

(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
2018年5月3日(03.05.2018)



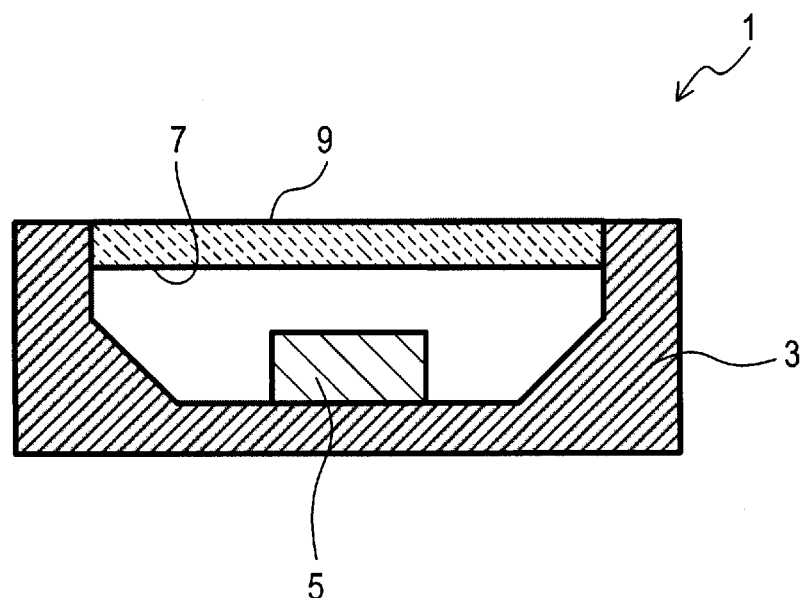
(10) 国際公開番号

WO 2018/079421 A1

- (51) 国際特許分類:
G02B 5/20 (2006.01) *C09K 11/80* (2006.01)
C04B 35/50 (2006.01) *H01L 33/50* (2010.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2017/037920
- (22) 国際出願日: 2017年10月20日(20.10.2017)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2016-211843 2016年10月28日(28.10.2016) JP
特願 2016-215303 2016年11月2日(02.11.2016) JP
特願 2017-015653 2017年1月31日(31.01.2017) JP
特願 2017-100204 2017年5月19日(19.05.2017) JP
特願 2017-148393 2017年7月31日(31.07.2017) JP
- (71) 出願人: 日本特殊陶業株式会社(NGK SPARK PLUG CO., LTD.) [JP/JP]; 〒4678525 愛知県名古屋市長区瑞穂区高辻町14番18号 Aichi (JP).
- (72) 発明者: ▼ 高 ▲ 久 翔 平 (TAKAKU Shohei); 〒4678525 愛知県名古屋市長区瑞穂区高辻町14番18号日本特殊陶業株式会社内 Aichi (JP). 勝祐介(KATSU Yusuke); 〒4678525 愛知県名古屋市長区瑞穂区高辻町14番18号日本特殊陶業株式会社内 Aichi (JP). 伊藤 経之(ITO Tsuneyuki); 〒4678525 愛知県名古屋市長区瑞穂区高辻町14番18号日本特殊陶業株式会社内 Aichi (JP). 志村 祐紀(SHIMURA Yuki); 〒4678525 愛知県名古屋市長区瑞穂区高辻町14番18号日本特殊陶業株式会社内 Aichi (JP). 光岡 健(MITSUOKA

(54) Title: OPTICAL WAVELENGTH CONVERSION MEMBER AND LIGHT-EMITTING DEVICE

(54) 発明の名称: 光波長変換部材及び発光装置



(57) Abstract: The present invention provides an optical wavelength conversion member and a light-emitting device which have a high illuminance and a high fluorescent intensity and which are capable of suppressing non-uniformity of color. An optical wavelength conversion member 9 comprises a ceramic sintered body that has a fluorescent phase chiefly consisting of fluorescent crystal particles and a translucent phase chiefly consisting of translucent crystal particles. The crystal particles of the fluorescent phase have a composition represented by chemical formula $A_3B_5O_{12}:Ce$, wherein element A and element B comprise at least one type of element selected from the respective following element groups, that is, element A may be selected from among the "lanthanoids excluding Sc, Y, and Ce" and element B may be selected from "Al and Ga". Furthermore, in the optical wavelength conversion



Takeshi); 〒4678525 愛知県名古屋市瑞穂区高辻町 1 4 番 1 8 号日本特殊陶業株式会社内 Aichi (JP). 茂木 淳(MOTEKI Jun); 〒4678525 愛知県名古屋市瑞穂区高辻町 1 4 番 1 8 号日本特殊陶業株式会社内 Aichi (JP).

(74) 代理人: 青 木 昇, 外 (AOKI Noboru et al.); 〒4858510 愛知県小牧市大字岩崎 2 8 0 8 日本特殊陶業株式会社内 Aichi (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, 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:

— 国際調査報告 (条約第21条(3))

member 9, a cross-section of the optical wavelength conversion member 9 has an area ratio a between the translucent phase and the fluorescent phase that satisfies the condition: $0.3 < a < 34$, and the fluorescent phase has an interface length y that satisfies the condition: $300 \mu\text{m} < y < 1050 \mu\text{m}$.

(57) 要約: 高い照度および蛍光強度を有し、色ムラを抑制できる光波長変換部材及び発光装置を提供すること。光波長変換部材 9 は、蛍光性を有する結晶粒子を主体とする蛍光相と、透光性を有する結晶粒子を主体とする透光相と、を有するセラミックス焼結体から構成されている。蛍光相の結晶粒子は、化学式 $A_3B_5O_{12}$: Ce で表される組成を有するとともに、A 元素及び B 元素は、それぞれ下記元素群から選択される少なくとも 1 種の元素から構成されている。つまり、A 元素は、「Sc、Y、Ce を除くランタノイド」、B 元素は、「Al、Ga」から選択できる。さらに、光波長変換部材 9 は、光波長変換部材 9 の断面における透光相と蛍光相との面積比 a が、 $0.3 < a < 34$ であり、且つ、蛍光相の界面長さ y が $300 \mu\text{m} < y < 1050 \mu\text{m}$ である。

明 細 書

発明の名称：光波長変換部材及び発光装置

技術分野

[0001] 本開示は、例えば波長変換機器、蛍光材、各種照明、映像機器などに用いられるような、光の波長の変換が可能な光波長変換部材及び発光装置に関するものである。

背景技術

[0002] 例えばヘッドランプや各種照明機器などでは、発光ダイオード（LED：Light Emitting Diode）や半導体レーザー（LD：Laser Diode）の青色光を、蛍光体によって波長変換することにより白色を得ている装置が主流となっている。

[0003] 蛍光体としては、樹脂系やガラス系などが知られているが、近年、光源の高出力化が進められており、蛍光体には、より高い耐久性が求められるようになったことから、セラミックス蛍光体に注目が集まっている（特許文献1～3参照）。

[0004] このセラミックス蛍光体としては、 $Y_3Al_5O_{12}:Ce$ （YAG：Ce）に代表されるように、ガーネット構造（ $A_3B_5O_{12}$ ）の成分にCeが賦活された蛍光体が知られている。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特開2014-132084号公報
特許文献2：特開2015-34120号公報
特許文献3：特開2015-149394号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] ところで、上述した従来技術では、下記のような問題があり、その改善が求められていた。

