

(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
2021年7月1日(01.07.2021)



(10) 国際公開番号

WO 2021/132212 A1

(51) 国際特許分類:
G02B 5/20 (2006.01)

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).

(21) 国際出願番号: PCT/JP2020/047850

(22) 国際出願日: 2020年12月22日(22.12.2020)

(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 2019-231049 2019年12月23日(23.12.2019) 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).

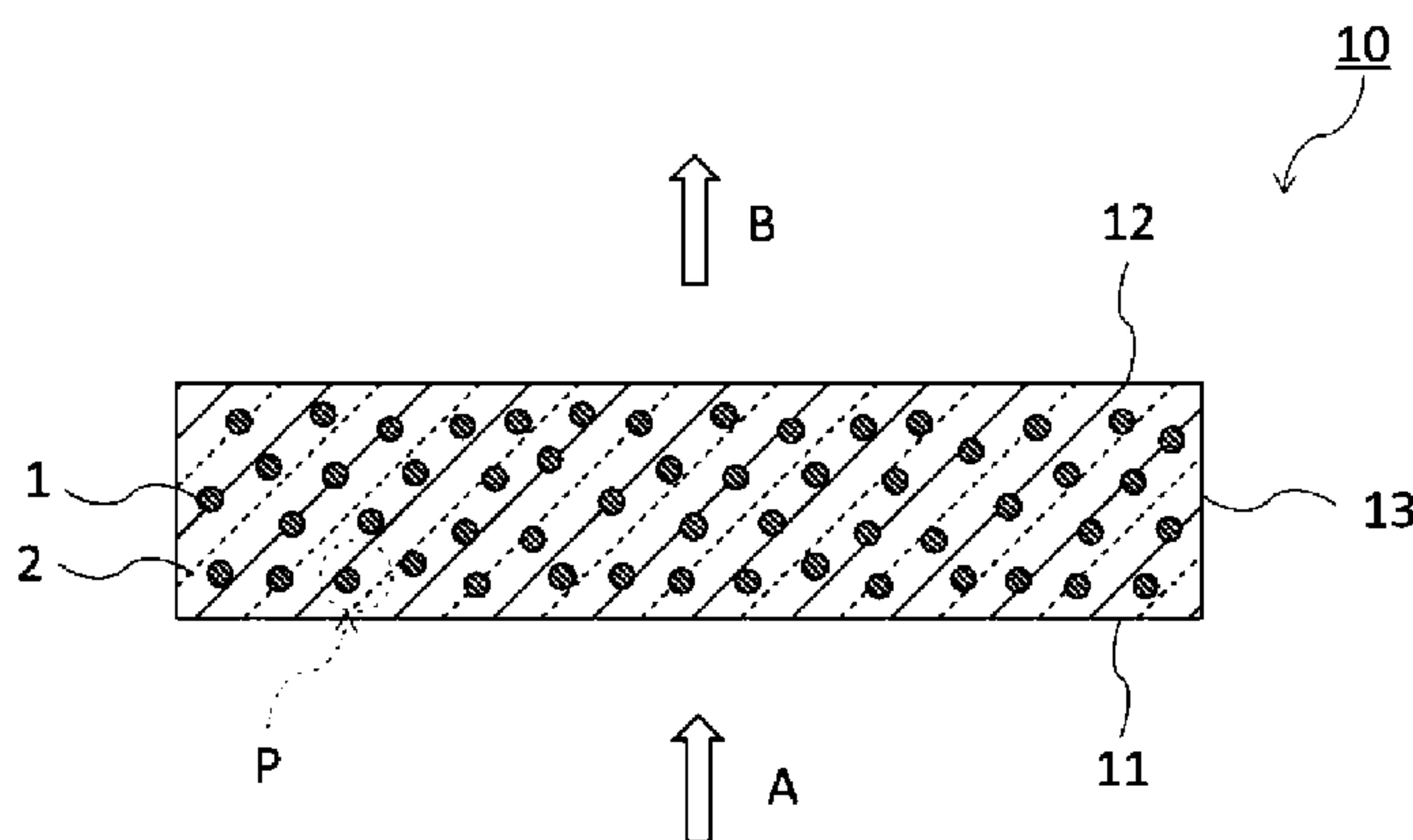
(72) 発明者: 福本 彰太郎 (FUKUMOTO Shotaro); 〒5208639 滋賀県大津市晴嵐二丁目7番1号 日本電気硝子株式会社内 Shiga (JP). 藤田 俊輔 (FUJITA Shunsuke); 〒5208639 滋賀

(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, IT, 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, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, 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,

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

(54) 発明の名称: 波長変換部材、発光素子及び発光装置



(57) Abstract: The present invention provides a wavelength conversion member, a light-emitting element, and a light-emitting device, the wavelength conversion member having high heat dissipation performance and capable of suppressing a decrease in light emission intensity caused by an increase in the output of an excitation light source. A wavelength conversion member 10 is provided with a matrix 2, and an inorganic phosphor 1 included in the matrix 2. The wavelength conversion member 10 has a relative density of 90% or more, a thermal conductivity of 10 W/m·K or more, and a quantum efficiency of 50% or more.

