

(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
2019年8月1日(01.08.2019)



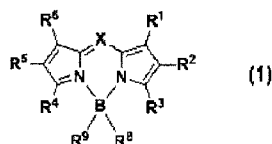
(10) 国際公開番号

WO 2019/146332 A1

- (51) 国際特許分類:
C07F 5/02 (2006.01) H01L 33/50 (2010.01)
C09K 11/06 (2006.01) H01L 51/50 (2006.01)
F21V 9/08 (2018.01) H05B 33/12 (2006.01)
G02B 5/20 (2006.01) H05B 33/14 (2006.01)
H01L 33/00 (2010.01) F21Y 115/10 (2016.01)
H01L 33/26 (2010.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2018/047120
- (22) 国際出願日: 2018年12月20日(20.12.2018)
- (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 2018-011165 2018年1月26日(26.01.2018) 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: 小林 和紀 (KOBAYASHI, Kazuki); 〒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). 市橋 泰宜 (ICHIHASHI, Yasunori); 〒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).
- (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).

(54) Title: PYRRMETHENE BORON COMPLEX, COLOR CONVERSION COMPOSITION, COLOR CONVERSION FILM, LIGHT SOURCE UNIT, DISPLAY, LIGHTING DEVICE AND LIGHT EMITTING ELEMENT

(54) 発明の名称: ピロメテンホウ素錯体、色変換組成物、色変換フィルム、光源ユニット、ディスプレイ、照明装置および発光素子



(57) Abstract: A pyrromethene boron complex according to one embodiment of the present invention is a compound which is represented by general formula (1), and which satisfies at least one of conditions (A) and (B). This pyrromethene boron complex is used for a color conversion composition, a color conversion film, a light source unit, a display, a lighting device and a light emitting element. Condition (A): In the formula, each one of the R¹-R⁶ moieties represents a group that does not contain a fluorine atom; at least one of the R¹, R³, R⁴ and R⁶ moieties represents a substituted or unsubstituted alkyl group or a substituted or unsubstituted cycloalkyl group; and each one of the R² and R⁵ moieties represents a group that does not contain a heteroaryl group wherein two or more rings are fused. Condition (B): In the formula, at least one of the R¹, R³, R⁴ and R⁶ moieties represents a substituted or unsubstituted aryl group or a substituted or unsubstituted heteroaryl group; and in cases where X represents C-R⁷, the R⁷ moiety represents a group that does not contain a heteroaryl group having two or more rings. AA (In general formula (1), X represents C-R⁷ or N; the R¹-R⁹ moieties may be the same or different, and each represents an atom or a group, which is selected from the candidate group consisting of a hydrogen atom, an alkyl group, a cycloalkyl group, a heterocyclic group, an alkenyl group, a cycloalkenyl group, an alkynyl group, a hydroxyl group, a thiol group, an alkoxy group, an alkylthio group, an aryl ether group, an aryl thioether group, an aryl group, a heteroaryl group, a halogen atom, a cyano group, an aldehyde group, a carbonyl group, a carboxyl group, an acyl group, an ester group, an amide group, a carbamoyl group, an amino group, a nitro group, a silyl group, a siloxanyl group, a boryl group, a sulfo group, a sulfonyl group, a phosphine oxide group, and a fused ring and an aliphatic ring that are formed together with an adjacent substituent.

WO 2019/146332 A1

(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, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, 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), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類 :

一 国際調査報告 (条約第21条(3))

At least one of the R^8 and R^9 moieties represents a cyano group. Each one of the R^2 and R^5 moieties represents a group that is selected from among the groups other than a substituted or unsubstituted aryl group and a substituted or unsubstituted heteroaryl group in the above-described candidate group.)

(57) 要約 : 本発明の一態様であるピロメテンホウ素錯体は、一般式(1)で表される化合物であり、条件(A)、(B)のうち少なくとも一方を満たす。このピロメテンホウ素錯体は、色変換組成物、色変換フィルムは、光源ユニット、ディスプレイ、照明装置、発光素子に用いられる。条件(A) : $R^1 \sim R^6$ が、いずれもフッ素原子を含まない基であり、 R^1 、 R^3 、 R^4 および R^6 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、または置換もしくは無置換のシクロアルキル基であり、 R^2 および R^5 が、2環以上が縮合したヘテロアリール基を含まない基である。条件(B) : R^1 、 R^3 、 R^4 および R^6 のうち少なくとも1つが、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り、XがC-R⁷である場合に、 R^7 が2環以上のヘテロアリール基を含まない基である。

明 細 書

発明の名称：

ピロメテンホウ素錯体、色変換組成物、色変換フィルム、光源ユニット、ディスプレイ、照明装置および発光素子

技術分野

[0001] 本発明は、ピロメテンホウ素錯体、色変換組成物、色変換フィルム、光源ユニット、ディスプレイ、照明装置および発光素子に関する。

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

[0003] 液晶ディスプレイの課題として、色再現性の向上が挙げられる。色再現性の向上には、光源ユニットの青、緑、赤の各発光スペクトルの半値幅を狭くし、青、緑、赤各色の色純度を高めることが有効である。これを解決する手段として、無機半導体微粒子による量子ドットを色変換組成物の成分として用いる技術が提案されている（例えば、特許文献1参照）。この量子ドットを用いる技術は、確かに緑、赤色の発光スペクトルの半値幅が狭く、色再現

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

[0004] また、量子ドットの代わりに有機物の発光材料を色変換組成物の成分として用いる技術も提案されている。有機発光材料を色変換組成物の成分として用いる技術の例としては、ピロメテン誘導体を用いたもの（例えば、特許文献1～5参照）が開示されている。

先行技術文献

特許文献

- [0005] 特許文献1：特開2011-241160号公報
特許文献2：特開2014-136771号公報
特許文献3：国際公開第2016/108411号
特許文献4：韓国特許公開第2017/0049360号
特許文献5：韓国特許公開第2017/155297号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] しかし、これらの有機発光材料を用いて色変換組成物を作製しても、色再現性、発光効率および耐久性の向上という観点では、未だ不十分であった。特に、高発光効率と高い耐久性とを両立できる技術や、高色純度の緑色発光と高い耐久性とを両立できる技術が不十分であった。

[0007] 本発明が解決しようとする課題は、液晶ディスプレイ等のディスプレイやLED照明等の照明装置、或いは発光素子に用いられる色変換材料として好適な有機発光材料を提供し、色再現性の向上と高い耐久性とを両立させることである。

課題を解決するための手段

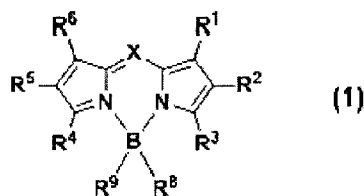
[0008] すなわち、上述した課題を解決し、目的を達成するために、本発明に係るピロメテンホウ素錯体は、下記の一般式(1)で表される化合物であり、下記の条件(A)および条件(B)のうち少なくとも一方を満たす、ことを特

徴とする。

条件 (A) : 一般式 (1) において、 $R^1 \sim R^6$ が、いずれもフッ素原子を含まない基であり、 R^1 、 R^3 、 R^4 および R^6 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、または置換もしくは無置換のシクロアルキル基であり、 R^2 および R^5 が、2環以上が縮合したヘテロアリール基を含まない基である。

条件 (B) : 一般式 (1) において、 R^1 、 R^3 、 R^4 および R^6 のうち少なくとも1つが、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り、 X が $C-R^7$ である場合に、 R^7 が2環以上のヘテロアリール基を含まない基である。

[0009] [化1]



(一般式 (1) において、 X は、 $C-R^7$ または N である。 $R^1 \sim R^9$ は、それぞれ同じでも異なってもよく、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、複素環基、アルケニル基、シクロアルケニル基、アルキニル基、水酸基、チオール基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリールエーテル基、アリールチオエーテル基、アリール基、ヘテロアリール基、ハロゲン、シアノ基、アルデヒド基、カルボニル基、カルボキシル基、アシル基、エステル基、アミド基、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、スルホ基、スルホニル基、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、からなる候補群の中から選ばれる。但し、 R^8 および R^9 のうち少なくとも1つは、シアノ基である。 R^2 および R^5 は、前記候補群のうち、置換もしくは無置換のアリール基、および置換もしくは無置換のヘテロアリール基以外の基の中から選ばれる基である。)

[0010] また、本発明に係るピロメテンホウ素錯体は、上記の発明において、前記条件（A）を満たし、かつ、前記一般式（1）における $R^1 \sim R^7$ のうち少なくとも1つが、電子求引基である、ことを特徴とする。

[0011] また、本発明に係るピロメテンホウ素錯体は、上記の発明において、前記条件（A）を満たし、かつ、前記一般式（1）における $R^1 \sim R^6$ のうち少なくとも1つが、電子求引基である、ことを特徴とする。

[0012] また、本発明に係るピロメテンホウ素錯体は、上記の発明において、前記条件（A）を満たし、かつ、前記一般式（1）における R^2 および R^5 のうち少なくとも1つが、電子求引基である、ことを特徴とする。

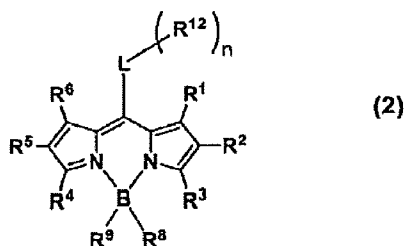
[0013] また、本発明に係るピロメテンホウ素錯体は、上記の発明において、前記条件（A）を満たし、かつ、前記一般式（1）における R^2 および R^5 が、電子求引基である、ことを特徴とする。

[0014] また、本発明に係るピロメテンホウ素錯体は、上記の発明において、前記電子求引基が、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、またはシアノ基である、ことを特徴とする。

[0015] また、本発明に係るピロメテンホウ素錯体は、上記の発明において、前記条件（B）を満たし、かつ、前記一般式（1）における R^7 が、置換もしくは無置換のアリール基である、ことを特徴とする。

[0016] また、本発明に係るピロメテンホウ素錯体は、上記の発明において、前記一般式（1）で表される化合物は、下記の一般式（2）で表される化合物である、ことを特徴とする。

[0017] [化2]



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

[0018] また、本発明に係るピロメテンハウ素錯体は、上記の発明において、前記一般式(1)における R^8 および R^9 が、シアノ基である、ことを特徴とする。

[0019] また、本発明に係るピロメテンハウ素錯体は、上記の発明において、前記一般式(1)における R^2 および R^5 が水素原子である、ことを特徴とする。

[0020] また、本発明に係るピロメテンハウ素錯体は、上記の発明において、前記一般式(1)で表される化合物は、励起光を用いることによってピーク波長が500nm以上580nm以下の領域に観測される発光を呈する、ことを特徴とする。

[0021] また、本発明に係るピロメテンハウ素錯体は、上記の発明において、前記一般式(1)で表される化合物は、励起光を用いることによりピーク波長が580nm以上750nm以下の領域に観測される発光を呈する、ことを特徴とする。

[0022] また、本発明に係る色変換組成物は、入射光を、その入射光よりも長波長の光に変換する色変換組成物であって、上記の発明のいずれか一つに記載のピロメテンハウ素錯体と、バインダー樹脂と、を含むことを特徴とする。

[0023] また、本発明に係る色変換フィルムは、上記の発明に記載の色変換組成物またはその硬化物からなる層を含む、ことを特徴とする。

[0024] また、本発明に係る光源ユニットは、光源と、上記の発明に記載の色変換フィルムと、を備えることを特徴とする。

[0025] また、本発明に係るディスプレイは、上記の発明に記載の色変換フィルムを備える、ことを特徴とする。

[0026] また、本発明に係る照明装置は、上記の発明に記載の色変換フィルムを備

える、ことを特徴とする。

[0027] また、本発明に係る発光素子は、陽極と陰極との間に有機層が存在し、電気エネルギーにより発光する発光素子であって、前記有機層に、上記の発明のいずれか一つに記載のピロメテンホウ素錯体を含有する、ことを特徴とする。

[0028] また、本発明に係る発光素子は、上記の発明において、前記有機層が発光層を有し、前記発光層に、上記の発明のいずれか一つに記載のピロメテンホウ素錯体を含有する、ことを特徴とする。

[0029] また、本発明に係る発光素子は、上記の発明において、前記発光層が宿主材料とドーパント材料とを有し、前記ドーパント材料が、上記の発明のいずれか一つに記載のピロメテンホウ素錯体である、ことを特徴とする。

[0030] また、本発明に係る発光素子は、上記の発明において、前記宿主材料が、アントラセン誘導体またはナフタセン誘導体である、ことを特徴とする。

発明の効果

[0031] 本発明に係るピロメテンホウ素錯体や色変換組成物を用いた色変換フィルムおよび発光素子は、高色純度の発光と高い耐久性とが両立されているため、色再現性の向上と高い耐久性とを両立させることが可能となるという効果を奏する。本発明に係る光源ユニット、ディスプレイおよび照明装置は、このような色変換フィルムを用いるため、色再現性の向上と高い耐久性とを両立させることが可能となるという効果を奏する。

図面の簡単な説明

[0032] [図1]図1は、本発明の実施形態に係る色変換フィルムの第一例を示す模式断面図である。

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

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

[図4]図4は、本発明の実施形態に係る色変換フィルムの第四例を示す模式断

面図である。

発明を実施するための形態

[0033] 以下、本発明に係るピロメテンホウ素錯体、色変換組成物、色変換フィルム、光源ユニット、ディスプレイ、照明装置および発光素子の好適な実施形態を具体的に説明するが、本発明は以下の実施形態に限定されるものではなく、目的や用途に応じて種々に変更して実施することができる。

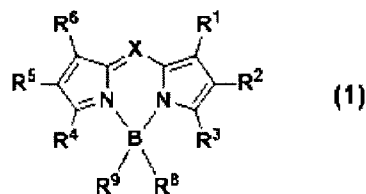
[0034] <ピロメテンホウ素錯体>

本発明の実施形態に係るピロメテンホウ素錯体について詳細に説明する。本発明の実施形態に係るピロメテンホウ素錯体は、色変換組成物や色変換フィルムなどを構成する色変換材料である。詳細には、このピロメテンホウ素錯体は、下記の一般式(1)で表される化合物であり、下記の条件(A)および条件(B)のうち少なくとも一方を満たす。

条件(A)：一般式(1)において、 $R^1 \sim R^6$ が、いずれもフッ素原子を含まない基であり、 R^1 、 R^3 、 R^4 および R^6 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、または置換もしくは無置換のシクロアルキル基であり、 R^2 および R^5 が、2環以上が縮合したヘテロアリアル基を含まない基である。

条件(B)：一般式(1)において、 R^1 、 R^3 、 R^4 および R^6 のうち少なくとも1つが、置換もしくは無置換のアリアル基、または置換もしくは無置換のヘテロアリアル基であり、 X が $C-R^7$ である場合に、 R^7 が2環以上のヘテロアリアル基を含まない基である。

[0035] [化3]



[0036] 一般式(1)において、 X は、 $C-R^7$ または N である。 $R^1 \sim R^9$ は、それぞれ同じでも異なってもよく、水素原子、アルキル基、シクロアルキル

基、複素環基、アルケニル基、シクロアルケニル基、アルキニル基、水酸基、チオール基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリールエーテル基、アリールチオエーテル基、アリール基、ヘテロアリール基、ハロゲン、シアノ基、アルデヒド基、カルボニル基、カルボキシル基、アシル基、エステル基、アミド基、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、スルホ基、スルホニル基、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、からなる候補群の中から選ばれる。但し、 R^8 および R^9 のうち少なくとも1つは、シアノ基である。 R^2 および R^5 は、上記の候補群のうち、置換もしくは無置換のアリール基、および置換もしくは無置換のヘテロアリール基以外の基の中から選ばれる基である。

[0037] 上記の全ての基において、水素は重水素であってもよい。このことは、以下に説明する化合物またはその部分構造においても同様である。また、以下の説明において、例えば、炭素数6~40の置換もしくは無置換のアリール基とは、アリール基に置換した置換基に含まれる炭素数も含めて全ての炭素数が6~40となるアリール基である。炭素数を規定している他の置換基も、これと同様である。

[0038] 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。

[0039] 「置換もしくは無置換の」という場合における「無置換」とは、水素原子または重水素原子が置換したことを意味する。以下に説明する化合物または

その部分構造において、「置換もしくは無置換の」という場合についても、上記と同様である。

- [0040] 上記の全ての基のうち、アルキル基とは、例えば、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*sec*-ブチル基、*tert*-ブチル基等の飽和脂肪族炭化水素基を示し、これは、置換基を有していても有していなくてもよい。置換されている場合の追加の置換基には特に制限は無く、例えば、アルキル基、ハロゲン、アリール基、ヘテロアリール基等を挙げることができ、この点は、以下の記載にも共通する。また、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。
- [0041] シクロアルキル基とは、例えば、シクロプロピル基、シクロヘキシル基、ノルボルニル基、アダマンチル基等の飽和脂環式炭化水素基を示し、これは、置換基を有していても有していなくてもよい。アルキル基部分の炭素数は、特に限定されないが、好ましくは、3以上20以下の範囲である。
- [0042] 複素環基とは、例えば、ピラン環、ピペリジン環、環状アミド等の炭素以外の原子を環内に有する脂肪族環を示し、これは、置換基を有していても有していなくてもよい。複素環基の炭素数は、特に限定されないが、好ましくは、2以上20以下の範囲である。
- [0043] アルケニル基とは、例えば、ビニル基、アリル基、ブタジエニル基等の二重結合を含む不飽和脂肪族炭化水素基を示し、これは、置換基を有していても有していなくてもよい。アルケニル基の炭素数は、特に限定されないが、好ましくは、2以上20以下の範囲である。
- [0044] シクロアルケニル基とは、例えば、シクロペンテニル基、シクロペンタジエニル基、シクロヘキセニル基等の二重結合を含む不飽和脂環式炭化水素基を示し、これは、置換基を有していても有していなくてもよい。
- [0045] アルキニル基とは、例えば、エチニル基等の三重結合を含む不飽和脂肪族炭化水素基を示し、これは、置換基を有していても有していなくてもよい。アルキニル基の炭素数は、特に限定されないが、好ましくは、2以上20以

下の範囲である。

- [0046] アルコキシ基とは、例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基等のエーテル結合を介して脂肪族炭化水素基が結合した官能基を示し、この脂肪族炭化水素基は、置換基を有していても有していなくてもよい。アルコキシ基の炭素数は、特に限定されないが、好ましくは、1以上20以下の範囲である。
- [0047] 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。
- [0048] アリールエーテル基とは、例えば、フェノキシ基等、エーテル結合を介した芳香族炭化水素基が結合した官能基を示し、芳香族炭化水素基は、置換基を有していても有していなくてもよい。アリールエーテル基の炭素数は、特に限定されないが、好ましくは、6以上40以下の範囲である。
- [0049] アリールチオエーテル基とは、アリールエーテル基のエーテル結合の酸素原子が硫黄原子に置換されたものである。アリールチオエーテル基における芳香族炭化水素基は、置換基を有していても有していなくてもよい。アリールチオエーテル基の炭素数は、特に限定されないが、好ましくは、6以上40以下の範囲である。
- [0050] アリール基とは、例えば、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基、フルオレニル基、ベンゾフルオレニル基、ジベンゾフルオレニル基、フェナントリル基、アントラセニル基、ベンゾフェナントリル基、ベンゾアントラセニル基、クリセニル基、ピレニル基、フルオランテニル基、トリフェニレニル基、ベンゾフルオランテニル基、ジベンゾアントラセニル基、ペリレニル基、ヘリセニル基等の芳香族炭化水素基を示す。中でも、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。

[0051] R¹~R⁹が置換もしくは無置換のアリール基の場合、アリール基としては、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基、フルオレニル基、フェナントリル基、アントラセニル基が好ましく、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基がより好ましい。さらに好ましくは、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基であり、フェニル基が特に好ましい。

[0052] 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。

[0053] ヘテロアリール基とは、例えば、ピリジル基、フラニル基、チエニル基、キノリニル基、イソキノリニル基、ピラジニル基、ピリミジル基、ピリダジニル基、トリアジニル基、ナフチリジニル基、シンノリニル基、フタラジニル基、キノキサリニル基、キナゾリニル基、ベンゾフラニル基、ベンゾチエニル基、インドリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチエニル基、カルバゾリル基、ベンゾカルバゾリル基、カルボリニル基、インドロカルバゾリル基、ベンゾフロカルバゾリル基、ベンゾチエノカルバゾリル基、ジヒドロインドロカルバゾリル基、ベンゾキノリニル基、アクリジニル基、ジベンゾアクリジニル基、ベンゾイミダゾリル基、イミダゾピリジル基、ベンゾオキサゾリル基、ベンゾチアゾリル基、フェナントロリニル基等の、炭素以外の原子を一個または複数個環内に有する環状芳香族基を示す。ただし、ナフチリジニル基とは、1, 5-ナフチリジニル基、1, 6-ナフチリジニル基、1, 7-ナフチリジニル基、1, 8-ナフチリジニル基、2, 6-ナフチリジニル基、2, 7-ナフチリジニル基のいずれかを示す。ヘテロアリール基は、置換基を有していても有していなくてもよい。ヘテロアリール基の炭素数

は、特に限定されないが、好ましくは、2以上40以下、より好ましくは2以上30以下の範囲である。

[0054] R¹~R⁹が置換もしくは無置換のヘテロアリアル基である場合、ヘテロアリアル基としては、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。

[0055] それぞれの置換基がさらにヘテロアリアル基で置換される場合、ヘテロアリアル基としては、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。

[0056] ハロゲンとは、フッ素、塩素、臭素およびヨウ素から選ばれる原子を示す。また、カルボニル基、カルボキシル基、オキシカルボニル基、カルバモイル基は、置換基を有してい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、アリアル基、ヘテロアリアル基等が挙げられ、これらの置換基は、さらに置換されてもよい。

[0057] エステル基とは、例えば、アルキル基、シクロアルキル基、アリアル基、ヘテロアリアル基等がエステル結合を介して結合した官能基を示し、この置換基は、さらに置換されていてもよい。エステル基の炭素数は、特に限定されないが、好ましくは、1以上20以下の範囲である。より具体的には、エステル基として、例えば、メトキシカルボニル基等のメチルエステル基、エ

トキシカルボニル基等のエチルエステル基、プロポキシカルボニル基等のプロピルエステル基、ブトキシカルボニル基等のブチルエステル基、イソプロポキシメトキシカルボニル基等のイソプロピルエステル基、ヘキシロキシカルボニル基等のヘキシルエステル基、フェノキシカルボニル基等のフェニルエステル基が挙げられる。

[0058] アミド基とは、例えば、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、ヘテロアリール基等の置換基がアミド結合を介して結合した官能基を示し、この置換基は、さらに置換されていてもよい。アミド基の炭素数は、特に限定されないが、好ましくは、1以上20以下の範囲である。より具体的には、アミド基として、メチルアミド基、エチルアミド基、プロピルアミド基、ブチルアミド基、イソプロピルアミド基、ヘキシルアミド基、フェニルアミド基等が挙げられる。

[0059] アミノ基とは、置換もしくは無置換のアミノ基である。アミノ基は、置換基を有していても有していなくてもよく、置換する場合の置換基としては、例えば、アリール基、ヘテロアリール基、直鎖アルキル基、分岐アルキル基が挙げられる。アリール基、ヘテロアリール基としては、フェニル基、ナフチル基、ピリジル基、キノリニル基が好ましい。これらの置換基は、さらに置換されてもよい。炭素数は、特に限定されないが、好ましくは、2以上50以下、より好ましくは6以上40以下、特に好ましくは6以上30以下の範囲である。

[0060] シリル基とは、例えば、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、tert-ブチルジメチルシリル基、プロピルジメチルシリル基、ビニルジメチルシリル基等のアルキルシリル基や、フェニルジメチルシリル基、tert-ブチルジフェニルシリル基、トリフェニルシリル基、トリナフチルシリル基等のアリールシリル基を示す。ケイ素上の置換基は、さらに置換されてもよい。シリル基の炭素数は、特に限定されないが、好ましくは、1以上30以下の範囲である。

[0061] シロキサニル基とは、例えば、トリメチルシロキサニル基等のエーテル結

合を介したケイ素化合物基を示す。ケイ素上の置換基は、さらに置換されてもよい。また、ボリル基とは、置換もしくは無置換のボリル基である。ボリル基は、置換基を有していても有していなくてもよく、置換する場合の置換基としては、例えば、アリール基、ヘテロアリール基、直鎖アルキル基、分岐アルキル基、アリールエーテル基、アルコキシ基、ヒドロキシル基が挙げられる。中でも、アリール基、アリールエーテル基が好ましい。また、ホスフィンオキシド基とは、 $-P(=O)R^{10}R^{11}$ で表される基である。R¹⁰およびR¹¹は、R¹~R⁹と同様の候補群から選ばれる。

[0062] アシル基とは、例えば、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、ヘテロアリール基等の置換基がカルボニル結合を介して結合した官能基を示し、この置換基は、さらに置換されていてもよい。アシル基の炭素数は、特に限定されないが、好ましくは、1以上20以下の範囲である。より具体的には、アシル基として、アセチル基、プロピオニル基、ベンゾイル基、アクリリル基等が挙げられる。

[0063] スルホニル基とは、例えば、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、ヘテロアリール基等の置換基が $-S(=O)_2-$ 結合を介して結合した官能基を示し、この置換基は、さらに置換されていてもよい。

[0064] アリーレン基とは、ベンゼン、ナフタレン、ビフェニル、ターフェニル、フルオレン、フェナントレン等の芳香族炭化水素基から導かれる2価以上の基を示し、これは、置換基を有していても有していなくてもよい。好ましくは、2価もしくは3価のアリーレン基である。アリーレン基としては、具体的には、フェニレン基、ビフェニレン基、ナフチレン基等が挙げられる。

[0065] ヘテロアリーレン基とは、ピリジン、キノリン、ピリミジン、ピラジン、トリアジン、キノキサリン、キナゾリン、ジベンゾフラン、ジベンゾチオフェン等の炭素以外の原子を一個または複数個環内に有する芳香族基から導かれる2価以上の基を示し、これは、置換基を有していても有していなくてもよい。好ましくは、2価もしくは3価のヘテロアリーレン基である。ヘテロアリーレン基の炭素数は、特に限定されないが、好ましくは、2~30の範

囲である。ヘテロアリーレン基としては、具体的には、2, 6-ピリジレン基、2, 5-ピリジレン基、2, 4-ピリジレン基、3, 5-ピリジレン基、3, 6-ピリジレン基、2, 4, 6-ピリジレン基、2, 4-ピリミジニレン基、2, 5-ピリミジニレン基、4, 6-ピリミジニレン基、2, 4, 6-ピリミジニレン基、2, 4, 6-トリアジニレン基、4, 6-ジベンゾフラニレン基、2, 6-ジベンゾフラニレン基、2, 8-ジベンゾフラニレン基、3, 7-ジベンゾフラニレン基等が挙げられる。

[0066] 一般式(1)で表される化合物は、ピロメテンハウ素錯体骨格を有する。ピロメテンハウ素錯体骨格は、強固で平面性の高い骨格である。このため、ピロメテンハウ素錯体骨格を有する当該化合物は、高い発光量子収率を示し、かつ、当該化合物の発光スペクトルのピーク半値幅は小さい。したがって、一般式(1)で表される化合物は、高効率の色変換と高い色純度とを達成することができる。

[0067] また、一般式(1)において、 R^8 および R^9 のうち少なくとも一つは、シアノ基である。本発明の実施形態に係る色変換組成物、すなわち、一般式(1)で表される化合物を成分の一つとする色変換組成物は、含有されるピロメテンハウ素錯体が励起光により励起され、励起光とは異なる波長の光を発光することで、光の色変換を行う。

[0068] 一般式(1)において、 R^8 および R^9 がいずれもシアノ基ではない場合、上記の励起と発光とのサイクルが繰り返されると、色変換組成物中に含まれるピロメテンハウ素錯体と酸素との相互作用により、このピロメテンハウ素錯体は、酸化されてしまい消光する。したがって、ピロメテンハウ素錯体の酸化は、一般式(1)で表される化合物の耐久性悪化の原因になる。一方、シアノ基は強い電子求引性を有するため、ピロメテンハウ素錯体骨格のハウ素原子上の置換基としてシアノ基を導入することで、ピロメテンハウ素錯体骨格の電子密度を下げる可以降低。これにより、一般式(1)で表される化合物の酸素に対する安定性がより向上し、この結果、当該化合物の耐久性をより向上させることができる。

- [0069] さらに、一般式（１）において、 R^8 および R^9 は、いずれもシアノ基であることが好ましい。この場合、ピロメテンハウ素錯体骨格のハウ素原子上に二つのシアノ基を導入することで、ピロメテンハウ素錯体骨格の電子密度をさらに下げることができる。これにより、一般式（１）で表される化合物の酸素に対する安定性がさらに向上し、この結果、当該化合物の耐久性を大幅に向上させることができる。
- [0070] 以上のことから、一般式（１）で表される化合物は、分子中にピロメテンハウ素錯体骨格とシアノ基とを有することにより、高効率の発光（色変換）、高い色純度、および高い耐久性を発揮することが可能となる。
- [0071] また、一般式（１）において、 R^2 および R^5 は、上述した候補群の基のうち、置換もしくは無置換のアリール基および置換もしくは無置換のヘテロアリール基以外の基の中から選ばれる。
- [0072] 一般式（１）の R^2 および R^5 で置換される位置は、ピロメテンハウ素錯体骨格の電子密度に大きく影響を与える位置である。これらの位置が芳香族性の基で置換されると共役が拡張するため、発光スペクトルのピーク半値幅が広がってしまう。そのような化合物を含むフィルムを色変換フィルムとしてディスプレイに用いた場合には、色再現性が低くなってしまふ。
- [0073] そこで、一般式（１）の R^2 および R^5 は、上述した候補群の基のうち、置換もしくは無置換のアリール基および置換もしくは無置換のヘテロアリール基以外の基の中から選ばれる。これにより、ピロメテンハウ素錯体骨格における分子全体の共役の広がりを制限することができ、この結果、発光スペクトルのピーク半値幅を狭くすることができる。そのような化合物を含むフィルムを色変換フィルムとして液晶ディスプレイに用いた場合には、色再現性を高くすることができる。
- [0074] 本発明において、一般式（１）で表される化合物（ピロメテンハウ素錯体）は、上述した条件（Ａ）および条件（Ｂ）のうち少なくとも一方を満たす。以下、これらの条件（Ａ）および条件（Ｂ）のうち、条件（Ａ）のみを満たすピロメテンハウ素錯体は実施形態１Ａに係るピロメテンハウ素錯体とし