具体的には、前記特許文献 1 に記載の技術では、焼成中の Ce 揮発に伴う色ムラ防止のために、 $CeAl_{11}O_{18}$ を組織中に分散させている。しかし、第三成分である $CeAl_{11}O_{18}$ は光を吸収するので、発光強度および照度を減じる要因となる。このため、蛍光体の厚みを極端に薄くするなどして対処する必要があるが、薄片化は構造体としての蛍光体の耐久性を損なうという別の問題がある。

[0007] また、前記特許文献 2 に記載の技術では、発光中心イオンとなりうる希土類元素の含有量が 1 ～ 50 mol % である。ところが、発光中心イオンの含有量が多い場合、濃度消光によって発光強度、光束が低下する要因となりうる。そのため、この範囲であると、蛍光特性および照度が著しく低下してしまう。

[0008] さらに、前記特許文献 3 に記載の技術では、YAG と Al_2O_3 との界面での励起光の反射を抑制するために、Ce を賦活していない YAG が、発光成分となりうる YAG を取り囲む構造を取っている。しかし、この構造では蛍光成分の YAG で発生する熱が逃げづらく、温度消光の原因となる。

[0009] つまり、上述した技術では、高い照度および蛍光強度を有するとともに、色ムラを抑制できる光波長変換部材を実現することは容易ではなかった。

本開示は、前記課題に鑑みてなされたものであり、その目的は、高い照度および蛍光強度を有し、色ムラを抑制できる光波長変換部材及び発光装置を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0010] (1) 本開示の第 1 局面は、蛍光性を有する結晶粒子を主体とする蛍光相と、透光性を有する結晶粒子を主体とする透光相と、を有するセラミックス焼結体から構成された光波長変換部材に関するものである。

[0011] この光波長変換部材では、蛍光相の結晶粒子は、化学式 $A_3B_5O_{12} : Ce$ で表される組成を有するとともに、A 元素及び B 元素は、それぞれ下記元素群から選択される少なくとも 1 種の元素から構成されている。

[0012] A : Sc、Y、Ce を除くランタノイド

B : A l、G a

さらに、この光波長変換部材では、光波長変換部材の断面における透光相と蛍光相との面積比 a が、 $0.3 < a < 3.4$ であり、且つ、蛍光相の界面長さ y が $300 \mu\text{m} < y < 1050 \mu\text{m}$ である。

[0013] 本第1局面では、基本的な構成として、セラミックス焼結体が、前記元素群から選択される少なくとも1種の元素から構成されている $\text{A}_3\text{B}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$ で表されるガーネット構造を有している。

[0014] この組成により、効率よく青色光を可視光に変換することができる。

特に本第1局面では、光波長変換部材の断面における透光相と蛍光相との面積比 a が、 $0.3 < a < 3.4$ であり、且つ、蛍光相の界面長さ y が $300 \mu\text{m} < y < 1050 \mu\text{m}$ であるので、後述する実施例等から明らかなように、光波長変換部材に光を照射した場合には、高い照度および蛍光強度が得られるとともに、色ムラが少ないという効果がある。

[0015] ここで、蛍光相の界面長さ y が $300 \mu\text{m}$ 未満であると、即ち所定の領域内（詳しくは規定された単位面積当たり）において蛍光相の塊が大きくなる、または、蛍光相の含有量が少ないと、蛍光相と透光相との界面での拡散が減るので透過率が向上し、照度および蛍光強度は向上するが、色ムラが発生する。

[0016] 一方、蛍光相の界面長さ y が $1050 \mu\text{m}$ を超えると、即ち所定の領域内における蛍光相の塊が小さくなると、界面での拡散が多くなるので、透過率が低くなり、色ムラは少なくなるものの、照度および蛍光強度が低下してしまう。

[0017] また、面積比 a が、 0.3 未満であると、蛍光相が不足するため、十分な透光性を示さず、照度および蛍光強度が低下してしまう。一方、面積比 a が 3.4 を超えると、蛍光成分が不足するため、十分な発光を示さない。

[0018] なお、本第1局面の光波長変換部材は、耐熱性や耐久性についても、優れた性能を有している。

(2) 本開示の第2局面では、透光相の結晶粒子の平均粒径 r_1 と蛍光相

の結晶粒子の平均粒径 r_2 との比 x が、 $1.1 < x < 2.1$ であって、透光相の結晶粒子の平均粒径 r_1 は $0.2 \mu\text{m} \sim 6 \mu\text{m}$ の範囲であり、蛍光相の結晶粒子の平均粒径 r_2 は $0.1 \mu\text{m} \sim 4 \mu\text{m}$ の範囲であってもよい。

[0019] 前記比 x （即ち粒径比 x ）が 1.1 未満であると、透過率が低くなり、青色光の拡散が多くなるので、色ムラは小さくなるが、照度および蛍光強度が低下してしまう。

一方、粒径比 x が 2.1 超えると、透過率が向上し、照度および蛍光強度は向上するが、色ムラが発生する。

[0020] 従って、前記粒径比 x の範囲が好適である。

また、透光相の結晶粒子の平均粒径 r_1 が $0.2 \mu\text{m} \sim 6 \mu\text{m}$ の範囲であり、且つ、蛍光相の結晶粒子の平均粒径 r_2 が $0.1 \mu\text{m} \sim 4 \mu\text{m}$ の範囲の場合には、高い蛍光強度および照度を有しつつ、色ムラの少ないセラミックス蛍光体を得ることができる。

[0021] ここで、透光相の結晶粒子の平均粒径 r_1 が $0.2 \mu\text{m}$ 未満で、且つ、蛍光相の結晶粒子の平均粒径 r_2 が $0.1 \mu\text{m}$ 未満の場合には、青色光および黄色光の拡散が多くなるので、色ムラは小さくなるが、青色光および黄色光の透過率が低下し、蛍光強度および照度も低下する。

[0022] 一方、透光相の結晶粒子の平均粒径 r_1 が $6 \mu\text{m}$ より大きく、且つ、蛍光相の結晶粒子の平均粒径 r_2 が $4 \mu\text{m}$ より大きい場合には、透過率が上がり、蛍光強度および照度は向上するが、色ムラが大きくなってしまう。

[0023] (3) 本開示の第3局面では、透光相の結晶粒子は、 Al_2O_3 の組成を有していてもよい。

ここでは、透光相の結晶粒子の組成の好適な例を示している。

[0024] (4) 本開示の第4局面では、化学式 $\text{A}_3\text{B}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$ で表される化合物は、セラミックス焼結体全体の $3\text{vol}\% \sim 70\text{vol}\%$ の範囲であってもよい。

セラミックス焼結体中の $\text{A}_3\text{B}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$ の割合が、全体の $3\text{vol}\% \sim 70\text{vol}\%$ の範囲であると、高い照度を有しつつ色ムラの少ないセラミッ

クス焼結体を得ることができる。

[0025] ここで、前記割合が3 vol %未満では、蛍光成分が不足するため十分な発光を示さない。一方、前記割合が70 vol %を超えると、透光相が不足するため十分な透光性を示さず、照度および蛍光強度が低下してしまう。

[0026] (5) 本開示の第5局面では、化学式 $A_3B_5O_{12}:Ce$ で表される化合物におけるCe濃度は、化合物のA元素に対して0.1 mol %～1.0 mol %の範囲であってもよい。

[0027] セラミックス焼結体中の $A_3B_5O_{12}:Ce$ で表される化合物のCe濃度がA元素に対して、0.1 mol %～1.0 mol %の範囲であると、高い照度および蛍光強度を有しつつ、色ムラが少ないセラミックス焼結体を得ることができる。

