化合物を含有することを特徴とする請求項1～4のいずれか1項に記載の光源ユニット。
- [化1]

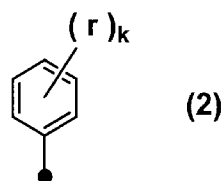


(XはC-R<sup>7</sup>またはNである。R<sup>1</sup>～R<sup>9</sup>はそれぞれ同じでも異なってもよく、水素、アルキル基、シクロアルキル基、複素環基、アルケニル基、シクロアルケニル基、アルキニル基、水酸基、チオール基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリールエーテル基、アリー

ルチオエーテル基、アリール基、ヘテロアリール基、ハロゲン、シアノ基、アルデヒド基、カルボニル基、カルボキシ基、オキシカルボニル基、カルバモイル基、アミノ基、ニトロ基、シリル基、シロキサニル基、ボリル基、ホスフィンオキシド基、および隣接置換基との間に形成される縮合環および脂肪族環の中から選ばれる。)

[請求項6] 一般式(1)において、XがC-R<sup>7</sup>であり、R<sup>7</sup>が一般式(2)で表される基であることを特徴とする請求項5に記載の光源ユニット。

[化2]



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

[請求項7] 一般式(1)において、R<sup>1</sup>、R<sup>3</sup>、R<sup>4</sup>およびR<sup>6</sup>が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フェニル基であることを特徴とする請求項5または6に記載の光源ユニット。

[請求項8] 一般式(1)において、R<sup>1</sup>、R<sup>3</sup>、R<sup>4</sup>およびR<sup>6</sup>が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ことを特徴とする請求項5または6に記載の光源ユニット。

[請求項9] 前記有機発光材料のピーク波長が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1～8のいずれか1項に記載の光源ユニット。

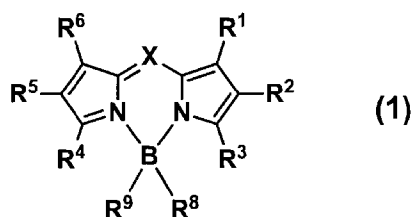
[請求項10] 前記有機発光材料が以下の有機発光材料(a)および(b)を含有することを特徴とする請求項1～9のいずれか1項に記載の光源ユニット。

(a) 光源から入射された入射光により励起されることにより、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有機発光材料

(b) 光源から入射された入射光もしくは有機発光材料(a)からの発光の少なくとも一方により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有機発光材料

[請求項11] 前記有機発光材料(a)もしくは(b)のいずれか一方または両方が一般式(1)で表される化合物であることを特徴とする請求項10に記載の光源ユニット。

[化3]



(XはC-R<sup>7</sup>またはNである。R<sup>1</sup>～R<sup>9</sup>はそれぞれ同じでも異なってもよく、水素、アルキル基、シクロアルキル基、複素環基、アルケニル基、シクロアルケニル基、アルキニル基、水酸基、チオール基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリールエーテル基、アリールチオエーテル基、アリール基、ヘテロアリール基、ハロゲン、シアノ基、アルデヒド基、カルボニル基、カルボキシ基、オキシカルボニル基、カルバモイル基、アミノ基、ニトロ基、シリル基、シロキサ

ニル基、ボリル基、ホスフィンオキシド基、および隣接置換基との間に形成される縮合環および脂肪族環の中から選ばれる。)

[請求項12] 前記色変換フィルムが少なくとも以下の(A)層および(B)層を含む積層体であることを特徴とする請求項1～11のいずれか1項に記載の光源ユニット。

(A) 光源から入射された入射光により励起されることにより、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有機発光材料(a)を含有する層

(B) 光源から入射された入射光もしくは有機発光材料(a)からの発光の少なくとも一方により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有機発光材料(b)を含有する層

[請求項13] 前記色変換フィルムと前記積層フィルムとを含む積層体を有することを特徴とする請求項1～12のいずれか1項に記載の光源ユニット。

[請求項14] 前記色変換フィルムのいずれか一方または両方の面に光拡散フィルムが積層されてなることを特徴とする請求項1～13のいずれか1項に記載の光源ユニット。

[請求項15] 前記色変換フィルムの光出射面に、プリズムシートが設けられてなることを特徴とする請求項1～14のいずれか1項に記載の光源ユニット。

[請求項16] 前記色変換フィルムまたは前記積層フィルムの表面に機能層が設けられてなり、前記積層フィルムの屈折率を $n_1$ 、前記色変換フィルムの屈折率を $n_2$ としたとき、前記機能層の屈折率 $n_3$ が $n_1$ と $n_2$ の間となることを特徴とする請求項1～15のいずれか1項に記載の光源ユニット。