て説明し、条件（B）のみを満たすピロメテンハウ素錯体は実施形態1 Bに係るピロメテンハウ素錯体として説明する。

[0075] <実施形態1 A>

実施形態1 Aでは、一般式（1）で表される化合物は、 $R^1 \sim R^6$ がいずれもフッ素原子を含まない基である。すなわち、 $R^1 \sim R^6$ は、上述した候補群の基のうち、フッ素原子を含む基以外の基の中から選ばれる。

[0076] ピロメテンハウ素錯体は、光照射により励起された場合、エネルギー的に不安定な状態にあるため、他の分子との相互作用が強くなる。電気陰性度の高いフッ素原子を含む基を $R^1 \sim R^6$ に導入すると、ピロメテンハウ素錯体骨格全体が大きく分極し、この結果、ピロメテンハウ素錯体と他の分子との相互作用がより強くなる。一方、 $R^1 \sim R^6$ がフッ素原子を含む基ではない場合は、ピロメテンハウ素錯体骨格が大きく分極することがない。このような場合、ピロメテンハウ素錯体と、樹脂や他の分子との相互作用は強くないので、ピロメテンハウ素錯体がそれらとの複合体を形成するようなことがない。そのため、一つのピロメテンハウ素錯体分子内での励起及び失活を可能にし、ピロメテンハウ素錯体の高い発光量子収率を保つことが出来る。

[0077] また、実施形態1 Aでは、一般式（1）において、 R^1 、 R^3 、 R^4 および R^6 のうちの少なくとも一つは、置換もしくは無置換のアルキル基と、置換もしくは無置換のシクロアルキル基と、のいずれかである。何故ならば、 R^1 、 R^3 、 R^4 および R^6 のうちの少なくとも一つが上記のいずれかの基である場合の方が、 R^1 、 R^3 、 R^4 および R^6 が全て水素原子の場合に比べ、一般式（1）で表される化合物のより良い熱的安定性および光安定性を示すからである。

[0078] 実施形態1 Aでは、一般式（1）において、 R^1 、 R^3 、 R^4 および R^6 のうちの少なくとも一つが置換もしくは無置換のアルキル基、または置換もしくは無置換のシクロアルキル基である場合、一般式（1）で表される化合物は、色純度の優れた発光を得られる。この場合、アルキル基としては、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*sec*-ブチル基、*tert*-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基といった炭素数1

～6のアルキル基が好ましい。また、シクロアルキル基としては、シクロプロピル基、シクロヘキシル基、ノルボルニル基、アダマンチル基等の飽和脂環式炭化水素基が好ましい。このシクロアルキル基は、置換基を有していても有していなくてもよい。このシクロアルキル基における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。さらに、実施形態1Aにおけるアルキル基としては、熱的安定性に優れるという観点から、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*sec*-ブチル基、*tert*-ブチル基が好ましい。また、濃度消光を防ぎ、発光量子収率を向上させるという観点では、このアルキル基として、立体的にかさ高い*tert*-ブチル基がより好ましい。また、合成の容易さ、原料入手の容易さという観点から、このアルキル基として、メチル基も好ましく用いられる。実施形態1Aにおけるアルキル基は、置換もしくは無置換のアルキル基と、置換もしくは無置換のシクロアルキル基におけるアルキル基部分との双方を意味する。

[0079] 実施形態1Aでは、一般式(1)において、 R^1 、 R^3 、 R^4 および R^6 の全てが、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、または置換もしくは無置換のシクロアルキル基であることが好ましい。何故ならば、この場合、一般式(1)で表される化合物のバインダー樹脂や溶媒への溶解性が良好になるからである。実施形態1Aにおける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。

[0080] また、実施形態1Aでは、一般式(1)において、 R^2 および R^5 は、2環以上が縮合したヘテロアリール基を含まない基である。2環以上が縮合したヘテロアリール基は、可視光に吸収をもつ。2環以上が縮合したヘテロアリール基は、可視光を吸収して励起する場合、その骨格の一部にヘテロ原子を含むため、励起状態で共役に局所的な電子的な偏りが生まれやすい。ピロメテンハウ素錯体の共役に大きく影響を与える R^2 および R^5 の位置に、2環以上が縮合したヘテロアリール基が含まれる場合、2環以上が縮合したヘテロ

アリール基が可視光を吸収して励起するため、2環以上が縮合したヘテロアリール基に電子的な偏りが生まれる。それによって、当該ヘテロアリール基とピロメテンハウ素錯体骨格との間で電子移動が生じ、この結果、ピロメテンハウ素錯体骨格内での電子遷移が阻害されてしまう。これに起因して、ピロメテンハウ素錯体の発光量子収率が低下する。

[0081] しかし、 R^2 および R^5 が、2環以上が縮合したヘテロアリール基を含まない基である場合、ピロメテンハウ素錯体と R^2 および R^5 との電子移動は生じないため、ピロメテンハウ素錯体骨格内での励起および失活の電子遷移が可能となる。したがって、ピロメテンハウ素錯体の特徴である、高い発光量子収率を得ることができる。

[0082] なお、上記したピロメテンハウ素錯体骨格内での電子遷移が阻害される現象は、 R^2 および R^5 に含まれる置換基が可視光を吸収する場合に生じる。 R^2 および R^5 に含まれる置換基が単環のヘテロアリール基である場合は、当該ヘテロアリール基は、可視光を吸収しないため、励起されることはない。したがって、当該ヘテロアリール基とピロメテンハウ素錯体骨格との間の電子移動は起きない。この結果、ピロメテンハウ素錯体の発光量子収率の低下は見られない。

[0083] また、実施形態1Aでは、一般式(1)において、 R^1 および R^6 は、ともに、含フッ素アリール基および含フッ素アルキル基のいずれの基でもないことが好ましい。これにより、一般式(1)で表される化合物(ピロメテンハウ素錯体)の発光量子収率をより高くすることができる。そのような化合物を含むフィルムを色変換フィルムとしてディスプレイに用いた場合には、このディスプレイの発光効率をより高くすることができる。

[0084] また、実施形態1Aでは、一般式(1)において、 $R^1 \sim R^7$ のうち少なくとも一つが電子求引基であることが好ましい。実施形態1Aの一般式(1)で表される化合物では、ピロメテンハウ素錯体骨格の $R^1 \sim R^7$ のうち少なくとも一つに電子求引基を導入することで、ピロメテンハウ素錯体骨格の電子密度を下げるることができる。これにより、実施形態1Aの一般式(1)で表

される化合物の酸素に対する安定性が向上し、この結果、当該化合物の耐久性を向上させることができる。より好ましくは、実施形態1Aの一般式(1)で表される化合物において、 $R^1 \sim R^6$ のうち少なくとも一つが電子求引基であることである。

[0085] 電子求引基とは、電子受容性基とも呼称し、有機電子論において、誘起効果や共鳴効果により、置換した原子団から、電子を引き付ける原子団である。電子求引基としては、ハメット則の置換基定数(σ_p (パラ))として、正の値をとるものが挙げられる。ハメット則の置換基定数(σ_p (パラ))は、化学便覧基礎編改訂5版(11-380頁)から引用することができる。なお、フェニル基も上記正の値をとる例もあるが、本発明における電子求引基にフェニル基は含まれない。

[0086] 電子求引基の例として、例えば、 $-F$ ($\sigma_p: +0.06$)、 $-Cl$ ($\sigma_p: +0.23$)、 $-Br$ ($\sigma_p: +0.23$)、 $-I$ ($\sigma_p: +0.18$)、 $-CO_2R^{13}$ ($\sigma_p: R^{13}$ がエチル基の時 $+0.45$)、 $-CONH_2$ ($\sigma_p: +0.38$)、 $-COR^{13}$ ($\sigma_p: R^{13}$ がメチル基の時 $+0.49$)、 $-CF_3$ ($\sigma_p: +0.50$)、 $-SO_2R^{13}$ ($\sigma_p: R^{13}$ がメチル基の時 $+0.69$)、 $-NO_2$ ($\sigma_p: +0.81$)等が挙げられる。 R^{13} は、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、または、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。

[0087] 好ましい電子求引基としては、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、これらの基は、化学的に分解しにくいからである。

[0088] より好ましい電子求引基としては、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

らの基は、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。中でも、電子求引基として特に好ましいのは、置換もしくは無置換のエステル基である。

[0089] 上記した電子求引基に含まれる R^{13} の好ましい例としては、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が挙げられる。さらに好ましい置換基(R^{13})としては、溶解性の観点から、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基が挙げられる。具体的には、このアルキル基として、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ヘキシル基、イソプロピル基、イソブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基などが挙げられる。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エチル基が好ましく用いられる。

[0090] 特に、実施形態1Aに係るピロメテンホウ素錯体(一般式(1)で表される化合物)では、以下に示す第1～第3の態様が好ましい。

[0091] 実施形態1Aに係るピロメテンホウ素錯体の第1の態様では、一般式(1)において、 R^1 および R^6 のうちの少なくとも一つは、電子求引基であることが好ましい。何故ならば、この構成により、一般式(1)で表される化合物の酸素に対する安定性がより向上し、この結果、耐久性をより向上させることができるからである。

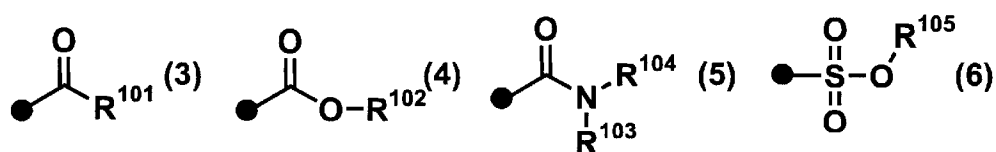
[0092] さらに、一般式(1)において、 R^1 および R^6 は、双方とも、電子求引基であることが好ましい。何故ならば、この構成により、一般式(1)で表される化合物の酸素に対する安定性がさらに向上し、この結果、耐久性を大幅に向上させることができるからである。 R^1 および R^6 は、それぞれ同じでも異なってもよい。これら R^1 および R^6 の好ましい例としては、置換もしくは無置換のアシル基、置換もしくは無置換のエステル基、置換もしくは無置換のアミド基、置換もしくは無置換のスルホニル基またはシアノ基が挙げられる。

- [0093] 実施形態1 Aに係るピロメテンハウ素錯体の第2の態様では、一般式(1)において、 R^3 および R^4 のうちの少なくとも一つは、電子求引基であることが好ましい。何故ならば、この構成により、一般式(1)で表される化合物の酸素に対する安定性がより向上し、この結果、耐久性をより向上させることができるからである。
- [0094] さらに、一般式(1)において、 R^3 および R^4 は、双方とも、電子求引基であることが好ましい。何故ならば、この構成により、一般式(1)で表される化合物の酸素に対する安定性がさらに向上し、この結果、耐久性を大幅に向上させることができるからである。 R^3 および R^4 は、それぞれ同じでも異なってもよい。これら R^3 および R^4 の好ましい例としては、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。
- [0095] 実施形態1 Aに係るピロメテンハウ素錯体の第3の態様では、一般式(1)において、 R^2 および R^5 のうちの少なくとも一つは、電子求引基であることがより好ましい。一般式(1)の R^2 および R^5 の各位置は、ピロメテンハウ素錯体骨格の電子密度に大きく影響を与える置換位置である。このような R^2 および R^5 に電子求引基を導入することで、効率的にピロメテンハウ素錯体骨格の電子密度を低減することができる。これにより、一般式(1)で表される化合物の酸素に対する安定性がより向上し、この結果、耐久性をより向上させることができる。
- [0096] また、この第3の態様では、一般式(1)において、 R^2 および R^5 は、双方とも、電子求引基であることがさらに好ましい。何故ならば、この構成により、一般式(1)で表される化合物の酸素に対する安定性がさらに向上し、この結果、耐久性を大幅に向上させることができるからである。
- [0097] 上述した実施形態1 Aにおける電子求引基の好ましい例としては、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。これらの基は、効率的にピロメテンホウ素錯体骨格の電子密度を低減することができる。これにより、一般式（１）で表される化合物の酸素に対する安定性が向上し、この結果、耐久性をより向上させることができる。このため、これらの基は、電子求引基として好ましい。

[0098] 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ン基の具体例としては、例えば、一般式（３）～（６）が挙げられる。

[0099] [化4]



[0100] 一般式（３）～（６）において、 $\text{R}^{101} \sim \text{R}^{105}$ は、それぞれ独立に、水素、置換もしくは無置換のアルキル基、置換もしくは無置換のシクロアルキル基、置換もしくは無置換のアリール基、置換もしくは無置換のヘテロアリール基である。

[0101] 一般式（３）～（６）におけるアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*sec*-ブチル基、*tert*-ブチル基等が挙げられる。これらの中でも、このアルキル基としてより好ましいものは、エチル基である。

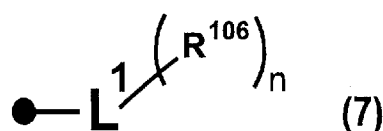
[0102] 一般式（３）～（６）におけるシクロアルキル基としては、例えば、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基、ノルボルニル基、アダマンチル基、デカヒドロナフチル基等が挙げられる。

[0103] 一般式（３）～（６）におけるアリール基としては、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、フェナントリル基、アントラセニル基、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基等が挙げられる。これらの中でも、このアリール基としてより好ましいものは、フェニル基である。

[0104] 一般式(3)～(6)におけるヘテロアリール基としては、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、イミダゾピリジニル基、ベンゾオキサゾリル基、ベンゾチアゾリル基、フェナントロリニル基等が挙げられる。

[0105] また、一般式(3)～(6)において、 $R^{101} \sim R^{105}$ は、一般式(7)で表される置換基であることが、ピロメテンホウ素錯体の耐久性を向上させるという観点から好ましい。

[0106] [化5]



[0107] 一般式(7)において、 R^{106} は、電子求引基である。 R^{106} が電子求引基であることによって、酸素に対する安定性が向上するため、一般式(1)で表される化合物(ピロメテンホウ素錯体)の耐久性が向上する。 R^{106} の好ましい電子求引基としては、置換もしくは無置換のアシル基、置換もしくは無置換のエステル基、置換もしくは無置換のアミド基、置換もしくは無置換のスルホニル基、ニトロ基、シリル基、シアノ基が挙げられる。さらに好ましくは、シアノ基である。一般式(7)において、 n は1～5の整数である。この n が2～5のとき、 n 個の R^{106} は、それぞれ同じでも異なってもよい。

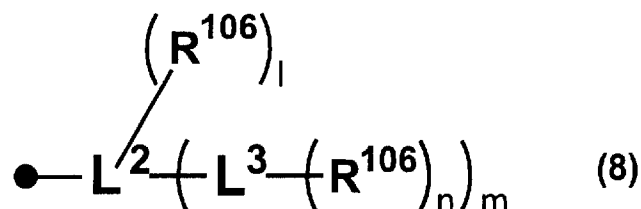
[0108] また、一般式(7)において、 L^1 は、置換もしくは無置換のアリーレン基

、または置換もしくは無置換のヘテロアリーレン基であることが、ピロメテンホウ素錯体の光安定性の観点から好ましい。L¹が置換もしくは無置換のアリーレン基、または置換もしくは無置換のヘテロアリーレン基であるとき、ピロメテンホウ素錯体における分子の凝集を防ぐことができる。この結果、一般式(7)で表される化合物の耐久性を向上させることができる。アリーレン基としては、具体的には、フェニレン基、ビフェニレン基、ナフチレン基、ターフェニレン基が好ましい。

[0109] また、L¹が置換される場合における置換基としては、例えば、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ルケニル基、置換もしくは無置換のシクロアルケニル基、置換もしくは無置換のアルキニル基、水酸基、チオール基、アルコキシ基、置換もしくは無置換のアルキルチオ基、置換もしくは無置換のアリールエーテル基、置換もしくは無置換のアリールチオエーテル基、ハロゲン、アルデヒド基、カルバモイル基、アミノ基、置換もしくは無置換のシロキサニル基、置換もしくは無置換のボリル基、ホスフィンオキシド基が挙げられる。

[0110] また、一般式(3)～(6)において、R¹⁰¹～R¹⁰⁵は、一般式(8)で表される化合物(置換基)であることが、ピロメテンホウ素錯体の耐久性を向上させるという観点から、より好ましい。

[0111] [化6]



[0112] 一般式(8)において、R¹⁰⁶は、一般式(7)におけるものと同様である。L²は、置換もしくは無置換のアルキレン基、置換もしくは無置換のアリーレン基、または置換もしくは無置換のヘテロアリーレン基である。L³は、置換もしくは無置換のアリーレン基、または置換もしくは無置換のヘテロアリーレン基である。L²およびL³が置換される場合の置換基としては、例えば

、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ルケニル基、置換もしくは無置換のシクロアルケニル基、置換もしくは無置換のアルキニル基、水酸基、チオール基、アルコキシ基、置換もしくは無置換のアルキルチオ基、置換もしくは無置換のアリールエーテル基、置換もしくは無置換のアリールチオエーテル基、ハロゲン、アルデヒド基、カルバモイル基、アミノ基、置換もしくは無置換のシロキサニル基、置換もしくは無置換のポリル基、ホスフィンオキシド基が挙げられる。

[0113] また、一般式(8)において、 n は0~5の整数であり、 m は1~5の整数である。この n でくくられた R^{106} は、各 m について独立であり、それぞれ同じでも異なってもよい。この n が2~5のとき、 n 個の R^{106} は、それぞれ同じでも異なってもよい。また、この m が2~5のとき、 m 個の L^3 は、それぞれ同じでも異なってもよい。一方、 l は0~4の整数である。この l が2~4のとき、 l 個の R^{106} は、それぞれ同じでも異なってもよい。

[0114] 一般式(8)における整数 n 、 l は、化合物の酸素に対する安定性の向上によって当該化合物の耐久性を向上させるという観点から、数式(f1)を満たすことが好ましい。

$$1 \leq n + l \leq 25 \quad \dots (f1)$$

[0115] すなわち、一般式(8)で表される化合物には、電子求引基をもつ R^{106} が一つ以上含まれることが好ましい。この構成により、一般式(8)で表される化合物の耐久性を向上させることができる。また、数式(f1)に示される $n+l$ の上限値は、原料の入手し易さおよび化合物の耐久性の観点から、10以下であることが好ましく、8以下であることがより好ましい。

[0116] また、一般式(8)において、 m は、1~3の整数であることが好ましい。すなわち、一般式(8)で表される化合物には、 $L^3 - (R^{106})_n$ が一つまたは二つもしくは三つ含まれることが好ましい。嵩高い置換基もしくは電子求引基を含む $L^3 - (R^{106})_n$ が、一般式(8)で表される化合物の一つ

または二つもしくは三つ含まれることにより、当該化合物の耐久性を向上させることができる。

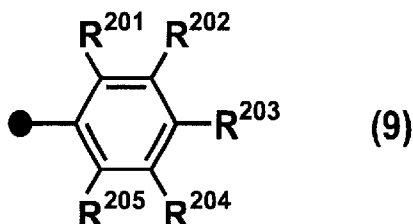
[0117] また、一般式(8)において、 $l=1$ かつ $m=2$ であることが好ましい。すなわち、一般式(8)で表される化合物には、電子求引基をもつ R^{106} が一つ含まれ、嵩高い置換基もしくは電子求引基をもつ $L^3-(R^{106})_n$ が二つ含まれることが好ましい。この構成により、一般式(8)で表される化合物の耐久性をより向上させることができる。 m が2のとき、二つの $L^3-(R^{106})_n$ は、それぞれ同じでも異なってもよい。

[0118] また、別の態様では、一般式(8)において、 $l=0$ かつ $m=2$ であることが好ましく、 $l=0$ かつ $m=3$ であることがさらに好ましい。すなわち、一般式(8)で表される化合物には、嵩高い置換基もしくは電子求引基をもつ $L^3-(R^{106})_n$ が二つまたは三つ含まれることが好ましい。特に、一般式(8)で表される化合物に $L^3-(R^{106})_n$ が三つ含まれることにより、当該化合物の耐久性をより向上させることができる。 m が3のとき、三つの $L^3-(R^{106})_n$ は、それぞれ同じでも異なってもよい。

[0119] 一方、一般式(8)において、 L^2 は、一般式(9)で表される化合物(置換基)であることが、耐久性を向上させるという観点からより好ましい。すなわち、一般式(8)における L^2 は、フェニレン基であることが好ましい。 L^2 がフェニレン基であることにより、分子の凝集を防ぐことができる。この結果、一般式(8)で表される化合物の耐久性を向上させることができる。一般式(9)で表される化合物の $R^{201} \sim R^{205}$ は、 R^{106} 、 $L^3-(R^{106})_n$ および水素原子の中から選ばれる。すなわち、 $R^{201} \sim R^{205}$ のうち少なくとも一つは、 R^{106} に置換されたものであってもよいし、 $L^3-(R^{106})_n$ に置換されたものであってもよいし、水素原子(無置換のもの)であってもよい。 R^{106} および $L^3-(R^{106})_n$ は、一般式(8)におけるものと同様である。

[0120]

[化7]



[0121] 一般式 (9) において、 R^{201} および R^{205} のうち少なくとも一つは、 $L^3 - (R^{106})_n$ であることが好ましい。嵩高い置換基もしくは電子求引基をもつ $L^3 - (R^{106})_n$ が R^{201} および R^{205} のうち少なくとも一つに置換していることにより、一般式 (9) で表される化合物が他の分子と相互作用しにくくなり、分子の凝集を防ぐことができる。これにより、当該化合物の耐久性を向上させることができる。

[0122] また、一般式 (9) において、 R^{201} および R^{205} の二つが、 $L^3 - (R^{106})_n$ であることがより好ましい。嵩高い置換基もしくは電子求引基をもつ $L^3 - (R^{106})_n$ が R^{201} および R^{205} の両方に置換していることにより、一般式 (9) で表される化合物の耐久性をより向上させることができる。 $L^3 - (R^{106})_n$ が R^{201} および R^{205} の両方に置換しているとき、 R^{201} および R^{205} は、それぞれ同じでも異なってもよい。

[0123] 以上より、実施形態 1 A における一般式 (1) で表される化合物は、分子中にピロメテンハウ素錯体骨格と電子求引基とを有していることにより、高効率発光、高色純度、および高い耐久性を両立させることが可能となる。また、実施形態 1 A における一般式 (1) で表される化合物は、高い発光量子収率を示し、かつ、発光スペクトルのピーク半値幅が小さいため、効率的な色変換と高い色純度とを達成することができる。さらに、実施形態 1 A における一般式 (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および物性を調整することができる。

[0124] <実施形態 1 B>

実施形態 1 B では、一般式 (1) において、 R^1 、 R^3 、 R^4 および R^6 のう

ちの少なくとも一つは、置換もしくは無置換のアリール基、置換もしくは無置換のヘテロアリール基であり、これらのうち、置換もしくは無置換のアリール基であることが好ましい。この場合、一般式(1)で表される化合物の光安定性がより向上する。実施形態1Bにおけるアリール基としては、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基が好ましく、中でも、フェニル基、ビフェニル基がより好ましく、フェニル基が特に好ましい。実施形態1Bにおける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、中でも、ピリジル基、キノリニル基がより好ましく、ピリジル基が特に好ましい。

[0125] また、実施形態1Bでは、一般式(1)において、 R^1 、 R^3 、 R^4 および R^6 の全てが、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、または置換もしくは無置換のヘテロアリール基であることが好ましい。何故ならば、この場合、一般式(1)で表される化合物のより良い熱的安定性および光安定性が得られるからである。

[0126] 複数の性質を向上させる置換基もあるが、全てにおいて十分な性能を示す置換基は限られている。特に、高発光効率と高色純度との両立が難しい。そのため、一般式(1)で表される化合物に対して複数種類の置換基を導入することで、発光特性や色純度等にバランスの取れた化合物を得ることが可能である。

[0127] 特に、 R^1 、 R^3 、 R^4 および R^6 が全て、それぞれ同じでも異なってもよく、置換もしくは無置換のアリール基である場合、例えば、 $R^1 \neq R^4$ 、 $R^3 \neq R^6$ 、 $R^1 \neq R^3$ または $R^4 \neq R^6$ 等のように、複数種類の置換基を導入することが好ましい。ここで、「 \neq 」は、異なる構造の基であることを示す。例えば、 $R^1 \neq R^4$ は、 R^1 と R^4 とが異なる構造の基であることを示す。上記のように複数種類の置換基を導入することにより、色純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。

[0128] 中でも、 $R^1 \neq R^3$ または $R^4 \neq R^6$ であることが、発光効率と色純度とをバ

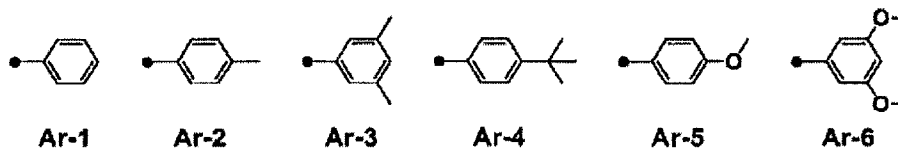
ランスよく向上させるという観点から、好ましい。この場合、一般式(1)で表される化合物に対して、色純度に影響を与えるアリール基を両側のピロール環にそれぞれ一つ以上導入し、それ以外の位置に発光効率に影響を与えるアリール基を導入することができるため、これら両方の性質を最大限に向上させることができる。また、 $R^1 \neq R^3$ または $R^4 \neq R^6$ である場合、耐熱性と色純度との双方を向上させるという観点から、 $R^1 = R^4$ および $R^3 = R^6$ であることがより好ましい。

[0129] 主に色純度に影響を与えるアリール基としては、電子供与性基で置換されたアリール基が好ましい。電子供与性基としては、アルキル基やアルコキシ基等が挙げられる。特に、炭素数1~8のアルキル基または炭素数1~8のアルコキシ基が好ましく、メチル基、エチル基、tert-ブチル基、メトキシ基がより好ましい。分散性の観点からは、tert-ブチル基、メトキシ基が特に好ましく、これらを上記の電子供与性基とした場合、一般式(1)で表される化合物において、分子同士の凝集による消光を防ぐことができる。置換基の置換位置は、特に限定されないが、一般式(1)で表される化合物の光安定性を高めるには結合のねじれを抑える必要があるため、ピロメテンハウ素錯体骨格との結合位置に対してメタ位またはパラ位に結合させることが好ましい。一方、主に発光効率に影響を与えるアリール基としては、tert-ブチル基、アダマンチル基、メトキシ基等のかさ高い置換基を有するアリール基が好ましい。

[0130] R^1 、 R^3 、 R^4 および R^6 が全て、それぞれ同じでも異なってもよく、置換もしくは無置換のアリール基である場合、これらの R^1 、 R^3 、 R^4 および R^6 は、それぞれ以下の $A_{r-1} \sim A_{r-6}$ から選ばれることが好ましい。この場合、 R^1 、 R^3 、 R^4 および R^6 の好ましい組み合わせとしては、表1-1~表1-11に示すような組み合わせが挙げられるが、これらに限定されるものではない。

[0131]

[化8]



[0132] [表1-1]

(表1-1)

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

[0133]

[表1-2]

(表1-2)

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

[0134]

[表1-3]

(表1-3)

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

[0135]

[表1-4]

(表1-4)

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

[0136]

[表1-5]

(表1-5)

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

[0137]

[表1-6]

(表1-6)

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

[0138]

[表1-7]

(表1-7)

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

[0139]

[表1-8]

(表1-8)

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

[0140]

[表1-9]

(表1-9)

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

[0141]

[表1-10]

(表1-10)

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

[0142]

[表1-11]

(表1-11)

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

[0143] また、実施形態1Bでは、一般式(1)において、XがC-R⁷である場合、R⁷が2環以上が縮合したヘテロアリアル基を含まない基である。2環以上が縮合したヘテロアリアル基は、可視光に吸収をもつ。2環以上が縮合したヘテロアリアル基は、可視光を吸収して励起する場合、その骨格の一部にヘテロ原子を含むため、励起状態で共役に局所的な電子的な偏りが生まれやすい。特に、ピロメテンホウ素錯体の非平面部分間では、電子移動が起こりやすい。しかし、ピロメテンホウ素錯体の非平面部分にあたるR⁷の位置に、2環以上が縮合したヘテロアリアル基が含まれる場合、2環以上が縮合したヘテロアリアル基が可視光を吸収して励起するため、2環以上が縮合したヘテ

ロアリアル基に電子的な偏りが生まれる。それによって、当該ヘテロアリアル基とピロメテンハウ素錯体骨格との間で電子移動が生じ、この結果、ピロメテンハウ素錯体骨格内での電子遷移が阻害されてしまう。これに起因して、ピロメテンハウ素錯体の発光量子収率が低下する。

[0144] しかし、XがC-R⁷である場合、R⁷が2環以上が縮合したヘテロアリアル基を含まない基であると、ピロメテンハウ素錯体とR⁷との電子移動は生じないため、ピロメテンハウ素錯体骨格内での励起および失活の電子遷移が可能となる。したがって、ピロメテンハウ素錯体の特徴である、高い発光量子収率を得ることができる。このようなR⁷は、例えば、置換もしくは無置換のアリアル基であることが好ましい。

[0145] なお、このピロメテンハウ素錯体骨格内での電子遷移が阻害される現象は、R⁷に含まれる置換基が可視光を吸収し、当該置換基とピロメテンハウ素錯体骨格との間で電子移動が生じる場合に起こる現象である。R⁷に含まれる置換基が単環のヘテロアリアル基である場合は、当該ヘテロアリアル基は、可視光を吸収しないため、励起されることはない。したがって、当該ヘテロアリアル基とピロメテンハウ素錯体骨格との間の電子移動は起きない。

[0146] <実施形態1C>

つぎに、本発明の実施形態1Cに係るピロメテンハウ素錯体について説明する。実施形態1Cに係るピロメテンハウ素錯体は、発光材料に有機物質を使った発光ダイオード(OLED)や有機ELに適した色変換材料であり、上述した条件(A)および条件(B)のうち少なくとも一つを満たす。