[0028] ここで、前記割合が0.1 mol %未満では、発光中心イオンが少なく蛍光成分が不足するため十分な発光が得られない。一方、前記割合が1.0 mol %を超えると発光中心イオンの濃度が高く、濃度消光が起き、蛍光強度および照度が低下してしまう。

(6) 本開示の第6局面は、第1～第5局面のいずれかの光波長変換部材を備えた発光装置である。

[0029] 本第6局面の発光装置（詳しくは光波長変換部材）にて波長が変換された光（即ち蛍光）は、高い蛍光強度を有する。また、高い色均質性を有する。

なお、発光装置の発光素子としては、例えばLEDやLDなどの公知の素子を用いることができる。

[0030] <以下に、本発明の各構成について説明する>

・「蛍光相」は、蛍光性を有する結晶粒子を主体とする相であり、「透光相」は、透光性を有する結晶粒子、詳しくは蛍光相の結晶粒子とは異なる組成の結晶粒子を主体とする相である。

[0031] ・「主体」とは、前記光波長変換部材中において、最も多い量（即ち体積）存在することを示している。例えば、蛍光相には、蛍光性を有する結晶粒

子を50体積%以上（好ましくは90体積%以上）含まれていてもよい。また、例えば、透光相には、透光性を有する結晶粒子を50体積%以上（好ましくは90体積%以上）含まれていてもよい。

[0032] ・「光波長変換部材」は、上述した構成を有するセラミックス焼結体であり、各結晶粒子やその粒界には、不可避不純物が含まれていてもよい。このセラミックス焼結体には、透光相及び透光相（従って蛍光性を有する結晶粒子及び透光性を有する結晶粒子）が、セラミックス焼結体の50体積%以上（好ましくは90体積%以上）含まれていてもよい。

[0033] ・「 $A_3B_5O_{12}:Ce$ 」とは、 $A_3B_5O_{12}$ 中の元素Aの一部にCeが固溶置換していることを示しており、このような構造を有することにより、同化合物は蛍光特性を示すようになる。

[0034] ・「界面長さ」とは、光波長変換部材の断面の所定の領域、詳しくは単位面積である $500\mu m^2$ において、1又は複数の蛍光相を構成する部分の外周の長さの合計である。例えば、所定の領域において、周囲から分離された蛍光相が複数ある場合には、各蛍光相の界面長さの合計である。

図面の簡単な説明

[0035] [図1]実施形態の光波長変換部材を備えた発光装置を厚み方向に破断した断面を示す断面図である。

[図2]実施形態の光波長変換部材の製造工程を示す説明図である。

[図3]実施形態の光波長変換部材の断面のSEM画像の模式図、詳しくはエッチング処理をしないSEM画像の模式図である。

[図4]実施形態の光波長変換部材の断面のSEM画像の模式図、詳しくはエッチング処理をしたSEM画像の模式図である。

[図5]色ムラの測定方法を示す説明図である。

発明を実施するための形態

[0036] 次に、本開示の光波長変換部材及び発光装置の実施形態について説明する。

[1. 実施形態]

[1 - 1 . 発光装置]

まず、本実施形態の光波長変換部材及び発光装置について説明する。

[0037] 図 1 に示すように、本実施形態の発光装置 1 は、例えばアルミナ等の箱状のセラミック製のパッケージ（容器） 3 と、容器 3 の内部に配置された例えば LD 等の発光素子 5 と、容器 3 の開口部 7 を覆うように配置された板状の光波長変換部材 9 とを備えている。

[0038] この発光装置 1 では、発光素子 5 から放射された光は、透光性を有する光波長変換部材 9 を透過するとともに、その光の一部は光波長変換部材 9 の内部で波長変換されて発光する。つまり、光波長変換部材 9 では、発光素子 5 から放射される光の波長とは異なる波長の蛍光を発する。

[0039] 例えば、LD から照射される青色光が、光波長変換部材 9 によって波長変換されることにより、全体として白色光が光波長変換部材 9 から外部（例えば図 1 の上方）に照射される。

[1 - 2 . 光波長変換部材]

次に、光波長変換部材 9 について説明する。

[0040] 本実施形態の光波長変換部材 9 は、蛍光性を有する結晶粒子（即ち蛍光相粒子）を主体とする蛍光相と、透光性を有する結晶粒子（即ち透光相粒子）を主体とする透光相と、を有するセラミックス焼結体から構成されたものである。

[0041] この光波長変換部材 9 では、蛍光相粒子は、化学式 $A_3B_5O_{12} : Ce$ で表される組成を有するとともに、その A 元素及び B 元素は、それぞれ下記元素群から選択される少なくとも 1 種の元素から構成されている。

[0042] A : Sc、Y、Ce を除くランタノイド

B : Al、Ga

なお、前記化学式 $A_3B_5O_{12} : Ce$ の A 及び B は、化学式 $A_3B_5O_{12} : Ce$ で示される物質を構成する各元素（但し異なる元素）を示しており、O は酸素、Ce はセリウムである。

[0043] この光波長変換部材 9 では、光波長変換部材 9 の断面における透光相と蛍

光相との面積比 a が、 $0.3 < a < 3.4$ であり、且つ、蛍光相の所定の領域における界面長さ y が $300 \mu\text{m} < y < 1050 \mu\text{m}$ である。

[0044] なお、所定の領域とは、 $500 \mu\text{m}^2$ の大きさの単位面積であり、界面長さ y とは、前記単位面積において、各蛍光相の周囲の長さを示す各界面長さの合計である。

また、透光相粒子の平均粒径 r_1 と蛍光相粒子の平均粒径 r_2 との粒径比 x が、 $1.1 < x < 2.1$ であって、透光相粒子の平均粒径 r_1 は $0.2 \mu\text{m} \sim 6 \mu\text{m}$ の範囲であり、蛍光相粒子の平均粒径 r_2 は $0.1 \mu\text{m} \sim 4 \mu\text{m}$ の範囲である。

[0045] さらに、光波長変換部材 9 では、化学式 $A_3B_5O_{12} : Ce$ で表される化合物は、セラミックス焼結体全体の $3 \text{ vol} \% \sim 70 \text{ vol} \%$ の範囲である。

また、化学式 $A_3B_5O_{12} : Ce$ で表される化合物における Ce 濃度は、化合物の A 元素に対して $0.1 \text{ mol} \% \sim 1.0 \text{ mol} \%$ の範囲である。

[0046] なお、透光相粒子は、例えば Al_2O_3 の組成を有している。

[1-2. 光波長変換部材の製造方法]

ここでは、光波長変換部材 9 を製造する際の概略の手順について、図 2 に基づいて、簡単に説明する。

[0047] まず、前記実施形態の構成を満たすように、セラミックス焼結体である光波長変換部材 9 の粉末材料の秤量等を行った（即ち調製した）。

次に、調製した粉末材料に、有機溶剤と分散剤とを加え、ボールミルにて粉碎混合を行い、スラリーを作製した。

[0048] 次に、得られたスラリーを、乾燥、造粒した。

次に、得られた造粒粉を、プレス成形した。

次に、プレス成形体を、所定温度で所定時間焼成し、セラミックス焼結体を得た。

[0049] なお、上述したプレス成形によるセラミックス焼結体の製造方法以外に、スラリーをシート成形して得られたシート成形体を焼成することにより、セラミックス焼結体を得てもよい。

[1-3. 効果]