(57) 要約: 高い放熱性を有し、励起光源の出力上昇に伴う発光強度の低下を抑制することが可能な波長変換部材、発光素子及び発光装置を提供する。マトリクス2と、マトリクス2中に含まれる無機蛍光体1とを備える波長変換部材10であって、波長変換部材10は、相対密度が90%以上、熱伝導率が10W/m・K以上、かつ量子効率が50%以上である。

[続葉有]

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)）

明 細 書

発明の名称： 波長変換部材、発光素子及び発光装置

技術分野

[0001] 本発明は、発光ダイオード（LED：Light Emitting Diode）やレーザーダイオード（LD：Laser Diode）等の発する光の波長を別の波長に変換する波長変換部材、発光素子及び発光装置に関する。

背景技術

[0002] 低消費電力、小型軽量、容易な光量調節という観点から、LED等の励起光源を用いた発光装置が注目されている。例えば、青色光を出射するLED上に、青色光の一部を吸収して黄色光に変換する波長変換部材が配置された発光装置が開示されている（特許文献1）。この発光装置は、青色光と黄色光との合成光である白色光を発する。

[0003] また、近年は発光装置の高輝度化を目的として励起光源の出力が向上しており、それに伴う波長変換部材の高温化が問題になりつつある。このような高温化は、波長変換部材の発光強度を低下させる（温度消光）ほか、構成材料の変形、変色などを生じさせる恐れがある。

[0004] 上記問題に対処するため、発光部と、発光部から発生した熱を放出するための放熱部材を備えた発光装置が開示されている（特許文献2）。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特開2000-208815号公報

特許文献2：国際公開第2014/080705号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 特許文献2に開示された発光装置では、発光部に放熱部材が接合されている。当該構造は、放熱部材と発光部の接合面を介して放熱が行われるため、

接合面以外の放熱が不十分になりやすい。そのため、励起光源の出力上昇に伴う発光強度の低下を十分に抑制できないことがある。

[0007] 以上に鑑み、本発明は、高い放熱性を有し、励起光源の出力上昇に伴う発光強度の低下を抑制することが可能な波長変換部材、発光素子及び発光装置を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0008] 本発明の波長変換部材は、マトリクスと、マトリクス中に含まれる無機蛍光体とを備える波長変換部材であって、波長変換部材は、相対密度が90%以上、熱伝導率が $10\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上、かつ量子効率が50%以上であることを特徴とする。

[0009] 本発明の波長変換部材は、90%以上の相対密度を有し、かつ波長変換部材自体の熱伝導率が $10\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上である構成を有する。また、量子効率が50%以上である構成も有する。これらの構成を備えることで、本発明の波長変換部材は、高い放熱性を有し、励起光源の出力上昇に伴う波長変換部材の発光強度の低下を抑制することができる。

[0010] 本発明の波長変換部材は、無機蛍光体が、酸化物蛍光体、酸窒化物蛍光体及び窒化物蛍光体から選択される少なくとも1種であることが好ましい。

[0011] 本発明の波長変換部材は、無機蛍光体が、YAG、LuAG、SiAlON及びCASNから選択される少なくとも1種であることが好ましい。

[0012] 本発明の波長変換部材は、無機蛍光体の平均粒子径が $0.1\sim 25\mu\text{m}$ であることが好ましい。

[0013] 本発明の波長変換部材は、マトリクスが、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、酸化亜鉛、酸化イットリウム、酸窒化アルミニウム、窒化アルミニウム及び窒化ホウ素から選択される少なくとも1種であることが好ましい。

[0014] 本発明の波長変換部材は、マトリクスが酸化マグネシウムであることが好ましい。

[0015] 本発明の波長変換部材は、マトリクスが窒化アルミニウムであることが好ましい。

[0016] 本発明の波長変換部材は、無機蛍光体と無機粒子とを含む焼結体からなることが好ましい。

[0017] 本発明の発光素子は、上記の波長変換部材と、波長変換部材の主面上に配置された基板とを備えることを特徴とする。

[0018] 本発明の発光装置は、上記の波長変換部材と、励起光源とを備えることを特徴とする。

[0019] 本発明の発光装置は、励起光源がＬＤであることが好ましい。

発明の効果

[0020] 本発明によれば、高い放熱性を有し、励起光源の出力上昇に伴う発光強度の低下を抑制することが可能な波長変換部材、発光素子及び発光装置を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0021] [図1]本発明の一実施形態に係る波長変換部材を示す模式的断面図である。

[図2]図１に示す波長変換部材のＰ部拡大図である。

[図3]本発明の第１の実施形態に係る発光素子を示す模式的断面図である。

[図4]本発明の第２の実施形態に係る発光素子を示す模式的断面図である。

[図5]本発明の第３の実施形態に係る発光素子を示す模式的断面図である。

[図6]本発明の一実施形態に係る発光装置を示す模式的断面図である。

発明を実施するための形態

[0022] 以下、本発明の好ましい実施形態について説明する。ただし、以下の実施形態は単なる例示であり、本発明は以下の実施形態に限定されるものではない。また、各図面において、実質的に同一の機能を有する部材は同一の符号で参照する場合がある。