[請求項17] 前記積層フィルムまたは前記色変換フィルムの表面が凹凸形状を有することを特徴とする請求項1～16のいずれか1項に記載の光源ユ

ニット。

- [請求項18] 前記凹凸形状がレンズ形状、略三角形形状、または略半円形状であることを特徴とする請求項17に記載の光源ユニット。
- [請求項19] 前記積層フィルムまたは色変換フィルムが、前記光源から前記積層フィルムまたは色変換フィルムに入射される入射光の入射角度と出射光の出射角度との差が $5^{\circ}$ 以上であることを特徴とする請求項1～18のいずれか1項に記載の光源ユニット。
- [請求項20] 前記積層フィルムが、入射角度 $10^{\circ}$ において波長300nm以上410nm以下の光の反射率が20%以上、または入射角度 $10^{\circ}$ において300nm以上410nm以下の光の吸収率が10%以上であることを特徴とする請求項3に記載の光源ユニット。
- [請求項21] 前記積層フィルムが紫外線吸収剤を含むことを特徴とする請求項3または20に記載の光源ユニット。
- [請求項22] 前記積層フィルムの少なくとも片面に紫外線吸収剤を含む樹脂層を含むことを特徴とする請求項3、20または21に記載の光源ユニット。
- [請求項23] 前記紫外線吸収剤が、アントラキノン、アゾメチン、インドール、トリアジン、ナフタルイミド、フタロシアニンのいずれかの骨格を有する紫外線吸収剤を含むことを特徴とする請求項21または22に記載の光源ユニット。
- [請求項24] 前記積層フィルムが、前記光源と前記色変換フィルムの間に設けられてなることを特徴とする請求項1～23のいずれか1項に記載の光源ユニット。
- [請求項25] 前記光源が400nm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請求項1～24のいずれか1項に記載の光源ユニット。
- [請求項26] 前記光源が430nm以上470nm以下の範囲に極大発光を有し、かつ発光波長領域が400nm以上500nm以下の範囲を有する

発光ダイオードであって、光源の発光スペクトルが、数式（３）を満たすことを特徴とする請求項２５に記載の光源ユニット。

[数1]

$$1 > \beta / \alpha \geq 0.15 \quad (3)$$

（ $\alpha$ 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り、 $\beta$ は発光波長ピーク＋１５ｎｍの波長における発光強度である。）

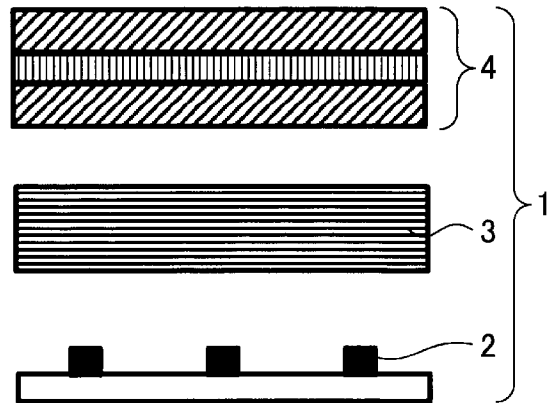
[請求項27] 前記光源が４５５ｎｍ以上４６５ｎｍ以下の範囲に極大発光を有することを特徴とする請求項２６に記載の光源ユニット。

[請求項28] 入射光を前記入射光よりも長波長の光に変換する有機発光材料を含む色変換フィルムと、異なる複数の熱可塑性樹脂が交互に１１層以上積層されてなる積層フィルムとを含むことを特徴とする積層部材。

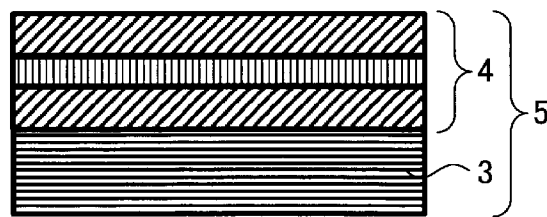
[請求項29] 請求項１～２７のいずれか１項に記載の光源ユニットを備えることを特徴とするディスプレイ。

[請求項30] 請求項１～２７のいずれか１項に記載の光源ユニットを備えることを特徴とする照明装置。

[図1]