次に、本実施形態の効果を説明する。

[0050] (1) 本実施形態では、基本的な構成として、セラミック焼結体が、前記元素群から選択される少なくとも1種の元素から構成されている $A_3B_5O_{12}$:Ceで表されるガーネット構造を有している。この組成により、効率よく青色光を可視光に変換することができる。

[0051] 特に本実施形態は、光波長変換部材9の断面における透光相と蛍光相との面積比 a が、 $0.3 < a < 3.4$ であり、且つ、蛍光相の界面長さ y が $300\mu m < y < 1050\mu m$ である。そのため、光波長変換部材9に例えば発光素子5から光を照射した場合には、高い照度および蛍光強度が得られるとともに、色ムラが少ないという効果がある。

[0052] (2) 本実施形態では、透光相粒子の平均粒径 r_1 と蛍光相粒子の平均粒径 r_2 との粒径比 x が、 $1.1 < x < 2.1$ であって、透光相粒子の平均粒径 r_1 は $0.2\mu m \sim 6\mu m$ の範囲であり、蛍光相粒子の平均粒径 r_2 は $0.1\mu m \sim 4\mu m$ の範囲である。

[0053] この構成によって、一層高い照度および蛍光強度が得られ、色ムラも低減する。

(3) 本実施形態では、化学式 $A_3B_5O_{12}$:Ceで表される化合物は、セラミックス焼結体全体の $3vol\% \sim 70vol\%$ の範囲である。

[0054] この構成によって、一層高い照度および蛍光強度が得られ、色ムラも低減する。

(4) 本実施形態では、化学式 $A_3B_5O_{12}$:Ceで表される化合物におけるCe濃度は、化合物のA元素に対して $0.1mol\% \sim 1.0mol\%$ の範囲である。

[0055] この構成によって、一層高い照度および蛍光強度が得られ、色ムラも低減する。

(5) 本実施形態の発光装置1、詳しくは光波長変換部材9にて波長が変換された光（即ち蛍光）は、高い蛍光強度を有する。また、色バラツキが少

なく高い色均質性を有する。

[2 . 実施例]

次に、前記実施形態の具体的な実施例について説明する。

[0056] ここでは、下記表 1 に記載のNo. 1 ～ 3 0 のセラミックス焼結体の各試料、即ち実施例

1 ～ 5 の光波長変換部材の各試料を作製した。

なお、各試料のうち、No. 3 ～ 7、 1 1 ～ 3 0 が本開示の範囲内の試料であり、No. 1、 2、 8 ～ 1 0 が本開示の範囲外（比較例）の試料である。

[2 - 1 . 試料の評価方法]

まず、各試料に対して実施した各評価の方法について説明する。

[0057] < 相対密度 >

各試料のセラミックス焼結体の相対密度は、アルキメデス法で密度を測定し、測定した密度を相対密度に換算する方法で算出した。

[0058] < 開気孔率 >

各試料のセラミックス焼結体の開気孔率は、J I S R 1 6 3 4 に規定される方法によって測定した。

[0059] < 面積比 >

各試料のセラミックス焼結体を破断し、その破断面を鏡面研磨後、その研磨面を走査型電子顕微鏡（SEM）で観察し、5 0 0 0 倍のSEM画像を得た。そのSEM画像の1 例の模式図を図 3 に示すが、白色に近い明部が蛍光相であり、黒色に近い暗部が透光相である。

[0060] そして、前記SEM画像のうち、5 0 0 μm^2 の領域内で、それぞれ透光相の面積STと蛍光相の面積SKとを測定した。そして、透光相の面積STと蛍光相の面積SKとの面積比aを、 ST / SK の演算により求めた。

[0061] なお、前記面積は、SEM画像を画像解析ソフト（例えばWinl o o f）によって処理して求めた。また、5 0 0 μm^2 の領域とは、5 0 0 0 倍のSEM画像であれば、特定の視野範囲で測定した後、5 0 0 μm^2 に換算して面

積比 a を求めてもよい。後述する界面長さについても、同様であり、 $500 \mu\text{m}^2$ 当たりに換算してもよい。

[0062] <平均結晶粒径>

各試料のセラミックス焼結体を破断し、その破断面を鏡面研磨後、 1350°C で熱エッチングを行った。エッチング面をSEM観察し、セラミックス焼結体中の任意の5箇所の位置において、それぞれ2500倍の画像（即ちSEM画像）を得た。そのSEM画像の1例の模式図を図4に示すが、明部が蛍光相粒子であり、暗部が透光相粒子である。

[0063] そして、前記各位置における各SEM画像中の $20 \mu\text{m}$ 角の中で、任意の線を5本引き、インターセプト法により、蛍光相粒子と透光相粒子との平均結晶粒径（即ち平均粒径）を求めた。つまり、5箇所の領域の全体において、蛍光相粒子の平均粒径 r_2 と透光相粒子の平均粒径 r_1 とを求めた。

[0064] <粒径比>

さらに、得られた蛍光相粒子の平均粒径 r_2 と透光相粒子の平均粒径 r_1 から、以下の式（1）を用いて粒径比 x を算出した。

[0065] 粒径比 $x = \text{透光相粒子の平均粒径 } r_1 / \text{蛍光相粒子の平均粒径 } r_2 \cdots (1)$

<界面長さ>

前記面積比を求める際に使用した前記5000倍のSEM画像に対して、前記画像解析ソフト（例えばWinloof）を用いて、任意の5箇所の位置の各領域において、それぞれ蛍光相毎に界面長さを求めた。即ち、一塊の蛍光相単位での界面長さを求めた。また、蛍光相が複数ある領域においては、各蛍光相の界面長さを合計した。つまり、各領域において全ての蛍光相の界面長さを求め、各領域毎にそれらの合計値（即ち各領域毎の全界面長さ）を求めた。

[0066] ここでは、5箇所の位置における各領域は、それぞれ $500 \mu\text{m}^2$ の大きさであり、5箇所の位置の領域で求めた各領域における全界面長さ求め、その平均値を界面長さ y とした。

[0067] なお、前記界面長さの1例、即ち蛍光相単位での蛍光相の界面長さを前記図3に示す。図3において、一つの蛍光相（即ち一つの薄い灰色の明部の部分）を囲む白色の環状のラインの長さが蛍光相単位での界面長さである。

[0068] <照度>

照度は照度計によって測定した。具体的には、13mm角×厚み0.2mmに加工した各試料に対し、465nmの波長を有する青色LED光をレンズで集光させて0.5mm幅とし、これを照射して反対面から透過してくる光について、分光放射照度計（コニカミノルタ製CL-500A）によって照度を測定した。

[0069] なお、照度は、YAG:Ce単結晶体の強度を100とした時の相対値（％）で評価した。

<色ムラ>

色ムラ（即ち色バラツキ）は、照度計による色度バラツキ測定によって評価した。

[0070] 具体的には、13mm角×厚み0.2mmに加工した各試料に対し、465nmの波長を有する青色LED光をレンズで集光させて0.5mm幅とし、これを照射して反対面から透過してくる光について、分光放射照度計（コニカミノルタ製CL-500A）によって色度を測定した。

[0071] 照射は、各試料の表面（即ちサンプル面）に対して、図5に示すように、9mm角の中央部分を3mm間隔で9個所の領域に区分し、各領域の色度（X方向）のバラツキ（ Δx ）を評価した。バラツキ（ Δx ）とは色度方向の偏差の最大値を示し、 $\Delta x < 0.03$ となることが好ましい。