[0023] (波長変換部材１０)

図１は、本発明の一実施形態に係る波長変換部材を示す模式的断面図である。また、図２は図１に示す波長変換部材のＰ部拡大図である。波長変換部材１０は、マトリクス２と、マトリクス２中に含まれる無機蛍光体１とを備える。本実施形態において、無機蛍光体１はマトリクス２中に分散してなる

。また、図2に示すように、波長変換部材10は、無機蛍光体1と無機粒子3とを含む焼結体からなる。すなわち、マトリクス2は無機粒子3の集合体からなる。

[0024] 波長変換部材10の相対密度は90%以上であり、92%以上、95%以上、特に97%以上であることが好ましい。これにより、波長変換部材10の放熱性を向上させ、励起光源の出力上昇に伴う発光強度の低下を抑制しやすくなる。また、無機蛍光体1の温度消光による発光効率の低下を抑制しやすくなる。相対密度が低すぎると、波長変換部材10の内部に気孔が多く存在して、放熱性が低下しやすくなる。また、励起光Aが気孔で散乱されすぎて、波長変換部材10の発光強度が低下する恐れがある。なお、本発明において、相対密度は見かけ密度／真密度×100(%)で算出することができる。見かけ密度は、アルキメデス法により測定された値を用いることができる。真密度は、波長変換部材10の構成材料（本実施形態において、無機蛍光体1と無機粒子3）の密度と体積%を用いて、下記式により算出することができる。なお、無機蛍光体1と無機粒子3以外の構成材料を含む場合も、同様に計算することができる。

[0025] 真密度＝{(無機蛍光体1の密度)×(無機蛍光体1の体積%)+(無機粒子3の密度)×(無機粒子3の体積%)}／100

[0026] 波長変換部材10の熱伝導率は10W／m・K以上であり、12W／m・K以上、15W／m・K以上、20W／m・K以上、25W／m・K以上、特に30W／m・K以上であることが好ましい。これにより、無機蛍光体1で生じる熱を波長変換部材10全体から効率よく外部へ放熱することができる。なお、本発明における熱伝導率は、室温（約25℃）で測定される値を意味する。

[0027] 波長変換部材10の量子効率は50%以上であり、60%以上、70%以上、80%以上、特に85%以上であることが好ましい。上記値を満たす波長変換部材10は、励起光源の出力上昇に伴う発光強度の低下を抑制しやすくなる。なお、本発明において、量子効率は下記式により算出される値を指

し、絶対PL量子収率装置を用いて測定することができる。上記値は、例えば、量子効率の高い無機蛍光体1を用いることや、後述する製造方法により波長変換部材10を製造することにより達成することができる。

[0028] 量子効率 = { (蛍光としてサンプルから放出されたフォトン数) / (サンプルにより吸収されたフォトン数) } × 100 (%)

[0029] 波長変換部材10の熱伝導率 (W/m・K) と量子効率 (%) の積は、500以上、1000以上、1500以上、1800以上、2000以上、特に2200以上であることが好ましい。上記値を満たす波長変換部材10は、高い放熱性を有し、かつ励起光源の出力上昇に伴う発光強度の低下を抑制しやすくなる。

[0030] 波長変換部材10の気孔率は10%以下、8%以下、5%以下、3%以下、特に2%以下であることが好ましい。また、気孔の平均細孔径は1 μm以下、800 nm以下、500 nm以下、特に300 nm以下であることが好ましい。これにより、波長変換部材10の放熱性を向上させやすくなる。なお、本発明において、気孔率は水銀圧入法又は窒素吸脱着法を用いて測定することができる。具体的には、前述した方法で測定した吸着量を試料体積で除したのち、100を掛けた値を意味する。また、平均細孔径は、水銀圧入法又は窒素吸脱着法により測定した細孔径分布において、最大となるピーク値の細孔径を意味する。なお、水銀圧入法又は窒素吸脱着法により測定データが得られない場合は、細孔が閉じて独立している可能性がある。このようなときは、電子顕微鏡を用いて波長変換部材10の断面を観察することにより、平均細孔径を確認することができる。具体的には、例えば、以下の方法が挙げられる。はじめに、SEM観察（倍率1000倍）による画像取得を行い、波長変換部材10の断面画像を複数（例えば、2～10枚）得る。次に、得られた複数の断面画像に対して画像処理を行い、画像ごとに空孔のサイズ分布及び面積率を求める。このとき、空孔のサイズ分布においてピーク値となる細孔径を平均細孔径とし、面積率を気孔率とする。最後に、画像ごとに得られた平均細孔径及び気孔率の平均を取る。