[図2]



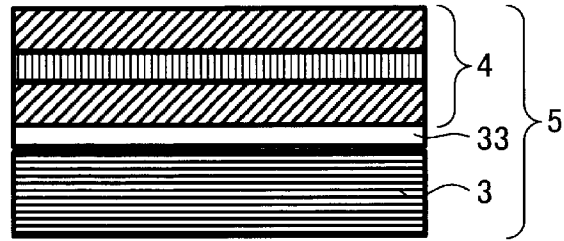
[図3]



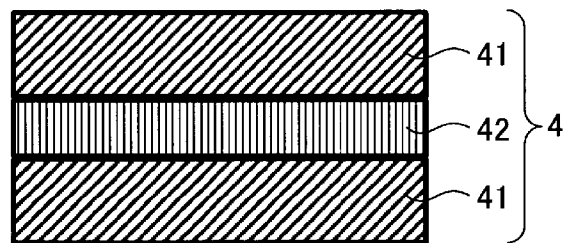
[図4]



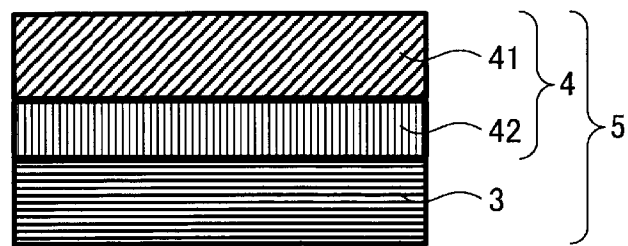
[図5]



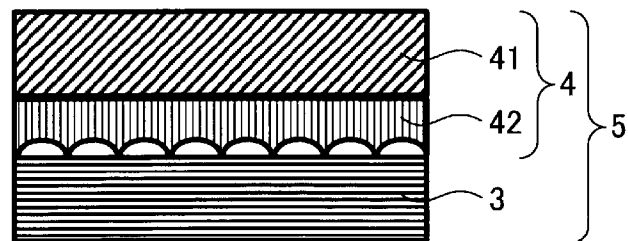
[図6]



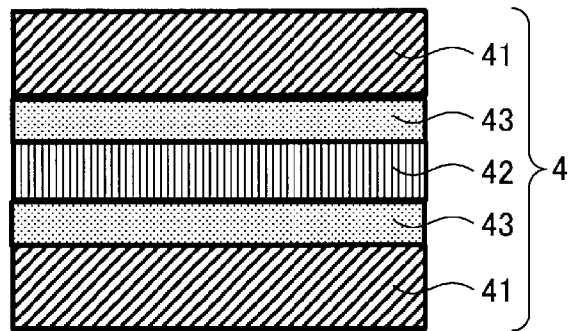
[図7]



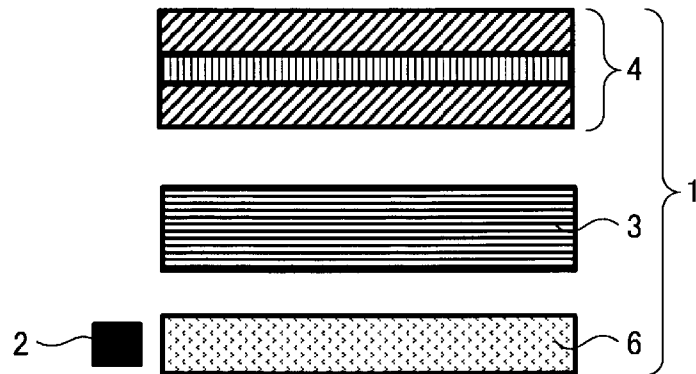
[図8]