[0072] なお、色度とは、国際照明委員会（CIE）が1931年に策定した国際表示法で、CIE-XYZ表色系で示される色度である。つまり、表色上の3原色を数値化し、 x y 座標空間で色を表した x y 色度図（いわゆるCIE色度図）で示される色度である。

[0073] <蛍光強度>

13mm角×厚み0.2mmに加工した各試料に対し、465nmの波長を有する青色LED光をレンズで0.5mm幅まで集光させて照射し、透過した光をレンズによって集光させ、パワーセンサーによりその発光強度（即ち蛍光強度）を測定した。このとき照射される出力密度は40W/mm²となるようにした。

[0074] なお、蛍光強度は、YAG:Ce単結晶体の強度を100とした時の相対値（%）で評価した。

[2-2. 試料の製造方法及び評価結果]

次に、各試料の製造方法と、各試料の評価結果について説明する。

[0075] <実施例1>

下記表1に示す条件により、No.1～9のセラミックス焼結体（即ち光波長変換部材）

の試料を作製した。

[0076] 具体的には、各試料のセラミックス焼結体に応じて、下記表1に示すように、Al₂O₃（平均粒径0.2μm）とY₂O₃（平均粒径1.2μm）、Gd₂O₃（平均粒径1.5μm）、CeO₂（平均粒径1.5μm）の各粉末材料を秤量した。

[0077] このとき、A₃B₅O₁₂:Ce量は、セラミックス焼結体全体の30vol%に固定した。また、Ce濃度は、A元素に対して0.3mol%に固定した。

これらの粉末を、エタノールと共にボールミル中に投入し、4～48hr粉砕混合を行った。得られたスラリーを乾燥・造粒し、得られた造粒粉をプレス成形した。得られた成形体を大気雰囲気中で焼成を行った。この際、焼成温度を1500～1800℃、保持時間を2～10時間として焼成を行った。

[0078] 具体的には、試料No.1、2では、粉砕時間を30時間より長くし、焼成温度を150

0℃とし、保持時間を2～5時間とした。

試料No. 3～7では、粉碎時間を16時間とし、焼成温度を1500℃～1750℃と

し、保持時間を10時間とした。

[0079] 試料No. 8、9では、粉碎時間をそれぞれ16時間、4時間とし、焼成温度を同じ18

00℃とし、保持時間を同じ10時間とした。

なお、前記条件の範囲で、粉碎時間と焼成条件を変更することで、実施例1の各試料を得ることができる。例えば粉碎時間を長くすることで、結晶粒子の粒径を小さくできる。また、焼成温度を高くすることで、結晶粒子を成長させて、粒径を大きくできる。従って、これらが、界面長さに影響を与えると考えられる。

[0080] 次に、この製造方法によって得られた各試料のセラミックス焼結体について、上述した評価方法による評価を行った。その結果を、下記表1に記す。

表1から明らかなように、面積比 a が $0.3 < a < 3.4$ の範囲であり、且つ、蛍光相の界面長さ y が $300\text{ }\mu\text{m} < y < 1050\text{ }\mu\text{m}$ の範囲にあるNo. 3～7の試料は、蛍光強度

および照度が大きく、しかも、色ムラが少なく、好結果が得られた。

[0081] 一方、界面長さ y が $1050\text{ }\mu\text{m}$ を超えるNo. 1、2の試料は、透過率が低下し、蛍光

強度および照度が低下した。また、界面長さ y が $300\text{ }\mu\text{m}$ 未満のNo. 8、9の試料は、

青色光の透過が非常に大きくなるため色ムラが増加した。

[0082] なお、表1には記載しないが、相対密度はいずれの試料も99%以上であった。なお、他の実施例2～4の試料についても同様であった。

<実施例2>

下記表1に示す条件により、No. 10～19のセラミックス焼結体の試料を作製した。

[0083] この実施例2の試料の作製方法は、基本的には、実施例1と同様である。

但し、粉碎時間は16時間、焼成温度は1600℃、保持時間は10時間に、それぞれ固定した。また、 $A_3B_5O_{12}$:Ce量が全体の1vol%~80vol%となるようにした。

[0084] この製造方法によって得られた各試料のセラミックス焼結体について、上述した評価方法による評価を行った。その結果を、下記表1に記す。

表1から明らかなように、 $A_3B_5O_{12}$:Ce量が3vol%~70vol%にあるNo.11~18の試料は、発光強度が大きく、しかも色ムラが小さく、好結果が得られた。

[0085] 一方、 $A_3B_5O_{12}$:Ce量が1vol%と少ないNo.10の試料は、蛍光不足によ

り蛍光強度が低くなった。また、 $A_3B_5O_{12}$:Ce量が80vol%と多いNo.19

の試料は、熱伝導低下に伴う温度上昇が顕著となり、温度消光によって発光強度が低下した。

[0086] <実施例3>

下記表1に示す条件により、No.20~26のセラミックス焼結体の試料を作製した。

この実施例3の試料の作製方法は、基本的には、実施例1と同様である。

[0087] 但し、粉碎時間及び焼成条件は、実施例2と同様にした。また、 $A_3B_5O_{12}$:Ce量を全体の30vol%で固定し、Ce量を0.05vol%~2.0vol%となるようにした。

この製造方法によって得られた各試料のセラミックス焼結体について、上述した評価方法による評価を行った。その結果を、下記表1に記す。

[0088] 表1から明らかなように、Ce量が0.1vol%~1vol%にあるNo.21~25

の試料は、発光強度および照度が大きく、且つ、色ムラが小さく、好結果が

得られた。

一方、Ce量が0.1mol%より少ないNo. 20の試料は、発光中心イオンが少ない

ため、蛍光不足により蛍光強度が低くなった。また、Ce量が1mol%より多いNo. 2

6の試料は、Ce量が過剰にあることで濃度消光が起こり、蛍光強度が低下した。

[0089] <実施例4>

下記表1に示す条件により、No. 27～30のセラミックス焼結体の試料を作製した。

この実施例3の試料の作製方法は、基本的には、実施例1と同様である。

[0090] 但し、調合時に Y_2O_3 粉末だけでなく、 Lu_2O_3 （平均粒径1.3 μm ）または Yb_2O_3 （平均粒径1.5 μm ）、 Ga_2O_3 （平均粒径1.3 μm ）の各粉末を1つ以上用い、所定の $A_3B_5O_{12}$ ：Ceを合成できるように、配合比を変化させた。また、粉碎時間および焼成条件は、実施例2と同様にした。

[0091] この製造方法によって得られた各試料のセラミックス焼結体について、上述した評価方法による評価を行った。その結果を、下記表1に記す。

表1から明らかなように、No. 27～30のすべてのセラミックス焼結体において、照

度、蛍光強度、色ムラのいずれも、良好な結果になった。

[0092]

[表1]

