

(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
2016 年 7 月 28 日(28.07.2016)



(10) 国際公開番号

WO 2016/117406 A1

(51) 国際特許分類:

C03C 3/091 (2006.01) C03C 3/093 (2006.01)
C03B 17/06 (2006.01) C03C 3/097 (2006.01)
C03C 3/064 (2006.01) H01L 51/50 (2006.01)
C03C 3/066 (2006.01) H05B 33/02 (2006.01)
C03C 3/089 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2016/050634

(22) 国際出願日: 2016 年 1 月 12 日(12.01.2016)

(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 2015-009079 2015 年 1 月 21 日(21.01.2015) JP

(71) 出願人: 日本電気硝子株式会社(NIPPON ELECTRIC GLASS CO., LTD.) [JP/JP]; 〒5208639 滋賀県大津市晴嵐二丁目 7 番 1 号 Shiga (JP).

(72) 発明者: 虫明 篤(Mushiake Atsushi); 〒5208639 滋賀県大津市晴嵐二丁目 7 番 1 号 日本電気硝子株式会社内 Shiga (JP).

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA,

BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, KE, KG, KN, KP, KR, 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), ユーロパ (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ユーロパ (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:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

(54) Title: PHASE-SEPARATED GLASS

(54) 発明の名称: 分相ガラス

(57) Abstract: The present invention addresses the technical problem of providing a glass with which excellent productivity is achieved, and which is capable of improving light extraction efficiency of an organic EL element, even if a light extraction layer comprising a sintered body is not formed. This phase-separated glass is characterized by: being provided with a phase-separated structure including at least a first phase and a second phase; having a refractive index (n_d) of at least 1.51; and having a liquid-phase viscosity of at least $10^{3.5}$ dPa·s.

(57) 要約: 本発明の技術的課題は、焼結体からなる光取り出し層を形成しなくても、有機 EL 素子の光取り出し効率を高めることができ、しかも生産性に優れるガラスを創案することである。本発明の分相ガラスは、少なくとも第一の相と第二の相を含む分相構造を有し、屈折率 n_d が 1.51 以上であり、且つ液相粘度が $10^{3.5}$ dPa·s 以上であることを特徴とする。



WO 2016/117406 A1

明 細 書

発明の名称：分相ガラス

技術分野

[0001] 本発明は、分相ガラスに関し、具体的には、光散乱機能を有する分相ガラスに関する。

背景技術

[0002] 近年、家電製品の普及、大型化、多機能化等の理由から、家庭等の生活空間で消費されるエネルギーが増えている。特に、照明機器のエネルギー消費が多くなっている。このため、高効率の照明が活発に検討されている。

[0003] 照明用光源は、限られた範囲を照らす「指向性光源」と、広範囲を照らす「拡散光源」とに分けられる。LED照明は、「指向性光源」に相当し、白熱球の代替として採用されつつある。その一方で、「拡散光源」に相当する蛍光灯の代替光源が望まれており、その候補として、有機EL（エレクトロルミネッセンス）照明が有力である。

[0004] 有機EL素子は、ガラス板と、陽極である透明導電膜と、電流の注入によって発光するエレクトロルミネッセンスを呈する有機化合物からなる一層又は複数層の発光層を含む有機EL層と、陰極とを備えた素子である。有機EL素子に用いられる有機EL層として、低分子色素系材料、共役高分子系材料等が用いられており、発光層を形成する場合、ホール注入層、ホール輸送層、電子輸送層、電子注入層等との積層構造が形成される。このような積層構造を有する有機EL層を、陽極と陰極の間に配置し、陽極と陰極に電界を印加することにより、陽極である透明電極から注入された正孔と、陰極から注入された電子とが、発光層内で再結合し、その再結合エネルギーによって発光中心が励起されて、発光する。

[0005] 有機EL素子は、携帯電話、ディスプレイ用途として検討が進められており、一部では既に実用化されている。また、有機EL素子を用いた有機ELディスプレイは、液晶ディスプレイ、プラズマディスプレイ等の薄型テレビ

と同等の発光効率を有している。

[0006] しかし、有機EL素子を照明用光源に適用するためには、輝度が未だ実用レベルに到達しておらず、更なる発光効率の改善が必要である。

先行技術文献

特許文献

[0007] 特許文献1：特開2012-25634号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0008] 輝度低下の原因の一つは、ガラス板と空気の屈折率差に起因して、ガラス板内に光が閉じ込められることにある。例えば、屈折率 n_d 1.50のガラス板を用いた場合、空気の屈折率 n_a は1.0であるため、臨界角はスネルの法則より 42° と計算される。よって、この臨界角以上の入射角の光は、全反射を起こし、ガラス板内に閉じ込められて、空気中に取り出されないことになる。

[0009] 上記問題を解決するために、透明導電膜等とガラス板の間に、光取り出し層を形成することが検討されている。例えば、特許文献1には、ソーダガラス板の表面に、高屈折率のガラスフリットを焼結させた光取り出し層を形成すると共に、光取り出し層内に散乱物質を分散させることにより、光取り出し効率を高めることも記載されている。

[0010] しかし、ガラス板の表面に光取り出し層を形成するためには、ガラス板の表面にガラスペーストを塗布する印刷工程が必要になり、この工程は生産コストの高騰を招く。更に、ガラスフリット中に散乱粒子を分散させる場合、散乱粒子自体の吸収により光取り出し層の透過率が低くなる。

[0011] 本発明は、上記事情に鑑みなされたものであり、その技術的課題は、焼結体からなる光取り出し層を形成しなくても、有機EL素子の光取り出し効率を高めることができ、しかも生産性に優れるガラスを創案することである。

課題を解決するための手段

[0012] 本発明者は、鋭意検討の結果、分相ガラスを用いると共に、その分相ガラスの屈折率と耐失透性を所定範囲に規制することにより、上記技術的課題を解決し得ることを見出し、本発明として提案するものである。すなわち、本発明の分相ガラスは、すなわち、本発明の分相ガラスは、少なくとも第一の相と第二の相を含む分相構造を有し、屈折率 n_d が1.51以上であり、且つ液相粘度が $10^{3.5}$ Pa·s以上であることを特徴とする。ここで、「屈折率 n_d 」は、屈折率測定器で測定したd線の値を指す。例えば、まず25mm×25mm×約3mmの直方体試料を作製し、(徐冷点 $T_a + 30^\circ\text{C}$)から(歪点 $P_s - 50^\circ\text{C}$)までの温度域を $0.1^\circ\text{C}/\text{分}$ の冷却速度で徐冷処理した後、屈折率 n_d が整合する浸液を浸透させながら、島津製作所社製の屈折率測定器KPR-2000により測定可能である。「液相粘度」は、液相温度におけるガラスの粘度を指す。「液相温度」は、30メッシュ(篩目開き $500\mu\text{m}$)を通過し、50メッシュ(篩目開き $300\mu\text{m}$)に残るガラス粉末を白金ボートに入れて、温度勾配炉中に24時間保持した後、結晶の析出する温度を測定した値を指す。なお、少なくとも第一の相と第二の相を含む分相構造は、表面の光散乱により目視確認が可能である。