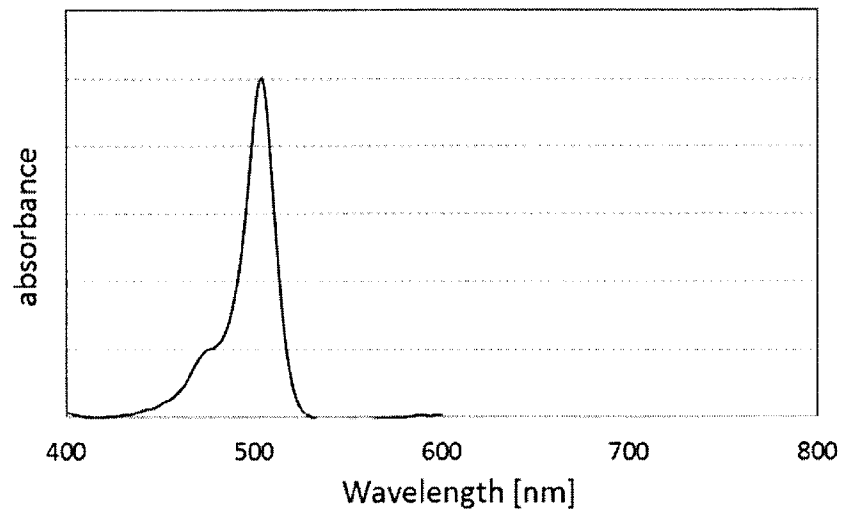
[図9]



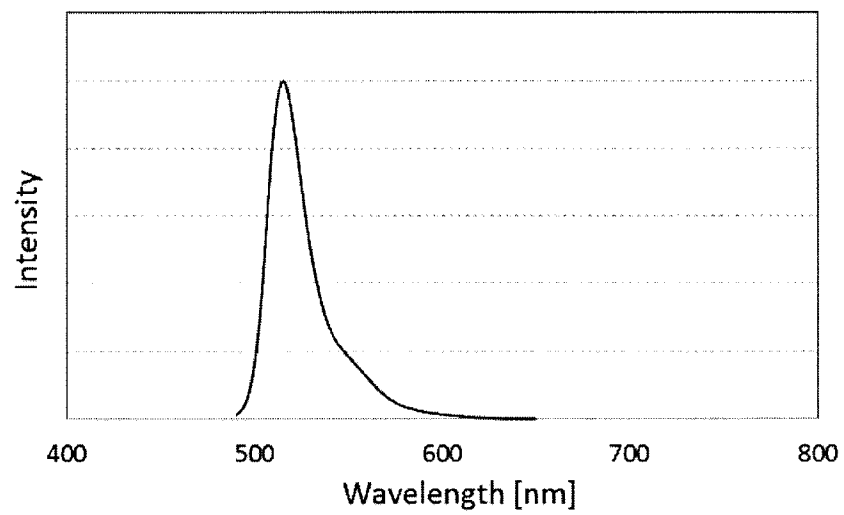
[図10]



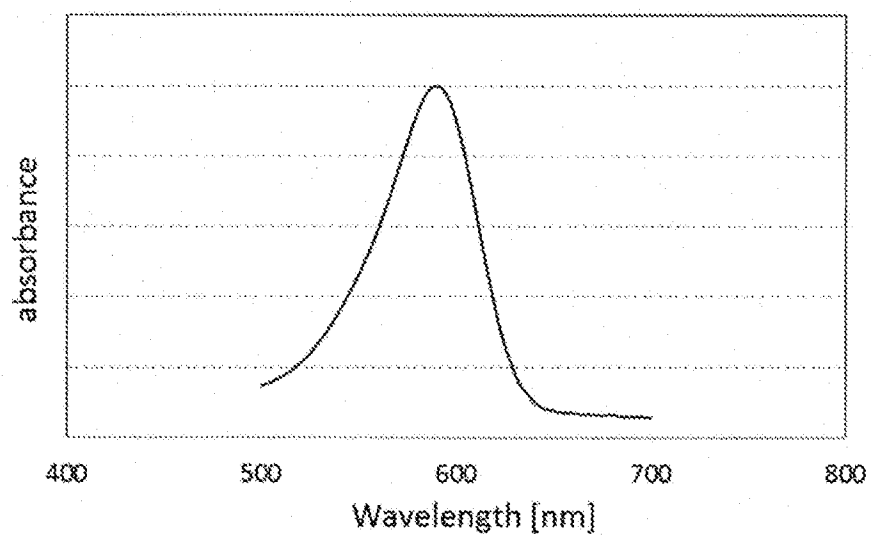
[図11]



