(19)日本国特許庁(JP)　(12)特　許　公　報(B2)　(11)特許番号
特許第3595380号
(P3595380)
(45)発行日　平成16年12月2日(2004.12.2)　(24)登録日　平成16年9月10日(2004.9.10)

(51)Int.Cl.[7]	F I
C09K 11/64	C09K 11/64 CPM
C09K 11/08	C09K 11/08 H

請求項の数 2　(全 11 頁)

(21)出願番号	特願平7-187884
(22)出願日	平成7年6月30日(1995.6.30)
(65)公開番号	特開平9-13028
(43)公開日	平成9年1月14日(1997.1.14)
審査請求日	平成14年7月1日(2002.7.1)

(73)特許権者　390031808
根本特殊化学株式会社
東京都杉並区上荻１丁目１５番１号　丸三ビル内
(74)代理人　100118315
弁理士　黒田　博道
(74)代理人　100083769
弁理士　北村　仁
(74)代理人　100088742
弁理士　竹山　宏明
(72)発明者　村山　義彦
東京都杉並区上荻１－１５－１　丸三ビル　根本特殊化学株式会社内

最終頁に続く

(54)【発明の名称】白色蓄光性蛍光体

(57)【特許請求の範囲】
【請求項１】
$SrAl_2O_4$：Ｅｕ，Ｄｙからなる蓄光性蛍光体に、Er_2O_3を$SrAl_2O_4$：Ｅｕ，Ｄｙに対して１～１５重量％添加したことを特徴とする白色蓄光性蛍光体。
【請求項２】
$SrAl_2O_4$：Ｅｕ，Ｄｙからなり、ＥｕをＳｒに対して、１≦Ｅｕ≦１０ｍｏｌ％の範囲で添加し、更にＥｕとＤｙとを、３≦Ｄｙ／Ｅｕ≦７０の比で添加し、更にＳｒを３０ｍｏｌ％以上とした蓄光性蛍光体に、Er_2O_3を$SrAl_2O_4$：Ｅｕ，Ｄｙに対して１～１５重量％添加したことを特徴とする白色蓄光性蛍光体。
【発明の詳細な説明】
【０００１】
【産業上の利用分野】
本発明は白色蓄光性蛍光体、更に詳しくは可視光下では白色の体色を有し、耐光性に優れると共に、極めて長時間にわたって高輝度の残光特性を有する白色蓄光性蛍光体に関するものである。
【０００２】
【従来の技術】
一般に蛍光体の残光時間は極めて短く、外部刺激を停止すると速やかにその発光は減衰するが、まれに紫外線等で刺激した後その刺激を停止した後もかなりの長時間（数１０分～数時間）に渡り残光が肉眼で認められるものがあり、これらを通常の蛍光体とは区別して

蓄光性蛍光体あるいは燐光体と呼んでいる。

【０００３】

この蓄光性蛍光体としては、ＣａＳ：Ｂｉ（紫青色発光），ＣａＳｒＳ：Ｂｉ（青色発光），ＺｎＳ：Ｃｕ（緑色発光），ＺｎＣｄＳ：Ｃｕ（黄色～橙色発光）等の硫化物蛍光体が知られているが、これらのいずれの硫化物蛍光体も、化学的に不安定であったり、耐光性に劣るなど実用面での問題点が多い。

現在市場でもっぱら用いられる硫化亜鉛系蓄光性蛍光体（ＺｎＳ：Ｃｕ）も、特に湿気が存在すると紫外線により光分解して黒変したり輝度低下するため、屋外で直接日光に曝されるような用途での使用は困難であり、夜光時計や避難誘導標識、屋内の夜間表示等その用途は限定されていた。

【０００４】

またこの硫化亜鉛系蛍光体を夜光時計に用いる場合であっても、肉眼でその時刻を認識可能な残光時間は約３０分から２時間程度であり、実用的には、蛍光体に放射性物質を添加しそのエネルギーで刺激して常時発光する自発光性の夜光塗料を用いざるを得ないのが現状であった。

そこで本発明者は、前述のごとき現状に鑑み、市販の硫化物系蛍光体に比べて遥かに長時間の残光特性を有し、更には化学的にも安定であり、かつ長期にわたり耐光性に優れる蓄光性蛍光体として、$SrAl_2O_4$：Ｅｕ，Ｄｙからなる蓄光性蛍光体を提供している。