[0013] 本発明の分相ガラスは、少なくとも第一の相と第二の相を含む分相構造を有する。このようにすれば、有機ELデバイスに適用した場合、有機EL層からガラス板へ入射した光が、第一の相と第二の相の界面で散乱するため、光を外部に取り出し易くなり、結果として、焼結体からなる光取り出し層を形成しなくても、光取り出し効率を高めることができる。

[0014] 本発明の分相ガラスは、屈折率 n_d が1.51以上である。従来の有機EL照明等の有機ELデバイスは、ガラス板と透明導電膜等の屈折率差が大きいことに起因して、有機EL層から入射した光がガラス板と透明導電膜等の界面で反射し、光取り出し効率が低下するという問題もあった。具体的には、透明導電膜の屈折率 n_d は1.9~2.0であり、有機EL層の屈折率 n_d は1.8~1.9であった。これに対して、ガラス板の屈折率 n_d は、通常、1.50程度であった。そこで、上記のように屈折率 n_d を規制すれば、ガラス

板と透明導電膜等の屈折率差が小さくなるため、有機EL層から入射した光がガラス板と透明導電膜等の界面で反射し難くなり、光取り出し効率を高めることができる。

[0015] 本発明の分相ガラスは、液相粘度が $10^{3.5}$ dPa・s以上である。従来の高屈折率の分相ガラスは、液相粘度が低いため、大量のガラス板を作製することが困難であった。そこで、上記のように液相粘度を規制すれば、成形時にガラスが失透し難くなり、特に平板形状の分相ガラスを大量生産し易くなる。結果として、分相ガラスの製造コストを低減することができる。

[0016] 第二に、本発明の分相ガラスは、屈折率 n_d が1.63未満であることが好ましい。

[0017] 第三に、本発明の分相ガラスは、ガラス組成として、質量%で、 SiO_2 30～75%、 Al_2O_3 0～35%、 B_2O_3 0.1～50%を含有することが好ましい。このようにすれば、分相性と耐失透性を高めることができる。

[0018] 第四に、本発明の分相ガラスは、ガラス組成中の $\text{SiO}_2 + \text{Al}_2\text{O}_3 + \text{B}_2\text{O}_3$ の含有量が55～80質量%であることが好ましい。このようにすれば、耐失透性を更に高めることができる。ここで、「 $\text{SiO}_2 + \text{Al}_2\text{O}_3 + \text{B}_2\text{O}_3$ 」は、 SiO_2 、 Al_2O_3 及び B_2O_3 の含量を指す。

[0019] 第五に、本発明の分相ガラスは、ガラス組成中の $\text{MgO} + \text{CaO} + \text{SrO} + \text{BaO} + \text{ZnO}$ の含有量が15～35質量%であることが好ましい。ここで、「 $\text{MgO} + \text{CaO} + \text{SrO} + \text{BaO} + \text{ZnO}$ 」は、 MgO 、 CaO 、 SrO 、 BaO 及び ZnO の含量を指す。

[0020] 第六に、本発明の分相ガラスは、ガラス組成中の P_2O_5 の含有量が0.001～20質量%であることが好ましい。このようにすれば、分相性を高め易くなる。

[0021] 第七に、本発明の分相ガラスは、ガラス組成中の $\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}$ の含有量が5質量%以下であることが好ましい。ここで、「 $\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}$ 」は、 Li_2O 、 Na_2O 及び K_2O の含量を指す。

[0022] 第八に、本発明の分相ガラスは、平板形状であることが好ましい。

[0023] 第九に、本発明の分相ガラスは、オーバーフローダウンドロー法で成形されてなることが好ましい。

[0024] 第十に、本発明の分相ガラスは、照明に用いることが好ましい。

[0025] 第十一に、本発明の分相ガラスは、有機EL照明に用いることが好ましい。

[0026] 第十二に、本発明の有機ELデバイスは、上記の分相ガラスを備えてなることが好ましい。

発明を実施するための形態

[0027] 本発明の分相ガラスは、少なくとも第一の相と第二の相を含む分相構造を有すると共に、第一の相中の SiO_2 の含有量が、第二の相中の SiO_2 の含有量よりも多いことが好ましい。このようにすれば、第一の相と第二の相の屈折率が相違し易くなり、ガラスの散乱機能を高めることができる。なお、2体積%のフッ酸溶液に2分間浸漬させた後の試料表面を電界放射型走査型電子顕微鏡で観察すれば、各相の詳細、特に各相の SiO_2 の含有量を確認可能である。

[0028] 本発明の分相ガラスにおいて、少なくとも一方の相（第一の相及び／又は第二の相）の分相粒子の平均粒子径は $0.01 \sim 5 \mu\text{m}$ 、特に $0.02 \sim 1 \mu\text{m}$ が好ましい。分相粒子の平均粒子径が小さいと、有機EL層から放射した光が、第一の相と第二の相の界面で散乱し難くなる。一方、分相粒子の平均粒子径が大きいと、散乱強度が強くなり過ぎて、全光線透過率が低下する虞がある。

[0029] 本発明の分相ガラスにおいて、屈折率 n_d は 1.51 以上であり、好ましくは 1.52 以上、 1.53 以上、 1.54 以上、特に 1.55 以上である。屈折率 n_d が 1.51 未満になると、ガラス板と透明導電膜等の界面の反射によって光を効率良く取り出すことが困難になる。一方、屈折率 n_d が高過ぎると、耐失透性を高める成分の導入が制限されるため、液相粘度を高めることが困難になる。またガラス板と空気の界面での反射率が高くなり、光を外部

に取り出し難くなる。よって、屈折率 n_d は、好ましくは2.30以下、2.00以下、1.80以下、1.70以下、1.65以下、1.63未満、1.62以下、1.61以下、1.60以下、1.59以下、特に1.58以下である。

[0030] 本発明の分相ガラスにおいて、液相粘度は $10^{3.5}$ dPa・s以上であり、好ましくは $10^{3.5}$ dPa・s以上、 $10^{3.8}$ dPa・s以上、 $10^{4.0}$ dPa・s以上、 $10^{4.2}$ dPa・s以上、 $10^{4.4}$ dPa・s以上、 $10^{4.6}$ dPa・s以上、特に $10^{4.8}$ dPa・s以上である。液相粘度が低いと、耐失透性が低下して、オーバーフローダウンドロー法、フロート法等により、ガラス板を成形し難くなる。