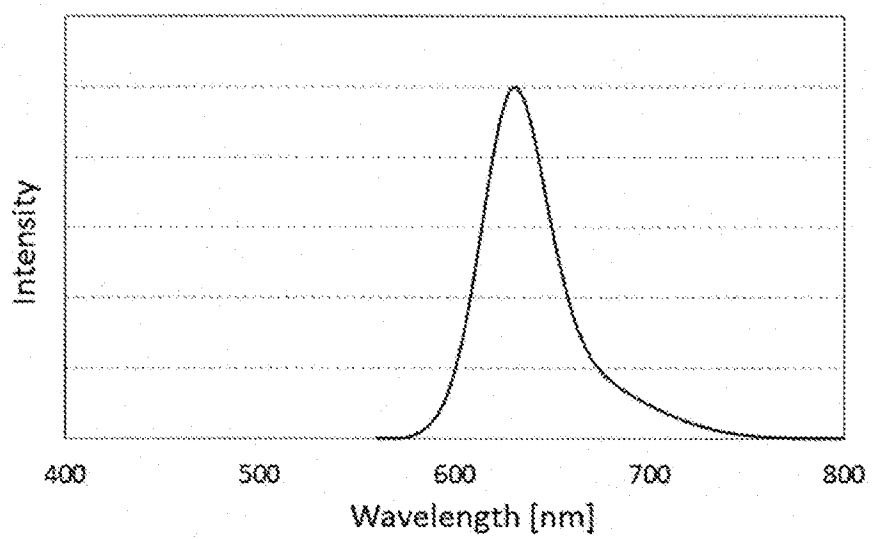
[図12]



[図13]



[図14]



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/011153

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

G02B5/20(2006.01)i, F21S2/00(2016.01)i, G02F1/13357(2006.01)i, G09F9/00(2006.01)i, H01L33/50(2010.01)i

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

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

G02B5/20, F21S2/00, G02F1/13357, G09F9/00, H01L33/50

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

|                           |           |                            |           |
|---------------------------|-----------|----------------------------|-----------|
| Jitsuyo Shinan Koho       | 1922-1996 | Jitsuyo Shinan Toroku Koho | 1996-2017 |
| Kokai Jitsuyo Shinan Koho | 1971-2017 | Toroku Jitsuyo Shinan Koho | 1994-2017 |

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

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages                                                                                                                                                                                                | Relevant to claim No.                                                       |
|-----------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------|
| X         | JP 2014-067580 A (Sharp Corp.),<br>17 April 2014 (17.04.2014),<br>paragraphs [0053] to [0059], [0093] to [0108];<br>fig. 13 to 15, 32<br>(Family: none)                                                                                                                           | 1, 3, 9-10, 13,<br>19-20, 24-30<br>4-8, 11, 14-15<br>2, 12, 16-18,<br>21-23 |
| Y         | JP 2009-140822 A (Sony Corp.),<br>25 June 2009 (25.06.2009),<br>paragraphs [0035] to [0069], [0080]; fig. 1 to<br>3<br>& US 2009/0147497 A1<br>paragraphs [0059] to [0092], [0101]; fig. 1 to<br>3<br>& EP 2068193 A2 & CN 101451673 A<br>& KR 10-2009-0060149 A & TW 200940905 A | 1-15, 17-19,<br>24-30<br>16, 20-23                                          |

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

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

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

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

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

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

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

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

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

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
07 June 2017 (07.06.17)

Date of mailing of the international search report  
20 June 2017 (20.06.17)

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

Authorized officer

Telephone No.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2017/011153

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages                                                                                                                                                                   | Relevant to claim No. |
|-----------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|
| Y         | JP 2010-061824 A (Toray Industries, Inc.),<br>18 March 2010 (18.03.2010),<br>paragraphs [0033] to [0040], [0074]<br>(Family: none)                                                                                                                   | 1-15, 17-19,<br>24-30 |
| Y         | JP 2011-241160 A (Yamamoto Chemicals, Inc.),<br>01 December 2011 (01.12.2011),<br>paragraphs [0042] to [0058], [0073]<br>(Family: none)                                                                                                              | 1-15, 17-19,<br>24-30 |
| Y         | JP 2016-027613 A (Nippon Electric Glass Co.,<br>Ltd.),<br>18 February 2016 (18.02.2016),<br>paragraph [0070]; fig. 7<br>& US 2017/0137706 A1<br>paragraph [0084]; fig. 7<br>& EP 3147955 A1 & WO 2015/178223 A1<br>& TW 201608005 A & CN 106030835 A | 14-15                 |
| Y         | JP 2011-118187 A (Citizen Holdings Co., Ltd.),<br>16 June 2011 (16.06.2011),<br>paragraph [0032]<br>(Family: none)                                                                                                                                   | 14-15                 |
| A         | JP 2012-009242 A (Seiko Epson Corp.),<br>12 January 2012 (12.01.2012),<br>paragraphs [0021] to [0037]; fig. 6<br>(Family: none)                                                                                                                      | 1-30                  |
| A         | JP 2015-065142 A (Toshiba Lighting &<br>Technology Corp.),<br>09 April 2015 (09.04.2015),<br>paragraphs [0058] to [0065]; fig. 18<br>(Family: none)                                                                                                  | 1-30                  |
| A         | US 2016/0069538 A1 (DELTA ELECTRONICS, INC.),<br>10 March 2016 (10.03.2016),<br>entire text; all drawings<br>& JP 2016-058378 A & EP 2993709 A1<br>& CN 105841097 A & TW 201610364 A                                                                 | 1-30                  |