	No.	A	B	A ₃ B ₅ O ₁₂ :Ce (vol%)	Ce量 (mol%)	開気孔率 (%)	面積比 (透光相/蛍光相)	透光相 平均粒径 (μ m)	A ₃ B ₅ O ₁₂ :Ce 平均粒径 (μ m)	透光相/蛍光相 粒徑比	A ₃ B ₅ O ₁₂ :Ce 界面長さ(μ m)	照度 (%)	色ムラ (Δ X)	蛍光強度 (%)
実施例 1	1	Y,Gd	Al	30	0.3	0.4	2.33	0.11	0.1	1.1	1070	78	0.0006	83
	2	Y,Gd	Al	30	0.3	0.02	2.38	0.24	0.22	1.09	1056.07	80	0.0007	85
	3	Y,Gd	Al	30	0.3	0.02	2.32	0.32	0.24	1.33	823.41	101	0.0008	100
	4	Y,Gd	Al	30	0.3	0.01	2.31	0.98	0.58	1.69	802.19	120	0.001	110
	5	Y,Gd	Al	30	0.3	0	2.28	1.44	0.91	1.58	749.00	125	0.0016	114
	6	Y,Gd	Al	30	0.3	0.01	2.44	1.87	1.09	1.72	616.00	130	0.0019	125
	7	Y,Gd	Al	30	0.3	0.02	2.39	3.6	2.2	1.64	484.00	124	0.0024	120
	8	Y,Gd	Al	30	0.3	0.02	2.39	6.2	2.9	2.14	294.56	95	0.0032	95
	9	Y,Gd	Al	30	0.3	0.2	2.32	9	4.1	2.20	275.00	93	0.0045	89
実施例 2	10	Y,Gd	Al	1	0.3	0.01	81.64	1.1	0.51	2.16	817.04	78	0.004	80.0
	11	Y,Gd	Al	3	0.3	0.02	32.67	1.08	0.52	2.08	814.92	100	0.0026	100.0
	12	Y,Gd	Al	5	0.3	0.02	17.98	1.07	0.52	2.06	814.92	113	0.0022	103.0
	13	Y,Gd	Al	10	0.3	0.01	8.79	1.02	0.55	1.85	808.56	118	0.0015	105.0
	14	Y,Gd	Al	30	0.3	0.02	2.31	0.98	0.58	1.69	802.19	120	0.001	110
	15	Y,Gd	Al	40	0.3	0.01	1.49	0.95	0.62	1.53	793.71	110	0.00095	118.0
	16	Y,Gd	Al	50	0.3	0.02	1.00	0.9	0.67	1.34	783.10	108	0.00088	120.0
	17	Y,Gd	Al	60	0.3	0	0.66	0.88	0.72	1.22	772.50	106	0.00085	124.0
	18	Y,Gd	Al	70	0.3	0	0.43	0.87	0.75	1.16	766.13	103	0.00084	128.0
実施例 3	19	Y,Gd	Al	80	0.3	0.01	0.25	0.85	0.78	1.09	759.77	84	0.0008	130.0
	20	Y,Gd	Al	30	0.05	0.01	2.32	0.6	0.58	1.03	812.80	80	0.0024	82
	21	Y,Gd	Al	30	0.1	0.01	2.37	0.92	0.54	1.70	810.68	105	0.0012	100
	22	Y,Gd	Al	30	0.3	0.01	2.31	0.98	0.58	1.69	802.19	120	0.001	110
	23	Y,Gd	Al	30	0.5	0	2.28	0.97	0.57	1.70	804.32	123	0.0011	115
	24	Y,Gd	Al	30	0.7	0.01	2.36	0.97	0.56	1.73	806.44	110	0.0015	105
	25	Y,Gd	Al	30	1	0.02	2.37	0.97	0.55	1.76	808.56	104	0.0016	101
	26	Y,Gd	Al	30	2	0.02	2.35	0.97	0.88	1.10	806.44	90	0.0014	92
	27	Lu	Al	30	0.3	0.01	2.37	1.36	0.92	1.48	762.00	130	0.0015	120
実施例 4	28	Lu	Al,Ga	30	0.3	0	2.26	1.41	0.94	1.50	753.00	124	0.0012	115
	29	Yb	Al	30	0.3	0.03	2.39	1.51	1.02	1.48	744.00	120	0.0011	114
	30	Yb	Al,Ga	30	0.3	0	2.27	1.46	1.05	1.39	780.00	140	0.0012	105

[4. 他の実施形態]

本開示は前記実施形態になんら限定されるものではなく、本発明を逸脱しない範囲において種々の態様で実施しうることはいうまでもない。

[0093] (1) 例えば、前記実施例では大気焼成にて試料を作製したが、その他にホットプレス焼成、真空焼成、還元雰囲気焼成、H I P、またはこれらを組み合わせた焼成方法によって、同等の性能を有した試料を作製することができる。

[0094] (2) 前記光波長変換部材や発光装置の用途としては、蛍光体、光波長変換機器、ヘッドランプ、照明、プロジェクター等の光学機器など、各種の用途が挙げられる。

(3) 発光装置に用いる発光素子としては特に限定はなく、周知のLEDやLDなど、各種のものを採用できる。

[0095] (4) なお、上記実施形態における1つの構成要素が有する機能を複数の構成要素に分担させたり、複数の構成要素が有する機能を1つの構成要素に発揮させたりしてもよい。また、上記実施形態の構成の一部を、省略してもよい。また、上記実施形態の構成の少なくとも一部を、他の実施形態の構成に対して付加、置換等してもよい。なお、特許請求の範囲に記載の文言から特定される技術思想に含まれるあらゆる態様が本開示の実施形態である。