- [0031] 波長変換部材 10 の形状は特に限定されず、例えば、矩形状、略円盤状、球状、半球状、半球ドーム状とすることができる。
- [0032] 波長変換部材 10 の第 1 の主面 11 及び／又は第 2 の主面 12 には、反射防止膜やバンドパスフィルターを設けてもよい。これにより、波長変換部材 10 の内部に閉じ込められる蛍光を減らし、無機蛍光体 1 による蛍光再吸収による発熱を抑えることができるため、発光強度の低下を抑制しやすくなる。また、波長変換部材 10 の側面 13 に反射層を設けてもよい。これにより、側面 13 から外部に励起光 A 及び蛍光が漏れることを抑制しやすくなるため、所望される発光強度を得るのに必要な励起光 A の強度を下げることで、発光強度の低下を一層抑制しやすくなる。
- [0033] 本発明の波長変換部材 10 は、いわゆる透過型、又はいわゆる反射型のいずれでも使用することができる。透過型の場合は、図 1 に示すように、励起光 A が第 1 の主面 11 側から入射する。入射した励起光 A の一部は、無機蛍光体 1 により励起光 A と異なる波長を有する蛍光に波長変換される。そして、励起光 A と蛍光の合成光 B が、第 2 の主面 12 側から出射する。いわゆる反射型については後述する。
- [0034] (無機蛍光体 1)
- 無機蛍光体 1 は、波長 300～500 nm に励起帯を有し、波長 380～780 nm に発光ピークを有する蛍光体であることが好ましい。例えば、酸化物蛍光体、窒化物蛍光体、酸窒化物蛍光体、塩化物蛍光体、酸塩化物蛍光体、ハロゲン化物蛍光体、アルミン酸塩蛍光体及びハロリン酸塩化物蛍光体等を用いることができる。特に、酸化物蛍光体、酸窒化物蛍光体及び窒化物蛍光体から選択される少なくとも 1 種であることが好ましい。具体的には、YAG (イットリウム・アルミニウム・ガーネット)、LuAG (ルテチウム・アルミニウム・ガーネット)、SiAlON 及び CASN (CaAlSi₃N₃) から選択される少なくとも 1 種であることが好ましい。また、温度上昇に対する量子効率の低下が小さいことから、YAG (イットリウム・アルミニウム・ガーネット)、LuAG (ルテチウム・アルミニウム・ガーネット)

ト) から選択される少なくとも 1 種であることがさらに好ましい。なお、励起光 A や所望の合成光 B の色度に合わせて、複数の無機蛍光体 1 を混合して用いてもよい。

[0035] 無機蛍光体 1 は、発光ピーク波長における量子効率が、60%以上、70%以上、80%以上、特に90%以上であることが好ましい。これにより、波長変換部材 10 の量子効率を向上させやすくなる。

[0036] 無機蛍光体 1 の含有量は、いわゆる透過型で用いる場合に、体積%で、0.1~80%、1~50%、2~30%、3~20%、特に5~15%であることが好ましい。また、いわゆる反射型で用いる場合に、体積%で、10~80%、30~80%、55~80%、特に65~80%であることが好ましい。無機蛍光体 1 の含有量が多すぎると、波長変換部材 10 の熱伝導率が低下しやすくなる。また、無機蛍光体 1 の蛍光再吸収により、励起光 A の透過光量が少なくなり、合成光 B の色度調整がしづらくなる。一方、無機蛍光体 1 の含有量が少なすぎると、所望の発光強度が得づらくなる。

[0037] 無機蛍光体 1 の平均粒子径 (D_{50}) は、0.1~25 μm 、1~20 μm 、特に2~15 μm であることが好ましい。平均粒子径 (D_{50}) が大きすぎると、波長変換部材 10 の発光色が不均一になりやすくなる。一方、平均粒子径 (D_{50}) が小さすぎると、製造時に無機蛍光体 1 が凝集しやすくなり、波長変換部材 10 の発光色が不均一になりやすくなる。

[0038] (マトリクス 2)

マトリクス 2 は、無機蛍光体 1 より高い熱伝導率を有する無機材料からなることが好ましい。具体的には、マトリクス 2 が、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、酸化亜鉛、酸化イットリウム、酸窒化アルミニウム、窒化アルミニウム、窒化ホウ素から選択される少なくとも 1 種であることが好ましく、特に酸化マグネシウム又は窒化アルミニウムであることが好ましい。これにより、波長変換部材 10 の放熱性を向上させやすくなり、励起光源の出力上昇に伴う発光強度の低下を抑制しやすくなる。特に酸化マグネシウムは、可視波長域 (400~780 nm) における光吸収が少なく、発光強度の

低下をより一層抑制しやすくなるため好ましい。なお、これらの材料は単独で用いてもよく、混合して用いてもよい。また、これらの材料を所望の割合で固溶させた固溶体（例えば、酸化マグネシウム－酸化アルミニウム固溶体）を用いてもよい。