【０００５】

ただ、前述した硫化亜鉛系蓄光性蛍光体（ＺｎＳ：Ｃｕ）も、$SrAl_2O_4$：Ｅｕ，Ｄｙからなる蓄光性蛍光体も、体色が緑色であり、したがって緑色に見えても不都合でない場所にしか用いることができないものであった。

一方、体色を白色にしておくと、そのままでも使用しやすいだけでなく、他の顔料等の添加により所望の色とすることができるので、使用範囲が広がることとなるものの、極めて長時間にわたって高輝度の残光特性を有する蓄光性蛍光体のうちで、体色が白色のものが存在しなかった。

【０００６】

【発明が解決しようとする課題】

そこで本発明者は、前述のごとき現状に鑑み、市販の硫化物系蛍光体に比べて遥かに長時間の残光特性を有し、更には化学的にも安定であり、かつ長期にわたり耐光性に優れると共に、通常の可視光下で体色が白色に見える白色蓄光性蛍光体の提供を目的としたものである。

【０００７】

【課題を解決するための手段】

前述したような白色蓄光性蛍光体として、請求項１記載の発明は、$SrAl_2O_4$：Ｅｕ，Ｄｙからなる蓄光性蛍光体に、Er_2O_3を$SrAl_2O_4$：Ｅｕ，Ｄｙに対して１～１５重量％添加したことを特徴とする。

請求項２記載の発明は、$SrAl_2O_4$：Ｅｕ，Ｄｙからなり、ＥｕをＳｒに対して、１≦Ｅｕ≦１０ｍｏｌ％の範囲で添加し、更にＥｕとＤｙとを、３≦Ｄｙ／Ｅｕ≦７０の比で添加し、更にＳｒを３０ｍｏｌ％以上とした蓄光性蛍光体に、Er_2O_3を$SrAl_2O_4$：Ｅｕ，Ｄｙに対して１～１５重量％添加したことを特徴とする。

【０００８】

またこれらの白色蓄光性蛍光体の合成に際しては、フラックスとしてたとえば硼酸を　１～１０重量％の範囲で添加することができる。ここで添加量が、　１重量％以下であるとフラックス効果がなくなるし、１０重量％を越えると固化し、その後の粉砕、分級作業が困難となる。

【０００９】

【実施例】

本発明の発明者らは、$SrAl_2O_4$：Ｅｕ，Ｄｙからなる蓄光性蛍光体が、耐光性

に優れると共に、極めて長時間にわたって高輝度の残光特性を有することを確認している。
このような$SrAl_2O_4$：Eu，Dyからなる蓄光性蛍光体の反射率は、図１に示したように、約５２０ｎｍの波長にピークを有している。
【００１０】
ここにおいて、可視光領域の各波長の反射率がほぼ等しい場合には、可視光下で白色と認識されるものの、このようにピークを有している場合には、ピークの波長に対応した色が認識されることとなる。
したがって、約５２０ｎｍの波長にピークを有している$SrAl_2O_4$：Eu，Dyからなる蓄光性蛍光体は、可視光下で、緑色として認識されることとなる。
【００１１】
そこで、次に、発明者らは、$SrAl_2O_4$：Eu，Dyからなる蓄光性蛍光体のピークである約５２０ｎｍで低い反射率を有し、かつ$SrAl_2O_4$：Eu，Dyからなる蓄光性蛍光体の反射率が低下し始める５００ｎｍ程度から高い反射率を有する物質のうちで、極めて長時間にわたって高輝度の残光特性を有する点を疎外しない物質を、種々の実験によって捜した。
【００１２】
その結果、Er_2O_3が好適であることがわかった。
反射率で説明すると、図１に示したように、Er_2O_3は、約４４０ｎｍ、４８０ｎｍ、６２０ｎｍに高い反射率を有し、約５４０ｎｍに一番低い反射率を示しているものである。そして約６２０ｎｍのピークに起因して、可視光下ではごく薄いピンク色に見えるものである。
【００１３】
なお図１に示したように、$SrAl_2O_4$：Eu，Dyからなる蓄光性蛍光体に、Er_2O_3を７重量％添加したものを例にすると、約４５０ｎｍから６５０ｎｍの可視光域の間がほぼ平滑化され、可視光下では白色として認識されることとなる。
更に、$SrAl_2O_4$：Eu，Dyからなる蓄光性蛍光体に、Er_2O_3を添加するに際して、添加量を種々変更して、輝度及び白色度を測定した結果を、硫化亜鉛系蓄光性蛍光体（ＺｎＳ：Ｃｕ）の輝度及び白色度と共に表１に示してある。
【００１４】
ここにおける輝度は、４００ｌｘの照射を２０分間継続した直後の輝度を１として、この輝度との相対輝度として示したものである。また白色度は、完全な白を１００として捕らえた時の程度を示したものである。なおEr_2O_3量（％）は、$SrAl_2O_4$：Eu，Dyからなる蓄光性蛍光体に対するEr_2O_3の添加量を、重量％で示したものである。
【００１５】
更にここで使用する$SrAl_2O_4$：Eu，Dyからなる蓄光性蛍光体は、
$SrCO_3$：０．８３ｍｏｌ％
Al_2O_3：１．００ｍｏｌ％
Eu_2O_3：０．０１０ｍｏｌ％
Dy_2O_3：０．０７５ｍｏｌ％
の比率のものであり、最終的には、
$(Sr_{0.83}Eu_{0.02}Dy_{0.15})Al_2O_4$
の蓄光性蛍光体を用いている。
【００１６】
【表１】