[0147] 例えば、実施形態1Cでは、一般式(1)において、R²およびR⁵のうちの少なくとも一つは、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、またはハロゲンであることが好ましい。R²およびR⁵のうちの少なくとも一つが、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、またはハロゲンであると、一般式(1)で表される化合物は、電気化学的安定性、良好な昇華性、良好な蒸着安定性を併せ持つ。したがって、実施形態1Cの一般式(1)で表される化合物を有機薄膜発光素子に用いた場合に、高発光効率、低駆動電圧および耐

久性を両立させた有機薄膜発光素子を得ることが可能となる。また、 R^2 および R^5 が共に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、およびハロゲンのいずれかであると、一般式(1)で表される化合物の電気化学的安定性が向上するため好ましい。

[0148] また、実施形態1Cでは、一般式(1)において、 R^2 および R^5 のうちの少なくとも一つは、水素原子またはアルキル基であることが好ましい。 R^2 および R^5 のうちの少なくとも一つが、水素原子またはアルキル基であると、一般式(1)で表される化合物の昇華性および蒸着安定性が向上する。このため、実施形態1Cの一般式(1)で表される化合物を有機薄膜発光素子に用いた場合に、発光効率が向上する。また、 R^2 および R^5 が共に、水素原子、アルキル基であると、一般式(1)で表される化合物の昇華性がより向上するため、好ましい。

[0149] さらに、実施形態1Cでは、一般式(1)において、 R^2 および R^5 のうちの少なくとも一つは、水素原子であることが好ましい。 R^2 および R^5 のうちの少なくとも一つが水素原子であると、一般式(1)で表される化合物の昇華性がさらに向上する。このため、実施形態1Cの一般式(1)で表される化合物を有機薄膜発光素子に用いた場合に、発光効率がさらに向上する。また、 R^2 および R^5 が共に、水素原子であると、一般式(1)で表される化合物の昇華性がより一層向上するため、特に好ましい。

[0150] 以下、本発明の全ての実施形態における一般式(1)で表される化合物に共通の性質を説明する。

[0151] 一般式(1)において、 X が $C-R^7$ である場合、 R^7 は、熱的安定性および光安定性の観点から、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、およびアリールチオエーテル基以外の基の中から選ばれることが好ましい。上記置換基は、酸素原子または硫黄原子を含む。酸素原子または硫黄原子を含む置換基は、酸性度が高いため、置換している場合に脱離しやすい。一般式(1)で表される化合物において、 R^7 の位置に、高い酸性度を持つ上記置換基が置換された場合、上記置換基がピロメテンホ

ウ素錯体から脱離してしまう。この結果、一般式（1）で表される化合物の熱的安定性および光安定性が低くなる。一方、R⁷が上記置換基を含む基でない場合は、R⁷に置換された置換基がピロメテンホウ素錯体骨格から脱離することがない。このような場合、一般式（1）で表される化合物は高い熱的安定性および光安定性を示すため、好ましい。

[0152] また、一般式（1）において、XがC-R⁷である場合、R⁷は、耐久性の点から、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、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。

[0153] R⁷は、置換もしくは無置換のアリール基であることが、光安定性の観点から好ましい。具体的には、R⁷として、置換もしくは無置換のフェニル基、置換もしくは無置換のビフェニル基、置換もしくは無置換のターフェニル基、置換もしくは無置換のナフチル基が好ましく、置換もしくは無置換のフェニル基、置換もしくは無置換のビフェニル基、置換もしくは無置換のターフェニル基がより好ましい。

[0154] また、溶媒との相溶性を高めるという観点や発光効率を向上させるという観点からは、R⁷が置換される場合における置換基としては、置換もしくは無置換のアルキル基、置換もしくは無置換のアルコキシ基であることが好ましく、メチル基、エチル基、イソプロピル基、tert-ブチル基、メトキシ基がより好ましい。分散性の観点からは、tert-ブチル基、メトキシ基が特に好ましい。何故ならば、分子同士の凝集による消光を防ぐことができるからである。

[0155] R⁷の特に好ましい例としては、置換もしくは無置換のフェニル基が挙げられる。具体的には、フェニル基、2-トリル基、3-トリル基、4-トリル基、2-メトキシフェニル基、3-メトキシフェニル基、4-メトキシフェニル基、4-エチルフェニル基、4-n-プロピルフェニル基、4-イソプロピルフェニル基、4-n-ブチルフェニル基、4-t-ブチルフェニル基、2,4-キシリル基、3,5-キシリル基、2,6-キシリル基、2,4-

ージメトキシフェニル基、3, 5-ジメトキシフェニル基、2, 6-ジメトキシフェニル基、2, 4, 6-トリメチルフェニル基（メシチル基）、2, 4, 6-トリメトキシフェニル基、フルオレニル基等が挙げられる。

[0156] また、一般式（1）で表される化合物の酸素に対する安定性の向上によって耐久性を向上させるという観点から、 R^7 が置換される場合における置換基としては、電子求引基であることが好ましい。好ましい電子求引基としては、フッ素、含フッ素アルキル基、置換もしくは無置換のアシル基、置換もしくは無置換のエステル基、置換もしくは無置換のアミド基、置換もしくは無置換のスルホニル基、ニトロ基、シリル基、シアノ基または芳香族複素環基等が挙げられる。

[0157] R^7 の特に好ましい例としては、フルオロフェニル基、トリフルオロメチルフェニル基、カルボキシラートフェニル基、アシルフェニル基、アミドフェニル基、スルホニルフェニル基、ニトロフェニル基、シリルフェニル基またはベンゾニトリル基が挙げられる。より具体的には、2-フルオロフェニル基、3-フルオロフェニル基、4-フルオロフェニル基、2, 3-ジフルオロフェニル基、2, 4-ジフルオロフェニル基、2, 5-ジフルオロフェニル基、2, 6-ジフルオロフェニル基、3, 5-ジフルオロフェニル基、2, 3, 4-トリフルオロフェニル基、2, 3, 5-トリフルオロフェニル基、2, 4, 5-トリフルオロフェニル基、2, 4, 6-トリフルオロフェニル基、2, 3, 4, 5-テトラフルオロフェニル基、2, 3, 4, 6-テトラフルオロフェニル基、2, 3, 5, 6-テトラフルオロフェニル基、2, 3, 4, 5, 6-ペンタフルオロフェニル基、2-トリフルオロメチルフェニル基、3-トリフルオロメチルフェニル基、4-トリフルオロメチルフェニル基、2, 3-ビス（トリフルオロメチル）フェニル基、2, 4-ビス（トリフルオロメチル）フェニル基、2, 5-ビス（トリフルオロメチル）フェニル基、2, 6-ジビス（トリフルオロメチル）フェニル基、3, 5-ビス（トリフルオロメチル）フェニル基、2, 3, 4-トリス（トリフルオロメチル）フェニル基、2, 3, 5-トリス（トリフルオロメチル）フェニル

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

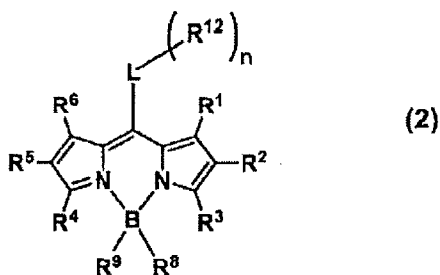
[0158] 一般式(1)において、 R^8 および R^9 は、上述したようにシアノ基であることが好ましいが、シアノ基以外の基では、アルキル基、アリール基、ヘテロアリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、フッ素原子、含フッ素アルキル基、含フッ素ヘテロアリール基、含フッ素アリール基、含フッ素アルコキシ基、含フッ素アリールオキシ基であることが好ましい。励起光に対して安定でより高い発光量子収率が得られるという観点から、 R^8 および R^9 は、フッ素原子、含フッ素アルキル基、含フッ素アルコキシ基または含フッ素

アリール基であることがより好ましい。これらの中でも、合成の容易さの観点から、 R^8 および R^9 は、フッ素原子であることがさらに好ましい。

[0159] ここで、含フッ素アリール基とは、フッ素原子を含むアリール基である。含フッ素アリール基として、例えば、フルオロフェニル基、トリフルオロメチルフェニル基およびペンタフルオロフェニル基等が挙げられる。含フッ素ヘテロアリール基とは、フッ素を含むヘテロアリール基である。含フッ素ヘテロアリール基として、例えば、フルオロピリジル基、トリフルオロメチルピリジル基およびトリフルオロピリジル基等が挙げられる。含フッ素アルキル基とは、フッ素を含むアルキル基である。含フッ素アルキル基として、例えば、トリフルオロメチル基やペンタフルオロエチル基等が挙げられる。

[0160] 一般式(1)で表される化合物のさらに好ましい例としては、下記の一般式(2)で表される構造の化合物が挙げられる。

[0161] [化9]



[0162] 一般式(2)において、 $R^1 \sim R^6$ 、 R^8 および R^9 は、一般式(1)におけるものと同様である。 R^{12} は、置換もしくは無置換のアリール基、または置換もしくは無置換のヘテロアリール基である。Lは、置換もしくは無置換のアリーレン基、または置換もしくは無置換のヘテロアリーレン基である。nは1~5の整数である。nが2~5のとき、n個の R^{12} は、それぞれ同じでも異なってもよい。

[0163] 一般式(2)で表される化合物のLにおける置換もしくは無置換のアリーレン基、または置換もしくは無置換のヘテロアリーレン基は、適度なかさ高さを有することにより、分子の凝集を防ぐことができる。この結果、一般式(2)で表される化合物の発光効率や耐久性がより向上する。

- [0164] 一般式(2)において、Lは、置換もしくは無置換のアリーレン基であることが、光安定性の観点から好ましい。Lが置換もしくは無置換のアリーレン基であるとき、発光波長を損なうことなく、分子の凝集を防ぐことができる。この結果、一般式(2)で表される化合物の耐久性を向上させることができる。アリーレン基としては、具体的には、フェニレン基、ビフェニレン基、ナフチレン基が好ましい。
- [0165] 一般式(2)において、R^{1,2}は、置換もしくは無置換のアリール基であることが、光安定性の観点から好ましい。R^{1,2}が置換もしくは無置換のアリール基であるとき、発光波長を損なうことなく、分子の凝集を防ぐことができ、これにより、一般式(2)で表される化合物の耐久性を向上させることができる。具体的には、このアリール基として、置換もしくは無置換のフェニル基、置換もしくは無置換のビフェニル基、置換もしくは無置換のターフェニル基、置換もしくは無置換のナフチル基が好ましく、置換もしくは無置換のフェニル基、置換もしくは無置換のビフェニル基、置換もしくは無置換のターフェニル基がより好ましい。
- [0166] また、溶媒との相溶性を高めるという観点や発光効率を向上させるという観点から、LおよびR^{1,2}が置換される場合における置換基としては、置換もしくは無置換のアルキル基、または置換もしくは無置換のアルコキシ基であることが好ましく、メチル基、エチル基、イソプロピル基、tert-ブチル基、メトキシ基がより好ましい。分散性の観点からは、tert-ブチル基、メトキシ基が特に好ましい。何故ならば、分子同士の凝集による消光を防ぐことができるからである。
- [0167] このような基が置換する観点からの、R^{1,2}の特に好ましい例としては、置換もしくは無置換のフェニル基が挙げられる。具体的には、フェニル基、2-トリル基、3-トリル基、4-トリル基、2-メトキシフェニル基、3-メトキシフェニル基、4-メトキシフェニル基、4-エチルフェニル基、4-n-プロピルフェニル基、4-イソプロピルフェニル基、4-n-ブチルフェニル基、4-t-ブチルフェニル基、2,4-キシリル基、3,5-キ

シリル基、2, 6-キシリル基、2, 4-ジメトキシフェニル基、3, 5-ジメトキシフェニル基、2, 6-ジメトキシフェニル基、2, 4, 6-トリメチルフェニル基（メシチル基）、2, 4, 6-トリメトキシフェニル基、フルオレニル基等が挙げられる。

[0168] また、一般式（2）で表される化合物の酸素に対する安定性の向上によって耐久性を向上させるという観点から、LおよびR¹²が置換される場合における置換基としては、電子求引基であることが好ましい。好ましい電子求引基としては、フッ素原子、含フッ素アルキル基、置換もしくは無置換のアシル基、置換もしくは無置換のアルコキシカルボニル基、置換もしくは無置換のアリールオキシカルボニル基、置換もしくは無置換のエステル基、置換もしくは無置換のアミド基、置換もしくは無置換のスルホニル基、ニトロ基、シリル基、シアノ基または芳香族複素環基等が挙げられる。

[0169] 電子求引基が置換する観点からの、R¹²の特に好ましい例としては、フルオロフェニル基、トリフルオロメチルフェニル基、アルコキシカルボニルフェニル基、アリールオキシカルボニルフェニル基、アシルフェニル基、アミドフェニル基、スルホニルフェニル基、ニトロフェニル基、シリルフェニル基またはベンゾニトリル基が挙げられる。より具体的には、フッ素原子、トリフルオロメチル基、シアノ基、メトキシカルボニル基、アミド基、アシル基、ニトロ基、2-フルオロフェニル基、3-フルオロフェニル基、4-フルオロフェニル基、2, 3-ジフルオロフェニル基、2, 4-ジフルオロフェニル基、2, 5-ジフルオロフェニル基、2, 6-ジフルオロフェニル基、3, 5-ジフルオロフェニル基、2, 3, 4-トリフルオロフェニル基、2, 3, 5-トリフルオロフェニル基、2, 4, 5-トリフルオロフェニル基、2, 4, 6-トリフルオロフェニル基、2, 3, 4, 5-テトラフルオロフェニル基、2, 3, 4, 6-テトラフルオロフェニル基、2, 3, 5, 6-テトラフルオロフェニル基、2, 3, 4, 5, 6-ペンタフルオロフェニル基、2-トリフルオロメチルフェニル基、3-トリフルオロメチルフェニル基、4-トリフルオロメチルフェニル基、2, 3-ビス（トリフルオロ

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

[0170] より高い発光量子収率を与えるという観点、より熱分解しづらいという観点、および光安定性の観点から、一般式(2)のLは、置換もしくは無置換のフェニレン基であることが好ましい。

[0171] 一般式(2)において、整数nは、1または2であることが好ましく、2であることがより好ましい。すなわち、一般式(2)で表される化合物には、R¹²が一つもしくは二つ含まれることが好ましく、R¹²が二つ含まれることがより好ましい。嵩高い置換基もしくは電子求引基をもつR¹²が当該化合物に一つもしくは二つ、より好ましくは二つ含まれることにより、一般式(2)で表される化合物の高い発光量子収率を維持したまま、耐久性を向上させることができる。nが2のとき、二つのR¹²は、それぞれ同じでも異なってもよい。

[0172] また、一般式(1)で表される化合物は、分子量が450以上であること

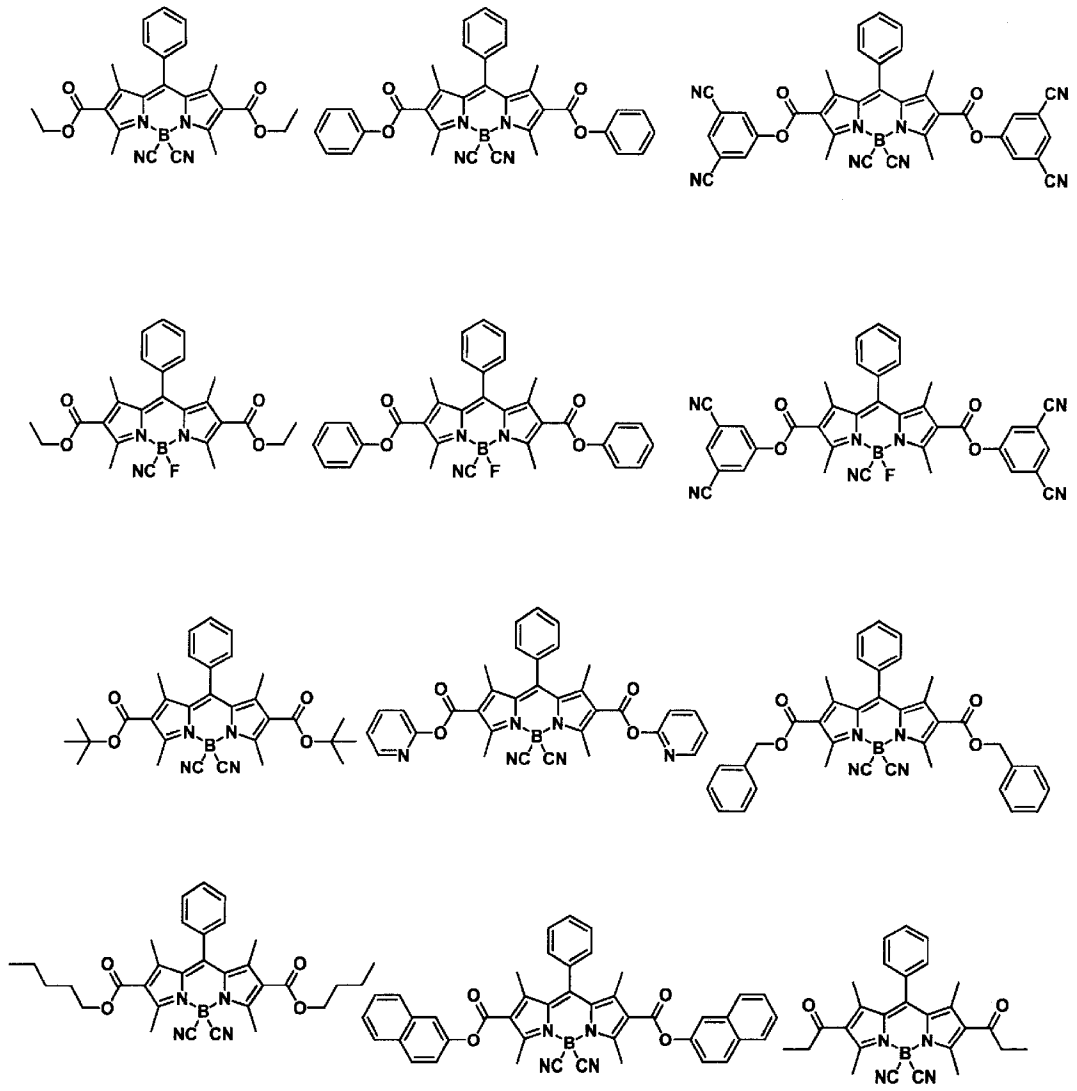
が好ましい。一般式（１）で表される化合物を樹脂組成物として用いる場合に、分子量が大きくなると樹脂内での分子移動が抑えられるため、耐久性が向上する。また、一般式（１）で表される化合物を有機薄膜発光素子に用いる場合には、昇華温度が十分に高くなり、チャンバー内の汚染を防ぐことができる。このため、有機薄膜発光素子は安定した高輝度発光を示し、それ故、高効率発光が得られやすい。

[0173] また、一般式（１）で表される化合物は、分子量が２０００以下であることが好ましい。一般式（１）で表される化合物を樹脂組成物として用いる場合に、分子量が２０００以下であると、分子同士の凝集が抑制され、これにより、量子収率が向上する。また、一般式（１）で表される化合物を有機薄膜発光素子に用いる場合には、熱分解せずに安定に蒸着することができる。

[0174] 以下に、一般式（１）で表される化合物の一例を以下に示すが、当該化合物は、これらに限定されるものではない。

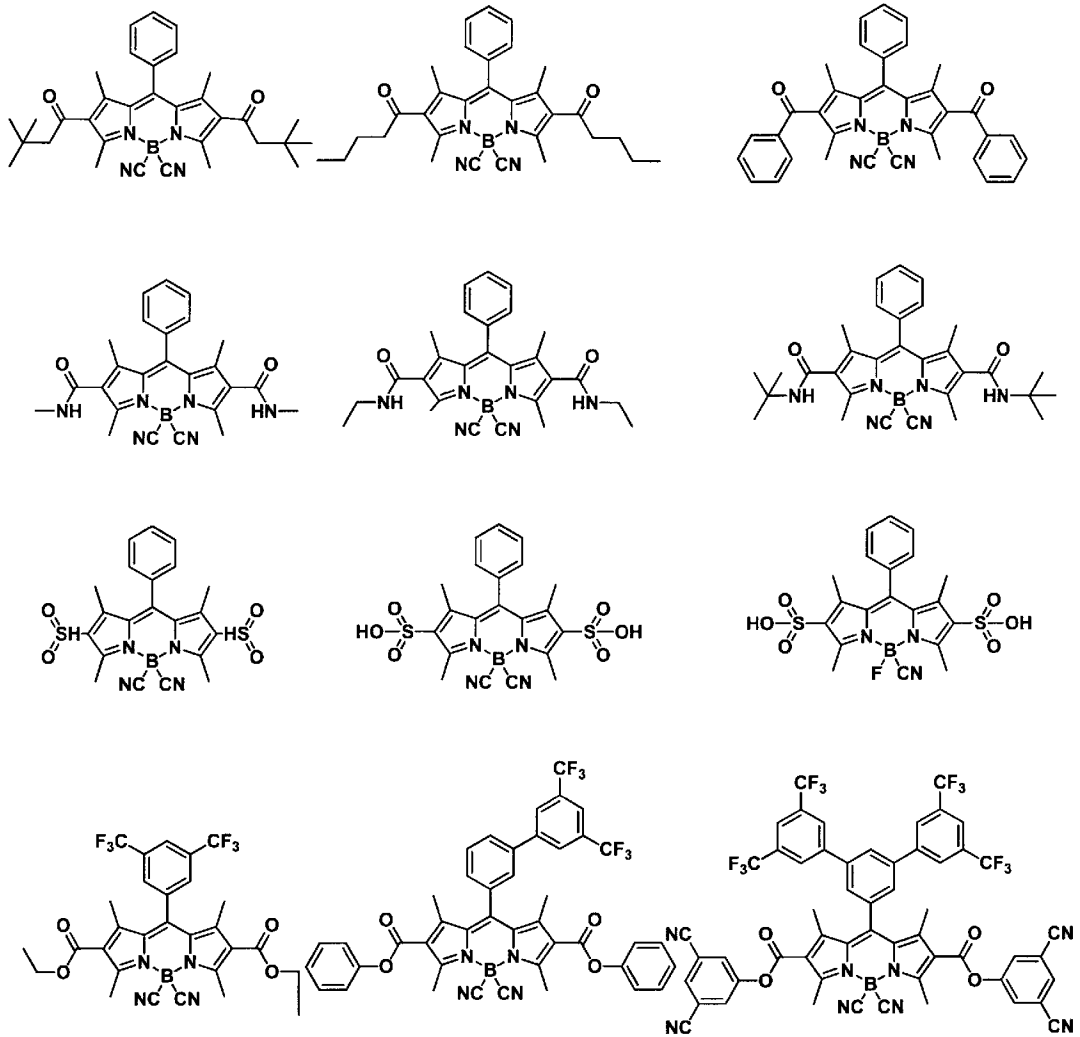
[0175]

[化10]



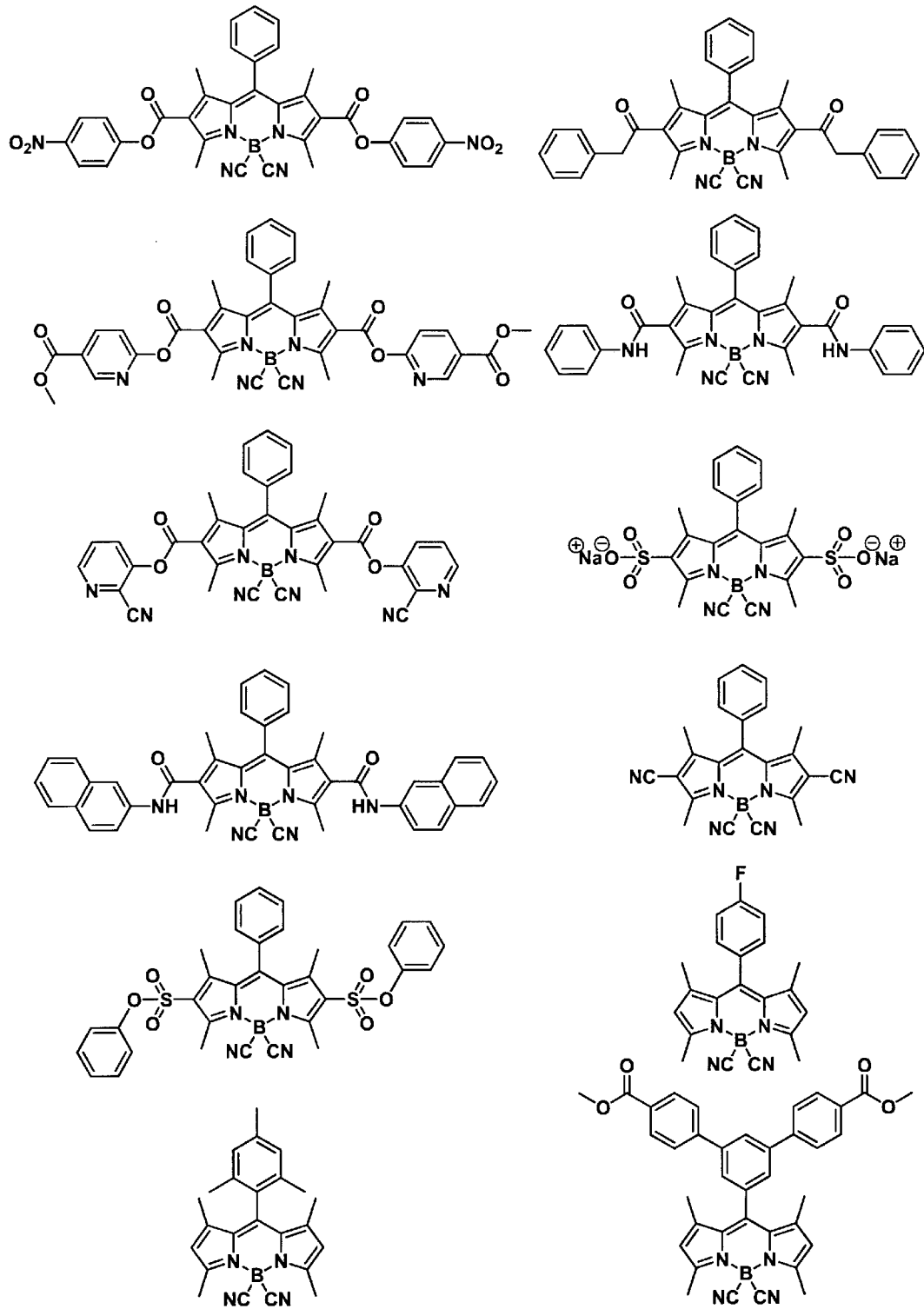
[0176]

[化11]



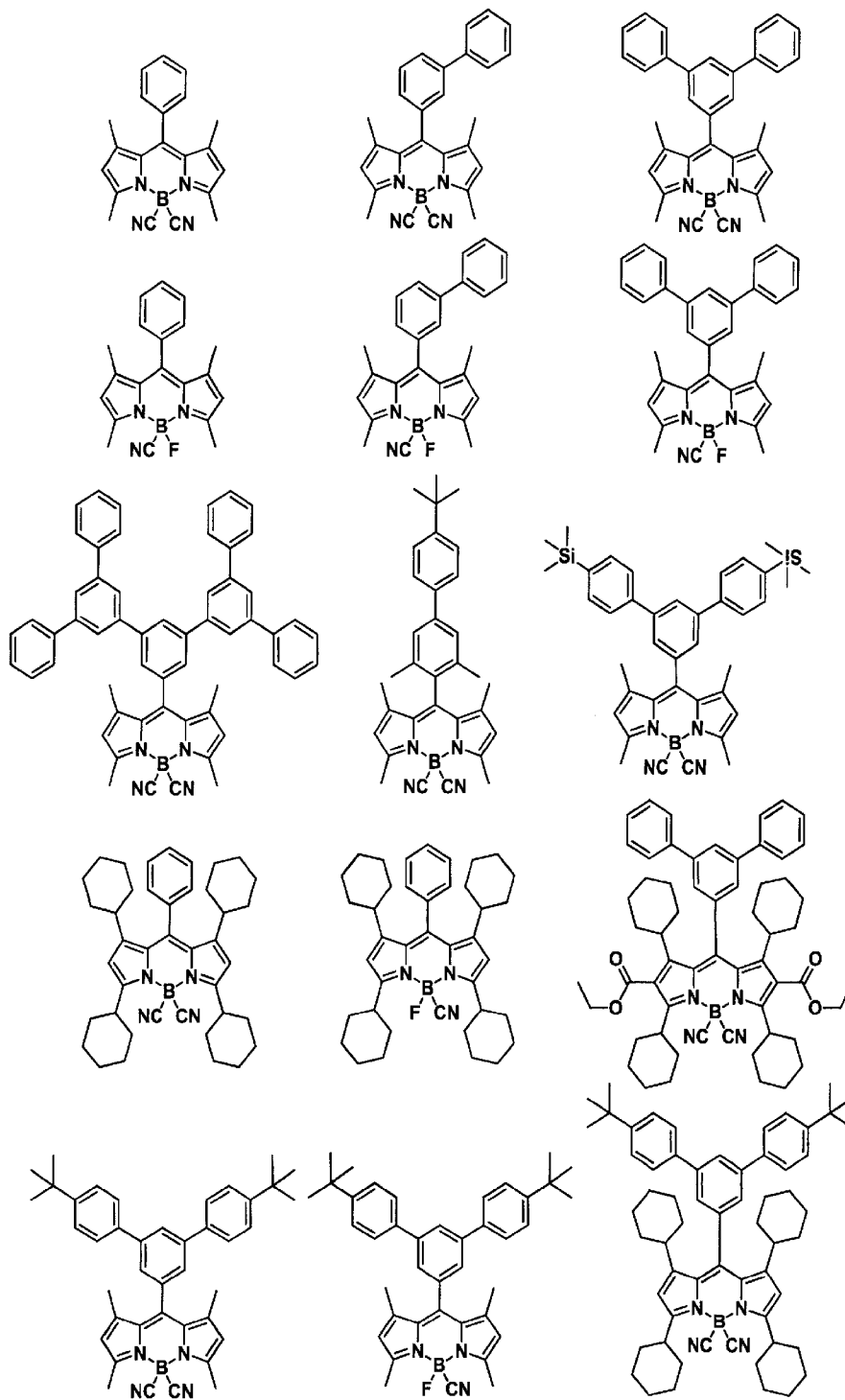
[0177]