[0031] 本発明の分相ガラスは、ガラス組成として、質量%で、 SiO_2 30～75%、 Al_2O_3 0～35%、 B_2O_3 0.1～50%を含有することが好ましい。以下、上記のように各成分を限定した理由を説明する。なお、各成分の含有範囲の説明において、%表示は、質量%を意味する。

[0032] SiO_2 の含有量が多くなると、熔融性、成形性が低下し易くなり、また屈折率が低下し易くなる。よって、 SiO_2 の好適な上限範囲は75%以下、70%以下、65%以下、60%以下、55%以下、50%以下、特に48%以下である。一方、 SiO_2 の含有量が少なくなると、ガラス網目構造を形成し難くなり、ガラス化が困難になる。またガラスの粘性が低下し過ぎて、高い液相粘度を確保し難くなる。よって、 SiO_2 の好適な下限範囲は30%以上、35%以上、40%以上、42%以上、44%以上、特に46%以上である。

[0033] Al_2O_3 は、耐失透性を高める成分であるが、 Al_2O_3 の含有量が多過ぎると、分相性が低下し易くなることに加えて、ガラス組成の成分バランスが損なわれて、逆に耐失透性が低下し易くなる。また耐酸性が低下し易くなる。よって、 Al_2O_3 の好適な上限範囲は35%以下、30%以下、25%以下、20%以下、15%以下、12%以下、10%以下、特に9%以下であり、好適な下限範囲は0.1%以上、3%以上、4%以上、特に5%以上で

ある。

[0034] B_2O_3 は、分相性を高める成分であるが、 B_2O_3 の含有量が多過ぎると、ガラス組成の成分バランスが損なわれて、耐失透性が低下し易くなることに加えて、耐酸性が低下し易くなる。よって、 B_2O_3 の好適な上限範囲は50%以下、40%以下、30%以下、25%以下、20%以下、17%以下、特に15%以下であり、好適な下限範囲は0.1%以上、0.5%以上、1%以上、4%以上、7%以上、9%以上、10%以上、11%以上、特に12%以上である。

[0035] $SiO_2 + Al_2O_3 + B_2O_3$ の含有量は、屈折率と耐失透性の観点から、好ましくは55~80%、58~75%、60~70%、特に64~68%である。

[0036] 上記成分以外にも、例えば、以下の成分を導入することができる。

[0037] Li_2O 、 Na_2O 及び K_2O は、分相性を高めつつ、高温粘度を低下させる成分であるが、 $Li_2O + Na_2O + K_2O$ の含有量が多過ぎると、液相粘度が低下し易くなり、また歪点が低下し易くなる。更に、酸によるエッチング工程において、アルカリ成分が溶出し易くなる。よって、 $Li_2O + Na_2O + K_2O$ の好適な上限範囲は30%以下、20%以下、10%以下、5%以下、1%未満、0.5%以下、特に0.1%未満である。

[0038] Li_2O は、分相性を高める成分であるが、 Li_2O の含有量が多過ぎると、液相粘度が低下し易くなり、また歪点が低下し易くなる。更に、酸によるエッチング工程において、アルカリ成分が溶出し易くなる。よって、 Li_2O の好適な上限範囲は30%以下、20%以下、10%以下、5%以下、1%未満、0.5%以下、特に0.1%未満である。

[0039] Na_2O は、高温粘度を低下させる成分であるが、 Na_2O の含有量が多過ぎると、液相粘度が低下し易くなり、また歪点が低下し易くなる。更に、酸によるエッチング工程において、アルカリ成分が溶出し易くなる。よって、 Na_2O の好適な上限範囲は30%以下、20%以下、10%以下、5%以下、1%未満、0.5%以下、特に0.1%未満である。

- [0040] K_2O は、分相性を高める成分であるが、 K_2O の含有量が多過ぎると、液相粘度が低下し易くなり、また歪点が低下し易くなる。更に、酸によるエッチング工程において、アルカリ成分が溶出し易くなる。よって、 K_2O の好適な上限範囲は30%以下、20%以下、10%以下、5%以下、1%未満、0.5%以下、特に0.1%未満である。
- [0041] MgO は、屈折率、ヤング率、歪点を高める成分であると共に、高温粘度を低下させる成分であるが、 MgO を多量に含有させると、液相温度が上昇して、耐失透性が低下したり、密度が高くなり過ぎる虞がある。よって、 MgO の好適な上限範囲は30%以下、20%以下、10%以下、5%以下、特に1%未満である。なお、 MgO を導入する場合、好適な下限範囲は0%以上、0.1%以上、0.2%以上、特に0.5%以上である。
- [0042] CaO は、高温粘度を低下させる成分であるが、 CaO の含有量が多くなると、密度が高くなり易く、またガラス組成の成分バランスが損なわれて、耐失透性が低下し易くなる。よって、 CaO の好適な上限範囲は30%以下、20%以下、10%以下、8%以下、5%以下、3%以下、2%以下、特に1%以下であり、好適な下限範囲は0%以上、0.1%以上、特に0.5%以上である。
- [0043] SrO の含有量が多くなると、屈折率、密度が高くなり易く、またガラス組成の成分バランスが損なわれて、耐失透性が低下し易くなる。よって、 SrO の好適な上限範囲は30%以下、25%以下、20%以下、15%以下、特に10%以下であり、好適な下限範囲は0%以上、1%以上、3%以上、5%以上、7%以上、特に8%以上である。
- [0044] BaO は、アルカリ土類金属酸化物の中ではガラスの粘性を極端に低下させずに、屈折率を高める成分である。 BaO の含有量が多くなると、屈折率が高くなり易く、また BaO の含有量が多過ぎると、密度が上昇し易くなり、またガラス組成の成分バランスが損なわれて、耐失透性が低下し易くなる。よって、 BaO の好適な上限範囲は40%以下、30%以下、26%以下、24%以下、22%以下、特に20%以下であり、好適な下限範囲は0%

以上、1%以上、5%以上、7%以上、10%以上、12%以上、14%以上、特に15%以上である。

[0045] ZnOの含有量が多くなると、屈折率が高くなり易いが、密度が上昇し易くなり、またガラス組成の成分バランスが損なわれて、耐失透性が低下し易くなる。よって、ZnOの好適な上限範囲は20%以下、10%以下、7%以下、5%以下、特に4%以下であり、好適な下限範囲は0%以上、0.1%以上、0.5%以上、1%以上、1.5%以上、特に2%以上である。