Er_2O_3量（%）	１０分後輝度	Ｗ （白色度）
0	8．90	86．33
1	8．11	87．50
3	7．08	88．35
5	6．76	88．53
7	6．48	88．63
１０	5．51	88．48
１５	4．91	88．11
２０	3．36	86．41
ＺｎＳ：Ｃｕ	1．00	75．0

【００１７】
この表から、Er_2O_3の添加量が増加するにしたがって、輝度が低下していくことがわかる。ただし、硫化亜鉛系蓄光性蛍光体（ＺｎＳ：Ｃｕ）の輝度を比較対象にすると、Er_2O_3の添加量が１５重量％の場合であっても、１０分後に４．９１倍の輝度を示しているものである。またEr_2O_3の添加量を２０重量％とした場合であっても、１０分後に３．３６倍の輝度を有していることが確認されている。したがって、Er_2O_3を添加した場合であっても、従来から用いられていた硫化亜鉛系蓄光性蛍光体（ＺｎＳ：Ｃｕ）に比べて、極めて長時間にわたって高輝度の残光特性を有することが確認された。
【００１８】
また白色度に関しては、Er_2O_3の添加量を増やすにしたがって徐々に増加するものの、７重量％程度の場合をピークにして、それ以上添加しても逆に白色度は低下するものである。そして、Er_2O_3の添加量を２０重量％とすると、Er_2O_3の添加量が０重量％である$SrAl_2O_4$：Ｅｕ，Ｄｙからなる蓄光性蛍光体の白色度とほぼ等しくなってしまう。
【００１９】
そこで、これら輝度と白色度とを勘案すると、$SrAl_2O_4$：Ｅｕ，Ｄｙからなる蓄光性蛍光体に対するEr_2O_3の添加量は、１～１５重量％の範囲が好適であることが確認された。
更に以上の説明では、$SrAl_2O_4$：Ｅｕ，Ｄｙからなる蓄光性蛍光体として、$(Sr_{0.83}Eu_{0.02}Dy_{0.15})Al_2O_4$を用いた場合で説明したが、Ｓｒ、Ｅｕ、Ｄｙの比率が他の比率であっても、同様の傾向を示し、Er_2O_3の添加量は、１～１５重量％の範囲が好適であることが確認された。
【００２０】
また更に、３０分後輝度、１００分後輝度においても、同様の傾向にあることが確認されている。
次に、$SrAl_2O_4$：Ｅｕ，Ｄｙからなる蓄光性蛍光体において、まず最初に、ＥｕをＳｒに対する添加量ごとに、ＥｕとＤｙとの比を変更した場合について実験した。
【００２１】
表２は、Ｅｕを０．０１ｍｏｌ添加し、更にＤｙを０．０５ｍｏｌ～０．７ｍｏｌ（５≦Ｄｙ／Ｅｕ≦７０）の範囲で変化させた試料の添加量を示したものである。そしてこの各試料に対応した１０分後輝度、３０分後輝度、１００分後輝度及び白色度を、表３に示す

。

【００２２】

【表２】

	$SrCO_3$	Al_2O_3	Eu_2O_3	Dy_2O_3
試料１－１	0.94 mol	1.0 mol	0.005 mol	0.025 mol
１－２	0.89	1.0	0.005	0.050
１－３	0.84	1.0	0.005	0.075
１－４	0.79	1.0	0.005	0.10
１－５	0.69	1.0	0.005	0.15
１－６	0.49	1.0	0.005	0.25
１－７	0.29	1.0	0.005	0.35