[化12]



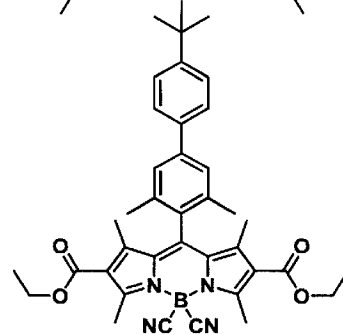
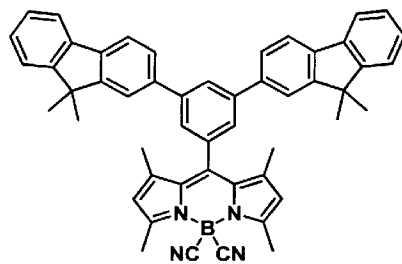
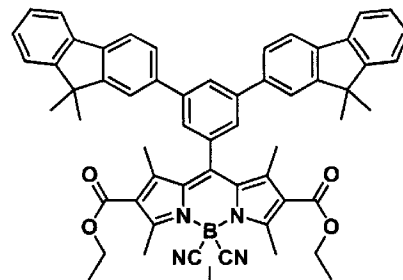
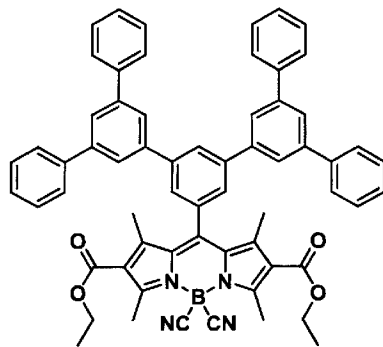
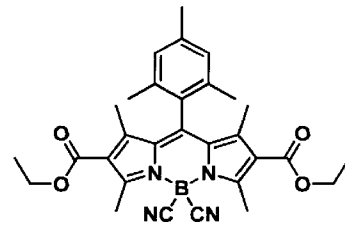
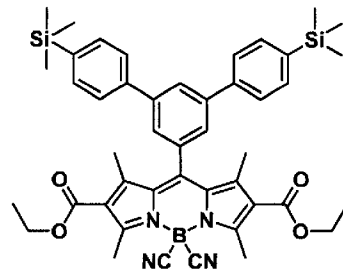
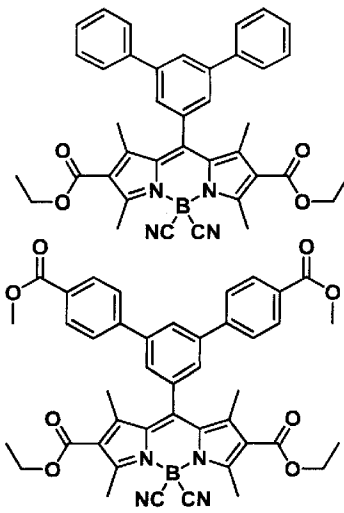
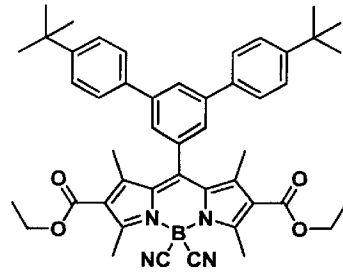
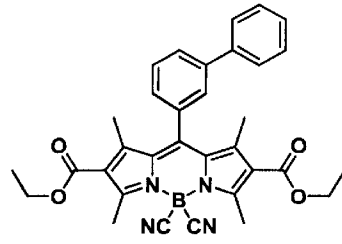
[0178]

[化13]



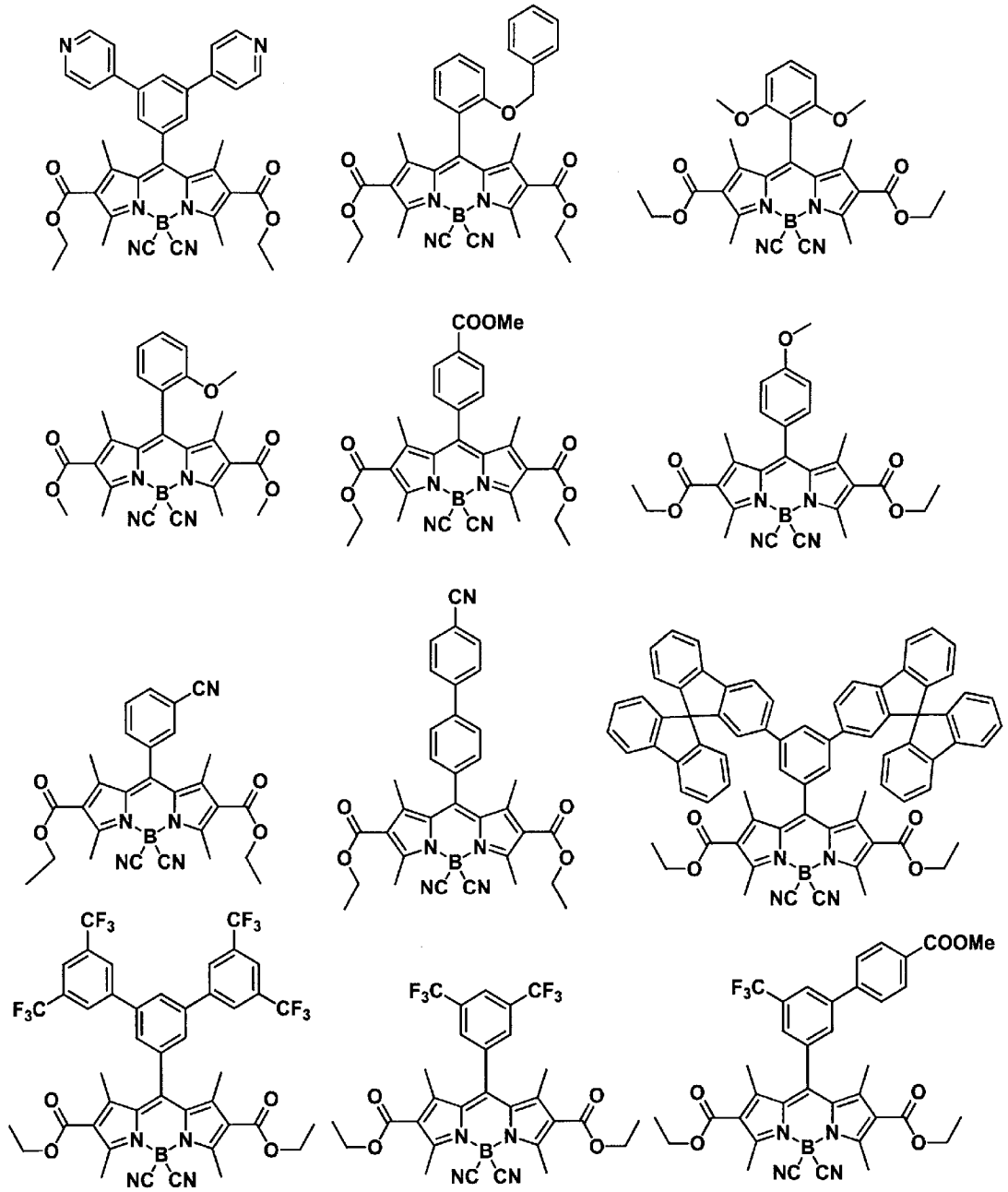
[0179]

[化14]



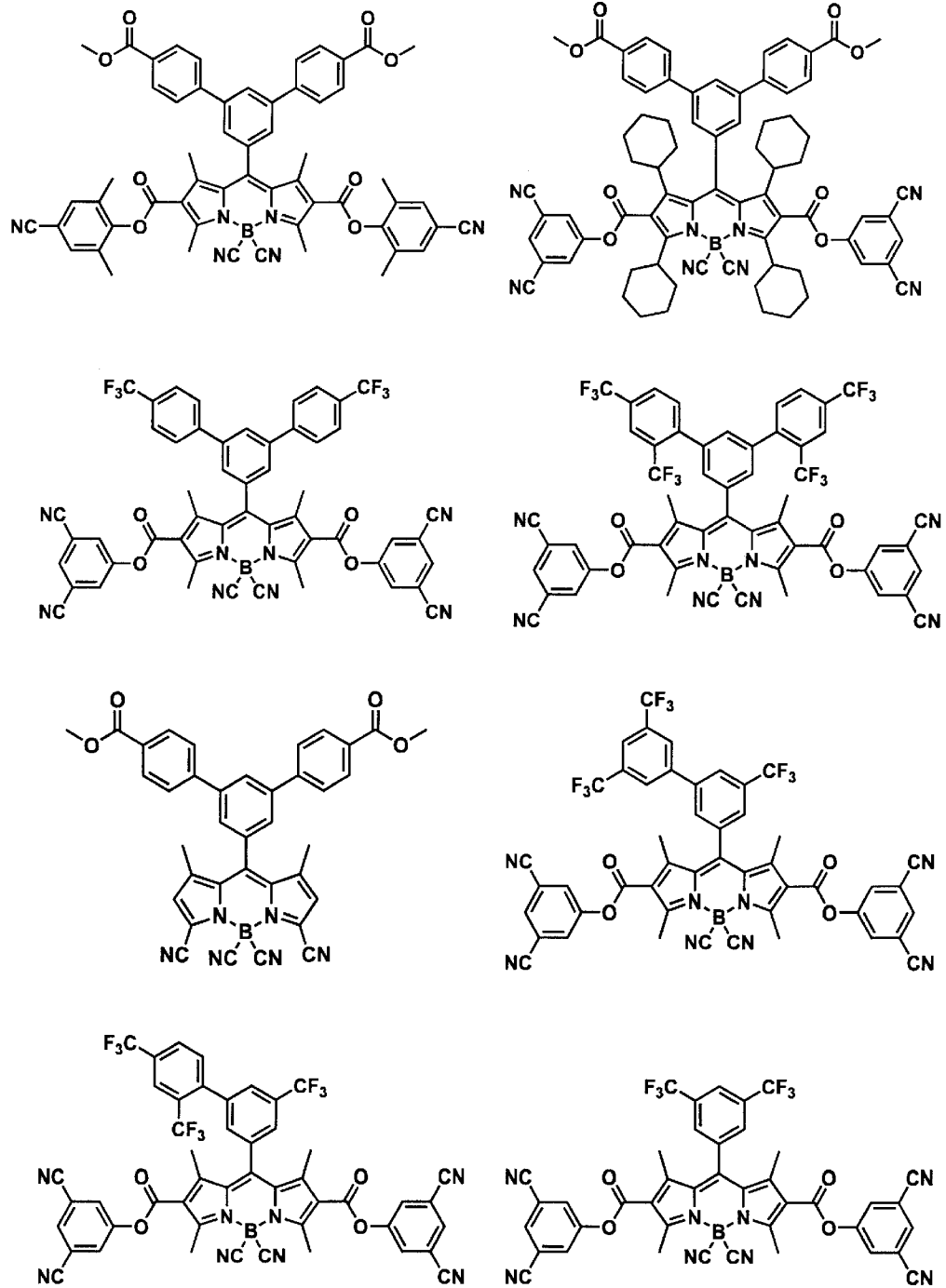
[0180]

[化15]



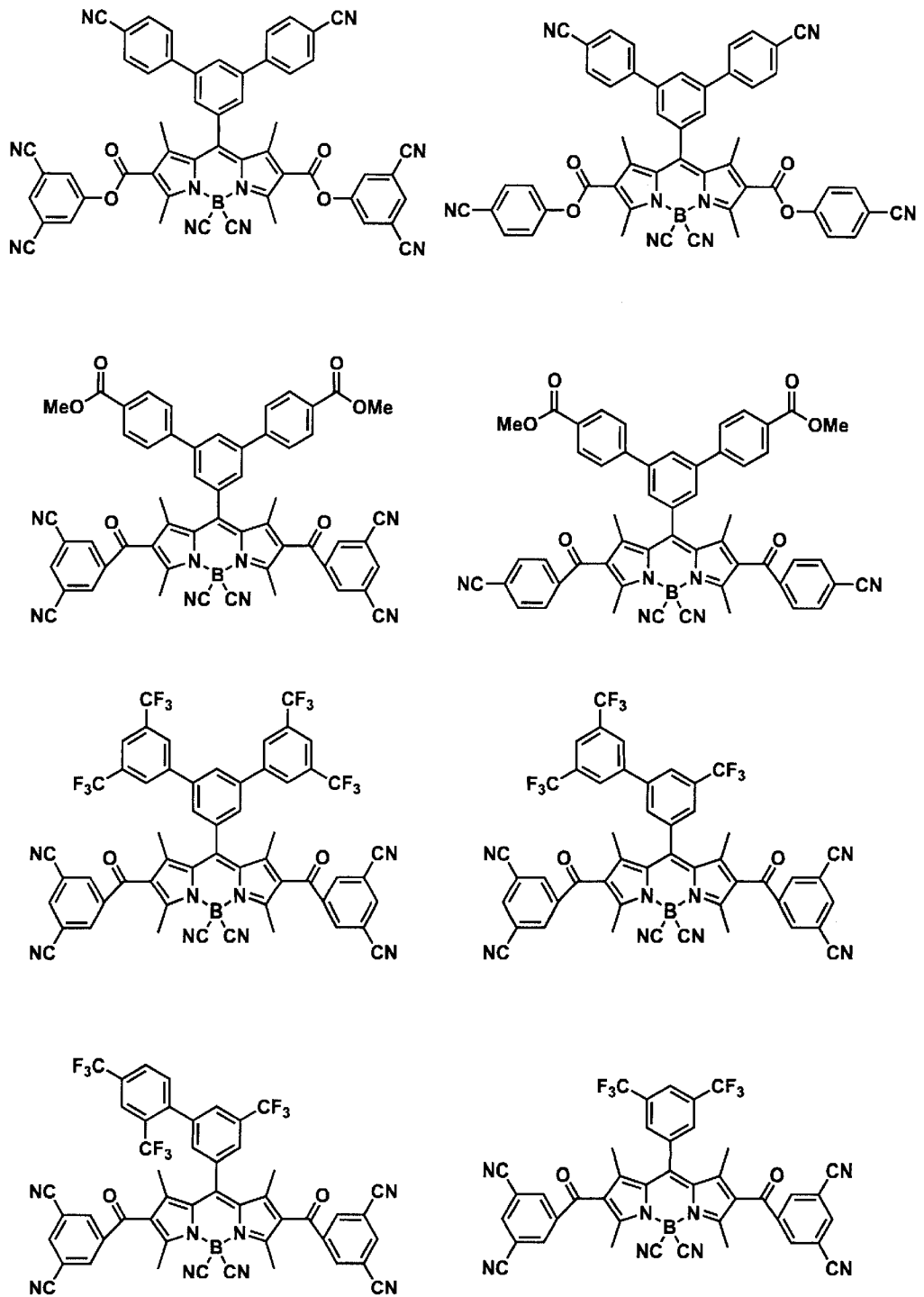
[0181]

[化16]



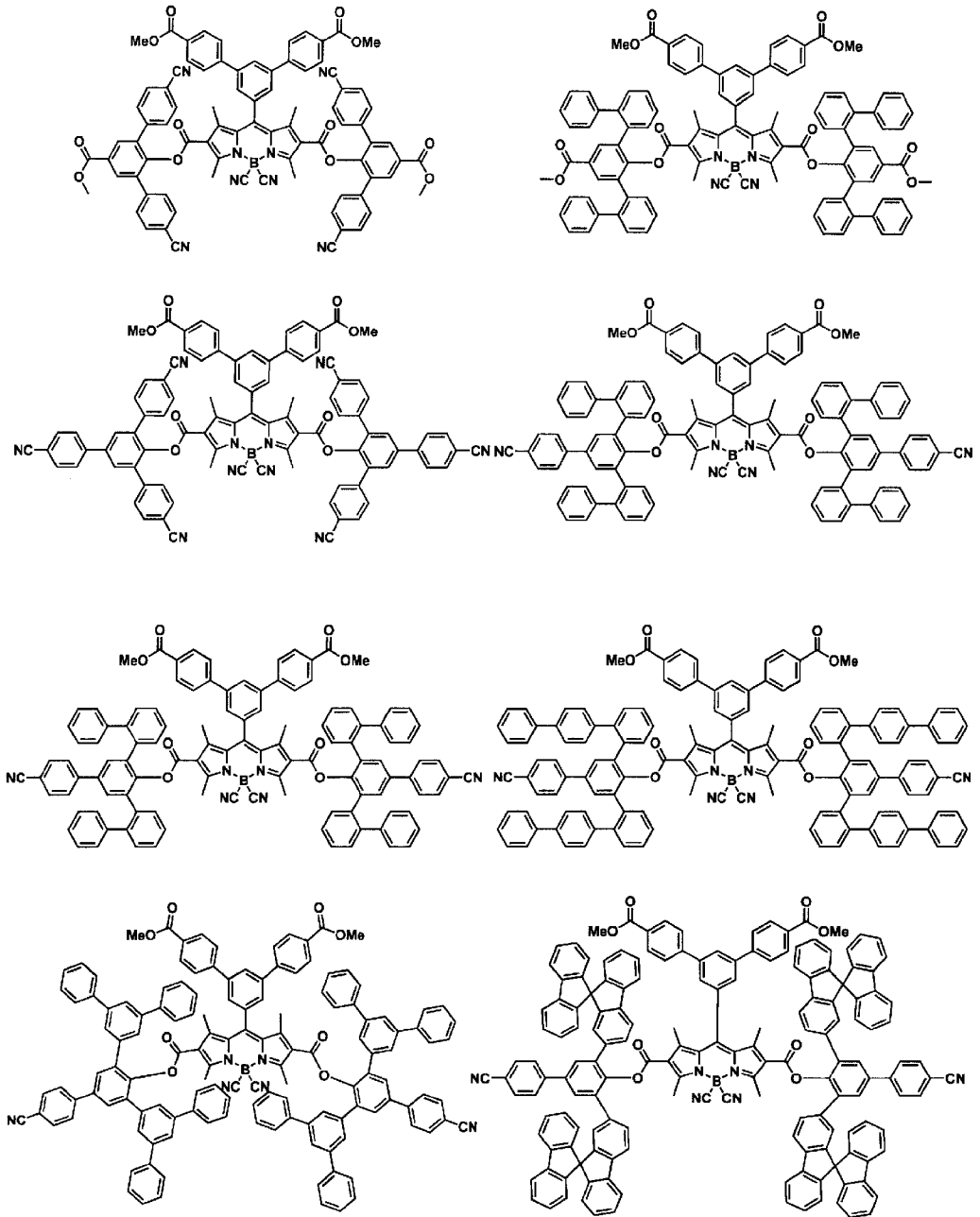
[0182]

[化17]



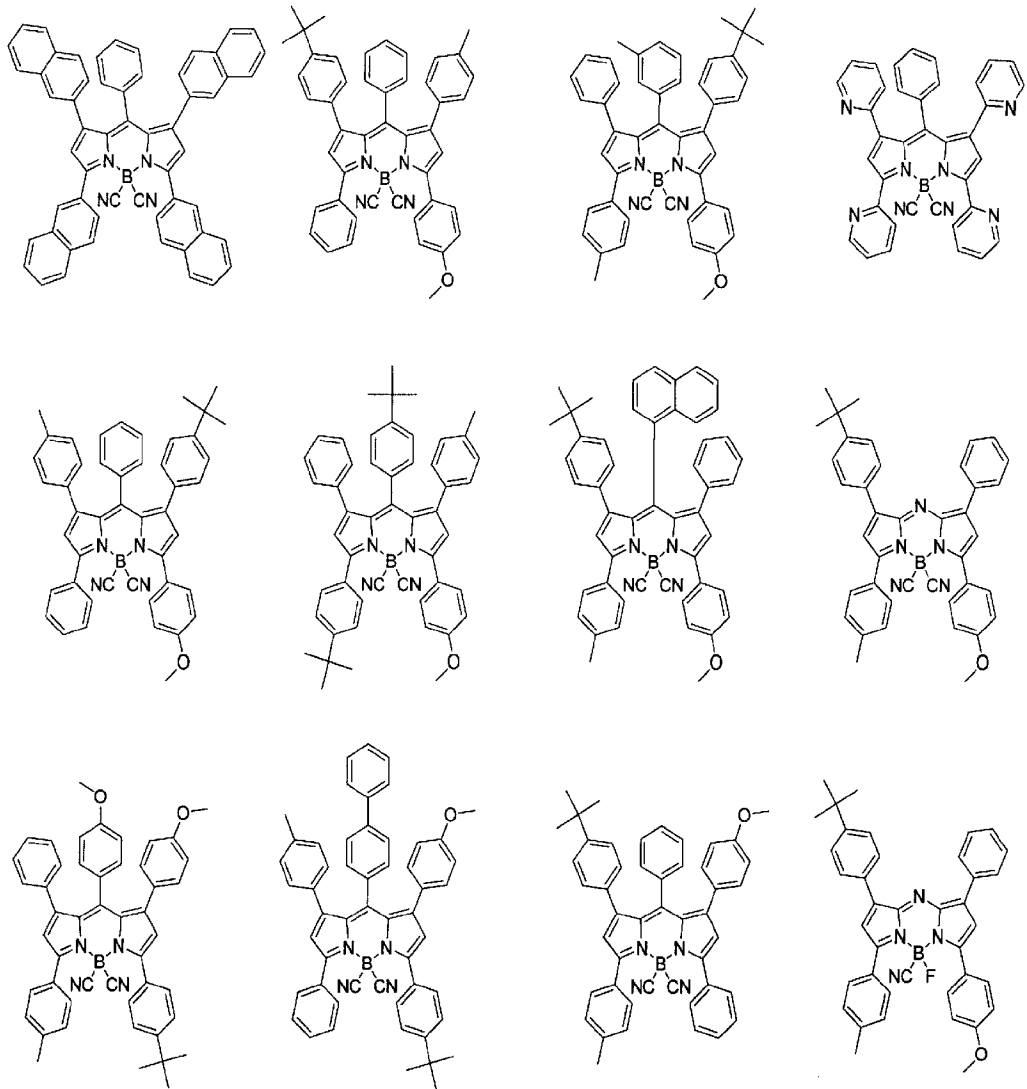
[0183]

[化18]



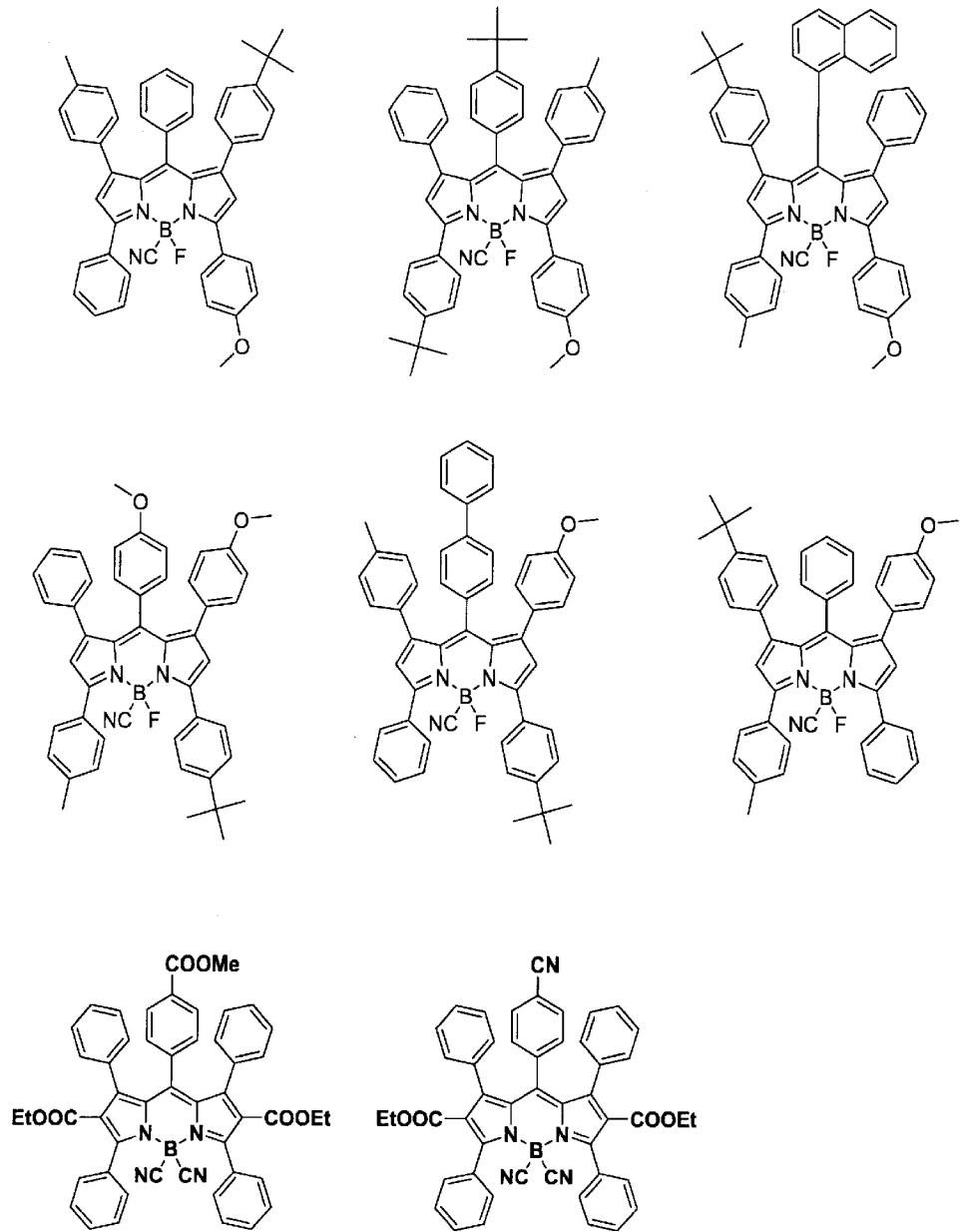
[0184]

[化19]



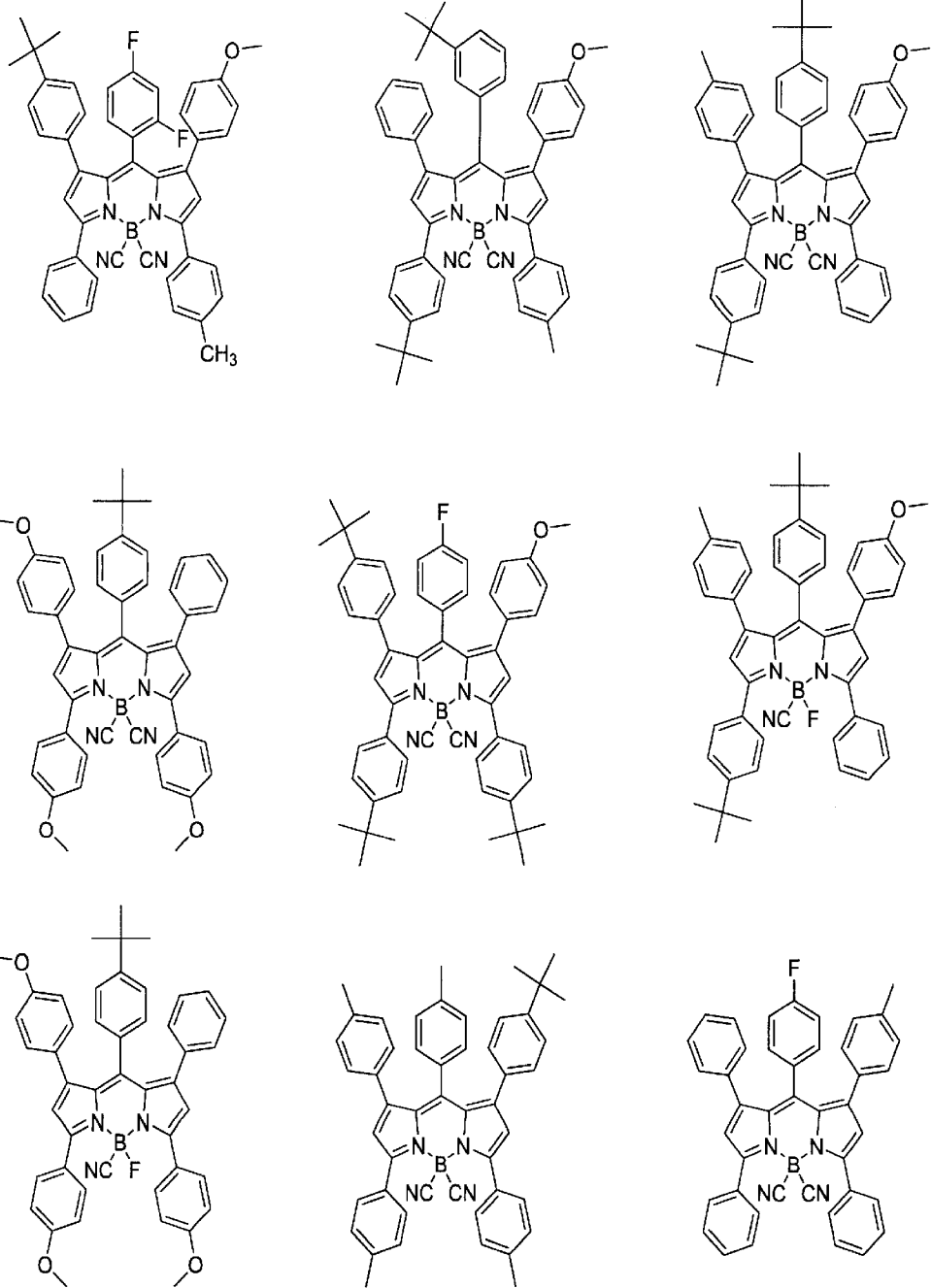
[0185]

[化20]