[0039] マトリクス2の熱伝導率は、 $10\text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ 以上、 $15\text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ 以上、 $20\text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ 以上、 $25\text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ 以上、 $30\text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ 以上、 $35\text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ 以上、 $40\text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ 以上、特に $45\text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ 以上であることが好ましい。これにより、波長変換部材10の放熱性を向上させ、励起光源の出力上昇に伴う発光強度の低下を抑制しやすくなる。

[0040] 本実施形態において、マトリクス2は無機粒子3の集合体からなる。無機粒子3は、上述した無機材料の粉末（無機材料粉末）を焼成した後の粒子を意味する。無機粒子3の平均1次粒子径（ D_{50} ）は、 $2\text{ }\mu\text{m}$ 以下、 $1\text{ }\mu\text{m}$ 以下、 500 nm 以下、 300 nm 以下、 100 nm 以下、 80 nm 以下、特に 50 nm 以下であることが好ましい。これにより、波長変換部材10の放熱性を向上させやすくなる。なお、無機粒子3の平均粒子径（ D_{50} ）は、電子顕微鏡写真を用いて波長変換部材10の断面を観察することにより確認することができる。

[0041] 無機蛍光体1の平均粒子径（ D_{50} ）（ μm ）と無機粒子3の平均粒子径（ D_{50} ）（ μm ）の比（無機蛍光体1の平均粒子径）／（無機粒子3の平均粒子径）は、1以上、5以上、10以上、100以上、200以上、300以上、400以上、特に420以上であることが好ましい。また、無機蛍光体1の平均粒子径（ D_{50} ）（ μm ）と無機材料粉末の平均粒子径（ D_{50} ）（ μm ）の比（無機蛍光体1の平均粒子径）／（無機材料粉末の平均粒子径）は、1以上、5以上、10以上、100以上、200以上、300以上、400以上、特に450以上であることが好ましい。これにより、波長変換部材10を緻密に焼成しやすくなり、放熱性を向上させやすくなる。

[0042] 後述するように、波長変換部材10は、無機蛍光体1と、無機材料粉末の

混合物を焼成することにより作製される。このとき、無機材料粉末は、焼成による粒成長及び凝集が抑制されていることが好ましい。なお、粒成長及び凝集は、無機材料粉末の平均粒子径に比べて、無機粒子 3 の平均粒子径が大きい状態を意味する。粒成長及び凝集が生じると、波長変換部材 10 中に空洞が生じやすくなる。本発明において、焼成後に平均 1 次粒子径が $1\ \mu\text{m}$ より大きくなる無機材料粉末の割合が、面積比で、50%以下、20%以下、10%以下、5%以下、3%以下、特に1%以下であることが好ましい。これにより、波長変換部材 10 が緻密に焼成しやすくなり、放熱性を向上させやすくなる。なお、無機材料粉末の粒成長及び凝集は、電子顕微鏡写真を用いて、波長変換部材 10 の断面を観察して無機粒子 3 の平均粒子径を測定し、無機材料粉末の平均粒子径と比較することにより確認することができる。

[0043] 無機材料粉末の平均粒子径 (D_{50}) は $1\ \mu\text{m}$ 以下、500 nm 以下、300 nm 以下、100 nm 以下、80 nm 以下、特に50 nm 以下であることが好ましい。これにより、波長変換部材 10 を緻密に焼成しやすくなり、放熱性を向上させやすくなる。また、無機蛍光体 1 を均一に分散させやすくなり、波長変換部材 10 の発光色を均一にしやすくなる。平均粒子径の下限値は特に限定されないが、現実的には1 nm 以上である。

[0044] (波長変換部材 10 の製造方法)

本発明の波長変換部材 10 は、無機材料粉末と無機蛍光体 1 の混合物を焼成することにより製造することが好ましい。当該製法により、無機蛍光体 1 と無機粒子 3 とを含む焼結体からなる波長変換部材 10 を得ることができる。

[0045] 焼成は加熱プレスにより行うことが好ましい。これにより、波長変換部材 10 を緻密に焼成しやすくなり、熱伝導性を向上させやすくなる。プレス面圧は、目的とする波長変換部材 10 の厚みに応じて適宜調節できる。例えば、1 MPa 以上、10 MPa 以上、30 MPa 以上、50 MPa 以上、特に80 MPa 以上とすることが好ましい。上限は特に限定されないが、プレス金型の破損を防止するため、例えば120 MPa 以下、特に100 MPa 以

下とすることが好ましい。

[0046] 焼成時の最高温度は1900℃以下、1800℃以下、1700℃以下、1600℃以下、1500℃以下、1400℃以下、特に1300℃以下が好ましい。特に、真空雰囲気で行うときは、1500℃未満、1450℃以下であることが好ましい。焼成時の最高温度が高すぎると、無機蛍光体1が熱により劣化しやすくなる。また、無機材料粉末の粒成長が進みやすくなる。一方、焼成時の最高温度が低すぎると、波長変換部材10を緻密に焼成しづらくなる。そのため、焼成時の最高温度は600℃以上、700℃以上、特に800℃以上が好ましい。