[0046] MgO+CaO+SrO+BaO+ZnOの含有量は、屈折率と耐失透性を両立させる観点から、好ましくは15~35%、20~34%、22~33%、24~32%、特に26~31%である。また質量比 $(\text{SiO}_2 + \text{Al}_2\text{O}_3 + \text{B}_2\text{O}_3) / (\text{MgO} + \text{CaO} + \text{SrO} + \text{BaO} + \text{ZnO})$ は、屈折率と耐失透性を両立させる観点から、好ましくは1.8~4.0、2.0~3.2、2.1~3.0、2.2~2.9、特に2.3~2.8である。ここで、「 $(\text{SiO}_2 + \text{Al}_2\text{O}_3 + \text{B}_2\text{O}_3) / (\text{MgO} + \text{CaO} + \text{SrO} + \text{BaO} + \text{ZnO})$ 」は、 $\text{SiO}_2 + \text{Al}_2\text{O}_3 + \text{B}_2\text{O}_3$ の含有量をMgO+CaO+SrO+BaO+ZnOの含有量で割った値である。

[0047] TiO₂は、屈折率を高める成分であるが、TiO₂の含有量が多くなると、ガラス組成の成分バランスが損なわれて、耐失透性が低下し易くなる。よって、TiO₂の好適な上限範囲は20%以下、15%以下、10%以下、5%以下、特に3%以下であり、好適な下限範囲は0%以上、0.001%以上、0.01%以上、0.1%以上、1%以上、1.5%以上、特に2%以上である。

[0048] ZrO₂は、屈折率を高める成分であるが、ZrO₂の含有量が多くなると、ガラス組成の成分バランスが損なわれて、耐失透性が低下し易くなる。よって、ZrO₂の好適な上限範囲は20%以下、10%以下、6%以下、4%以下、3%以下、特に2%以下であり、好適な下限範囲は0%以上、0.001%以上、0.01%以上、0.1%以上、0.5%以上、特に1%以上である。

[0049] P_2O_5 は、分相性を高める成分であるが、 P_2O_5 の含有量が多くなると、ガラス組成の成分バランスが損なわれて、耐失透性が低下し易くなる。よって、 P_2O_5 の好適な上限範囲は20%以下、15%以下、10%以下、7%以下、4%以下、3%以下、特に2.5%以下であり、好適な下限範囲は0%以上、0.001%以上、0.01%以上、0.1%以上、0.5%以上、1%以上、1.2%以上、特に1.4%以上である。

[0050] La_2O_3 は、屈折率を高める成分であるが、 La_2O_3 の含有量が多くなると、密度が高くなり易く、また耐失透性や耐酸性が低下し易くなる。更に原料コストが上昇して、ガラス板の製造コストが高騰し易くなる。よって、 La_2O_3 の好適な上限範囲は10%以下、5%以下、3%以下、1%以下、0.5%以下、特に0.1%以下である。

[0051] Nb_2O_5 は、屈折率を高める成分であるが、 Nb_2O_5 の含有量が多くなると、密度が高くなり易く、また耐失透性が低下し易くなる。更に原料コストが上昇して、ガラス板の製造コストが高騰し易くなる。よって、 Nb_2O_5 の好適な上限範囲は10%以下、5%以下、3%以下、1%以下、0.5%以下、特に0.1%以下である。

[0052] Gd_2O_3 は、屈折率を高める成分であるが、 Gd_2O_3 の含有量が多くなると、密度が高くなり過ぎたり、ガラス組成の成分バランスを欠いて、耐失透性が低下したり、高温粘性が低下し過ぎて、高い液相粘度を確保し難くなる。よって、 Gd_2O_3 の好適な上限範囲は10%以下、5%以下、3%以下、1%以下、0.5%以下、特に0.1%以下である。

[0053] レアメタル酸化物は、屈折率を高める成分であるが、これらの成分の含有量が多くなると、密度、熱膨張係数が高くなり易く、また耐失透性が低下して、高い液相粘度を確保し難くなる。更に原料コストが上昇して、ガラス板の製造コストが高騰し易くなる。よって、レアメタル酸化物の好適な上限範囲は10%以下、5%以下、3%以下、1%以下、0.5%以下、特に0.1%以下である。なお、本発明でいう「レアメタル酸化物」は、 La_2O_3 、 Nd_2O_3 、 Gd_2O_3 、 CeO_2 等の希土類酸化物、 Y_2O_3 、 Nb_2O_5 、 Ta_2

O₅を指す。

- [0054] 清澄剤として、下記酸化物換算で、As₂O₃、Sb₂O₃、SnO₂、Fe₂O₃、F、Cl、SO₃、CeO₂の群から選択された一種又は二種以上を0～3%導入することができる。特に、清澄剤として、SnO₂、Fe₂O₃及びCeO₂が好ましい。一方、As₂O₃とSb₂O₃は、環境的観点から、その使用を極力控えることが好ましく、各々の含有量は0.3%未満、特に0.1%未満が好ましい。ここで、「下記酸化物換算」は、表記の酸化物とは価数が異なる酸化物であっても、表記の酸化物に換算した上で取り扱うことを意味する。
- [0055] SnO₂の含有量は、好ましくは0～1%、0.001～1%、特に0.01～0.5%である。
- [0056] Fe₂O₃の含有量は、好ましくは0.05%以下、0.04%以下、0.03%以下、特に0.001～0.02%である。
- [0057] CeO₂の含有量は0～6%が好ましい。CeO₂の含有量が多くなると、耐失透性が低下し易くなる。よって、CeO₂の好適な上限範囲は6%以下、5%以下、3%以下、2%以下、1%以下、特に0.1%以下である。一方、CeO₂を導入する場合、CeO₂の好適な下限範囲は0.001%以上、特に0.01%以上である。
- [0058] PbOは、高温粘性を低下させる成分であるが、環境的観点から、その使用を極力控えることが好ましい。PbOの含有量は0.5%以下、特に0.1%未満が好ましい。
- [0059] 上記成分以外にも、他の成分を含量で好ましくは10%（望ましくは5%、より望ましくは2%）まで導入してもよい。
- [0060] 本発明の分相ガラスは、以下の特性を有することが好ましい。
- [0061] 歪点は、好ましくは450℃以上、500℃以上、550℃以上、特に600℃以上である。透明導電膜を高温で形成する程、透明性が高く、電気抵抗が低くなり易い。しかし、従来のガラス板は、耐熱性が不十分であるため、透明導電膜を高温で成膜することが困難であった。そこで、歪点を上記範