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. G02B5/20(2006.01)i, F21S2/00(2016.01)i, G02F1/13357(2006.01)i, G09F9/00(2006.01)i, H01L33/50(2010.01)i

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. G02B5/20, F21S2/00, G02F1/13357, G09F9/00, H01L33/50

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

|             |            |
|-------------|------------|
| 日本国実用新案公報   | 1922-1996年 |
| 日本国公開実用新案公報 | 1971-2017年 |
| 日本国実用新案登録公報 | 1996-2017年 |
| 日本国登録実用新案公報 | 1994-2017年 |

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

| 引用文献の<br>カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示                                                                                | 関連する<br>請求項の番号                  |
|-----------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|---------------------------------|
| X               | JP 2014-067580 A (シャープ株式会社)<br>2014.04.17, 段落 [0053]-[0059], [0093]-[0108], 図 13-15, 32                          | 1, 3, 9-10, 13,<br>19-20, 24-30 |
| Y               | (ファミリーなし)                                                                                                        | 4-8, 11, 14-15                  |
| A               |                                                                                                                  | 2, 12, 16-18,<br>21-23          |
| Y               | JP 2009-140822 A (ソニー株式会社)<br>2009.06.25, 段落 [0035]-[0069], [0080], 図 1-3                                        | 1-15, 17-19,<br>24-30           |
| A               | & US 2009/0147497 A1, 段落 [0059]-[0092], [0101], 図 1-3<br>& EP 2068193 A2 & CN 101451673 A & KR 10-2009-0060149 A | 16, 20-23                       |

☑ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

07.06.2017

国際調査報告の発送日

20.06.2017

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

辻本 寛司

20

3908

電話番号 03-3581-1101 内線 3271

| C (続き) . 関連すると認められる文献 |                                                                                                                                                                                 |                       |
|-----------------------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|
| 引用文献の<br>カテゴリー*       | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示                                                                                                                                               | 関連する<br>請求項の番号        |
|                       | & TW 200940905 A                                                                                                                                                                |                       |
| Y                     | JP 2010-061824 A (東レ株式会社)<br>2010.03.18, 段落 [0033]-[0040], [0074]<br>(ファミリーなし)                                                                                                  | 1-15, 17-19,<br>24-30 |
| Y                     | JP 2011-241160 A (山本化成株式会社)<br>2011.12.01, 段落 [0042]-[0058], [0073]<br>(ファミリーなし)                                                                                                | 1-15, 17-19,<br>24-30 |
| Y                     | JP 2016-027613 A (日本電気硝子株式会社)<br>2016.02.18, 段落 [0070], 図 7<br>& US 2017/0137706 A1, 段落 [0084], 図 7<br>& EP 3147955 A1 & WO 2015/178223 A1 & TW 201608005 A<br>& CN 106030835 A | 14-15                 |
| Y                     | JP 2011-118187 A (シチズンホールディングス株式会社)<br>2011.06.16, 段落 [0032]<br>(ファミリーなし)                                                                                                       | 14-15                 |
| A                     | JP 2012-009242 A (セイコーエプソン株式会社)<br>2012.01.12, 段落 [0021]-[0037], 図 6<br>(ファミリーなし)                                                                                               | 1-30                  |
| A                     | JP 2015-065142 A (東芝ライテック株式会社)<br>2015.04.09, 段落 [0058]-[0065], 図 18<br>(ファミリーなし)                                                                                               | 1-30                  |
| A                     | US 2016/0069538 A1 (DELTA ELECTRONICS, INC.)<br>2016.03.10, 全文全図<br>& JP 2016-058378 A & EP 2993709 A1 & CN 105841097 A<br>& TW 201610364 A                                     | 1-30                  |