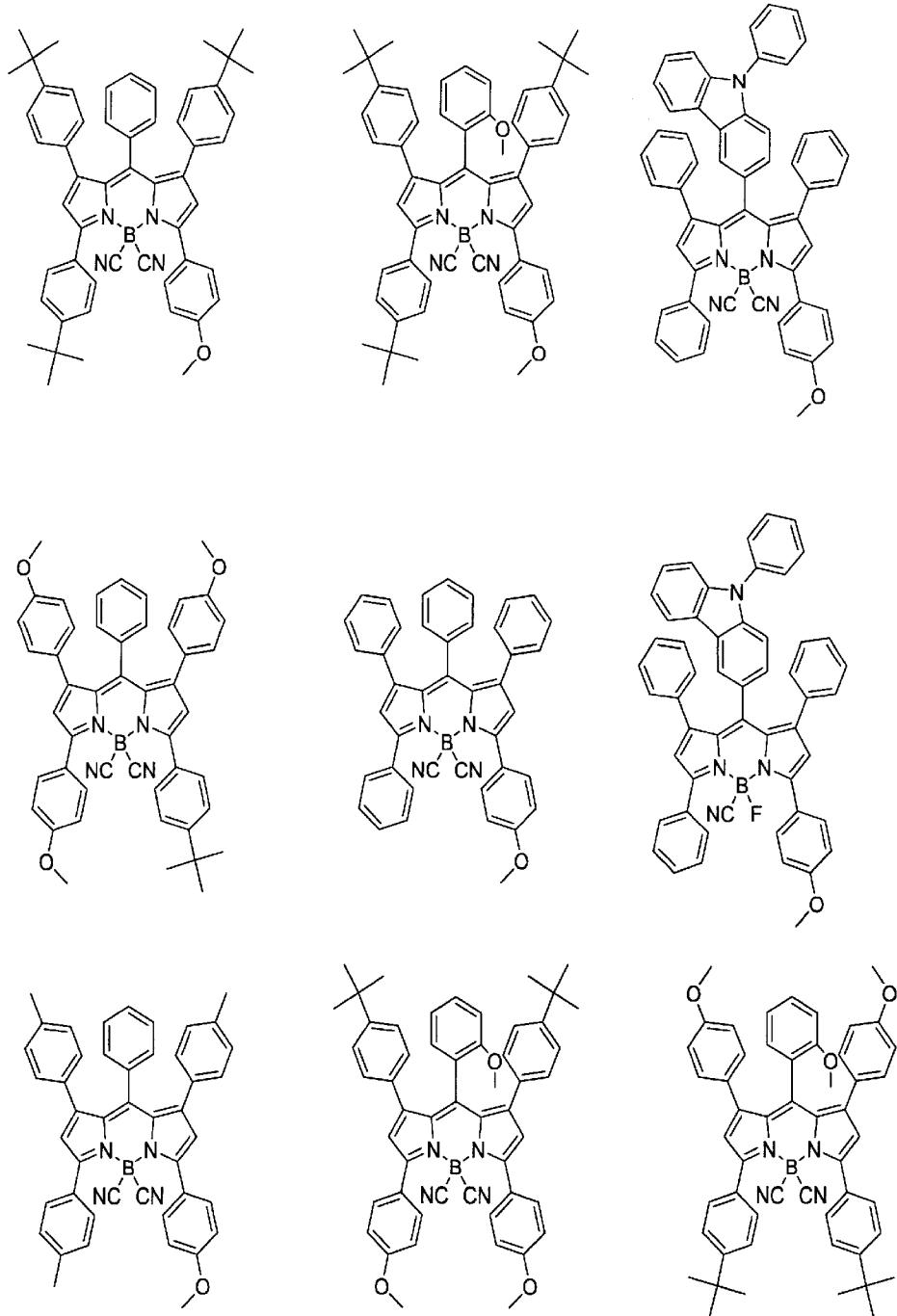
[0186]

[化21]



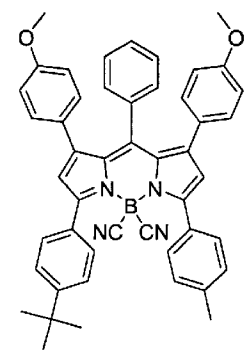
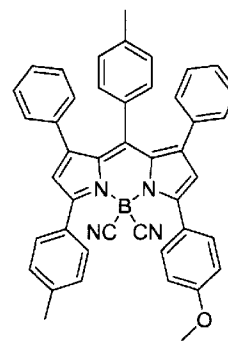
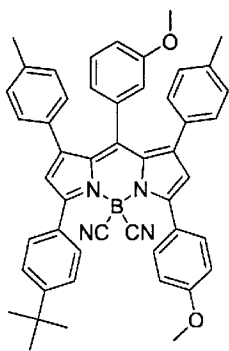
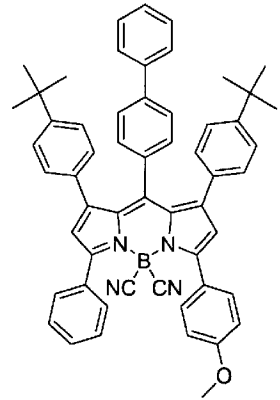
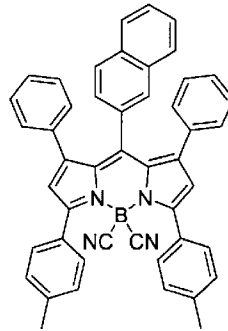
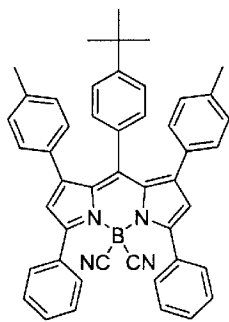
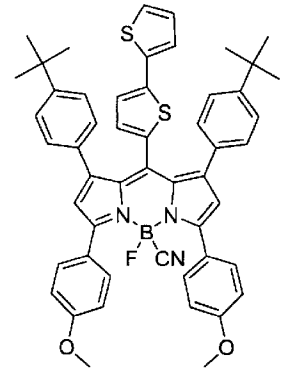
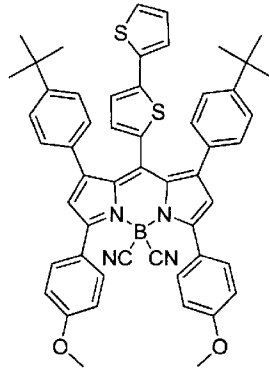
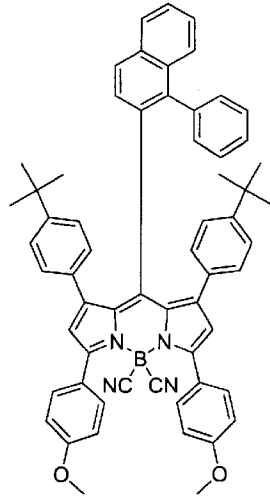
[0187]

[化22]



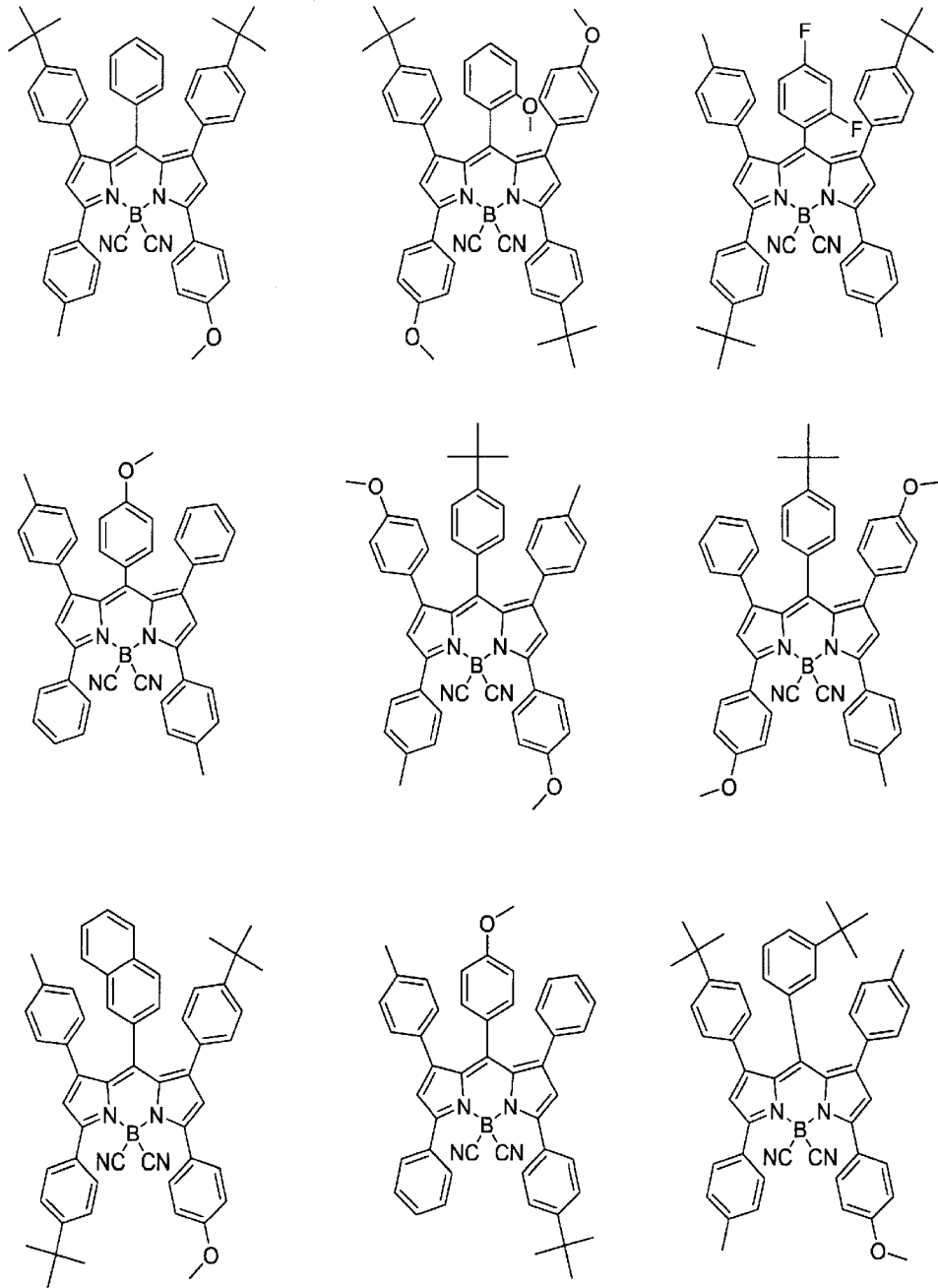
[0188]

[化23]



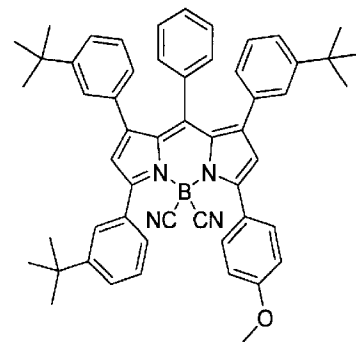
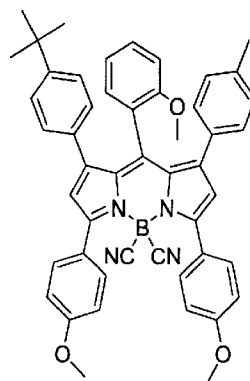
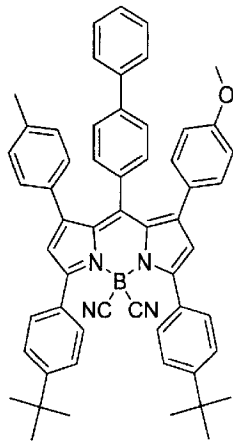
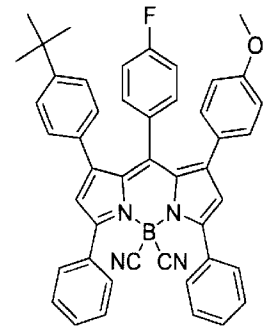
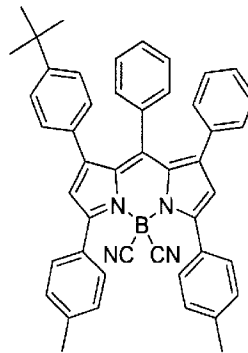
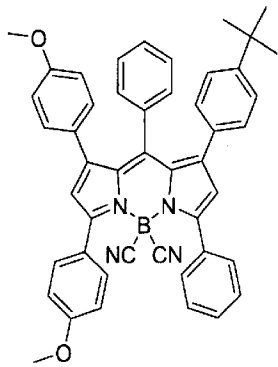
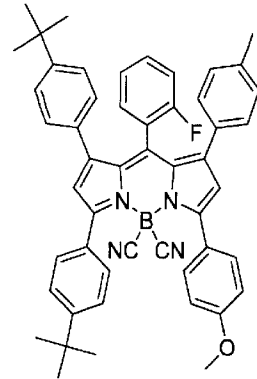
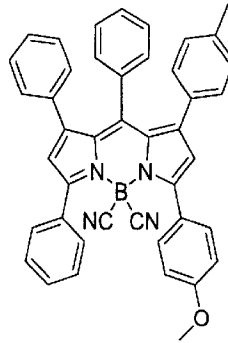
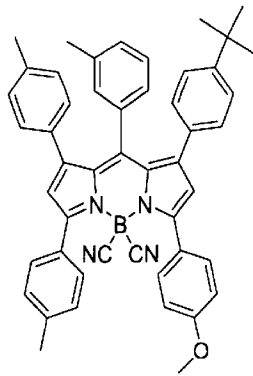
[0189]

[化24]



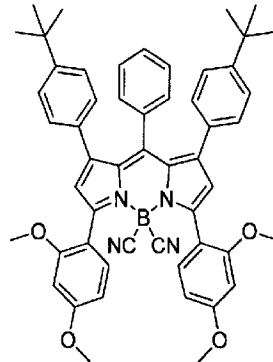
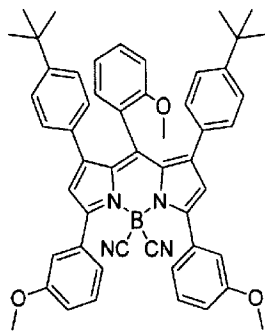
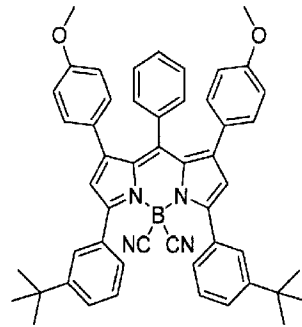
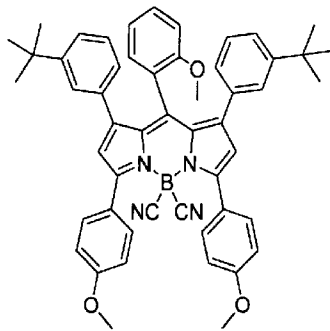
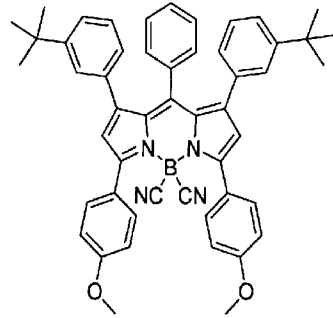
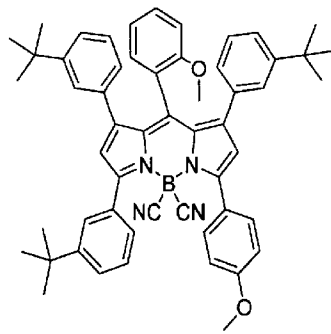
[0190]

[化25]



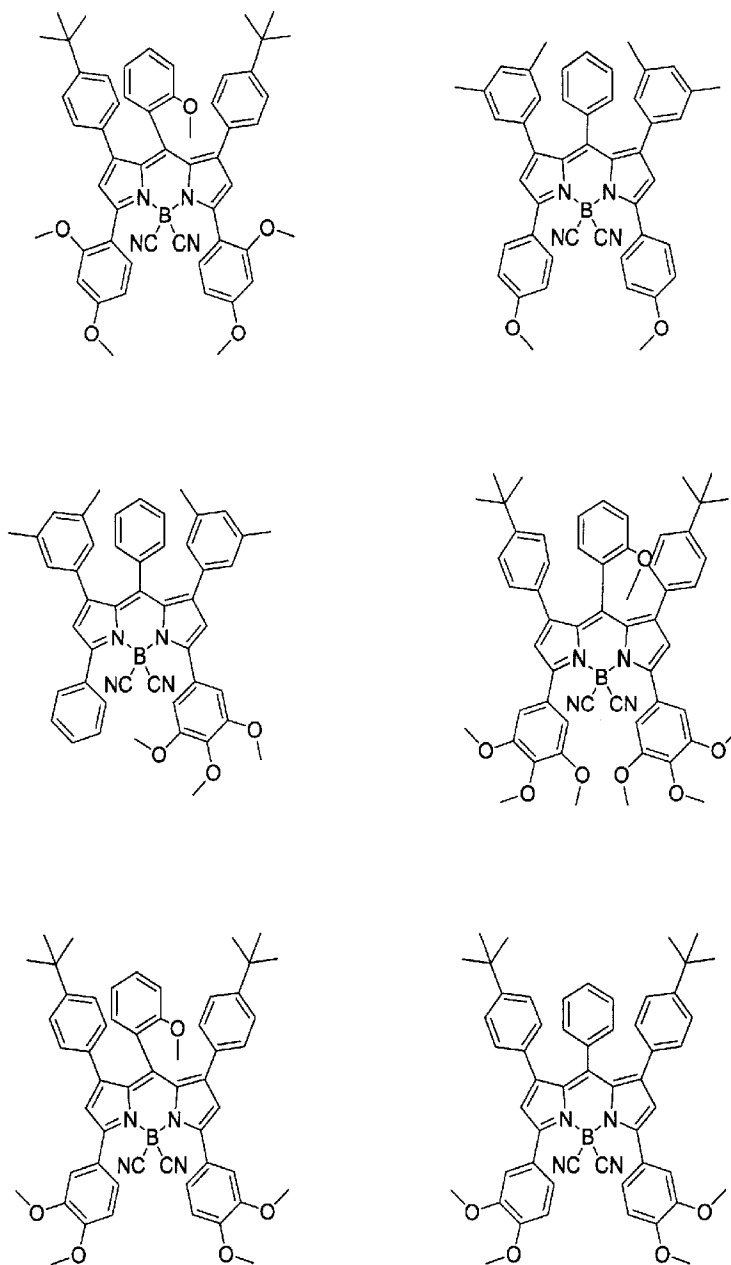
[0191]

[化26]



[0192]

[化27]

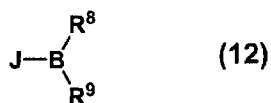
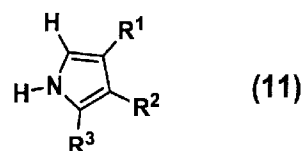
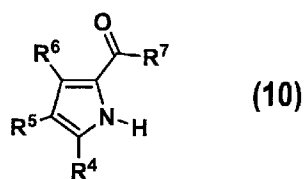


[0193] 一般式(1)で表される化合物は、例えば、特表平8-509471号公報や特開2000-208262号公報に記載の方法で製造することができる。すなわち、ピロメテン化合物と金属塩とを塩基共存下で反応することにより、目的とするピロメテン系金属錯体が得られる。

[0194] 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 (199

9)、Angew. Chem., Int. Ed. Engl., vol. 36, pp. 1333-1335 (1997)等に記載されている方法を参考に、一般式(1)で表される化合物を合成することができる。例えば、下記一般式(10)で表される化合物と一般式(11)で表される化合物とをオキシ塩化リン存在下、1,2-ジクロロエタン中で加熱した後、下記一般式(12)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、R¹~R⁹は、上記の説明と同様である。Jは、ハロゲンを表す。

[0195] [化28]



[0196] 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。

[0197] 一般式(1)で表される化合物は、励起光を用いることにより、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ことが

好ましい。以後、ピーク波長が500 nm以上580 nm以下の領域に観測される発光は、「緑色の発光」という。

[0198] 一般式(1)で表される化合物は、波長430 nm以上500 nm以下の範囲の励起光を用いることにより、緑色の発光を呈することが好ましい。一般に、励起光は、そのエネルギーが大きいほど、発光材料の分解を引き起こしやすい。しかし、波長430 nm以上500 nm以下の範囲の励起光は、比較的小さい励起エネルギーのものである。このため、色変換組成物中の発光材料の分解を引き起こすことなく、色純度の良好な緑色の発光が得られる。

[0199] 一般式(1)で表される化合物は、励起光を用いることにより、ピーク波長が580 nm以上750 nm以下の領域に観測される発光を呈することが好ましい。以後、ピーク波長が580 nm以上750 nm以下の領域に観測される発光は、「赤色の発光」という。

[0200] 一般式(1)で表される化合物は、波長430 nm以上500 nm以下の範囲の励起光を用いることにより、赤色の発光を呈することが好ましい。一般に、励起光は、そのエネルギーが大きいほど、発光材料の分解を引き起こしやすい。しかし、波長430 nm以上500 nm以下の範囲の励起光は、比較的小さい励起エネルギーのものである。このため、色変換組成物中の発光材料の分解を引き起こすことなく、色純度の良好な赤色の発光が得られる。

[0201] <色変換組成物>

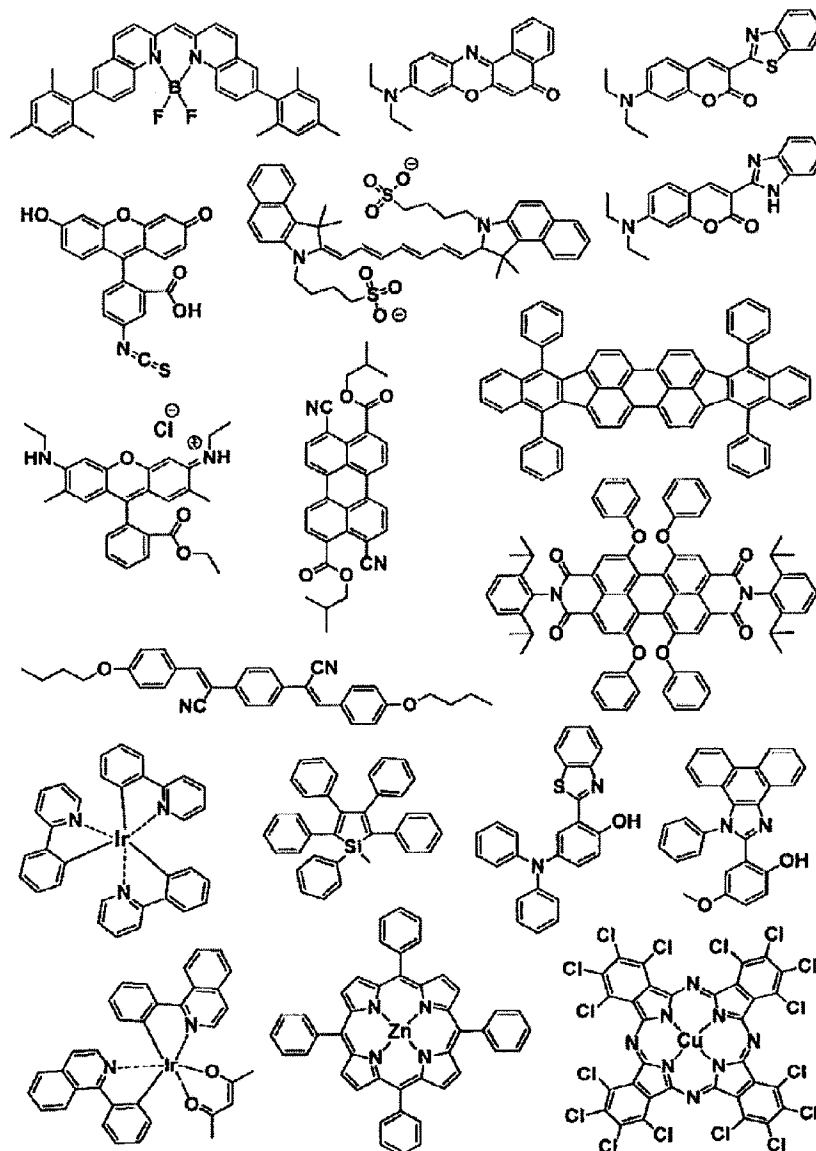
本発明の実施形態に係る色変換組成物について詳細に説明する。本発明の実施形態に係る色変換組成物は、光源等の発光体からの入射光を、その入射光よりも長波長の光に変換するものであって、上述した一般式(1)で表される化合物(ピロメテンハウ素錯体)およびバインダー樹脂を含むことが好ましい。

[0202] 本発明の実施形態に係る色変換組成物は、一般式(1)で表される化合物以外に、必要に応じてその他の化合物を適宜含有することができる。例えば

、励起光から一般式（１）で表される化合物へのエネルギー移動効率を更に高めるために、ルブレンなどのアシストドーパントを含有してもよい。また、一般式（１）で表される化合物の発光色以外の発光色を加味したい場合は、所望の有機発光材料、例えば、クマリン誘導体やローダミン誘導体等の有機発光材料を添加することができる。その他、有機発光材料以外でも、無機蛍光体、蛍光顔料、蛍光染料、量子ドット等の公知の発光材料を組み合わせることも可能である。

[0203] 以下に、一般式（１）で表される化合物以外の有機発光材料の一例を示すが、本発明は、特にこれらに限定されるものではない。

[0204] [化29]



[0205] 本発明において、色変換組成物は、励起光を用いることにより、ピーク波長が500nm以上580nm以下の領域に観測される発光を呈することが好ましい。また、色変換組成物は、励起光を用いることにより、ピーク波長が580nm以上750nm以下の領域に観測される発光を呈することが好ましい。

[0206] すなわち、本発明の実施形態に係る色変換組成物は、以下の発光材料(a)と発光材料(b)とを含有することが好ましい。発光材料(a)は、励起光を用いることによってピーク波長が500nm以上580nm以下の領域に観測される発光を呈する発光材料である。発光材料(b)は、励起光もしくは発光材料(a)からの発光の少なくとも一方によって励起されることにより、ピーク波長が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。これらの発光材料(a)および発光材料(b)のうちの少なくとも一つは、一般式(1)で表される化合物(ピロメテンホウ素錯体)であることが好ましい。また、上記の励起光として、波長430nm以上500nm以下の範囲の励起光を用いることがより好ましい。

[0207] 波長430nm以上500nm以下の範囲の励起光の一部は、本発明の実施形態に係る色変換フィルムを一部透過するため、発光ピークが鋭い青色LEDを使用した場合、青、緑、赤の各色において鋭い形状の発光スペクトルを示し、色純度の良い白色光を得ることができる。その結果、特にディスプレイにおいては、色彩が一層鮮やかな、より大きな色域を効率的に作ることができる。また、照明用途においては、現在主流となっている青色LEDと黄色蛍光体とを組み合わせた白色LEDに比べ、特に緑色領域および赤色領域の発光特性が改善されるため、演色性が向上した好ましい白色光源を得ることができる。

[0208] 発光材料(a)としては、クマリン6、クマリン7、クマリン153等のクマリン誘導体、インドシアニングリーン等のシアニン誘導体、フルオレセイン、フルオレセインイソチオシアネート、カルボキシフルオレセインジアセテート等のフルオレセイン誘導体、フタロシアニングリーン等のフタロシ

アニン誘導体、ジイソブチル-4, 10-ジシアノペリレン-3, 9-ジカルボキシレート等のペリレン誘導体、他にピロメテン誘導体、スチルベン誘導体、オキサジン誘導体、ナフタルイミド誘導体、ピラジン誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、ベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾチアゾール誘導体、イミダゾピリジン誘導体、アゾール誘導体、アントラセン等の縮合アリ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、発光材料(a)は、特にこれらに限定されるものではない。これらの化合物の中でも、ピロメテン誘導体は、高い発光量子収率を与え、色純度の高い発光を示すことから、特に好適な化合物である。ピロメテン誘導体の中でも、一般式(1)で表される化合物は、耐久性が大幅に向上するため、好ましい。

[0209] 発光材料(b)としては、4-ジシアノメチレン-2-メチル-6-(p-ジメチルアミノスチルリル)-4H-ピラン等のシアニン誘導体、ローダミンB、ローダミン6G、ローダミン101、スルホローダミン101等のローダミン誘導体、1-エチル-2-(4-(p-ジメチルアミノフェニル))-1,3-ブタジエニル)-ピリジニウム-パークロレート等のピリジン誘導体、N, N'-ビス(2,6-ジイソプロピルフェニル)-1,6,7,12-テトラフェノキシペリレン-3,4:9,10-ビスジカルボイミド等のペリレン誘導体、他にポルフィリン誘導体、ピロメテン誘導体、オキサジン誘導体、ピラジン誘導体、ナフタセンやジベンゾジインデノペリレン等の縮合アリ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、発光材料(b)は、特にこれらに限定されるものではない。これらの化合物の中でも、ピロメテン誘導体は、高い発光量子収率を与え、色純度の高い発光を示すことから、特に好適な化合物である。ピロメテン誘導体の中でも、一般式(1)で表される化合物は、耐久性が飛躍的に向上するため、好ましい。

[0210] また、発光材料(a)および発光材料(b)は、双方とも一般式(1)で表される化合物である場合、高効率発光および高色純度と、高い耐久性とを

両立させることが可能となるため、好ましい。

[0211] 本発明の実施形態に係る色変換組成物における一般式(1)で表される化合物の含有量は、化合物のモル吸光係数、発光量子収率および励起波長における吸収強度、ならびに作製するフィルムの厚みや透過率にもよるが、通常はバインダー樹脂の100重量部に対して、 1.0×10^{-4} 重量部～30重量部である。この化合物の含有量は、バインダー樹脂の100重量部に対して、 1.0×10^{-3} 重量部～10重量部であることがさらに好ましく、 1.0×10^{-2} 重量部～5重量部であることが特に好ましい。

[0212] また、色変換組成物に、緑色の発光を呈する発光材料(a)と、赤色の発光を呈する発光材料(b)とを両方含有する場合、緑色の発光の一部が赤色の発光に変換されることから、上記の発光材料(a)の含有量 w_a と、発光材料(b)の含有量 w_b とは、 $w_a \geq w_b$ の関係であることが好ましい。また、これらの発光材料(a)および発光材料(b)の含有比率は、 $w_a : w_b = 1000 : 1 \sim 1 : 1$ であり、 $500 : 1 \sim 2 : 1$ であることがさらに好ましく、 $200 : 1 \sim 3 : 1$ であることが特に好ましい。ただし、含有量 w_a および含有量 w_b は、バインダー樹脂の重量に対する重量パーセントである。