[0047] プレス保持時間は、0.1～20時間、0.5～15時間、特に1～10時間とすることが好ましい。プレス保持時間が長すぎると、生産効率が低下しやすくなる。一方、プレス保持時間が短すぎると、波長変換部材10を緻密に焼成しづらくなる。

[0048] 焼成を行う際の雰囲気は、不活性雰囲気、還元雰囲気又は真空雰囲気であることが好ましい。これにより、無機蛍光体1の劣化を抑制しやすくなる。また、プレス金型の劣化を抑制しやすくなる。不活性雰囲気では、不活性ガスとして窒素ガスやアルゴンガスを用いることが好ましい。ランニングコストの観点からは、窒素ガスを用いることが好ましい。還元雰囲気では、還元性ガスとして水素ガスを用いることが好ましい。また、安全性の観点からは、水素ガスと不活性ガスとの混合気体を用いることが好ましい。

[0049] マトリクス2が窒化物からなる場合は、焼成を行う際の雰囲気が窒素雰囲気であることが好ましい。これにより、マトリクス2の着色を抑制することができ、波長変換部材10の発光強度の低下をより一層抑制しやすくなる。マトリクス2に着色があると、励起光Aを照射したときに発熱しやすくなる。

[0050] 波長変換部材10の製造方法は、加熱プレスに限定されない。例えば、無機材料粉末と無機蛍光体1の混合物を金型で加圧し、得られた予備成型体を焼成することにより、焼結体を製造してもよい。また、予備成型体をゴム型

に内包し、熱間等方圧加圧法により焼結体を製造してもよい。

[0051] (発光素子 20、21、30)

図3は、本発明の第1の実施形態に係る発光素子を示す模式的断面図である。図3に示すように、本実施形態における発光素子20は、波長変換部材10と、基板5を備える。本実施形態において、波長変換部材10は、いわゆる透過型で用いられている。また、本実施形態において、基板5は波長変換部材10の第1の主面11上に形成されている。

[0052] 本発明の発光素子20は、波長変換部材10自体の熱伝導率が高いため、高い放熱性を有し、励起光源の出力上昇に伴う発光強度の低下を抑制することができる。また、波長変換部材10に励起光Aが照射されることにより発生した熱が、基板5を通して外部に放出されるため、励起光源の出力上昇に伴う発光強度の低下をより一層抑制することができる。

[0053] 基板5は、波長変換部材10より高い熱伝導率を有していることが好ましい。具体的には、 $10\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上、 $12\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上、 $15\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上、 $20\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上、 $25\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上、特に $30\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上であることが好ましい。これにより、励起光源の出力上昇に伴う発光強度の低下をより一層抑制することができる。

[0054] 本実施形態では、波長変換部材10を、いわゆる透過型で用いる。そのため、本実施形態において、基板5は、励起光Aを透過する透光性基板であることが好ましい。具体的には、基板5は、波長 $400\sim 800\text{ nm}$ における全光線透過率が 10% 以上、 20% 以上、 30% 以上、特に 40% 以上であることが好ましい。

[0055] 基板5としては、例えば、酸化アルミニウム、酸化ジルコニウム、窒化アルミニウム、炭化ケイ素、窒化ホウ素、酸化マグネシウム、酸化チタン、酸化ニオブウム、酸化亜鉛、酸化イットリウム等の透光性セラミック基板を用いることが好ましい。

[0056] 基板5の厚みは、 $0.05\sim 1\text{ mm}$ 、 $0.07\sim 0.8\text{ mm}$ 、特に $0.1\sim 0.5\text{ mm}$ であることが好ましい。基板5の厚みが小さすぎると、基板5

による熱伝導特性の向上効果が得づらくなる。一方、基板5の厚みが大きすぎると、発光素子20が大型化しやすくなる。

[0057] 本実施形態において、基板5は波長変換部材10の第1の主面11上に形成されているが、これに限定されない。例えば、基板5は波長変換部材10の第2の主面12上に形成されていてもよい。また、基板5は波長変換部材10の第1の主面11及び第2の主面12の両面上に形成されていてもよい。基板5を両面上に設ける場合は、2つの基板5の厚みは同じであってもよいし、異なってもよい。例えば、一方の基板5の厚みを比較的大きく（例えば0.2mm以上、さらには0.5mm以上）することにより、他方の基板5の厚みを比較的小さく（例えば0.2mm未満、さらには0.1mm以下）してもよい。

[0058] 基板5の励起光Aが入射する側の主面上に、反射防止膜やバンドパスフィルタを設けてもよい。また、基板5の励起光A及び蛍光の出射側に、反射防止膜を設けてもよい。これらにより、発光強度の低下を抑制しやすくなる。また、波長変換部材10の側面13及び基板5の側面に反射層を設けてもよい。これにより、側面13及び基板5の側面から外部に励起光A及び蛍光が漏れることを抑制しやすくなるため、発光強度を高めることができる。