困とすれば、耐熱性が向上するため、透明導電膜の透明性と低電気抵抗の両立が可能になり、更には有機デバイスの製造工程において、熱処理によりガラス板が熱収縮し難くなる。

[0062] $10^{2.5}$ dPa・sにおける温度は、好ましくは1450℃以下、1400℃以下、1380℃以下、特に1360℃以下である。このようにすれば、熔融性が向上するため、ガラス板の生産性が向上する。

[0063] 液相温度は、好ましくは1200℃以下、1150℃以下、1100℃以下、特に1060℃以下である。このようにすれば、成形時にガラスが失透し難くなり、例えば、オーバーフローダウンドロー法、フロート法等によりガラス板を成形し易くなる。

[0064] 分相温度は、好ましくは800℃以上、850℃以上、900℃以上、950℃以上、1000℃以上、特に1100℃以上である。また、分相粘度は、好ましくは $10^{9.0}$ dPa・s以下、 $10^{8.0}$ dPa・s以下、 $10^{7.0}$ dPa・s以下、特に $10^{3.5} \sim 10^{6.0}$ dPa・sである。このようにすれば、成形工程及び／又は徐冷工程でガラスが分相し易くなり、オーバーフローダウンドロー法、フロート法等により分相構造を有するガラス板を成形し易くなる。結果として、ガラス板を成形した後に、ガラスを分相させるための別途の熱処理工程が不要になり、ガラス板の製造コストを低減し易くなる。ここで、「分相温度」は、ガラス片を白金ボートに入れ、1400℃でリメルトした後、白金ボートを温度勾配炉に移し、温度勾配炉中で30分間保持した時に、明確な白濁が認められる温度を指す。「分相粘度」は、分相温度におけるガラスの粘度を白金引き上げ法で測定した値を指す。なお、本発明の分相ガラスは、成形工程及び／又は徐冷工程でガラスが分相することが好ましいが、これらの工程以外、例えば熔融工程でガラスが分相していてもよい。

[0065] 厚み（平板形状の場合、板厚）は、好ましくは1.5 mm以下、1.3 mm以下、1.1 mm以下、0.8 mm以下、0.7 mm以下、0.5 mm以下、0.3 mm以下、0.2 mm以下、特に0.1 mm以下である。厚みが

小さい程、可撓性が高まり、有機ＥＬ照明の意匠性を高め易くなるが、厚みが極端に小さくなると、ガラスが破損し易くなる。よって、厚みは、好ましくは $10\mu\text{m}$ 以上、特に $30\mu\text{m}$ 以上である。

[0066] 本発明の分相ガラスは、平板形状を有することが好ましく、つまりガラス板であることが好ましい。このようにすれば、有機ＥＬデバイスに適用し易くなる。平板形状を有する場合、少なくとも一方の表面に未研磨面を有すること（特に、少なくとも一方の表面の有効面全体が未研磨面であること）が好ましい。ガラスの理論強度は、非常に高いが、理論強度よりも遥かに低い応力でも破壊に至ることが多い。これは、ガラス板の表面にグリフィスフローと呼ばれる小さな欠陥が成形後の工程、例えば研磨工程等で生じるからである。よって、ガラス板の表面を未研磨にすれば、本来の機械的強度を損ない難くなるため、ガラス板が破壊し難くなる。また、研磨工程を簡略化又は省略し得るため、ガラス板の製造コストを低廉化することができる。

[0067] 平板形状を有する場合、少なくとも一方の表面（特に未研磨面）の表面粗さ R_a は $0.01\sim 1\mu\text{m}$ が好ましい。表面粗さ R_a が大きいと、その表面に透明導電膜等を形成する場合、透明導電膜の品位が低下して、均一な発光を得難くなる。表面粗さ R_a の好適な上限範囲は $1\mu\text{m}$ 以下、 $0.8\mu\text{m}$ 以下、 $0.5\mu\text{m}$ 以下、 $0.3\mu\text{m}$ 以下、 $0.1\mu\text{m}$ 以下、 $0.07\mu\text{m}$ 以下、 $0.05\mu\text{m}$ 以下、 $0.03\mu\text{m}$ 以下、特に 10nm 以下である。

[0068] 本発明の分相ガラスは、ダウンドロー法、特にオーバーフローダウンドロー法で成形されてなることが好ましい。このようにすれば、未研磨で表面品位が良好なガラス板を製造することができる。その理由は、オーバーフローダウンドロー法の場合、表面になるべき面は樋状耐火物に接触せず、自由表面の状態で成形されるからである。なお、オーバーフローダウンドロー法以外にも、スロットダウンドロー法を採用することができる。このようにすれば、薄肉のガラス板を作製し易くなる。

[0069] 上記成形方法以外にも、例えば、リドロ法、フロート法、ロールアウト法等を採用することができる。特に、フロート法では、大型のガラス板を効

率良く成形することができる。

[0070] 本発明の分相ガラスは、切断工程後に、ガラスを分相させるための熱処理工程を経ていないことが好ましく、また成形工程でガラスが分相しているか、或いは成形直後の徐冷（冷却）工程でガラスが分相していることが好ましい。特に、オーバーフローダウンドロー法でガラス板を成形する場合、樋状構造物内で分相現象が生じていてもよく、延伸成形時や徐冷時に分相現象が生じていてもよい。このようにすれば、製造工程数が減少し、分相ガラスの生産性を高めることができる。なお、分相現象は、ガラス組成、成形条件、徐冷条件等により制御することができる。

[0071] 本発明の分相ガラスは、平板形状を有する場合、少なくとも一方の表面を粗面化面としてもよい。粗面化面を有機EL照明等の空気と接する側に配置すれば、ガラス板の散乱効果に加えて、粗面化面の無反射構造により、有機EL層から放射した光が有機EL層内に戻り難くなり、結果として、光の取り出し効率を高めることができる。粗面化面の表面粗さ R_a は、好ましくは $10\text{ \AA}$ 以上、 $20\text{ \AA}$ 以上、 $30\text{ \AA}$ 以上、特に $50\text{ \AA}$ 以上である。粗面化面は、HFエッチング、サンドブラスト等で形成することができる。また、リプレス等の熱加工により、ガラス板の表面に凹凸形状を形成してもよい。このようにすれば、ガラス表面に正確な無反射構造を形成することができる。凹凸形状は、屈折率 n_d を考慮しながら、その間隔と深さを調整すればよい。

[0072] また、大気圧プラズマプロセスにより粗面化面を形成することもできる。このようにすれば、ガラス板の一方の表面の平滑な表面状態を維持した上で、他方の表面に対して、均一に粗面化処理を行うことができる。また、大気圧プラズマプロセスのソースとして、Fを含有するガス（例えば、 SF_6 、 CF_4 ）を用いることが好ましい。このようにすれば、HF系ガスを含むプラズマが発生するため、粗面化面を効率良く形成することができる。