符号の説明

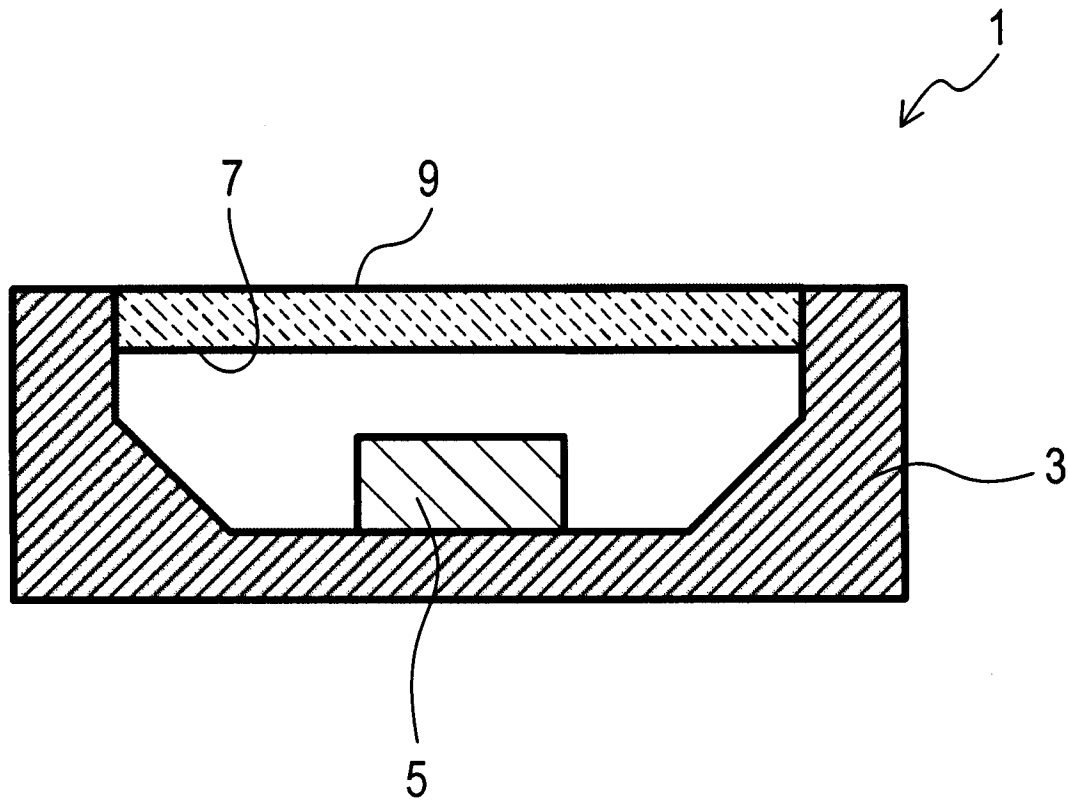
[0096] 1 … 発光装置
5 … 発光素子
9 … 光波長変換部材

請求の範囲

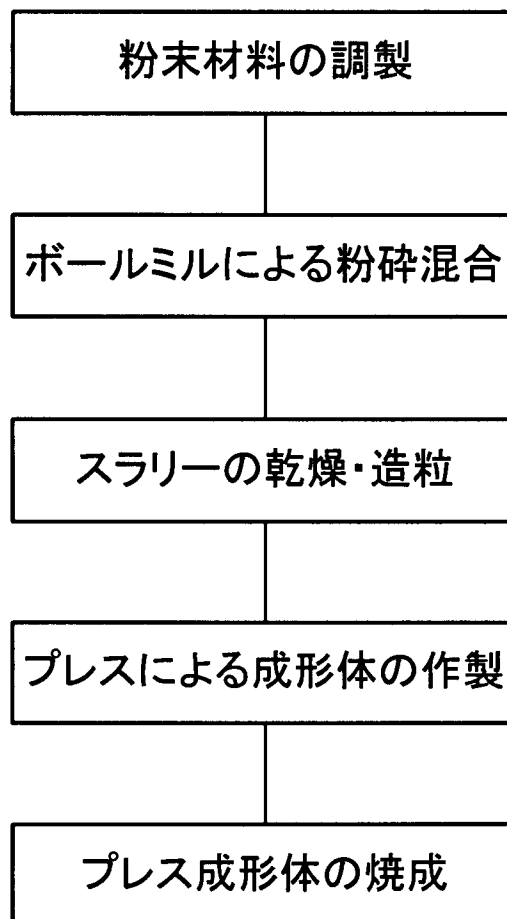
- [請求項1] 蛍光性を有する結晶粒子を主体とする蛍光相と、
透光性を有する結晶粒子を主体とする透光相と、
を有するセラミックス焼結体から構成された光波長変換部材において、
前記蛍光相の結晶粒子は、化学式 $A_3B_5O_{12} : Ce$ で表される組成を有するとともに、前記A元素及び前記B元素は、それぞれ下記元素群から選択される少なくとも1種の元素から構成されており、
A : Sc、Y、Ceを除くランタノイド
B : Al、Ga
前記光波長変換部材の断面における前記透光相と前記蛍光相との面積比 a が、 $0.3 < a < 3.4$ であり、且つ、前記蛍光相の界面長さ y が $300 \mu m < y < 1050 \mu m$ である、
光波長変換部材。
- [請求項2] 前記透光相の結晶粒子の平均粒径 r_1 と前記蛍光相の結晶粒子の平均粒径 r_2 との比 x が、 $1.1 < x < 2.1$ であって、前記透光相の結晶粒子の平均粒径 r_1 は $0.2 \mu m \sim 6 \mu m$ の範囲であり、前記蛍光相の結晶粒子の平均粒径 r_2 は $0.1 \mu m \sim 4 \mu m$ の範囲である、
請求項1に記載の光波長変換部材。
- [請求項3] 前記透光相の結晶粒子は、 Al_2O_3 の組成を有する、
請求項1又は2に記載の光波長変換部材。
- [請求項4] 前記化学式 $A_3B_5O_{12} : Ce$ で表される化合物は、前記セラミックス焼結体全体の $3 vol\% \sim 70 vol\%$ の範囲である、
請求項1～3のいずれか1項に記載の光波長変換部材。
- [請求項5] 前記化学式 $A_3B_5O_{12} : Ce$ で表される化合物におけるCe濃度は、前記化合物のA元素に対して $0.1 mol\% \sim 1.0 mol\%$ の範囲である、
請求項1～4のいずれか1項に記載の光波長変換部材。

[請求項6] 前記請求項 1 ～ 5 のいずれか 1 項に記載の光波長変換部材を備えた
、
発光装置。

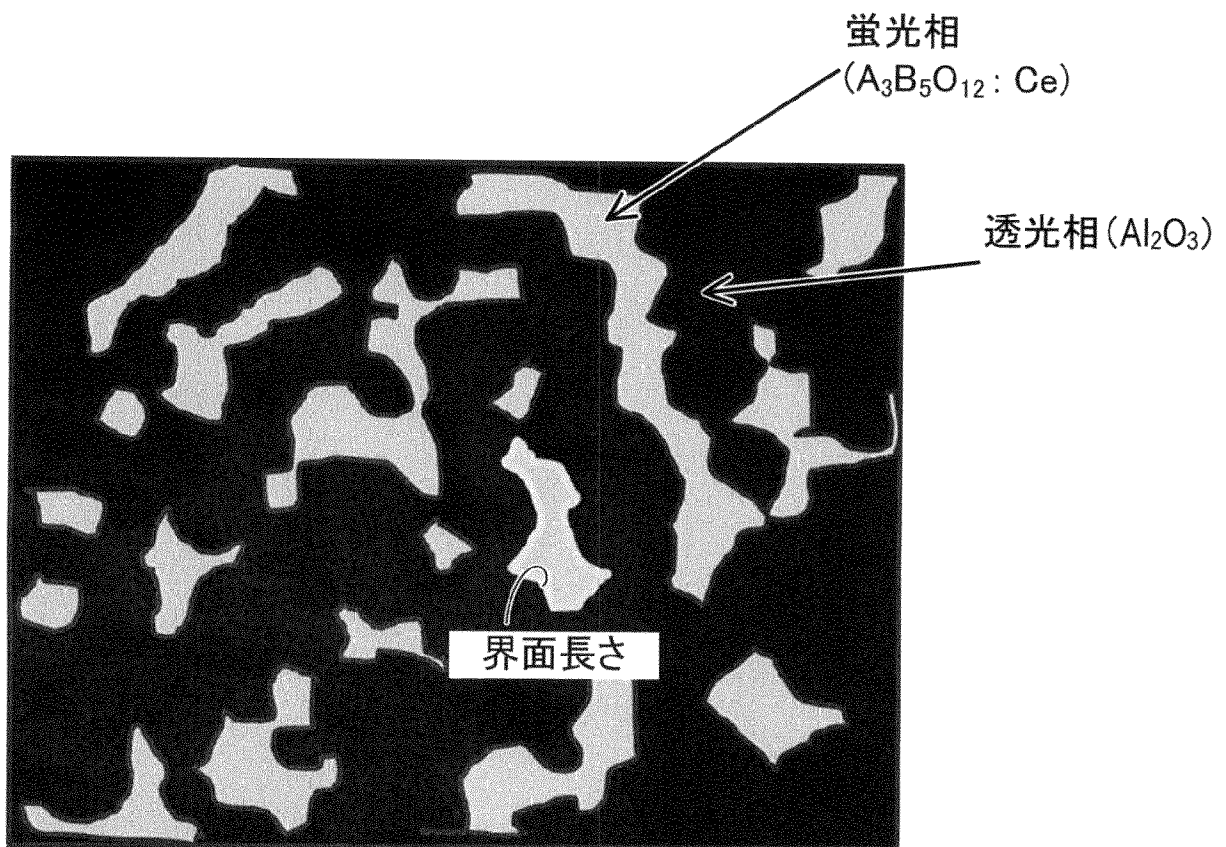
[図1]