[0213] <バインダー樹脂>

バインダー樹脂は、連続相を形成するものであり、成型加工性、透明性、耐熱性等に優れる材料であればよい。バインダー樹脂の例としては、例えば、アクリル酸系、メタクリル酸系、ポリケイ皮酸ビニル系、環ゴム系等の反応性ビニル基を有する光硬化型レジスト材料、エポキシ樹脂、シリコーン樹脂(シリコーンゴム、シリコーンゲル等のオルガノポリシロキサン硬化物(架橋物)を含む)、ウレア樹脂、フッ素樹脂、ポリカーボネート樹脂、アクリル樹脂、ウレタン樹脂、メラミン樹脂、ポリビニル樹脂、ポリアミド樹脂、フェノール樹脂、ポリビニルアルコール樹脂、セルロース樹脂、脂肪族エステル樹脂、芳香族エステル樹脂、脂肪族ポリオレフィン樹脂、芳香族ポリオレフィン樹脂等の公知のものが挙げられる。また、バインダー樹脂としては、これらの共重合樹脂を用いても構わない。これらの樹脂を適宜設計する

ことで、本発明の実施形態に係る色変換組成物および色変換フィルムに有用なバインダー樹脂が得られる。これらの樹脂の中でも、フィルム化のプロセスが容易であることから、熱可塑性樹脂がさらに好ましい。熱硬化性樹脂の中でも、透明性、耐熱性等の観点から、エポキシ樹脂、シリコーン樹脂、アクリル樹脂、エステル樹脂、オレフィン樹脂またはこれらの混合物を好適に用いることができる。また、耐久性の観点から特に好ましい熱可塑性樹脂は、アクリル樹脂、エステル樹脂、シクロオレフィン樹脂である。

[0214] 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。

[0215] また、バインダー樹脂は、耐熱性の観点から、シリコーン樹脂であることが特に好ましい。シリコーン樹脂の中でも、付加反応硬化型シリコーン組成物が好ましい。付加反応硬化型シリコーン組成物は、常温または50℃～200℃の温度で、加熱、硬化し、透明性、耐熱性、接着性に優れる。付加反応硬化型シリコーン組成物は、一例として、「ケイ素原子に結合したアルケニル基を含有する化合物と、ケイ素原子に結合した水素原子を有する化合物とのヒドロシリル化反応により、形成される。このような材料のうち、「ケイ素原子に結合したアルケニル基を含有する化合物」としては、例えば、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、アリルトリメトキシシラン、プロペニルトリメトキシシラン、ノルボルネニルトリメトキシシラン、オクテニルトリメトキシシラン等が挙げられる。「ケイ素原子に結合した水素原子を有する化合物」としては、例えば、メチルヒドロジェンポリシロキサン、ジメチルポリシロキサン-CO-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-CO-メチルフェニルポリシロキサン等が挙げられる。また、付加反応硬化型シリコーン組成物としては、他にも、例えば特開2010-

159411号公報に記載されているような公知のものを利用することができる。

[0216] また、付加反応硬化型シリコン組成物としては、市販されているもの、例えば、一般的なLED用途のシリコン封止材を使用することも可能である。この具体例としては、東レ・ダウコーニング社製のOE-6630A/B、OE-6336A/Bや信越化学工業社製のSCR-1012A/B、SCR-1016A/B等が挙げられる。

[0217] 本発明の実施形態に係る色変換フィルム作製用の色変換組成物において、バインダー樹脂には、その他の成分として、常温での硬化を抑制してポットライフを長くするためにアセチレンアルコール等のヒドロシリル化反応遅延剤を配合することが好ましい。また、バインダー樹脂には、本発明の効果が損なわれない範囲で、必要に応じて、フェームドシリカ、ガラス粉末、石英粉末等の微粒子、酸化チタン、酸化ジルコニア、チタン酸バリウム、酸化亜鉛等の無機充填剤や顔料、難燃剤、耐熱剤、酸化防止剤、分散剤、溶剤、シランカップリング剤やチタンカップリング剤等の接着性付与剤等を配合してもよい。

[0218] 特に、色変換フィルムの表面平滑性の観点から、色変換フィルム作製用の組成物には、低分子量のポリジメチルシロキサン成分、シリコンオイル等を添加することが好ましい。このような成分は、この組成物の全体に対して、100ppm~2000ppm添加することが好ましく、500ppm~1000ppm添加することがさらに好ましい。

[0219] <その他の成分>

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

[0220] 光安定化剤としては、例えば、3級アミン、カテコール誘導体およびニッケル化合物を挙げることができるが、特に限定されるものではない。また、

これらの光安定化剤は、単独で使用してもよいし、複数併用してもよい。

[0221] 酸化防止剤としては、例えば、2, 6-ジ-tert-ブチル-p-クレゾール、2, 6-ジ-tert-ブチル-4-エチルフェノール等のフェノール系酸化防止剤を挙げることができるが、特にこれらに限定されるものではない。また、これらの酸化防止剤は、単独で使用してもよいし、複数併用してもよい。

[0222] 加工および熱安定化剤としては、例えば、トリブチルホスファイト、トリシクロヘキシルホスファイト、トリエチルホスフィン、ジフェニルブチルホスフィン等のリン系安定化剤を挙げることができるが、特にこれらに限定されるものではない。また、これらの安定化剤は、単独で使用してもよいし、複数併用してもよい。

[0223] 耐光性安定化剤としては、例えば、2-(5-メチル-2-ヒドロキシフェニル)ベンゾトリアゾール、2-[2-ヒドロキシ-3, 5-ビス(α , α -ジメチルベンジル)フェニル]-2H-ベンゾトリアゾール等のベンゾトリアゾール類を挙げることができるが、特にこれらに限定されるものではない。また、これらの耐光性安定化剤は、単独で使用してもよいし、複数併用してもよい。

[0224] 本発明の実施形態に係る色変換組成物において、これらの添加剤の含有量は、化合物のモル吸光係数、発光量子収率および励起波長における吸収強度、ならびに作製する色変換フィルムの厚みや透過率にもよるが、通常はバインダー樹脂の100重量部に対して、 1.0×10^{-3} 重量部以上30重量部以下であることが好ましい。また、これらの添加剤の含有量は、バインダー樹脂の100重量部に対して、 1.0×10^{-2} 重量部以上15重量部以下であることがさらに好ましく、 1.0×10^{-1} 重量部以上10重量部以下であることが特に好ましい。

[0225] <溶剤>

本発明の実施形態に係る色変換組成物は、溶剤を含んでいてもよい。溶剤は、流動状態の樹脂の粘度を調整でき、発光物質の発光および耐久性に過度

な影響を与えないものであれば、特に限定されない。このような溶媒として、例えば、トルエン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、ヘキサン、アセトン、テルピネオール、テキサノール、メチルセルソルブ、ブチルカルビトール、ブチルカルビトールアセテート、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート等が挙げられる。これらの溶剤を2種類以上混合して使用することも可能である。これらの溶剤の中で特にトルエンは、一般式(1)で表される化合物の劣化に影響を与えず、乾燥後の残存溶媒が少ない点で好適に用いられる。

[0226] <色変換組成物の製造方法>

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

[0227] <色変換フィルムの作製方法>

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

[0228] 図1は、本発明の実施形態に係る色変換フィルムの第一例を示す模式断面図である。図1に示すように、この第一例の色変換フィルム1Aは、色変換

層 1 1 によって構成される単層のフィルムである。色変換層 1 1 は、上述した色変換組成物の硬化物からなる層である。

[0229] 図 2 は、本発明の実施形態に係る色変換フィルムの第二例を示す模式断面図である。図 2 に示すように、この第二例の色変換フィルム 1 B は、基材層 1 0 と色変換層 1 1 との積層体である。この色変換フィルム 1 B の構造例では、色変換層 1 1 が、基材層 1 0 の上に積層されている。

[0230] 図 3 は、本発明の実施形態に係る色変換フィルムの第三例を示す模式断面図である。図 3 に示すように、この第三例の色変換フィルム 1 C は、複数の基材層 1 0 と、色変換層 1 1 との積層体である。この色変換フィルム 1 C の構造例では、色変換層 1 1 が、複数の基材層 1 0 によって挟まれている。

[0231] 図 4 は、本発明の実施形態に係る色変換フィルムの第四例を示す模式断面図である。図 4 に示すように、この第四例の色変換フィルム 1 D は、複数の基材層 1 0 と、色変換層 1 1 と、複数のバリアフィルム 1 2 との積層体である。この色変換フィルム 1 D の構造例では、色変換層 1 1 が、複数のバリアフィルム 1 2 によって挟まれ、さらに、これら色変換層 1 1 と複数のバリアフィルム 1 2 との積層体が、複数の基材層 1 0 によって挟まれている。すなわち、色変換フィルム 1 D は、色変換層 1 1 の酸素、水分や熱による劣化を防ぐために、図 4 に示すようにバリアフィルム 1 2 を有していてもよい。

[0232] (基材層)

基材層（例えば図 2～4 に示す基材層 1 0）としては、特に制限無く公知の金属、フィルム、ガラス、セラミック、紙等を使用することができる。具体的には、基材層として、アルミニウム（アルミニウム合金も含む）、亜鉛、銅、鉄等の金属板や箔、セルロースアセテート、ポリエチレンテレフタレート（PET）、ポリエチレン、ポリエステル、ポリアミド、ポリイミド、ポリフェニレンサルファイド、ポリスチレン、ポリプロピレン、ポリカーボネート、ポリビニルアセタール、アラミド、シリコーン、ポリオレフィン、熱可塑性フッ素樹脂、テトラフルオロエチレンとエチレンとの共重合体（ETFE）等のプラスチックのフィルム、 α -ポリオレフィン樹脂、ポリカブ

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等が挙げられる。また、基材層が金属板である場合、その表面にクロム系やニッケル系等のメッキ処理やセラミックが施されていてもよい。

[0233] これらの中でも、色変換フィルムの作製のし易さや色変換フィルムの成形のし易さから、ガラスや樹脂フィルムが好ましく用いられる。また、フィルム状の基材層を取り扱う際に破断等の恐れがないように、強度が高いフィルムが好ましい。それらの要求特性や経済性の面で樹脂フィルムが好ましく、これらの中でも、経済性、取り扱い性の面でPET、ポリフェニレンサルファイド、ポリカーボネート、ポリプロピレンからなる群より選ばれるプラスチックフィルムが好ましい。また、色変換フィルムを乾燥させる場合や色変換フィルムを押し出し機により200℃以上の高温で圧着成形する場合は、耐熱性の面でポリイミドフィルムが好ましい。フィルムの剥離のし易さから、基材層は、予め表面が離型処理されていてもよい。

[0234] 基材層の厚さは、特に制限はないが、下限としては25μm以上が好ましく、38μm以上がより好ましい。また、上限としては5000μm以下が好ましく、3000μm以下がより好ましい。

[0235] (色変換層)

つぎに、本発明の実施形態に係る色変換フィルムの色変換層の製造方法の一例を説明する。この色変換層の製造方法では、上述した方法で作製した色変換組成物を、基材層やバリアフィルム等の下地上に塗布し、乾燥させる。このようにして、色変換層（例えば図1～4に示す色変換層11）が形成される。塗布は、リバースロールコーター、ブレードコーター、スリットダイコーター、ダイレクトグラビアコーター、オフセットグラビアコーター、キスコーター、ナチュラルロールコーター、エアナイフコーター、ロールブ

レードコーター、リバーロールブレードコーター、トゥーストリームコーター、ロッドコーター、ワイヤーバーコーター、アプリケーター、ディップコーター、カーテンコーター、スピンコーター、ナイフコーター等により、行うことができる。色変換層の膜厚均一性を得るためには、スリットダイコーターで塗布することが好ましい。

[0236] 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。

[0237] 色変換層を作製した後、必要に応じて基材層を変更することも可能である。この場合、簡易的な方法としては、例えば、ホットプレートを用いて貼り替えを行なう方法や、真空ラミネーターやドライフィルムラミネーターを用いた方法等が挙げられるが、これらに限定されない。

[0238] 色変換層の厚みは、特に制限はないが、10μm～1000μmであることが好ましい。色変換層の厚みが10μmより小さいと、色変換フィルムの強靱性が小さくなるという問題がある。色変換層の厚みが1000μmを超えると、クラックが生じやすくなり、色変換フィルム成形が難しい。色変換層の厚みとして、より好ましくは、30μm～100μmである。

[0239] 一方で、色変換フィルムの耐熱性を高めるという観点からは、色変換フィルムの膜厚は、200μm以下であることが好ましく、100μm以下であることがより好ましく、50μm以下であることがさらに好ましい。

[0240] 本発明における色変換フィルムの膜厚は、JIS K7130(1999)プラスチックフィルム及びシート—厚さ測定方法における機械的走査による厚さの測定方法A法に基づいて測定される膜厚(平均膜厚)のことをいう。

[0241] (バリアフィルム)

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

[0242] バリアフィルムは、図4に例示したバリアフィルム12のように色変換層11の両面に設けられてもよいし、色変換層11の片面だけに設けられてもよい。また、色変換フィルムの要求される機能に応じて、反射防止機能、防眩機能、反射防止防眩機能、ハードコート機能（耐摩擦機能）、帯電防止機能、防汚機能、電磁波シールド機能、赤外線カット機能、紫外線カット機能、偏光機能、調色機能を有した補助層をさらに設けてもよい。

[0243] <励起光>

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

色光の色純度を高められる点で、430nm～500nmの波長範囲の励起光を持つ青色LED光源からの光が、さらに好適な励起光である。

[0244] 励起光は、1種類の発光ピークを持つものでもよく、2種類以上の発光ピークを持つものでもよいが、色純度を高めるためには、1種類の発光ピークを持つものが好ましい。また、発光ピークの種類の異なる複数の励起光源を任意に組み合わせて使用することも可能である。

[0245] <光源ユニット>

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

[0246] 前述の通り、430nm～500nmの波長範囲の励起光は、比較的小さい励起エネルギーのものであり、一般式(1)で表される化合物等の発光物質の分解を防止できる。したがって、光源ユニットに用いる光源は、波長430nm以上500nm以下の範囲に極大発光を有する発光ダイオードであることが好ましい。さらに、この光源は、波長440nm以上470nm以下の範囲に極大発光を有することが好ましい。

[0247] また、光源は、その発光波長ピークが430nm～470nmの範囲にあり、かつ発光波長領域が400nm～500nmの範囲にある発光ダイオードであって、発光スペクトルが、数式(f2)を満たす発光ダイオードであることが好ましい。

[0248] [数1]

$$1 > \beta/\alpha \geq 0.15 \quad \dots (f2)$$

[0249] 数式(f2)において、 α は、発光スペクトルの発光波長ピークにおける発光強度である。 β は、発光波長ピークに15nmを加算した波長における発光強度である。

[0250] 本発明における光源ユニットは、ディスプレイ、照明、インテリア、標識、看板等の用途に使用できるが、特にディスプレイや照明用途に好適に用いられる。

[0251] <ディスプレイ、照明装置>

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

[0252] <発光素子>

本発明の実施形態に係る発光素子は、電気エネルギーによって発光する発光素子であり、例えば、有機薄膜発光素子であることが好ましい。より具体的には、この発光素子は、陽極および陰極と、これら陽極と陰極との間に介在する有機層とを有する。この有機層は、上述した一般式(1)で表される化合物(ピロメテンホウ素錯体)を含有する。例えば、この有機層は、少なくとも発光層と電子輸送層とを有し、この発光層に上述のピロメテンホウ素錯体を含有することが好ましい。この発光素子は、このような有機層、特に発光層が電気エネルギーにより発光する発光素子であることが好ましい。

[0253] 本発明の実施形態に係る発光素子において、有機層は、少なくとも発光層と電気輸送層とを含む積層体である。この有機層の積層構成として、発光層と電子輸送層とからなる積層構成(発光層/電子輸送層)が一例として挙げられる。また、この有機層の積層構成としては、発光層/電子輸送層のみからなる積層構成の他に、以下に示す第一~第三の積層構成等が挙げられる。第一の積層構成としては、例えば、正孔輸送層と発光層と電子輸送層とを積層した構成(正孔輸送層/発光層/電子輸送層)が挙げられる。第二の積層

構成としては、例えば、正孔輸送層と発光層と電子輸送層と電子注入層とを積層した構成（正孔輸送層／発光層／電子輸送層／電子注入層）が挙げられる。第三の積層構成としては、例えば、正孔注入層と正孔輸送層と発光層と電子輸送層と電子注入層とを積層した構成（正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／電子注入層）が挙げられる。また、上記各層は、それぞれ単一層、複数層のいずれでもよい。また、本実施形態における発光素子は、上記有機層に燐光発光層や蛍光発光層を複数有する積層型のものであってもよく、蛍光発光層と燐光発光層とを組み合わせた発光素子でもよい。さらに、この発光素子の有機層には、それぞれ互いに異なる発光色を示す複数の発光層を積層することができる。

[0254] また、本実施形態に係る発光素子は、上記の積層構成を、中間層を介して複数積層したタンデム型のものであってもよい。このようなタンデム型の発光素子の積層構成において、少なくとも一層は、燐光発光層であることが好ましい。上記中間層は、一般的に、中間電極、中間導電層、電荷発生層、電子引抜層、接続層、中間絶縁層とも呼ばれる。このような中間層としては、公知の材料構成の層を用いることができる。タンデム型の発光素子の具体的な積層構成例としては、例えば、以下に示す第四および第五の積層構成のように、陽極と陰極との間に中間層として電荷発生層を含む積層構成が挙げられる。第四の積層構成としては、例えば、正孔輸送層／発光層／電子輸送層と、電荷発生層と、正孔輸送層／発光層／電子輸送層との積層構成（正孔輸送層／発光層／電子輸送層／電荷発生層／正孔輸送層／発光層／電子輸送層）が挙げられる。第五の積層構成としては、例えば、正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／電子注入層と、電荷発生層と、正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／電子注入層との積層構成（正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／電子注入層／電荷発生層／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／電子注入層）が挙げられる。上記中間層を構成する材料としては、具体的には、ピリジン誘導体、フェナントロリン誘導体が好ましく用いられる。

[0255] 本発明の実施形態に係るピロメテンホウ素錯体は、上記した発光素子の積層構成において、いずれの有機層に用いられてもよいが、高い発光量子収率を有しているため、発光素子の発光層に用いることが好ましい。

[0256] (発光層)

本実施形態に係る発光素子に含まれる発光層は、単一層、複数層のどちらでもよく、いずれの場合であっても、発光材料（ホスト材料、ドーパント材料）により形成される。発光層を構成する発光材料は、ホスト材料とドーパント材料との混合物であってもよいし、ホスト材料単独からなるものであってもよい。また、ホスト材料およびドーパント材料は、それぞれ一種類であってもよいし、複数種類の組み合わせであってもよい。ドーパント材料は、ホスト材料の全体に含まれていてもよいし、ホスト材料に部分的に含まれていてもよい。ドーパント材料は、ホスト材料内において、積層されていてもよいし、分散されていてもよい。ホスト材料とドーパント材料とが混合されてなる発光層は、ホスト材料とドーパント材料との共蒸着法や、ホスト材料とドーパント材料とを予め混合してから蒸着する方法で形成できる。

[0257] 発光層の発光材料としては、具体的には、以前から発光体として知られていたアントラセンやピレンなどの縮合環誘導体、トリス（8-キノリノラト）アルミニウムを始めとする金属キレート化オキシノイド化合物、ビススチリルアントラセン誘導体やジスチリルベンゼン誘導体などのビススチリル誘導体、ジベンゾフラン誘導体、カルバゾール誘導体、インドロカルバゾール誘導体、などが使用できる。しかし、当該発光材料は、特にこれらに限定されるものではない。

[0258] ホスト材料としては、特に限定されないが、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、インデンなどの縮合アリアル環を有する化合物やその誘導体などが挙げられる。ホスト材料は、これらの中でも、アントラセン誘導体またはナフタセン誘導体であることが特に好ましい。

[0259] ドーパント材料としては、特に限定されないが、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、トリフェニレン、ペリレン、フルオランテン、フルオレン、インデンなどの縮合アリール環を有する化合物やその誘導体（例えば2-（ベンゾチアゾール-2-イル）-9, 10-ジフェニルアントラセンや5, 6, 11, 12-テトラフェニルナフタセンなど）、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）スチルベンなどのアミノスチリル誘導体、ピロメテン誘導体、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'-ジアミンに代表される芳香族アミン誘導体などが挙げられる。

[0260] また、本実施形態に係る発光層には、燐光発光材料が含まれていてもよい。燐光発光材料とは、室温でも燐光発光を示す材料である。ドーパント材料として燐光発光材料を用いる場合は、基本的に室温でも燐光発光が得られる必要がある。この燐光発光が得られる限り、ドーパント材料としての燐光発光材料は、特に限定されるものではない。例えば、この燐光発光材料としては、イリジウム（I r）、ルテニウム（R u）、ロジウム（R h）、パラジウム（P d）、白金（P t）、オスミウム（O s）、及びレニウム（R e）からなる群から選択される少なくとも一つの金属を含む有機金属錯体化合物であることが好ましい。中でも、室温でも高い燐光発光収率を有するという観点から、イリジウム、もしくは白金を有する有機金属錯体がより好ましい。

[0261] 本発明の実施形態に係るピロメテンホウ素錯体は、高い発光性能を有することから、上述した発光素子の発光材料として用いることができる。本発明の実施形態に係るピロメテンホウ素錯体は、緑色から赤色までの波長領域（500nm～750nmの波長領域）に強い発光を示すことから、緑色および赤色の発光材料として好適に用いることができる。本発明の実施形態に係るピロメテンホウ素錯体は、高い発光量子収率をもつことから、上述した発光層のドーパント材料として好適に用いられる。

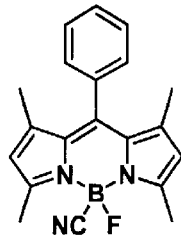
[0262] 本発明の実施形態に係る発光素子は、各種機器等のバックライトとしても好ましく用いられる。このバックライトは、主に自発光しない表示装置の視認性を向上させるという目的に使用され、例えば、液晶表示装置、時計、オーディオ装置、自動車パネル、表示板および標識などに使用される。特に、液晶表示装置、中でも薄型化が検討されているパソコンのディスプレイ用途のバックライトに、本発明の発光素子は好ましく用いられる。このように、本発明の発光素子によれば、従来のバックライトに比べて、より薄型で軽量のバックライトを提供できる。

実施例

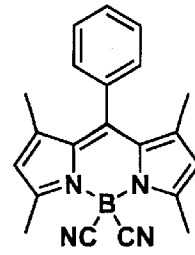
[0263] 以下、実施例を挙げて本発明を説明するが、本発明は下記の実施例によって限定されるものではない。下記の実施例および比較例において、化合物G-1~G-38、G-101~G-108、R-1~R-5、R-101~R-106は、以下に示す化合物である。

[0264]

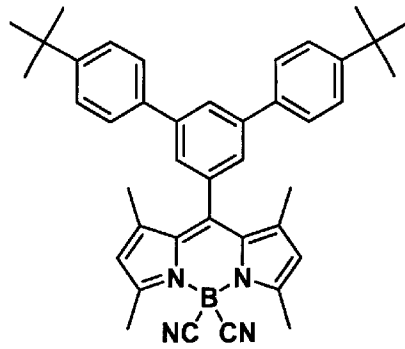
[化30]



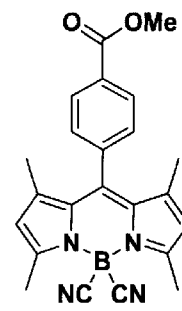
G-1



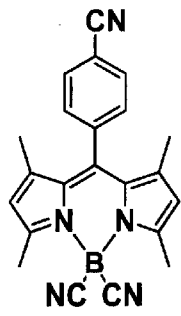
G-2



G-3



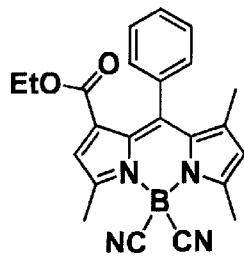
G-4



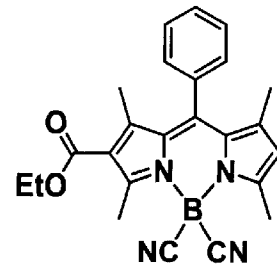
G-5



G-6



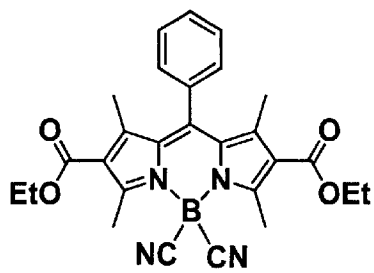
G-7



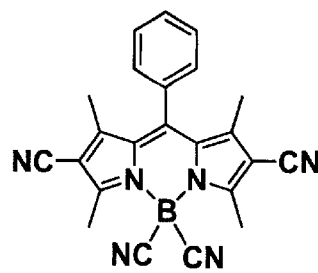
G-8

[0265]

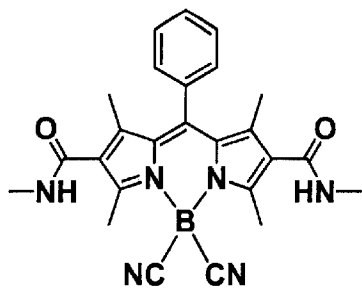
[化31]



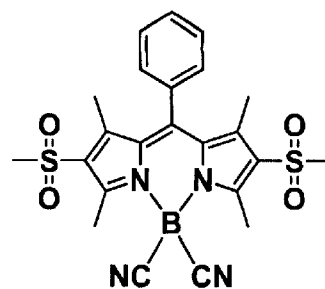
G-9



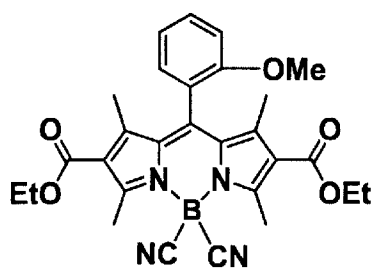
G-10



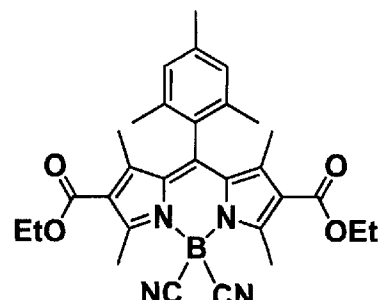
G-11



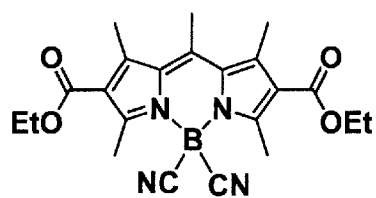
G-12



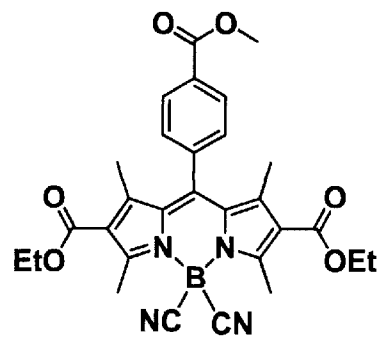
G-13



G-14



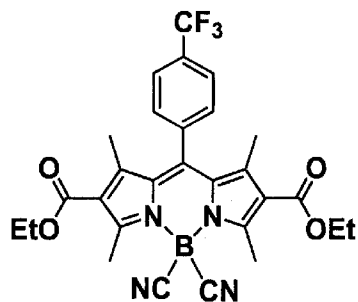
G-15



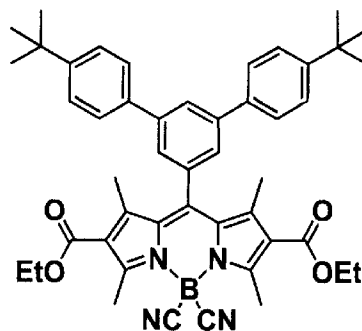
G-16

[0266]

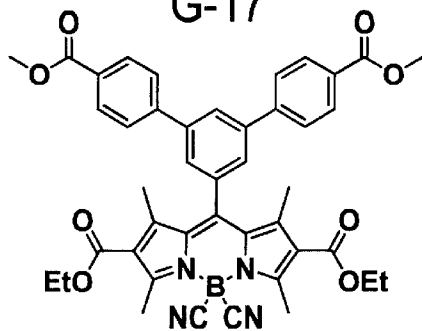
[化32]



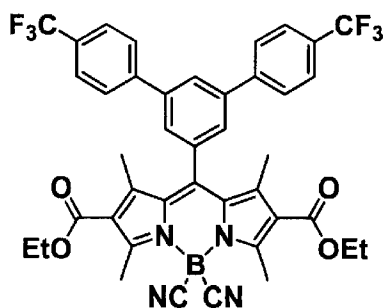
G-17



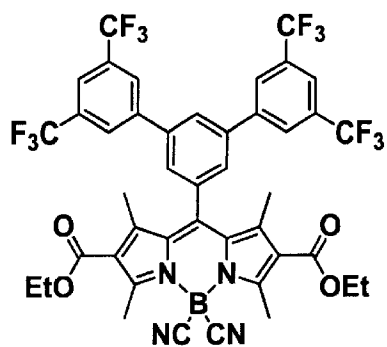
G-18



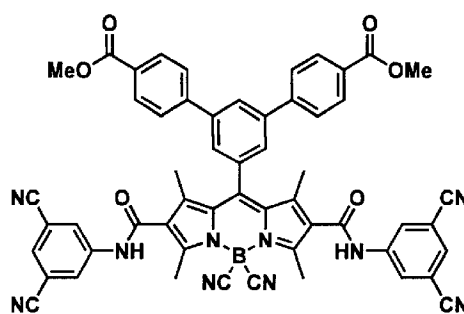
G-19



G-20



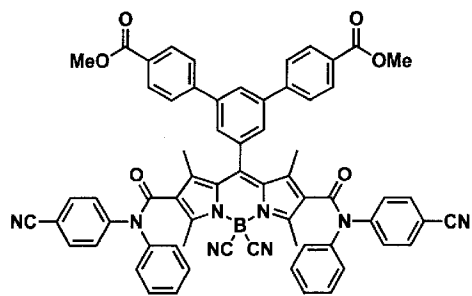
G-21



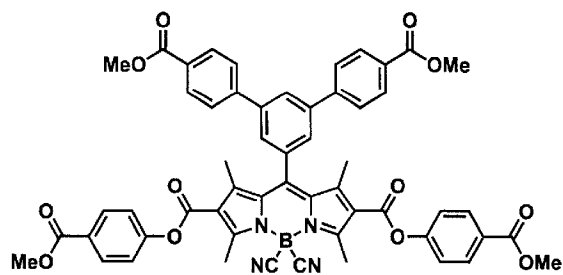
G-22

[0267]