[0059] 図4は、本発明の第2の実施形態に係る発光素子を示す模式的断面図である。図4に示すように、本実施形態における発光素子21は、波長変換部材10と、貫通孔Hを有する基板5Hを備える。本実施形態において、波長変換部材10は、いわゆる透過型で用いられている。本実施形態において、基板5Hは、貫通孔H内に波長変換部材10が固定されている。

[0060] 本実施形態において、波長変換部材10は、接着層6により基板5Hへ固定されることが好ましい。接着層6は、例えば、接着用ガラスにより構成される。接着用ガラスは、例えば、ケイ酸塩ガラス、ホウケイ酸塩ガラス、スズリン酸塩ガラス、ビスマス酸塩ガラス及びホウケイ酸鉛ガラスから選択される少なくとも1種であることが好ましい。これらの中でも、ホウケイ酸塩系ガラス、スズリン酸塩系ガラスは、軟化点が比較的低く、低温焼結が可能

であり、焼成時に無機蛍光体 1 の劣化を抑制できるため、特に好ましい。

[0061] 接着用ガラスは、例えば、厚み 1 mm で測定した波長 400～800 nm における全光線透過率が 10%以上、20%以上、30%以上、特に 40%以上であることが好ましい。

[0062] 接着層 6 には、無機材料粉末が含有されていることが好ましい。このようにすれば、波長変換部材 10 から基板 5 H への放熱性を向上させることができる。また、接着層 6 が、波長変換部材 10 と基板 5 H の界面で反射層として作用するため、合成光 B の強度を高めやすくなる。

[0063] 貫通孔 H の形状は、特に限定されないが、例えば、円筒形、円錐形、多角柱形、多角錐形とすることができる。貫通孔 H の形状が円錐形及び多角錐形である場合は、出射側の面（すなわち、波長変換部材 10 の第 2 の主面 12）の表面積が、励起光 A の入射側の面（すなわち、波長変換部材 10 の第 1 の主面 11）の表面積より大きいことが好ましい。このようにすれば、合成光 B の強度を高めることができる。

[0064] 図 5 は、本発明の第 3 の実施形態に係る発光素子を示す模式的断面図である。図 5 に示すように、本実施形態における発光素子 30 は、波長変換部材 10 と、反射基板 8 を備える。すなわち、本実施形態において、波長変換部材 10 は、いわゆる反射型で用いられる。このとき、図 5 に示すように、励起光 A は波長変換部材 10 の第 2 の主面 12 側から入射する。入射した励起光 A の一部は、無機蛍光体 1 により励起光 A と異なる波長を有する蛍光に波長変換される。そして、励起光 A と蛍光の合成光 B は、反射基板 8 により反射されて、第 2 の主面 12 側から出射する。

[0065] 反射基板 8 は特に限定されず、励起光 A 及び励起光 A と蛍光の合成光 B を反射する金属、セラミック等を好適に用いることができる。金属としては、銅、アルミニウム、鉄、銀から選択される少なくとも一種であることが好ましい。セラミックとしては、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、酸化亜鉛、窒化アルミニウム及び窒化ホウ素から選択される少なくとも一種であることが好ましい。また、上記セラミックとして、多孔質セラミックを用いて

もよい。

[0066] 反射基板 8 の熱伝導率は、 $10\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上、 $12\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上、 $15\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上、 $20\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上、 $25\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上、特に $30\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上であることが好ましい。これにより、励起光源の出力上昇に伴う発光強度の低下をより一層抑制することができる。

[0067] 反射基板 8 の厚みは、 2 mm 以下、 1.5 mm 以下、特に 1 mm 以下であることが好ましい。反射基板 8 の厚みが大きすぎると、発光素子 21 が大型化しやすくなる。反射基板 8 の厚みの下限は 0.01 mm 以上、 0.05 mm 以上、 0.1 mm 以上、 0.2 mm 以上、 0.5 mm 以上であることが好ましい。反射基板 8 の厚みが小さすぎると反射が不十分になり、励起光 A 及び蛍光が反射基板 8 を透過してしまい、波長変換部材の第 2 の主面 12 側から出射する合成光 B の強度が低下する恐れがある。

[0068] (発光装置 50)

図 6 は、本発明の一実施形態に係る発光装置を示す模式的断面図である。図 6 に示すように、本実施形態における発光装置 50 は、波長変換部材 10 と、励起光源 7 を備える。本実施形態において、波長変換部材 10 は、いわゆる透過型の波長変換部材として用いられている。また、励起光源 7 は、励起光 A が第 1 の主面 11 側から波長変換部材 10 に入射するように配置されている。励起光源 7 から出射された励起光 A は、波長変換部材 10 により、励起光 A よりも波長の長い蛍光に波長変換される。また、励起光 A の一部は波長変換部材 10 を透過する。このため、波長変換部材 10 からは、励起光 A と蛍光との合成光 B が出射する。例えば、励起光 A が青色光であり、蛍光が黄色光である場合、白色の合成光 B を得ることができる。