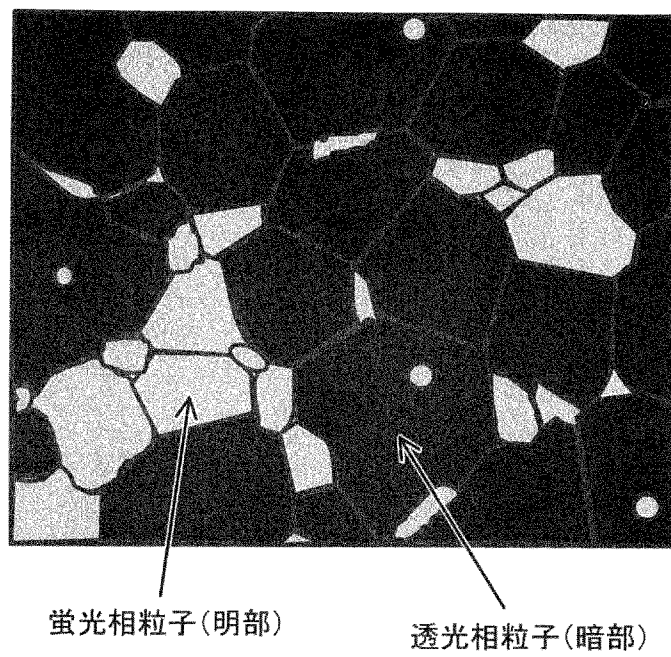
[図2]



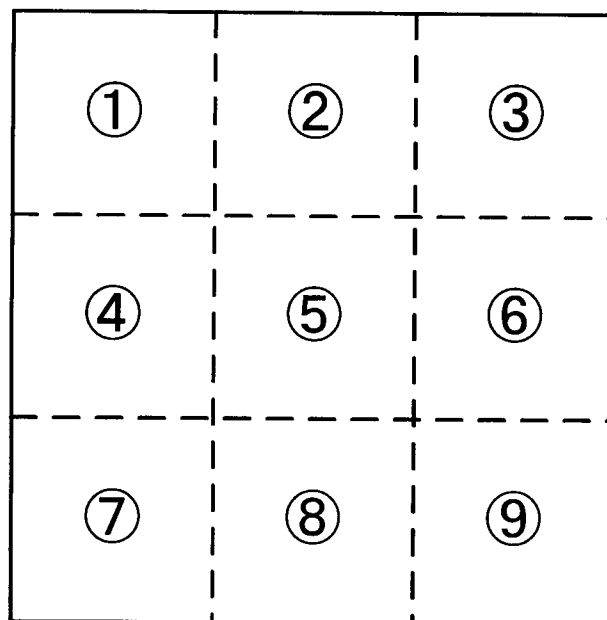
[図3]



[図4]



[図5]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/037920

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl. G02B5/20 (2006.01) i, C04B35/50 (2006.01) i, C09K11/80 (2006.01) i,
H01L33/50 (2010.01) i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl. G02B5/20, C04B35/50, C09K11/80, H01L33/50

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

Published examined utility model applications of Japan	1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan	1971-2018
Registered utility model specifications of Japan	1996-2018
Published registered utility model applications of Japan	1994-2018

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

CAPLUS/REGISTRY (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2006/001316 A1 (UBE INDUSTRIES, LTD.) 05 January 2006, entire text, fig. 1 & US 2006/0250069 A1 whole document, fig. 1 & EP 1760794 A1 & KR 10-2006-0079251 A & CN 1879229 A & TW 200603449 A	1-6
A	WO 2011/125422 A1 (UBE INDUSTRIES, LTD.) 13 October 2011, paragraphs [0055]-[0066], fig. 2-3 & US 2013/0088143 A1 paragraphs [0064]-[0078], fig. 2-3 & EP 2554627 A1 & CN 102947417 A & KR 10-2012-0132575 A & TW 201206858 A	1-6



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
12 January 2018 (12.01.2018)

Date of mailing of the international search report
23 January 2018 (23.01.2018)

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

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/037920

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2012-062459 A (COVALENT MATERIALS CORP.) 29 March 2012, entire text, fig. 2 & US 2012/0045634 A1 whole document, fig. 2 & DE 102011080832 A	1-6
A	WO 2016/117623 A1 (MITSUBISHI CHEMICAL CORP.) 28 July 2016, paragraphs [0054], [0104], claims & US 2017/0321866 A1 paragraphs [0134], [0240], claims & EP 3249026 A1 & CN 107207957 A & KR 10-2017-0105532 A	1-6
A	JP 2013-147643 A (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 01 August 2013, paragraphs [0017], [0025] & US 2013/0161849 A1 paragraphs [0025], [0032] & EP 2607449 A1 & CN 103173218 A & KR 10-2013-0079190 A & TW 201341505 A	1-6
A	WO 2011/102566 A1 (THE INDUSTRY & ACADEMIC COOPERATION IN CHUNGNAM NATIONAL UNIVERSITY) 25 August 2011, <3>-<5> & KR 10-1013146 B1	1-6
P, A	WO 2017/170609 A1 (MITSUBISHI CHEMICAL CORP.) 05 October 2017, paragraphs [0205]-[0243] (Family: none)	1-6

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. G02B5/20(2006.01)i, C04B35/50(2006.01)i, C09K11/80(2006.01)i, H01L33/50(2010.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. G02B5/20, C04B35/50, C09K11/80, H01L33/50

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2018年
日本国実用新案登録公報	1996-2018年
日本国登録実用新案公報	1994-2018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）

CAplus/REGISTRY (STN)

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
A	WO 2006/001316 A1（宇部興産株式会社） 2006.01.05, 全文, 第1図 & US 2006/0250069 A1 Whole Document, FIG.1 & EP 1760794 A1 & KR 10-2006-0079251 A & CN 1879229 A & TW 200603449 A	1-6
A	WO 2011/125422 A1（宇部興産株式会社） 2011.10.13, 段落[0055]-[0066], 図2-3 & US 2013/0088143 A1 [0064]-[0078], FIGs. 2-3	1-6

☑ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

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

の日の後に公表された文献

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

国際調査を完了した日

12.01.2018

国際調査報告の発送日

23.01.2018

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）

横川 美穂

20

4749

電話番号 03-3581-1101 内線 3271

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の 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
	& EP 2554627 A1 & CN 102947417 A & KR 10-2012-0132575 A & TW 201206858 A	
A	JP 2012-062459 A (コバレントマテリアル株式会社) 2012.03.29, 全文, 図2 & US 2012/0045634 A1 Whole Document, FIG.2 & DE 102011080832 A	1-6
A	WO 2016/117623 A1 (三菱化学株式会社) 2016.07.28, 段落[0054], [0104], [請求の範囲] & US 2017/0321866 A1 [0134], [0240], [Claims] & EP 3249026 A1 & CN 107207957 A & KR 10-2017-0105532 A	1-6
A	JP 2013-147643 A (信越化学工業株式会社) 2013.08.01, 段落[0017], [0025] & US 2013/0161849 A1 [0025], [0032] & EP 2607449 A1 & CN 103173218 A & KR 10-2013-0079190 A & TW 201341505 A	1-6
A	WO 2011/102566 A1 (THE INDUSTRY & ACADEMIC COOPERATION IN CHUNGNAM NATIONAL UNIVERSITY) 2011.08.25, <3>-<5> & KR 10-1013146 B1	1-6
P, A	WO 2017/170609 A1 (三菱化学株式会社) 2017.10.05, 段落[0205]-[0243] (ファミリーなし)	1-6