【００２３】

【表３】

	10min	30min	100min	白色度W
ＺｎＳ：Ｃｕ	１．０	１．０	１．０	７５．０
試料１－１	１８．６	２７．３	３６．４	８３．３
１－２	１３．０	１８．４	２５．５	８６．０
１－３	８．３	１１．０	１６．２	８７．２
１－４	７．４	１０．１	１５．２	８７．９
１－５	５．８	７．５	１２．２	８９．２
１－６	２．２	２．６	４．９	９０．４
１－７	１．２	１．２	１．３	９２．１

【００２４】

ここでは、Ｅｕを０．０１ｍｏｌ添加し、更にＤｙを０．０５ｍｏｌ～０．７ｍｏｌ（５≦Ｄｙ／Ｅｕ≦７０）の範囲で変化させた試料のすべてにわたって、硫化亜鉛系蓄光性蛍光体（ＺｎＳ：Ｃｕ）よりも輝度及び白色度が向上していることが確認された。

表４は、Ｅｕを０．０２ｍｏｌ添加し、更にＤｙを０．１０ｍｏｌ～０．８ｍｏｌ（５≦Ｄｙ／Ｅｕ≦４０）の範囲で変化させた試料の添加量を示したものである。そしてこの各試料に対応した１０分後輝度、３０分後輝度、１００分後輝度及び白色度を、表５に示す。

【００２５】

【表４】

	$SrCO_3$	Al_2O_3	Eu_2O_3	Dy_2O_3
試料２－１	0.88 mol	1.0 mol	0.010 mol	0.050 mol
２－２	0.83	1.0	0.010	0.075
２－３	0.78	1.0	0.010	0.10
２－４	0.68	1.0	0.010	0.15
２－５	0.48	1.0	0.010	0.25
２－６	0.28	1.0	0.010	0.35
２－７	0.18	1.0	0.010	0.40

【００２６】
【表５】

	10min	30min	100min	白色度W
ＺｎＳ：Ｃｕ	１．０	１．０	１．０	７５．０
試料２－１	２２．３	３０．３	３８．２	８０．５
２－２	８．９	１１．７	１５．２	８６．４
２－３	７．７	１０．４	１４．９	８７．９
２－４	６．５	１０．８	１２．７	８８．５
２－５	３．５	４．７	７．０	９０．３
２－６	１．９	２．３	２．５	９１．７
２－７	１．１	１．０	１．２	９２．３

【００２７】
ここでは、Ｅｕを０．０２ｍｏｌ添加し、更にＤｙを０．１０ｍｏｌ～０．８ｍｏｌ（５≦Ｄｙ／Ｅｕ≦４０）の範囲で変化させた試料のすべてにわたって、硫化亜鉛系蓄光性蛍光体（ＺｎＳ：Ｃｕ）よりも輝度及び白色度が等しいか若しくは向上していることが確認された。
表６は、Ｅｕを０．０３ｍｏｌ添加し、更にＤｙを０．１０ｍｏｌ～０．９ｍｏｌ（３．３≦Ｄｙ／Ｅｕ≦３０）の範囲で変化させた試料の添加量を示したものである　。そしてこの各試料に対応した１０分後輝度、３０分後輝度、１００分後輝度及び白色度を、表７に示す。
【００２８】
【表６】

	$SrCO_3$	Al_2O_3	Eu_2O_3	Dy_2O_3
試料３－１	0.87 mol	1.0 mol	0.015 mol	0.050 mol
３－２	0.82	1.0	0.015	0.075
３－３	0.77	1.0	0.015	0.10
３－４	0.67	1.0	0.015	0.15
３－５	0.47	1.0	0.015	0.25
３－６	0.27	1.0	0.015	0.35
３－７	0.17	1.0	0.015	0.40
３－８	0.07	1.0	0.015	0.45

【００２９】
【表７】

	10min	30min	100min	白色度W
ＺｎＳ：Ｃｕ	１．０	１．０	１．０	７５．０
試料３－１	１２．５	１６．２	２０．４	８２．３
３－２	１７．１	２３．８	３２．３	８４．５
３－３	８．０	１２．０	１５．６	８５．８
３－４	７．０	１１．３	１３．５	８７．１
３－５	６．５	９．４	１０．５	８７．８
３－６	６．１	８．８	１０．５	９０．０
３－７	２．８	４．０	４．８	９０．５
３－８	０．３	０．３	０．５	９１．０