[0073] 更に、ガラス板の成形時に、少なくとも一方の表面に粗面化面を形成することもできる。このようにすれば、別途独立した粗面化処理が不要になり、粗面化処理の効率が向上する。

[0074] なお、ガラス板に粗面化面を形成せずに、所定の凹凸形状を有する樹脂フィルムをガラス板の表面に貼り付けてもよい。なお、凹凸形状の表面粗さ R_a は、好ましくは $10 \text{ \AA}$ 以上、 $20 \text{ \AA}$ 以上、 $30 \text{ \AA}$ 以上、特に $50 \text{ \AA}$ 以上である。

実施例 1

[0075] 以下、実施例に基づいて、本発明を詳細に説明する。なお、以下の実施例は単なる例示である。本発明は、以下の実施例に何ら限定されない。

[0076] 表 1～3 は、試料 No. 1～32 を示している。

[0077] [表 1]

ガラス組成(質量%)	No.1	No.2	No.3	No.4	No.5	No.6	No.7	No.8	No.9	No.10	No.11	No.12	No.13	No.14
SiO_2	432	470	433	469	466	468	459	464	469	466	463	463	470	464
Al_2O_3	55	60	55	60	86	73	59	59	66	66	66	72	86	86
B_2O_3	131	142	131	142	123	132	121	131	137	132	127	122	118	118
Li_2O	00	00	00	00	00	00	00	00	00	00	00	00	00	00
Na_2O	00	00	00	00	00	00	00	00	00	00	00	00	00	00
K_2O	00	00	00	00	00	00	00	00	00	00	00	00	00	00
MgO	00	00	00	00	00	00	00	00	00	00	00	00	00	00
CaO	00	00	00	00	00	00	00	00	00	00	00	00	00	00
SrO	100	86	95	77	85	86	84	85	86	85	85	85	85	85
BaO	186	160	177	143	159	160	196	179	160	189	178	178	159	158
ZnO	28	24	26	21	24	24	23	24	24	24	23	23	24	24
ZrO_2	18	15	22	23	15	15	15	15	15	15	15	15	15	23
TiO_2	32	28	39	42	28	28	28	28	28	27	27	27	28	28
P_2O_5	18	15	22	23	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15
$\text{SiO}_2+\text{Al}_2\text{O}_3+\text{B}_2\text{O}_3$	618	671	619	670	674	673	639	655	672	664	656	657	674	667
$\text{MgO}+\text{CaO}+\text{SrO}+\text{BaO}+\text{ZnO}$	313	270	298	242	268	269	304	287	270	278	287	286	268	267
$(\text{SiO}_2+\text{Al}_2\text{O}_3+\text{B}_2\text{O}_3)/(\text{MgO}+\text{CaO}+\text{SrO}+\text{BaO}+\text{ZnO})$	2.0	2.5	2.1	2.8	2.5	2.5	2.1	2.3	2.5	2.4	2.3	2.3	2.5	2.5
$\text{Li}_2\text{O}+\text{Na}_2\text{O}+\text{K}_2\text{O}$	00	00	00	00	00	00	00	00	00	00	00	00	00	00
P_2O_5	601	608	未測定	599	607	606	614	607	603	608	606	611	607	607
T_g (°C)	637	645	未測定	639	647	645	651	644	641	646	645	650	647	648
T_g (°C)	未測定	973	未測定	未測定	847	953	未測定	未測定	未測定	未測定	未測定	924	未測定	未測定
$10^{10}\text{dPa}\cdot\text{s}$ (°C)	1039	1063	1044	1094	1088	1071	1052	1052	1068	1066	1061	1066	1096	1094
$10^{20}\text{dPa}\cdot\text{s}$ (°C)	1156	1192	1159	1225	1239	1216	1186	1191	1213	1211	1201	1209	1248	1243
$10^{25}\text{dPa}\cdot\text{s}$ (°C)	1244	1287	1249	1323	1343	1314	1278	1286	1311	1312	1297	1306	1350	1344
$10^{30}\text{dPa}\cdot\text{s}$ (°C)	1350	1408	1354	1453	1471	1437	1397	1401	1430	1434	1416	1428	1471	1464
液相温度(°C)	1083	未測定	未測定	未測定	1041	1050	1045	<1051	1041	1056	1044	1053	1057	1082
液相粘度(dPa·s)	3.5	未測定	未測定	未測定	4.5	4.2	4.1	4.0	4.3	4.1	4.2	4.1	4.4	4.1
分相温度(°C)	1021	1069	1085	1113	884	982	1003	1045	1018	1010	978	1015	889	871
分相粘度(dPa·s)	4.2	3.9	未測定	3.8	6.8	5.0	4.6	4.1	4.5	4.6	5.0	4.6	7.0	7.0
屈折率nd	1.602	1.552	1.560	1.550	1.557	1.557	1.566	1.561	1.557	1.559	1.564	1.566	1.563	1.566

[0078]

[表 2]