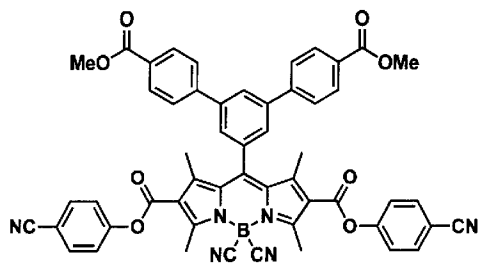
[化33]



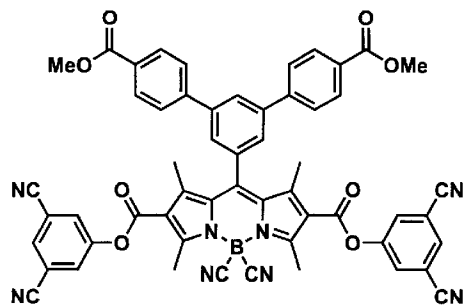
G-23



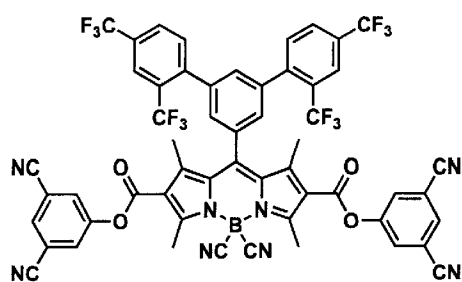
G-24



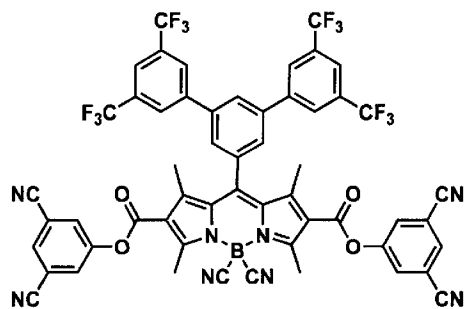
G-25



G-26



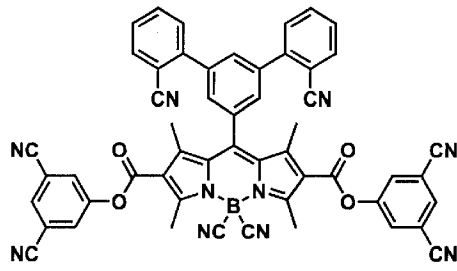
G-27



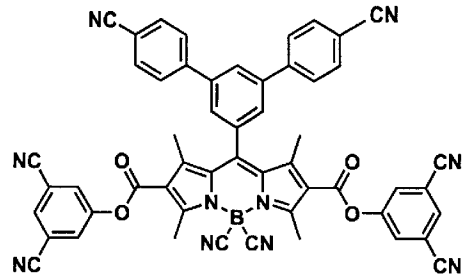
G-28

[0268]

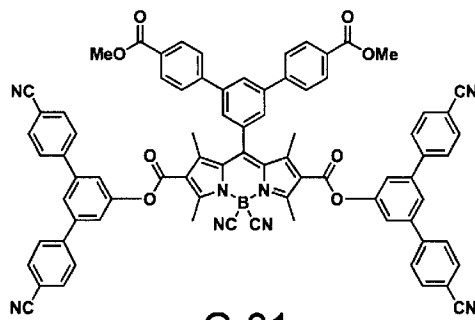
[化34]



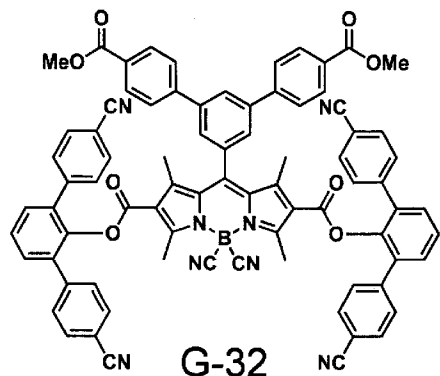
G-29



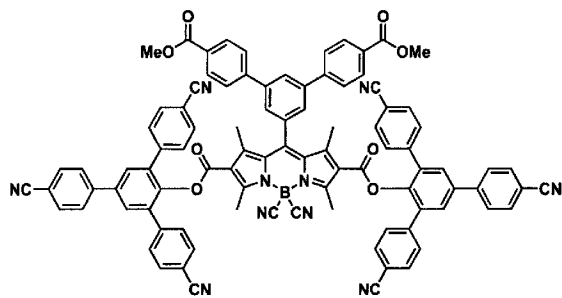
G-30



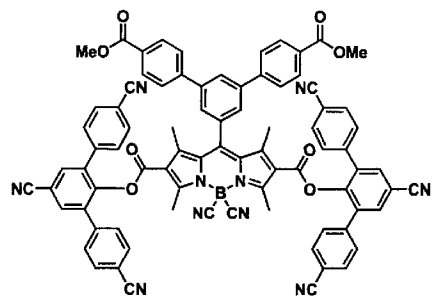
G-31



G-32



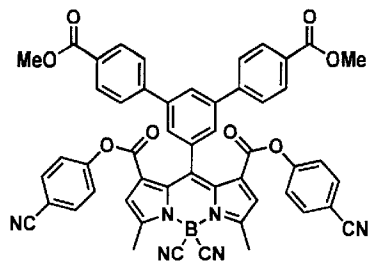
G-33



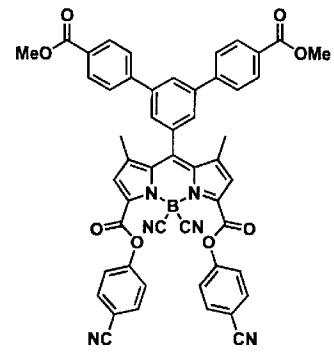
G-34

[0269]

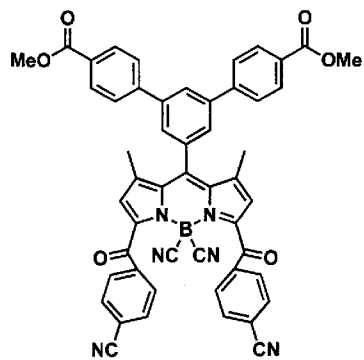
[化35]



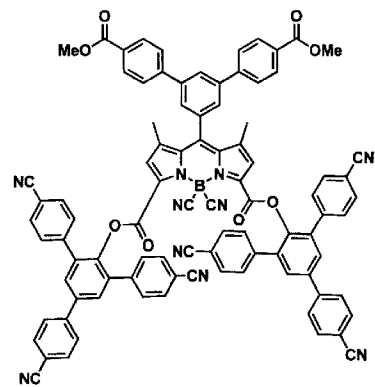
G-35



G-36



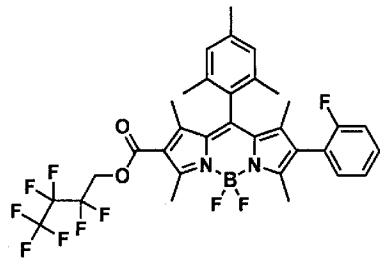
G-37



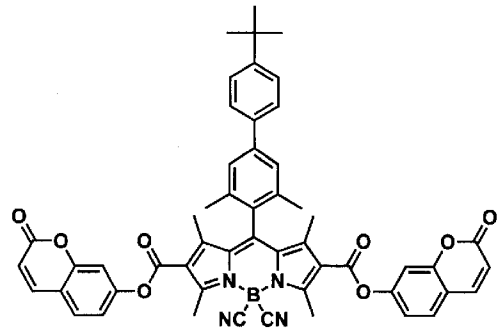
G-38

[0270]

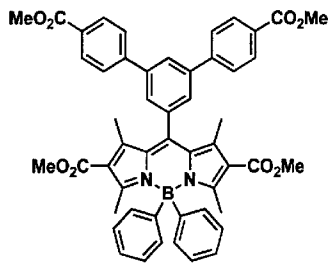
[化36]



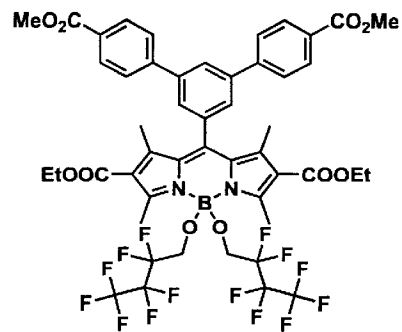
G-101



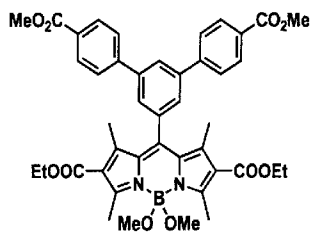
G-102



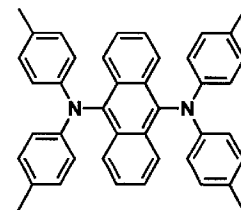
G-103



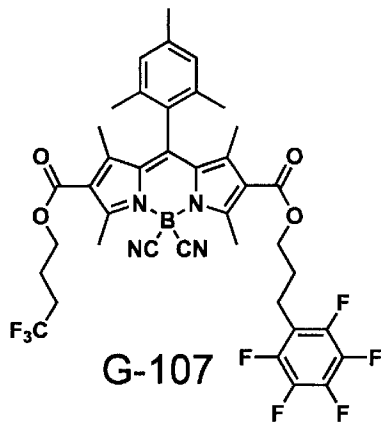
G-104



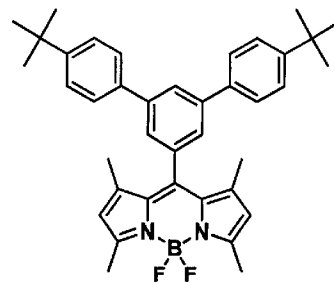
G-105



G-106



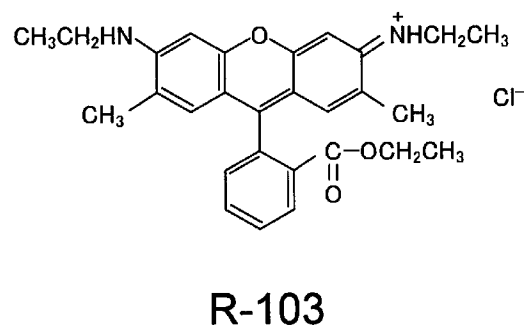
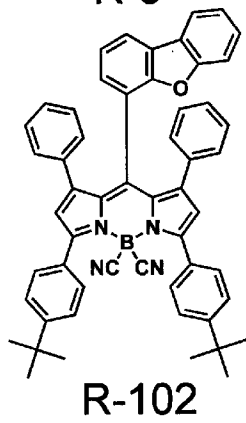
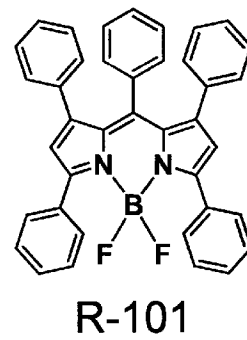
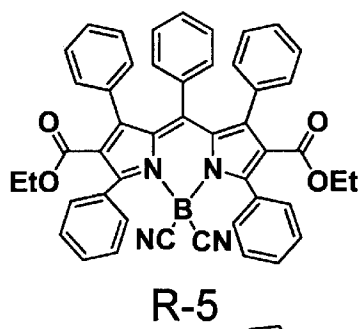
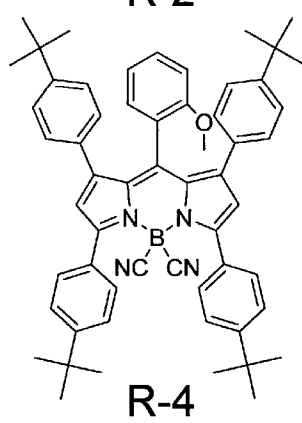
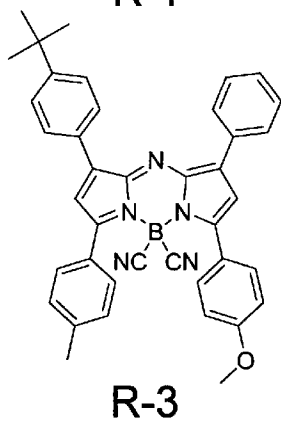
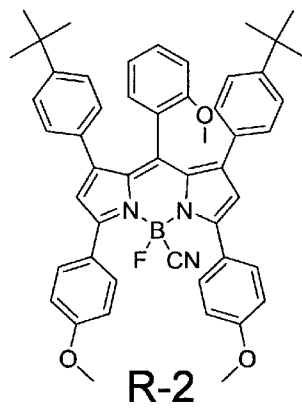
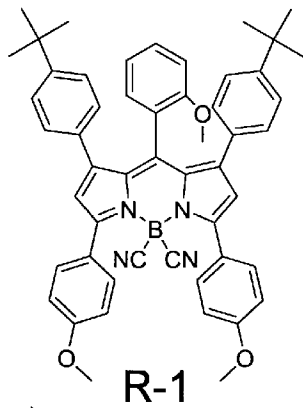
G-107



G-108

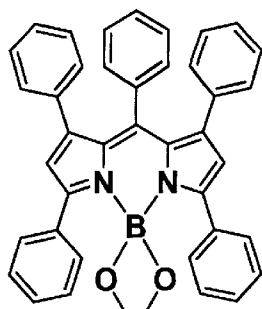
[0271]

[化37]

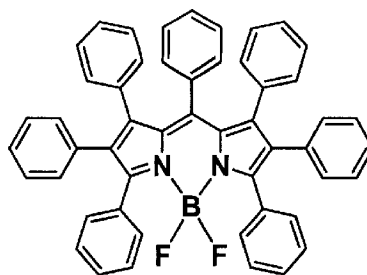


[0272]

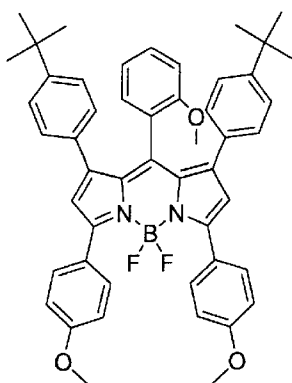
[化38]



R-104



R-105



R-106

[0273] 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。

[0274] < $^1\text{H-NMR}$ の測定>

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

[0275] <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（日立製作所株式会社製）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460nmで励起させた際の蛍光スペクトルを測定した。

[0276] <発光量子収率の測定>

化合物の発光量子収率は、絶対PL量子収率測定装置（Quantaur

us-QY、浜松ホトニクス株式会社製)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460nmで励起させた際の発光量子収率を測定した。

[0277] (合成例1)

以下に、本発明における合成例1の化合物G-18の合成方法について説明する。化合物G-18の合成方法では、3,5-ジブロモベンズアルデヒド(3.0g)、4-メトキシカルボニ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)、および炭酸カリウム(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。その後、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-メトキシカルボニルフェニル)ベンズアルデヒド(3.5g)を白色固体として得た。

[0278] つぎに、3,5-ビス(4-メトキシカルボニルフェニル)ベンズアルデヒド(1.5g)と2,4-ジメチルピロール(0.7g)とを上記の反応溶液に入れ、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。これに、2,3-ジクロロ-5,6-ジシアノー-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、フッ化ホウ素錯体(0.4g)を得た。

[0279] つぎに、得られたフッ化ホウ素錯体(0.4g)をフラスコに入れ、ジクロロメタン(5mL)とトリメチルシリルシアニド(0.67mL)と三フ

ッ化ホウ素ジエチルエーテル錯体 (0.20 mL) とを加えて、18時間攪拌した。その後、さらに水 (5 mL) を加えて攪拌し、有機層を分液した。この有機層を硫酸マグネシウムで乾燥し、ろ過後、溶媒を留去した。得られた反応生成物をシリカゲルクロマトグラフィーにより精製し、化合物 (0.28 g) を得た。この得られた化合物の¹H-NMR分析結果は次の通りであり、これが化合物G-18であることが確認された。

¹H-NMR (CDCl₃, ppm) : 7.95 (s, 1H)、7.63–7.48 (m, 10H)、4.83 (q, 6H)、4.72 (t, 4H)、3.96 (s, 6H)、2.58 (s, 6H)、1.50 (s, 6H)

[0280] (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-*t*-ブチルフェニル)-2-(4-メトキシフェニル)ピロール (300 mg) と、2-メトキシベンゾイルクロリド (201 mg) とトルエン (10 mL) との混合溶液を窒素気流下、120°Cで6時間加熱した。加熱処理後の混合溶液を、室温に冷却後、エバポレートした。その後、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-*t*-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。

[0281] つぎに、得られた2-(2-メトキシベンゾイル)-3-(4-*t*-ブチルフェニル)-5-(4-メトキシフェニル)ピロール (260 mg) と、4-(4-*t*-ブチルフェニル)-2-(4-メトキシフェニル)ピロール (180 mg) と、メタンスルホン酸無水物 (206 mg) と脱気したトルエン (10 mL) との混合溶液を、窒素気流下、125°Cで7時間加熱した。加熱処理後の混合溶液を室温に冷却後、この混合溶液に水 (20 mL) を注入し、ジクロロメタン30 mLで有機層を抽出した。得られた有機層を、水 (20 mL) で2回洗浄し、エバポレートし、真空乾燥した。これにより、ピロメテン体を得た。

[0282] つぎに、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。得られた有機層を、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。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、真空乾燥した後、赤紫色粉末のフッ化ホウ素錯体（0.27 g）を得た。

[0283] つぎに、得られたフッ化ホウ素錯体（0.27 g）をフラスコに入れ、ジクロロメタン（2.5 mL）とトリメチルシリルシアニド（0.32 mL）と三フッ化ホウ素ジエチルエーテル錯体（0.097 mL）とを加えて、18時間攪拌した。その後、さらに水（2.5 mL）を加えて攪拌し、有機層を分液した。この有機層を硫酸マグネシウムで乾燥し、ろ過後、溶媒を留去した。得られた反応生成物をシリカゲルクロマトグラフィーにより精製し、化合物（0.19 g）を得た。この得られた化合物の¹H-NMR分析結果は次の通りであり、これが化合物R-1であることが確認された。

¹H-NMR (CDCl₃, 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)

[0284] 以下の実施例および比較例では、各色変換フィルム、青色LED素子（発光ピーク波長：445 nm）および導光板を備えたバックライトユニットに対し、導光板の一面に色変換フィルムを積層し且つ色変換フィルム上にプリズムシートを積層した後、電流を流して、この青色LED素子を点灯させ、分光放射輝度計（CS-1000、コニカミノルタ社製）を用いて初期発光特性を測定した。なお、初期発光特性の測定時は色変換フィルムを挿入せず、青色LED素子からの光の明るさが800 cd/m²となるように初期値を設定した。その後、室温下で青色LED素子からの光を連続照射し、輝度が5%低下するまでの時間を観測することで、光耐久性を評価した。

[0285] （実施例1）

本発明の実施例 1 は、上述した実施形態 1 A に係るピロメテンホウ素錯体を発光材料（色変換材料）として用いた場合の実施例である。この実施例 1 では、バインダー樹脂としてアクリル樹脂を用い、このアクリル樹脂の 100 重量部に対して、発光材料として化合物 G-1 を 0.25 重量部、溶剤としてトルエンを 400 重量部、混合した。その後、これらの混合物を、遊星式攪拌・脱泡装置“マゼルスター KK-400”（クラボウ社製）を用いて 300 rpm で 20 分間攪拌・脱泡し、これにより、色変換組成物を得た。

[0286] 同様に、バインダー樹脂としてポリエステル樹脂を用い、このポリエステル樹脂の 100 重量部に対して、溶剤としてトルエンを 300 重量部、混合した。その後、この溶液を、遊星式攪拌・脱泡装置“マゼルスター KK-400”（クラボウ社製）を用いて 300 rpm で 20 分間攪拌・脱泡し、これにより、接着剤組成物を得た。

[0287] つぎに、上述したように得られた色変換組成物を、スリットダイコーターを用いて第一の基材層である“ルミラー”U48（東レ社製、厚さ 50 μm ）上に塗布し、100°C で 20 分加熱、乾燥して、平均膜厚 16 μm の（A）層を形成した。

[0288] 同様に、上述したように得られた接着剤組成物を、スリットダイコーターを用いて第二の基材層である光拡散フィルム“ケミカルマット”125PW（きもと社製、厚さ 138 μm ）の PET 基材層側に塗布し、100°C で 20 分加熱、乾燥して、平均膜厚 48 μm の（B）層を形成した。

[0289] つぎに、これら二つの（A）層および（B）層を、（A）層の色変換層と（B）層の接着層とが直接積層されるように加温ラミネートすることで、「第一の基材層／色変換層／接着層／第二の基材層／光拡散層」という積層構成の色変換フィルムを作製した。

[0290] この色変換フィルムを用いて青色 LED 素子からの光（青色光）を色変換させたところ、緑色光の発光領域のみを抜粋すると、ピーク波長 526 nm、ピーク波長における発光スペクトルの半値幅 27 nm の高色純度緑色発光が得られた。ピーク波長における発光強度は、後述の比較例 1 における量子

収率を1.00としたときの相対値である。実施例1の当該量子収率は、1.07であった。また、室温下で青色LED素子からの光を連続照射したところ、輝度が5%低下する時間は、200時間であった。実施例1の発光材料および評価結果は、後述の表2-1に示す。

[0291] (実施例2~38および比較例1~8)

本発明の実施例2~38および本発明に対する比較例1~8では、発光材料として後述の表2-1~2-3に記載した化合物(化合物G-2~G-38、G-101~G-108)を適宜用いた以外は、実施例1と同様にして、色変換フィルムを作製して評価した。実施例2~38、比較例1~8の発光材料および評価結果は、表2-1~2-3に示す。ただし、表中の量子収率(相対値)は、ピーク波長における量子収率であり、実施例1と同様に、比較例1における強度を1.00としたときの相対値である。

[0292]

[表2-1]

(表2-1)

| | 発光材料 | ピーク波長 (nm) | 半値幅 (nm) | 量子収率 (相対値) | 光耐久性 (h) |
|-------|------|---------------|-------------|---------------|-------------|
| 実施例1 | G-1 | 526 | 27 | 1.07 | 200 |
| 実施例2 | G-2 | 527 | 28 | 1.09 | 330 |
| 実施例3 | G-3 | 525 | 27 | 1.25 | 340 |
| 実施例4 | G-4 | 529 | 28 | 1.09 | 350 |
| 実施例5 | G-5 | 528 | 28 | 1.11 | 380 |
| 実施例6 | G-6 | 542 | 29 | 1.01 | 470 |
| 実施例7 | G-7 | 527 | 28 | 1.11 | 590 |
| 実施例8 | G-8 | 527 | 28 | 1.10 | 700 |
| 実施例9 | G-9 | 527 | 28 | 1.12 | 800 |
| 実施例10 | G-10 | 528 | 28 | 1.14 | 800 |
| 実施例11 | G-11 | 527 | 28 | 1.14 | 840 |
| 実施例12 | G-12 | 529 | 27 | 1.14 | 840 |
| 実施例13 | G-13 | 528 | 28 | 1.20 | 840 |
| 実施例14 | G-14 | 527 | 27 | 1.15 | 830 |
| 実施例15 | G-15 | 527 | 26 | 1.01 | 840 |
| 実施例16 | G-16 | 529 | 28 | 1.15 | 860 |
| 実施例17 | G-17 | 528 | 28 | 1.14 | 870 |
| 実施例18 | G-18 | 527 | 27 | 1.30 | 1000 |
| 実施例19 | G-19 | 527 | 28 | 1.35 | 1060 |
| 実施例20 | G-20 | 529 | 28 | 1.32 | 1080 |
| 実施例21 | G-21 | 530 | 27 | 1.33 | 1100 |

[0293]

[表2-2]

(表2-2)

| | 発光材料 | ピーク波長 (nm) | 半値幅 (nm) | 量子収率 (相対値) | 光耐久性 (h) |
|-------|------|---------------|-------------|---------------|-------------|
| 実施例22 | G-22 | 535 | 27 | 1.26 | 1300 |
| 実施例23 | G-23 | 535 | 28 | 1.37 | 1420 |
| 実施例24 | G-24 | 527 | 27 | 1.35 | 1380 |
| 実施例25 | G-25 | 528 | 29 | 1.33 | 1620 |
| 実施例26 | G-26 | 528 | 28 | 1.37 | 1650 |
| 実施例27 | G-27 | 528 | 28 | 1.45 | 1670 |
| 実施例28 | G-28 | 532 | 29 | 1.33 | 1720 |
| 実施例29 | G-29 | 532 | 30 | 1.44 | 1780 |
| 実施例30 | G-30 | 535 | 31 | 1.55 | 1830 |
| 実施例31 | G-31 | 527 | 27 | 1.44 | 1940 |
| 実施例32 | G-32 | 527 | 28 | 1.55 | 2100 |
| 実施例33 | G-33 | 529 | 28 | 1.52 | 2250 |
| 実施例34 | G-34 | 527 | 29 | 1.48 | 2280 |
| 実施例35 | G-35 | 528 | 27 | 1.37 | 1570 |
| 実施例36 | G-36 | 529 | 27 | 1.38 | 1560 |
| 実施例37 | G-37 | 526 | 29 | 1.42 | 1660 |
| 実施例38 | G-38 | 527 | 28 | 1.50 | 2090 |

[0294] [表2-3]

(表2-3)

| | 発光材料 | ピーク波長 (nm) | 半値幅 (nm) | 量子収率 (相対値) | 光耐久性 (h) |
|------|-------|---------------|-------------|---------------|-------------|
| 比較例1 | G-101 | 535 | 40 | 1.00 | 100 |
| 比較例2 | G-102 | 530 | 30 | 0.88 | 120 |
| 比較例3 | G-103 | 527 | 31 | 0.79 | 80 |
| 比較例4 | G-104 | 528 | 27 | 1.11 | 120 |
| 比較例5 | G-105 | 528 | 26 | 1.09 | 70 |
| 比較例6 | G-106 | 540 | 58 | 1.13 | 20 |
| 比較例7 | G-107 | 528 | 28 | 0.81 | 140 |
| 比較例8 | G-108 | 532 | 27 | 0.89 | 40 |

[0295] (実施例39)

本発明の実施例39は、上述した実施形態1Bに係るピロメテンホウ素錯体を発光材料（色変換材料）として用いた場合の実施例である。この実施例39では、バインダー樹脂としてアクリル樹脂を用い、このアクリル樹脂の100重量部に対して、発光材料として化合物R-1を0.08重量部、溶剤としてトルエンを400重量部、混合した。その後、これらの混合物を、遊星式攪拌・脱泡装置“マゼルスターKK-400”（クラボウ社製）を用いて300rpmで20分間攪拌・脱泡し、これにより、色変換組成物を得た。

[0296] 同様に、バインダー樹脂としてポリエステル樹脂を用い、このポリエステル樹脂の100重量部に対して、溶剤としてトルエンを300重量部、混合した。その後、この溶液を、遊星式攪拌・脱泡装置“マゼルスターKK-400”（クラボウ社製）を用いて300rpmで20分間攪拌・脱泡し、これにより、接着剤組成物を得た。

[0297] つぎに、上述したように得られた色変換組成物を、スリットダイコーターを用いて第一の基材層である“ルミラー”U48（東レ社製、厚さ50 μ m）上に塗布し、100 $^{\circ}$ Cで20分加熱、乾燥して、平均膜厚16 μ mの（A）層を形成した。

[0298] 同様に、上述したように得られた接着剤組成物を、スリットダイコーターを用いて第二の基材層である光拡散フィルム“ケミカルマット”125PW（きもと社製、厚さ138 μ m）のPET基材層側に塗布し、100 $^{\circ}$ Cで20分加熱、乾燥して、平均膜厚48 μ mの（B）層を形成した。

[0299] つぎに、これら二つの（A）層および（B）層を、（A）層の色変換層と（B）層の接着層とが直接積層されるように加温ラミネートすることで、「第一の基材層／色変換層／接着層／第二の基材層／光拡散層」という積層構成の色変換フィルムを作製した。

[0300] この色変換フィルムを用いて緑色LED素子からの光（緑色光）を色変換

させたところ、赤色の発光領域のみを抜粋すると、ピーク波長630nm、ピーク波長における発光スペクトルの半値幅47nmの高色純度赤色発光が得られた。ピーク波長における量子収率は、後述の比較例9における量子収率を1.00としたときの相対値である。実施例38の当該量子収率は、1.11であった。また、室温下で青色LED素子からの光を連続照射したところ、輝度が5%低下する時間は、600時間であった。実施例38の発光材料および評価結果は、後述の表3に示す。

[0301] (実施例40～43および比較例9～13)

本発明の実施例40～43および本発明に対する比較例9～13では、発光材料として表3に記載した化合物(R-2～R-5、R-101～R-105)を適宜用いた以外は、実施例39と同様にして、色変換フィルムを製作して評価した。実施例40～43、比較例9～13の発光材料および評価結果は、表3に示す。ただし、表中の量子収率(相対値)は、ピーク波長における量子収率であり、実施例39と同様に、比較例9における強度を1.00としたときの相対値である。

[0302] [表3]

(表3)

| | 発光材料 | ピーク波長 (nm) | 半値幅 (nm) | 量子収率 (相対値) | 光耐久性 (h) |
|-------|-------|---------------|-------------|---------------|-------------|
| 実施例39 | R-1 | 630 | 47 | 1.11 | 600 |
| 実施例40 | R-2 | 632 | 46 | 1.10 | 570 |
| 実施例41 | R-3 | 650 | 57 | 1.11 | 580 |
| 実施例42 | R-4 | 642 | 53 | 1.09 | 590 |
| 実施例43 | R-5 | 630 | 47 | 1.08 | 620 |
| 比較例9 | R-101 | 631 | 47 | 1.00 | 300 |
| 比較例10 | R-102 | 640 | 56 | 0.57 | 450 |
| 比較例11 | R-103 | 605 | 90 | 0.48 | 200 |
| 比較例12 | R-104 | 633 | 47 | 0.87 | 270 |
| 比較例13 | R-105 | 661 | 59 | 0.81 | 310 |