【００３０】
ここでは、Ｅｕを０．０３ｍｏｌ添加し、更にＤｙを０．１０ｍｏｌ～０．９ｍｏｌ（３．３≦Ｄｙ／Ｅｕ≦３０）の範囲で変化させた試料のうちで、０．１０ｍｏｌ～０．８ｍｏｌ（３．３≦Ｄｙ／Ｅｕ≦２６．７）の範囲では、硫化亜鉛系蓄光性蛍光体（ＺｎＳ：Ｃｕ）よりも輝度及び白色度が向上していることが確認された。一方、Ｅｕを０．０３ｍｏｌ添加し、更にＤｙを０．９ｍｏｌ（Ｄｙ／Ｅｕ＝３０）添加した場合については、輝度において硫化亜鉛系蓄光性蛍光体（ＺｎＳ：Ｃｕ）よりも劣っている。このことは、$SrCO_3$ の添加量が少なくなり過ぎたことが原因であると思われる。そこで、実験を行った確認したところ、Ｓｒが０．１ｍｏｌ（１０ｍｏｌ％）以下になると、輝度において硫化亜鉛系蓄光性蛍光体（ＺｎＳ：Ｃｕ）よりも劣ってくることが確認された。
【００３１】
表８は、Ｅｕを０．０５ｍｏｌ添加し、更にＤｙを０．１５ｍｏｌ～０．８ｍｏｌ（３≦Ｄｙ／Ｅｕ≦１６）の範囲で変化させた試料の添加量を示したものである。そしてこの各試料に対応した１０分後輝度、３０分後輝度、１００分後輝度及び白色度を、表９に示す。
【００３２】
【表８】

	$SrCO_3$	Al_2O_3	Eu_2O_3	Dy_2O_3
試料４－１	0.80 mol	1.0 mol	0.025 mol	0.075 mol
４－２	0.65	1.0	0.025	0.15
４－３	0.45	1.0	0.025	0.25
４－４	0.25	1.0	0.025	0.35
４－５	0.15	1.0	0.025	0.40

【００３３】
【表９】

	10min	30min	100min	白色度W
ＺｎＳ：Ｃｕ	１．０	１．０	１．０	７５．０
試料４－１	１３．５	２２．４	２６．４	７８．５
４－２	７．４	１２．３	１４．５	８２．５
４－３	４．０	５．４	８．０	８４．３
４－４	１．９	２．３	２．５	８５．５
４－５	１．３	１．５	１．６	８６．２

【００３４】
ここでは、Ｅｕを０．０５ｍｏｌ添加し、更にＤｙを０．１５ｍｏｌ～０．８ｍｏｌ（３≦Ｄｙ／Ｅｕ≦１６）の範囲で変化させた試料のすべてにわたって、硫化亜鉛系蓄光性蛍光体（ＺｎＳ：Ｃｕ）よりも輝度及び白色度が等しいか若しくは向上していることが確認された。
表１０は、Ｅｕを０．１ｍｏｌ添加し、更にＤｙを０．３ｍｏｌ～０．７ｍｏｌ（３≦Ｄｙ／Ｅｕ≦７）の範囲で変化させた試料の添加量を示したものである。そしてこの各試料に対応した１０分後輝度、３０分後輝度、１００分後輝度及び白色度を、表１１に示す。
【００３５】
【表１０】

	$SrCO_3$	Al_2O_3	Eu_2O_3	Dy_2O_3
試料５－１	0.60 mol	1.0 mol	0.05 mol	0.15 mol
５－２	0.40	1.0	0.05	0.25
５－３	0.20	1.0	0.05	0.35

【００３６】
【表１１】

	10min	30min	100min	白色度W
ＺｎＳ：Ｃｕ	１．０	１．０	１．０	７５．０
試料５－１	７．５	１１．３	１４．７	７７．５
５－２	３．９	５．２	７．７	８２．７
５－３	１．２	１．４	１．４	８３．８