ガラス組成(質量%)	No.15	No.16	No.17	No.18	No.19	No.20	No.21	No.22	No.23	No.24	No.25	No.26	No.27	No.28
SiO ₂	46.5	46.3	46.4	45.7	46.8	46.1	45.7	45.9	46.0	46.1	45.4	45.6	45.8	45.5
Al ₂ O ₃	8.6	8.6	8.6	8.4	6.0	5.9	8.6	7.3	7.3	7.3	7.2	7.2	7.3	7.2
B ₂ O ₃	11.8	11.8	10.4	10.3	12.3	12.1	13.2	14.1	13.2	13.3	13.1	13.1	13.2	13.1
Li ₂ O	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
Na ₂ O	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
K ₂ O	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
MgO	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.5	0.0	0.0	0.0	0.0
CaO	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
SrO	8.5	8.5	8.5	8.4	8.6	8.4	8.5	8.6	8.6	8.6	8.5	8.5	8.5	8.5
BaO	15.9	15.8	15.9	15.6	16.0	15.7	15.9	16.0	16.0	16.0	17.8	15.8	15.9	15.8
ZnO	2.4	2.3	2.4	2.3	2.4	2.3	2.4	2.4	2.4	2.4	2.3	2.4	2.4	2.3
ZrO ₂	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	3.1	1.5	1.5
TiO ₂	3.3	2.8	4.9	2.7	4.9	2.8	2.7	2.7	2.8	2.8	2.7	2.7	3.8	2.7
P ₂ O ₅	1.5	2.4	1.5	5.1	1.5	5.2	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	3.4
SiO ₂ +Al ₂ O ₃ +B ₂ O ₃	66.9	66.6	65.4	64.4	65.1	64.1	67.5	67.3	66.5	66.7	65.7	66.0	66.3	65.8
MgO+CaO+SrO+BaO+ZnO	26.8	26.7	26.7	26.3	26.9	26.5	26.8	26.9	26.9	27.5	28.6	26.7	26.8	26.6
(SiO ₂ +Al ₂ O ₃ +B ₂ O ₃)/ (MgO+CaO+SrO+BaO+ZnO)	2.5	2.5	2.4	2.4	2.4	2.4	2.5	2.5	2.5	2.4	2.3	2.5	2.5	2.5
Li ₂ O+Na ₂ O+K ₂ O	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
Ps(°C)	605	609	609	611	608	未測定	602	605	590	608	609	610	605	605
Ta(°C)	646	650	649	656	644	未測定	642	643	628	645	647	650	643	646
Ts(°C)	未測定	890	830	未測定	945	未測定	未測定	未測定	800	未測定	未測定	未測定	未測定	未測定
10 ¹⁰ dPa・s(°C)	1093	1096	1096	1137	1069	1138	1082	1068	1050	1069	1066	1082	1070	1095
10 ¹⁰ dPa・s(°C)	1242	1246	1241	1285	1210	1281	1227	1211	1193	1212	1204	1223	1213	1237
10 ¹⁵ dPa・s(°C)	1343	1348	1340	1386	1307	1372	1325	1308	1290	1307	1300	1317	1310	1336
10 ²⁰ dPa・s(°C)	1463	1469	1462	1510	1427	1483	1444	1425	1408	1419	1412	1431	1427	1457
液相温度(°C)	1054	1060	1071	<1119	<1071	1188<	1012	1030	1012	1042	1036	1096	1038	1083
液相粘度(dPa・s)	4.4	4.4	4.3	4.2<	<4.0	未測定	4.8	4.4	4.4	4.3	4.3	3.9	4.3	4.1
分相温度(°C)	863	925	860	1107<	1049	1107<	869	961	849	971	933	952	966	1056
分相粘度(dPa・s)	7.1	6.1	7.2	<4.3	4.2	未測定	6.8	5.3	6.7	5.1	5.7	5.6	5.2	4.4
屈折率nd	1.563	1.559	1.570	1.550	1.566	未測定	1.556	1.556	1.559	1.557	1.561	1.561	1.562	1.551

[0079]

[表 3]

ガラス組成(質量%)	No.29	No.30	No.31	No.32
SiO ₂	48.6	52.2	44.6	43.7
Al ₂ O ₃	7.3	7.5	7.1	6.9
B ₂ O ₃	13.3	13.6	12.8	12.6
Li ₂ O	0.0	0.0	0.0	0.0
Na ₂ O	0.0	0.0	0.0	0.0
K ₂ O	0.0	0.0	0.0	0.0
MgO	0.0	0.0	0.0	0.0
CaO	0.0	0.0	0.0	0.0
SrO	4.5	0.0	4.3	0.0
BaO	16.1	16.4	21.4	27.2
ZnO	2.4	2.4	2.3	2.3
ZrO ₂	1.5	1.6	1.5	1.5
TiO ₂	2.8	2.8	2.7	2.6
P ₂ O ₅	3.4	3.5	3.3	3.2
SiO ₂ +Al ₂ O ₃ +B ₂ O ₃	69.3	73.3	64.5	63.2
MgO+CaO+SrO+BaO+ZnO	23.0	18.8	28.0	29.5
(SiO ₂ +Al ₂ O ₃ +B ₂ O ₃)/ (MgO+CaO+SrO+BaO+ZnO)	3.0	3.9	2.3	2.1
Li ₂ O+Na ₂ O+K ₂ O	0.0	0.0	0.0	0.0
P _s (°C)	594	586	602	599
T _a (°C)	639	639	642	639
T _s (°C)	964	976	未測定	未測定
10 ^{4.0} dPa・s(°C)	1155	1235	1087	1080
10 ^{3.0} dPa・s(°C)	1317	1420	1232	1226
10 ^{2.5} dPa・s(°C)	1428	1538	1330	1325
10 ^{2.0} dPa・s(°C)	1569	1675	1452	1442
液相温度(°C)	<1072	1143	1081	1033
液相粘度(dPa・s)	4.8<	4.8	4.1	4.5
分相温度(°C)	1056	1033	1002	988
分相粘度(dPa・s)	4.9	5.8	4.9	5.0
屈折率 _{nd}	1.539	1.525	1.555	1.558

[0080] まず、表 1 ～ 3 に記載のガラス組成になるように、ガラス原料を調合した後、得られたガラスバッチをガラス溶融炉に供給して 1 4 0 0 °C で 7 時間溶融した。次に、得られた溶融ガラスをカーボン板の上に流し出し、平板形状に成形した後、歪点より室温まで 1 0 時間かけて徐冷処理を行った。最後に、得られたガラス板について、必要に応じて加工を行い、種々の特性を評価した。なお、得られたガラス板は少なくとも第一の相と第二の相を含む分相構造を有し、つまり分相性を示し、2 体積% のフッ酸溶液に 2 分間浸漬させた後の試料表面を電界放射型走査型電子顕微鏡で観察したところ、第一の相中の SiO₂ の含有量が、第二の相中の SiO₂ の含有量よりも多かった。

[0081] 歪点 P_s は、ASTM C 3 3 6 - 7 1 に記載の方法で測定した値である。なお、歪点 P_s が高い程、耐熱性が高くなる。

[0082] 徐冷点 T_a、軟化点 T_s は ASTM C 3 3 8 - 9 3 に記載の方法で測

定した値である。

[0083] 高温粘度 $10^{4.0} \text{ dPa} \cdot \text{s}$ 、 $10^{3.0} \text{ dPa} \cdot \text{s}$ 、 $10^{2.5} \text{ dPa} \cdot \text{s}$ 及び $10^{2.0} \text{ dPa} \cdot \text{s}$ における温度は、白金球引き上げ法で測定した値である。なお、高温粘度が低い程、熔融性に優れる。

[0084] 液相温度は、30メッシュ（篩目開き $500 \mu\text{m}$ ）を通過し、50メッシュ（篩目開き $300 \mu\text{m}$ ）に残るガラス粉末を白金ボートに入れて、温度勾配炉中に24時間保持した後、結晶の析出する温度を測定したものである。液相粘度は、液相温度におけるガラスの粘度を白金球引き上げ法により測定した値である。