[0303] (実施例44)

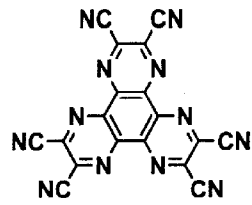
本発明の実施例44では、ITO透明導電膜を165nm堆積させたガラス基板（ジオマテック株式会社製、 $11\Omega/\square$ 、スパッタ品）を 38×46 mmに切断し、エッチングを行った。得られた基板を、“セミコクリーン56”（商品名、フルウチ化学株式会社製）で15分間、超音波洗浄してから、超純水で洗浄した。この基板を、発光素子を作製する直前に1時間、UVーオゾン処理し、真空蒸着装置内に設置して、この装置内の真空度が 5×10^{-4} Pa以下になるまで排気した。

[0304] 抵抗加熱法によって、まず、正孔注入層として、化合物HAT-CN6を5nm、正孔輸送層として、化合物HT-1を50nm蒸着した。つぎに、発光層を構成する材料のうち、ホスト材料として化合物H-1を、ドーパント材料として化合物G-3（一般式（1）で表される化合物）を、ドーパ濃度が1重量%になるようにして20nmの厚さに蒸着した。さらに、電子輸送層として化合物ET-1を、ドナー性材料として化合物2E-1を用い、化合物ET-1と化合物2E-1との蒸着速度比が1：1になるようにして35nmの厚さに積層した。つぎに、電子注入層として化合物2E-1を0.5nm蒸着した後、マグネシウムおよび銀を1000nm共蒸着して陰極とし、 5×5 mm角の発光素子を作製した。

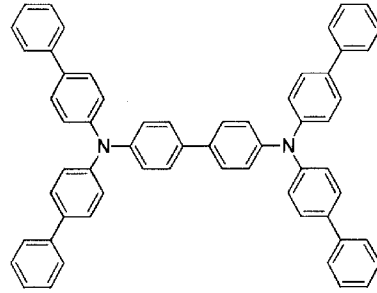
[0305] この発光素子の $1000\text{cd}/\text{m}^2$ 時の特性としては、発光ピーク波長が519nmであり、半値幅が27nmであり、外部量子効率が5.0%であった。また、初期輝度を $4000\text{cd}/\text{m}^2$ に設定して、この発光素子を定電流駆動させたところ、輝度が20%低下する時間は、500時間であった。実施例44の材料および評価結果は、後述の表4に示す。なお、化合物HAT-CN6、HT-1、H-1、ET-1、2E-1は、下記に示す化合物である。

[0306]

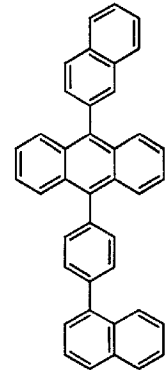
[化39]



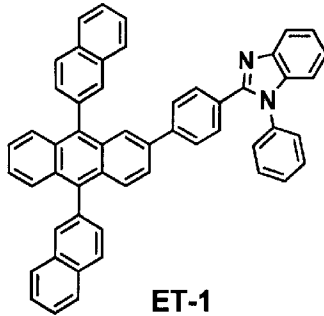
HAT - CN6



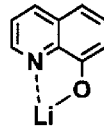
HT-1



H-1



ET-1



2E-1

[0307] (比較例 14、15)

本発明に対する比較例 14、15 では、ドーパント材料として表 4 に記載した化合物 (化合物 G-106、G-108) を用いた以外は、実施例 44 と同様にして、発光素子を作製して評価した。比較例 14、15 の材料および評価結果は、表 4 に示す。

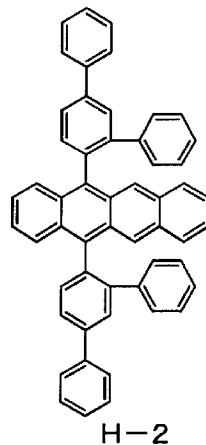
[0308] (実施例 45)

本発明の実施例 45 では、ITO 透明導電膜を 165 nm 堆積させたガラス基板 (ジオマテック株式会社製、 $11 \Omega/\square$ 、スパッタ品) を 38×46 mm に切断し、エッチングを行った。得られた基板を、“セミコクリーン 56” (商品名、フルウチ化学株式会社製) で 15 分間、超音波洗浄してから、超純水で洗浄した。この基板を、発光素子を作製する直前に 1 時間、UV-オゾン処理し、真空蒸着装置内に設置して、この装置内の真空度が 5×10^{-4} Pa 以下になるまで排気した。

[0309] 抵抗加熱法によって、まず、正孔注入層として、化合物HAT-CN6を5nm、正孔輸送層として、化合物HT-1を50nm蒸着した。つぎに、発光層を構成する材料のうち、ホスト材料として化合物H-2を、ドーパント材料として化合物R-1（一般式（1）で表される化合物）を、ドーパ濃度が1重量%になるようにして20nmの厚さに蒸着した。さらに、電子輸送層として化合物ET-1を、ドナー性材料として化合物2E-1を用い、化合物ET-1と化合物2E-1との蒸着速度比が1：1になるようにして35nmの厚さに積層した。つぎに、電子注入層として化合物2E-1を0.5nm蒸着した後、マグネシウムおよび銀を1000nm共蒸着して陰極とし、5×5mm角の発光素子を作製した。

[0310] この発光素子の1000cd/m²時の特性としては、発光ピーク波長が625nmであり、半値幅が46nmであり、外部量子効率が5.1%であった。また、初期輝度を1000cd/m²に設定して、この発光素子を定電流駆動させたところ、輝度が20%低下する時間は、5200時間であった。実施例45の材料および評価結果は、表4に示す。なお、化合物H-2は、下記に示す化合物である。

[0311] [化40]



[0312] (比較例16)

本発明に対する比較例16では、ドーパント材料として表4に記載した化合物（化合物R-106）を用いた以外は、実施例45と同様にして、発光

素子を作製して評価した。比較例 16 の材料および評価結果は、表 4 に示す

。

[0313]

[表4]

(表4)

| | 発光層 | | 発光色 | 発光ピーク波長 (nm) | 半値幅 (nm) | 外部量子効率 (%) | 耐光性 (時間) |
|-------|-------|---------|-----|-----------------|-------------|---------------|-------------|
| | ホスト材料 | ドーパント材料 | | | | | |
| 実施例44 | H-1 | G-3 | 緑 | 519 | 27 | 5.0 | 500 |
| 比較例14 | H-1 | G-106 | 緑 | 550 | 69 | 1.7 | 160 |
| 比較例15 | H-1 | G-108 | 緑 | 519 | 27 | 2.1 | 180 |
| 実施例45 | H-2 | R-1 | 赤 | 625 | 46 | 5.1 | 520 |
| 比較例16 | H-2 | R-106 | 赤 | 625 | 46 | 1.8 | 170 |

産業上の利用可能性

[0314] 以上のように、本発明に係るピロメテンホウ素錯体、色変換組成物、色変換フィルム、光源ユニット、ディスプレイ、照明装置および発光素子は、色再現性の向上と高い耐久性との両立に適している。

符号の説明

[0315] 1 A、1 B、1 C、1 D 色変換フィルム
1 0 基材層
1 1 色変換層
1 2 バリアフィルム

請求の範囲

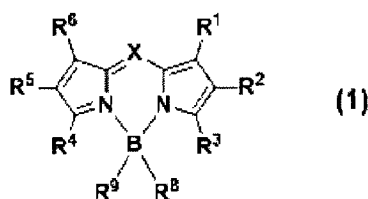
[請求項1] 下記の一般式（1）で表される化合物であり、
下記の条件（A）および条件（B）のうち少なくとも一方を満たす、

ことを特徴とするピロメテンホウ素錯体。

条件（A）：一般式（1）において、 $R^1 \sim R^6$ が、いずれもフッ素原子を含まない基であり、 R^1 、 R^3 、 R^4 および R^6 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、または置換もしくは無置換のシクロアルキル基であり、 R^2 および R^5 が、2環以上が縮合したヘテロアリアル基を含まない基である。

条件（B）：一般式（1）において、 R^1 、 R^3 、 R^4 および R^6 のうち少なくとも1つが、置換もしくは無置換のアリアル基、または置換もしくは無置換のヘテロアリアル基であり、 X が $C-R^7$ である場合に、 R^7 が2環以上のヘテロアリアル基を含まない基である。

[化1]



（一般式（1）において、 X は、 $C-R^7$ または N である。 $R^1 \sim R^9$ は、それぞれ同じでも異なってもよく、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、複素環基、アルケニル基、シクロアルケニル基、アルキニル基、水酸基、チオール基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリアルエーテル基、アリアルチオエーテル基、アリアル基、ヘテロアリアル基、ハロゲン、シアノ基、アルデヒド基、カルボニル基、カルボキシ基、アシル基、エステル基、アミド基、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、スルホ基、スルホニル基、ホスフィンオキシド基、および隣接置換基との

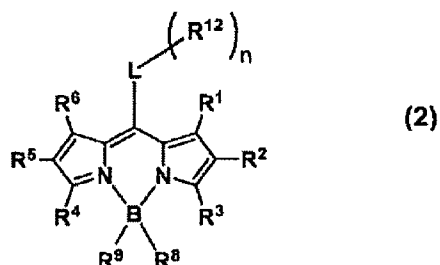
間に形成される縮合環および脂肪族環、からなる候補群の中から選ばれる。但し、 R^8 および R^9 のうち少なくとも1つは、シアノ基である。 R^2 および R^5 は、前記候補群のうち、置換もしくは無置換のアリール基、および置換もしくは無置換のヘテロアリール基以外の基の中から選ばれる基である。)

- [請求項2] 前記一般式(1)において、前記条件(A)を満たし、かつ、 R^1 ～ R^7 のうち少なくとも1つが電子求引基である、
ことを特徴とする請求項1に記載のピロメテンハウ素錯体。
- [請求項3] 前記一般式(1)において、前記条件(A)を満たし、かつ、 R^1 ～ R^6 のうち少なくとも1つが電子求引基である、
ことを特徴とする請求項1または2に記載のピロメテンハウ素錯体。
- [請求項4] 前記一般式(1)において、前記条件(A)を満たし、かつ、 R^2 および R^5 のうち少なくとも1つが電子求引基である、
ことを特徴とする請求項1～3のいずれか一つに記載のピロメテンハウ素錯体。
- [請求項5] 前記一般式(1)において、前記条件(A)を満たし、かつ、 R^2 および R^5 が電子求引基である、
ことを特徴とする請求項1～4のいずれか一つに記載のピロメテンハウ素錯体。
- [請求項6] 前記電子求引基が、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、またはシアノ基である、
ことを特徴とする請求項2～5のいずれか一つに記載のピロメテンハウ素錯体。
- [請求項7] 前記一般式(1)において、前記条件(B)を満たし、かつ、 R^7 が置換もしくは無置換のアリール基である、
ことを特徴とする請求項1に記載のピロメテンハウ素錯体。

[請求項8] 前記一般式(1)で表される化合物は、下記の一般式(2)で表される化合物である、

ことを特徴とする請求項1～7のいずれか一つに記載のピロメテンホウ素錯体。

[化2]



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

[請求項9] 前記一般式(1)において、 R^8 および R^9 がシアノ基である、
ことを特徴とする請求項1～8のいずれか一つに記載のピロメテンホウ素錯体。

[請求項10] 前記一般式(1)において、 R^2 および R^5 が水素原子である、
ことを特徴とする請求項1～9のいずれか一つに記載のピロメテンホウ素錯体。

[請求項11] 前記一般式(1)で表される化合物は、励起光を用いることによりピーク波長が500nm以上580nm以下の領域に観測される発光を呈する、

ことを特徴とする請求項1～10のいずれか一つに記載のピロメテンホウ素錯体。

[請求項12] 前記一般式(1)で表される化合物は、励起光を用いることによりピーク波長が580nm以上750nm以下の領域に観測される発光

を呈する、

ことを特徴とする請求項 1 ～ 10 のいずれか一つに記載のピロメテン
ホウ素錯体。

[請求項13] 入射光を、その入射光よりも長波長の光に変換する色変換組成物で
あって、

請求項 1 ～ 12 のいずれか一つに記載のピロメテンホウ素錯体と、
バインダー樹脂と、
を含むことを特徴とする色変換組成物。

[請求項14] 請求項 13 に記載の色変換組成物またはその硬化物からなる層を含
む、

ことを特徴とする色変換フィルム。

[請求項15] 光源と、

請求項 14 に記載の色変換フィルムと、
を備えることを特徴とする光源ユニット。

[請求項16] 請求項 14 に記載の色変換フィルムを備える、
ことを特徴とするディスプレイ。

[請求項17] 請求項 14 に記載の色変換フィルムを備える、
ことを特徴とする照明装置。

[請求項18] 陽極と陰極との間に有機層が存在し、電気エネルギーにより発光す
る発光素子であって、

前記有機層に、請求項 1 ～ 12 のいずれか一つに記載のピロメテン
ホウ素錯体を含有する、

ことを特徴とする発光素子。

[請求項19] 前記有機層が発光層を有し、

前記発光層に、請求項 1 ～ 12 のいずれか一つに記載のピロメテン
ホウ素錯体を含有する、

ことを特徴とする請求項 18 に記載の発光素子。

[請求項20] 前記発光層がホスト材料とドーパント材料とを有し、

前記ドーパント材料が、請求項 1 ～ 1 2 のいずれか一つに記載のピロメテンホウ素錯体である、

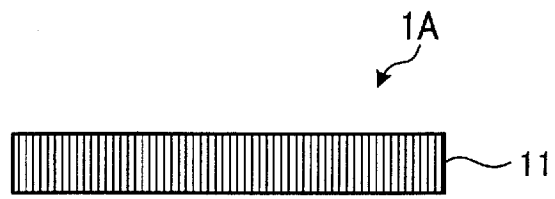
ことを特徴とする請求項 1 9 に記載の発光素子。

[請求項21]

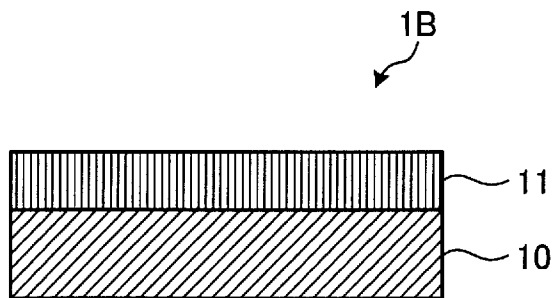
前記ホスト材料が、アントラセン誘導体またはナфтаセン誘導体である、

ことを特徴とする請求項 2 0 に記載の発光素子。

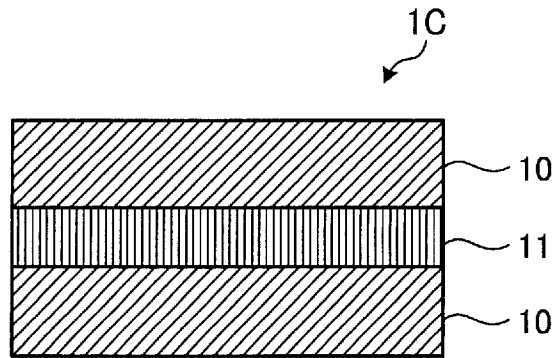
[図1]



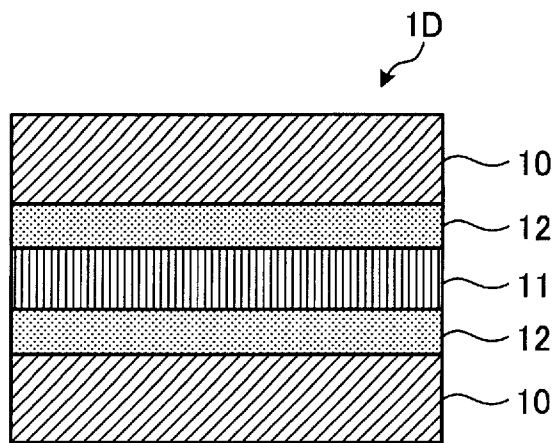
[図2]



[図3]



[図4]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2018/047120

| | | | | | | | | | | |
|--|--|--|--|--|--|-----------|--|-----------|--|-----------|
| <p>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER Int.Cl. C07F5/02(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i, F21V9/08(2018.01)i, G02B5/20(2006.01)i, H01L33/00(2010.01)i, H01L33/26(2010.01)i, H01L33/50(2010.01)i, H01L51/50(2006.01)i, H05B33/12(2006.01)i, H05B33/14(2006.01)i, F21Y115/10(2016.01)n According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC</p> | | | | | | | | | | |
| <p>B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) Int.Cl. C07F5/02, C09K11/06, F21V9/08, G02B5/20, H01L33/00, H01L33/26, H01L33/50, H01L51/50, H05B33/12, H05B33/14, F21Y115/10</p> | | | | | | | | | | |
| <p>Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched</p> <table style="width:100%; border:none;"> <tr> <td style="padding-left: 20px;">Published examined utility model applications of Japan</td> <td style="text-align: right;">1922-1996</td> </tr> <tr> <td style="padding-left: 20px;">Published unexamined utility model applications of Japan</td> <td style="text-align: right;">1971-2019</td> </tr> <tr> <td style="padding-left: 20px;">Registered utility model specifications of Japan</td> <td style="text-align: right;">1996-2019</td> </tr> <tr> <td style="padding-left: 20px;">Published registered utility model applications of Japan</td> <td style="text-align: right;">1994-2019</td> </tr> </table> | | | Published examined utility model applications of Japan | 1922-1996 | Published unexamined utility model applications of Japan | 1971-2019 | Registered utility model specifications of Japan | 1996-2019 | Published registered utility model applications of Japan | 1994-2019 |
| Published examined utility model applications of Japan | 1922-1996 | | | | | | | | | |
| Published unexamined utility model applications of Japan | 1971-2019 | | | | | | | | | |
| Registered utility model specifications of Japan | 1996-2019 | | | | | | | | | |
| Published registered utility model applications of Japan | 1994-2019 | | | | | | | | | |
| <p>Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) CPlus/REGISTRY (STN)</p> | | | | | | | | | | |
| <p>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</p> | | | | | | | | | | |
| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. | | | | | | | | |
| X A | SCHELLHAMMER, K. S. et al., Tuning near-infrared absorbing donor materials: A study of electronic, optical, and charge-transport properties of aza-BODIPYs, Chemistry of Materials, 2017, vol. 29, no. 13, pp. 5525-5536 | 1 2-21 | | | | | | | | |
| X A | LI, T. et al., Aza-BODIPY derivatives containing BF(CN) and B(CN)2 moieties, ChemPlusChem, 2017, vol. 82, no. 2, pp. 190-194 | 1 2-21 | | | | | | | | |
| <p><input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.</p> | | | | | | | | | | |
| <table style="width:100%; border:none;"> <tr> <td style="width:50%; vertical-align:top;"> * 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 </td> <td style="width:50%; vertical-align:top;"> "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 </td> </tr> </table> | | | * 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 | | | | | | |
| * 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 28.01.2019 | | Date of mailing of the international search report 05.02.2019 | | | | | | | | |
| 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/JP2018/047120

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|--------------|---|---------------------------------|
| X A | LI, T. et al., Aza-BODIPY dyes with heterocyclic substituents and their derivatives bearing a cyanide co-ligand: NIR donor materials for vacuum-processed solar cells, <i>Journal of Materials Chemistry A: Materials for Energy and Sustainability</i> , 2017, vol. 5, no. 21, pp. 10696-10703 | 1 2-21 |
| X A | NGUYEN, A. L. et al., Synthesis of 4, 4'-functionalized BODIPYs from dipyrrens, <i>Tetrahedron Letters</i> , 2015, vol. 56, no. 46, pp. 6348-6351 | 1 2-21 |
| X A | DURAN-SAMPEDRO, G. et al., First highly efficient and photostable E and C derivatives of 4, 4-Difluoro-4-bora-3a, 4a-diaza-s-indacene (BODIPY) as dye lasers in the liquid phase, thin films, and solid-state rods, <i>Chemistry-A European Journal</i> , 2014, vol. 20, no. 9, pp. 2646-2653 | 1-2 3-21 |
| X A | NIU, L. et al., Colorimetric sensors with different reactivity for the quantitative determination of cysteine, homocysteine and glutathione in a mixture, <i>RSC Advances</i> , 2015, vol. 5, no. 17, pp. 13042-13045 | 1-3 4-21 |
| P, X P, A | WANG, M. et al., Stability of a series of BODIPYs in acidic conditions: An experimental and computational study into the role of the substituents at boron, <i>ACS Omega</i> , 21 May 2018, vol. 3, no. 5, pp. 5502-5510 | 1 2-21 |
| P, X P, A | WO 2018/021866 A1 (LG CHEM, LTD.) 01 February 2018, paragraph [233] & KR 10-2018-0013798 A & TW 201817736 A | 1-4, 6, 13-16 5, 7-12, 17-21 |
| P, X P, A | WO 2018/044120 A1 (LG CHEM, LTD.) 08 March 2018, paragraphs [266], [297], [395], compounds 2, 5, 14-2, 14-3, 14 & KR 10-2018-0026340 A & TW 201815800 A | 1-4, 6, 12-16 5, 7-11, 17-21 |
| P, A | WO 2018/101129 A1 (TORAY INDUSTRIES, INC.) 07 June 2018 & TW 201825503 A | 1-21 |
| A | WO 2016/108411 A1 (LG CHEM, LTD.) 07 July 2016 & JP 2018-505127 A & US 2017/0260212 A1 & CN 107001392 A & KR 10-2016-0080063 A & TW 201623316 A | 1-21 |

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2018/047120

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|-----------|--|-----------------------|
| A | WO 2017/155297 A2 (LG CHEM, LTD.) 14 September 2017 & CN 108602838 A & KR 10-2017-0104950 A & TW 201736384 A | 1-21 |

| <p>A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））</p> <p>Int.Cl. C07F5/02(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i, F21V9/08(2018.01)i, G02B5/20(2006.01)i, H01L33/00(2010.01)i, H01L33/26(2010.01)i, H01L33/50(2010.01)i, H01L51/50(2006.01)i, H05B33/12(2006.01)i, H05B33/14(2006.01)i, F21Y115/10(2016.01)n</p> | | | | | | | | | | | | | | | |
|--|---|---|--|-----------------|-----------------------------------|----------------|------------|-------------|---|----------------------|------------|--------|---|-----------|--|
| <p>B. 調査を行った分野</p> <p>調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））</p> <p>Int.Cl. C07F5/02, C09K11/06, F21V9/08, G02B5/20, H01L33/00, H01L33/26, H01L33/50, H01L51/50, H05B33/12, H05B33/14, F21Y115/10</p> | | | | | | | | | | | | | | | |
| <p>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</p> <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2019年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2019年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2019年</td> </tr> </table> | | | | 日本国実用新案公報 | 1922-1996年 | 日本国公開実用新案公報 | 1971-2019年 | 日本国実用新案登録公報 | 1996-2019年 | 日本国登録実用新案公報 | 1994-2019年 | | | | |
| 日本国実用新案公報 | 1922-1996年 | | | | | | | | | | | | | | |
| 日本国公開実用新案公報 | 1971-2019年 | | | | | | | | | | | | | | |
| 日本国実用新案登録公報 | 1996-2019年 | | | | | | | | | | | | | | |
| 日本国登録実用新案公報 | 1994-2019年 | | | | | | | | | | | | | | |
| <p>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）</p> <p>CAplus/REGISTRY (STN)</p> | | | | | | | | | | | | | | | |
| <p>C. 関連すると認められる文献</p> <table border="1"> <thead> <tr> <th>引用文献の カテゴリー*</th> <th>引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示</th> <th colspan="2">関連する 請求項の番号</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>X A</td> <td>SCHELLHAMMER, K. S. et al., Tuning Near-Infrared Absorbing Donor Materials: A Study of Electronic, Optical, and Charge-Transport Properties of aza-BODIPYs, Chemistry of Materials, 2017, Vol. 29, No. 13, p. 5525-5536</td> <td>1 2-21</td> <td></td> </tr> <tr> <td>X A</td> <td>LI, T. et al., Aza-BODIPY Derivatives Containing BF(CN) and B(CN)₂ Moieties, ChemPlusChem, 2017, Vol. 82, No. 2, p. 190-194</td> <td>1 2-21</td> <td></td> </tr> </tbody> </table> | | | | 引用文献の カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する 請求項の番号 | | X A | SCHELLHAMMER, K. S. et al., Tuning Near-Infrared Absorbing Donor Materials: A Study of Electronic, Optical, and Charge-Transport Properties of aza-BODIPYs, Chemistry of Materials, 2017, Vol. 29, No. 13, p. 5525-5536 | 1 2-21 | | X A | LI, T. et al., Aza-BODIPY Derivatives Containing BF(CN) and B(CN) ₂ Moieties, ChemPlusChem, 2017, Vol. 82, No. 2, p. 190-194 | 1 2-21 | |
| 引用文献の カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する 請求項の番号 | | | | | | | | | | | | | |
| X A | SCHELLHAMMER, K. S. et al., Tuning Near-Infrared Absorbing Donor Materials: A Study of Electronic, Optical, and Charge-Transport Properties of aza-BODIPYs, Chemistry of Materials, 2017, Vol. 29, No. 13, p. 5525-5536 | 1 2-21 | | | | | | | | | | | | | |
| X A | LI, T. et al., Aza-BODIPY Derivatives Containing BF(CN) and B(CN) ₂ Moieties, ChemPlusChem, 2017, Vol. 82, No. 2, p. 190-194 | 1 2-21 | | | | | | | | | | | | | |
| <p>☑ C欄の続きにも文献が列挙されている。</p> | | <p>☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。</p> | | | | | | | | | | | | | |
| <p>* 引用文献のカテゴリー</p> <p>「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</p> <p>「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</p> <p>「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）</p> <p>「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</p> <p>「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願</p> | | <p>の日の後に公表された文献</p> <p>「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</p> <p>「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</p> <p>「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</p> <p>「&」同一パテントファミリー文献</p> | | | | | | | | | | | | | |
| <p>国際調査を完了した日</p> <p>28.01.2019</p> | | <p>国際調査報告の発送日</p> <p>05.02.2019</p> | | | | | | | | | | | | | |
| <p>国際調査機関の名称及びあて先</p> <p>日本国特許庁（ISA/J P）</p> <p>郵便番号100-8915</p> <p>東京都千代田区霞が関三丁目4番3号</p> | | <table border="1"> <tr> <td>特許庁審査官（権限のある職員）</td> <td>4H</td> <td>6118</td> </tr> <tr> <td>奥谷 暢子</td> <td></td> <td></td> </tr> <tr> <td>電話番号 03-3581-1101 内線</td> <td colspan="2">3443</td> </tr> </table> | | 特許庁審査官（権限のある職員） | 4H | 6118 | 奥谷 暢子 | | | 電話番号 03-3581-1101 内線 | 3443 | | | | |
| 特許庁審査官（権限のある職員） | 4H | 6118 | | | | | | | | | | | | | |
| 奥谷 暢子 | | | | | | | | | | | | | | | |
| 電話番号 03-3581-1101 内線 | 3443 | | | | | | | | | | | | | | |

| C (続き) . 関連すると認められる文献 | | |
|-----------------------|--|---------------------------------|
| 引用文献の カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する 請求項の番号 |
| X A | LI, T. et al., Aza-BODIPY dyes with heterocyclic substituents and their derivatives bearing a cyanide co-ligand: NIR donor materials for vacuum-processed solar cells, Journal of Materials Chemistry A: Materials for Energy and Sustainability, 2017, Vol. 5, No. 21, p. 10696-10703 | 1 2-21 |
| X A | NGUYEN, A. L. et al., Synthesis of 4,4'-functionalized BODIPYs from dipyrrens, Tetrahedron Letters, 2015, Vol. 56, No. 46, p. 6348-6351 | 1 2-21 |
| X A | DURAN-SAMPEDRO, G. et al., First Highly Efficient and Photostable E and C Derivatives of 4,4-Difluoro-4-bora-3a,4a-diaza-s-indacene (BODIPY) as Dye Lasers in the Liquid Phase, Thin Films, and Solid-State Rods, Chemistry - A European Journal, 2014, Vol. 20, No. 9, p. 2646-2653 | 1-2 3-21 |
| X A | NIU, L. et al., Colorimetric sensors with different reactivity for the quantitative determination of cysteine, homocysteine and glutathione in a mixture, RSC Advances, 2015, Vol. 5, No. 17, p. 13042-13045 | 1-3 4-21 |
| P, X P, A | WANG, M. et al., Stability of a Series of BODIPYs in Acidic Conditions: An Experimental and Computational Study into the Role of the Substituents at Boron, ACS Omega, 2018. 05. 21, Vol. 3, No. 5, p. 5502-5510 | 1 2-21 |
| P, X P, A | WO 2018/021866 A1 (LG CHEM, LTD.) 2018. 02. 01, 段落 233 & KR 10-2018-0013798 A & TW 201817736 A | 1-4, 6, 13-16 5, 7-12, 17-21 |
| P, X P, A | WO 2018/044120 A1 (LG CHEM, LTD.) 2018. 03. 08, 段落 266, 297, 395, 化合物 2, 5, 14-2, 14-3, 14 & KR 10-2018-0026340 A & TW 201815800 A | 1-4, 6, 12-16 5, 7-11, 17-21 |
| P, A | WO 2018/101129 A1 (東レ株式会社) 2018. 06. 07, & TW 201825503 A | 1-21 |
| A | WO 2016/108411 A1 (LG CHEM, LTD.) 2016. 07. 07, & JP 2018-505127 A & US 2017/0260212 A1 & CN 107001392 A & KR 10-2016-0080063 A & TW 201623316 A | 1-21 |

| C (続き) . 関連すると認められる文献 | | |
|-----------------------|---|----------------|
| 引用文献の カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する 請求項の番号 |
| A | WO 2017/155297 A2 (LG CHEM, LTD.) 2017.09.14, & CN 108602838 A & KR 10-2017-0104950 A & TW 201736384 A | 1-21 |