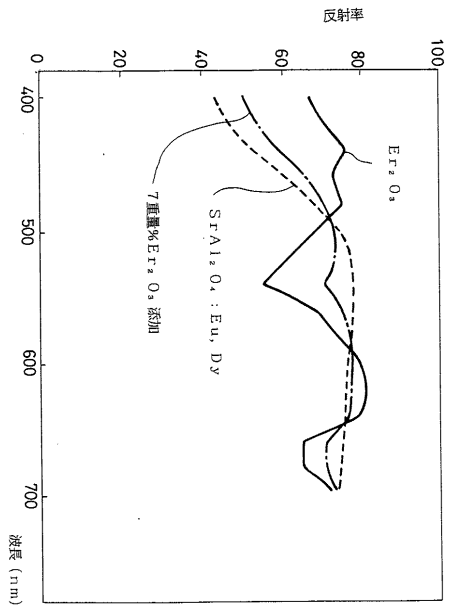
【００３７】
ここでは、Ｅｕを０．１ｍｏｌ添加し、更にＤｙを０．３ｍｏｌ～０．７ｍｏｌ（３≦Ｄｙ／Ｅｕ≦７）の範囲で変化させた試料のすべてにわたって、硫化亜鉛系蓄光性蛍光体（ＺｎＳ：Ｃｕ）よりも輝度及び白色度が等しいか若しくは向上していることが確認された。
次に、各試料にEr_2O_3を７重量％添加した場合について測定した。その結果を表１２として添付する。
【００３８】
【表１２】

	10min	100min	白色度W
ＺｎＳ：Ｃｕ	１．０	１．０	７５．０
試料1-4 ＋ Er_2O_3(7%)	５．７	１０．６	９０．６
試料2-3 ＋ Er_2O_3(7%)	５．８	１０．６	９１．０
試料3-4 ＋ Er_2O_3(7%)	５．３	９．５	９０．６
試料4-2 ＋ Er_2O_3(7%)	５．６	１０．４	８５．０
試料5-1 ＋ Er_2O_3(7%)	５．６	１０．３	８０．０

【００３９】
ここでは、各試料共に、輝度が若干低下し、白色度が向上していることが確認できた。このことから、$SrAl_2O_4$：Ｅｕ，Ｄｙからなり、ＥｕをＳｒに対して、１≦Ｅｕ≦１０ｍｏｌ％の範囲で添加し、更にＥｕとＤｙとを、３≦Ｄｙ／Ｅｕ≦７０の比で添加した蓄光性蛍光体に、Er_2O_3を７重量％添加することによって、硫化亜鉛系蓄光性蛍光体（ＺｎＳ：Ｃｕ）よりも輝度及び白色度が向上していることが確認された。
【００４０】
更に同様に、Er_2O_3を１～１５重量％添加した場合について測定した結果、表１２と同様に、輝度が若干低下し、白色度が向上していることが確認できた。
また次に、試料１－１から試料５－３について、Er_2O_3を１～１５重量％添加した場合について測定した結果、Er_2O_3添加に伴なう白色度の向上は見られたものの、Ｓｒが０．３ｍｏｌ（３０ｍｏｌ％）以下になると、輝度において硫化亜鉛系蓄光性蛍光体（ＺｎＳ：Ｃｕ）よりも劣ってくることが確認された。
【００４１】
【発明の効果】
以上説明したように、本発明は、市販の硫化物系蛍光体に比べて遥かに長時間の残光特性を有し、更には化学的にも安定であり、かつ長期にわたり耐光性に優れると共に、通常の可視光下で体色が白色に見えるものである。
【図面の簡単な説明】

【図１】ＳｒＡｌ$_2$　Ｏ$_4$　：Ｅｕ，Ｄｙからなる蓄光性蛍光体の反射率、Ｅｒ$_2$　Ｏ$_3$の反射率、及びＳｒＡｌ$_2$　Ｏ$_4$　：Ｅｕ，Ｄｙからなる蓄光性蛍光体にＥｒ$_2$　Ｏ$_3$を７重量％添加した白色蓄光性蛍光体の反射率を示したグラフである。

【図１】



フロントページの続き

(72)発明者　竹内　信義
東京都杉並区上荻１－１５－１　丸三ビル　根本特殊化学株式会社内
(72)発明者　青木　康充
東京都杉並区上荻１－１５－１　丸三ビル　根本特殊化学株式会社内
(72)発明者　平田　米一
東京都杉並区上荻１－１５－１　丸三ビル　根本特殊化学株式会社内
(72)発明者　松沢　隆嗣
東京都杉並区上荻１－１５－１　丸三ビル　根本特殊化学株式会社内

審査官　藤原　浩子

(56)参考文献　特開平０７－０１１２５０（ＪＰ，Ａ）
登録実用新案第３００８８９９（ＪＰ，Ｕ）
特開平０３－２３９７８７（ＪＰ，Ａ）

(58)調査した分野(Int.Cl.[7]，ＤＢ名)
C09K 11/00 - 11/89