[0085] 分相温度は、ガラス片を白金ボートに入れ、 1400°C でリメルトした後、白金ボートを温度勾配炉に移し、温度勾配炉中で30分間保持した時に、明確な白濁が認められる温度を測定したものである。分相粘度は、分相温度におけるガラスの粘度を白金球引き上げ法により測定した値である。

[0086] 屈折率 n_d は、島津製作所社製の屈折率測定器 KPR-2000により測定したd線の値である。具体的には、まず $25\text{mm} \times 25\text{mm} \times \text{約} 3\text{mm}$ の直方体試料を作製し、（徐冷点 $T_a + 30^\circ\text{C}$ ）から（歪点 $P_s - 50^\circ\text{C}$ ）までの温度域を $0.1^\circ\text{C}/\text{分}$ の冷却速度で徐冷処理した後、屈折率 n_d が整合する浸液を浸透させて測定した値である。

[0087] 表1～3から分かるように、試料No. 1～32は、少なくとも第一の相と第二の相を含む分相構造を有しており、液相粘度が $10^{3.5} \text{ dPa} \cdot \text{s}$ 以上であり、屈折率 n_d が 1.550 以上であった。よって、試料No. 1～32は、有機EL照明に用いるガラス板として好適に使用可能であると考えられる。

請求の範囲

- [請求項1] 少なくとも第一の相と第二の相を含む分相構造を有し、
屈折率 n_d が 1.51 以上であり、
且つ液相粘度が $10^{3.5} \text{ Pa} \cdot \text{s}$ 以上であることを特徴とする分相ガラス。
- [請求項2] 屈折率 n_d が 1.63 未満であることを特徴とする請求項 1 に記載の分相ガラス。
- [請求項3] ガラス組成として、質量%で、 SiO_2 30~75%、 Al_2O_3 0~35%、 B_2O_3 0.1~50%を含有することを特徴とする請求項 1 又は 2 の何れかに記載の分相ガラス。
- [請求項4] ガラス組成中の $\text{SiO}_2 + \text{Al}_2\text{O}_3 + \text{B}_2\text{O}_3$ の含有量が 55~80 質量%であることを特徴とする請求項 1~3 の何れかに記載の分相ガラス。
- [請求項5] ガラス組成中の $\text{MgO} + \text{CaO} + \text{SrO} + \text{BaO} + \text{ZnO}$ の含有量が 15~35 質量%であることを特徴とする請求項 1~4 の何れかに記載の分相ガラス。
- [請求項6] ガラス組成中の P_2O_5 の含有量が 0.001~20 質量%であることを特徴とする請求項 1~5 の何れかに記載の分相ガラス。
- [請求項7] ガラス組成中の $\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}$ の含有量が 5 質量%以下であることを特徴とする請求項 1~6 の何れかに記載の分相ガラス。
- [請求項8] 平板形状であることを特徴とする請求項 1~7 の何れかに記載の分相ガラス。
- [請求項9] オーバーフローダウンドロー法で成形されてなることを特徴とする請求項 1~8 の何れかに記載の分相ガラス。
- [請求項10] 照明に用いることを特徴とする請求項 1~9 の何れかに記載の分相ガラス。
- [請求項11] 有機 EL 照明に用いることを特徴とする請求項 1~10 の何れかに記載の分相ガラス。

[請求項12] 請求項1～11の何れかに記載の分相ガラスを備えてなることを特徴とする有機ELデバイス。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/050634

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C03C3/091(2006.01)i, C03B17/06(2006.01)i, C03C3/064(2006.01)i, C03C3/066(2006.01)i, C03C3/089(2006.01)i, C03C3/093(2006.01)i, C03C3/097(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i, H05B33/02(2006.01)i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C03C1/00-14/00, H01L51/50, H05B33/02

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2016
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2016	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2016

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

INTERGLAD

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	JP 2014-144907 A (Nippon Electric Glass Co., Ltd.), 14 August 2014 (14.08.2014), claims 2, 10; paragraphs [0061], [0077]; table 1 (no.3, 4) (Family: none)	1-4, 8-12 5-7
A	JP 2004-75494 A (Nippon Electric Glass Co., Ltd.), 11 March 2004 (11.03.2004), entire text (Family: none)	1-12

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

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

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

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

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

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

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

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

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

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

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
17 March 2016 (17.03.16)

Date of mailing of the international search report
29 March 2016 (29.03.16)

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/JP2016/050634

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, X P, A	WO 2015/186606 A1 (Nippon Electric Glass Co., Ltd.), 10 December 2015 (10.12.2015), paragraphs [0011], [0088], [0111], [0127], [0134]; table 1 (no.1, 2); table 2; table 3 (no.9) & JP 2015-227272 A & JP 2015-227273 A	1-4, 7-12 5-6
P, A	WO 2015/034030 A1 (Nippon Electric Glass Co., Ltd.), 12 March 2015 (12.03.2015), entire text & JP 2015-71524 A & JP 2015-164887 A & TW 201514122 A	1-12

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. C03C3/091(2006.01)i, C03B17/06(2006.01)i, C03C3/064(2006.01)i, C03C3/066(2006.01)i,
C03C3/089(2006.01)i, C03C3/093(2006.01)i, C03C3/097(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i,
H05B33/02(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. C03C1/00-14/00, H01L51/50, H05B33/02

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2016年
日本国実用新案登録公報	1996-2016年
日本国登録実用新案公報	1994-2016年

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

INTERGLAD

C. 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	JP 2014-144907 A (日本電気硝子株式会社) 2014. 08. 14, [請求項 2], [請求項 10], 段落[0061], [0077], [表 1] (No. 3, 4) (ファミリーなし)	1-4, 8-12 5-7
A	JP 2004-75494 A (日本電気硝子株式会社) 2004. 03. 11, 全文 (ファミリーなし)	1-12

☑ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの	「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
「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	「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
「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)	「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
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献	「&」 同一パテントファミリー文献
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	

国際調査を完了した日

17. 03. 2016

国際調査報告の発送日

29. 03. 2016

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

相田 悟

4 T

3948

電話番号 03-3581-1101 内線 3465

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
P, X P, A	WO 2015/186606 A1 (日本電気硝子株式会社) 2015. 12. 10, 段落 [0011], [0088], [0111], [0127], [0134], [表 1] (No. 1, 2) , [表 2], [表 3] (No. 9) & JP 2015-227272 A & JP 2015-227273 A	1-4, 7-12 5-6
P, A	WO 2015/034030 A1 (日本電気硝子株式会社) 2015. 03. 12, 全文 & JP 2015-71524 A & JP 2015-164887 A & TW 201514122 A	1-12