[0069] なお、発光装置 50 において、波長変換部材 10 の代わりに、図 3 や図 4 に示す発光素子 20 を用いてもよい。また、いわゆる反射型の波長変換部材（すなわち、図 5 に示す発光素子 30）を用いてもよい。この場合は、励起光源 7 は、励起光 A が第 2 の主面 12 側から波長変換部材 10 に入射するように配置される。

[0070] 励起光源 7 は、LED や LD であることが好ましい。発光装置 50 の発光強度を向上させる観点からは、高強度の光を出射できる LD を用いることが特に好ましい。LD を用いた発光装置 50 は、狭い照射範囲に高強度の励起光 A を照射するため、発光強度を向上させやすい一方で、波長変換部材 10 に局所的な温度上昇が生じやすい。上述したように、本発明の発光装置 50 に用いる波長変換部材 10 は、それ自体の熱伝導率が高いため、高い放熱性を有し、励起光源 7 の出力上昇に伴う発光強度の低下を抑制することができる。

実施例

[0071] 以下、本発明を実施例に基づいて説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

[0072] 表 1、2 は本発明の実施例（No. 4～10、12～17、19）及び比較例（No. 1～3、11、18）を示す。

[0073] [表1]

		No.1	No.2	No.3	No.4	No.5	No.6	No.7	No.8	No.9
無機マトリクス	種類	MgO	MgO	MgO	MgO	MgO	MgO	MgO	MgO	MgO
	密度(g/cm ³)	3.6	3.6	3.6	3.6	3.6	3.6	3.6	3.6	3.6
	体積(%)	90	90	90	90	90	90	90	90	90
無機蛍光体	種類	YAG	YAG	YAG	YAG	YAG	YAG	YAG	YAG	YAG
	密度(g/cm ³)	4.7	4.7	4.7	4.7	4.7	4.7	4.7	4.7	4.7
	体積(%)	10	10	10	10	10	10	10	10	10
焼成温度(℃)		1000	1200	1000	1100	1100	1200	1200	1200	1300
最高温度保持時間(h)		0	0	1	1	5	1	3	5	1
焼成雰囲気		真空	真空	真空	真空	真空	真空	真空	真空	真空
プレス圧(MPa)		40	40	40	40	40	40	40	40	40
波長変換部材	相対密度(%)	72.7	87.5	82.8	95.7	97.6	96.0	98.6	99.1	99.3
	熱伝導率(W/(m・K))	4.3	8.7	7.5	10.9	14.6	22.7	24.5	26.5	24.6
	量子効率(%)	90.1	85.3	82.5	81.2	79.7	73.2	68.2	65.2	54.0
基準変換効率の95%となる励起光強度(W)		1.74	2.42	2.15	2.66	3.23	4.11	4.16	4.28	3.56

[0074]

[表2]

		No.10	No.11	No.12	No.13	No.14	No.15	No.16	No.17	No.18	No.19
無機マトリクス	種類	MgO	MgO	MgO	MgO	MgO	MgO	MgO	MgO	ガラスA	AlN
	密度(g/cm ³)	3.6	3.6	3.6	3.6	3.6	3.6	3.6	3.6	3.1	3.3
	体積(%)	90	90	90	90	90	90	90	90	90	90
無機蛍光体	種類	YAG	YAG	YAG	YAG	YAG	YAG	YAG	YAG	YAG	YAG
	密度(g/cm ³)	4.7	4.7	4.7	4.7	4.7	4.7	4.7	4.7	4.7	4.7
	体積(%)	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10
焼成温度(℃)		1400	1500	1200	1000	1000	1000	1000	950	900	1800
最高温度保持時間(h)		1	1	1	1	5	8	10	10	10	1
焼成雰囲気		真空	真空	真空	真空	真空	真空	真空	真空	真空	窒素
プレス圧(MPa)		40	40	80	80	80	80	80	80	—	—
波長変換部材	相対密度(%)	99.5	99.8	99.2	94.0	96.7	98.2	98.9	95.6	100.0	97.6
	熱伝導率(W/(m・K))	26.2	21.5	27.7	19.5	24.7	25.2	30.4	20.5	0.9	73.0
	量子効率(%)	50.7	36.0	79.6	87.6	87.5	85.0	86.3	87.0	87.0	50.3
基準変換効率の95%となる励起光強度(W)		3.53	2.48	5.16	4.25	5.07	5.04	6.04	4.32	0.87	8.13

[0075] 実施例及び比較例は以下のように作製した。はじめに、無機蛍光体、無機材料粉末を表1、2に示す含有量となるように混合し、混合物を得た。各材料には以下のものを使用した。

[0076] (a) 無機蛍光体

YAG蛍光体 (Y₃Al₅O₁₂、平均粒子径：24 μm)

[0077] (b) 無機材料粉末

MgO粒子 (熱伝導率：約45 W/m・K、平均粒子径：0.05 μm、屈折率 (nd)：1.74)

ガラスA (SiO₂—B₂O₃系ガラス。熱伝導率：約0.8 W/m・K、平均粒子径：3 μm、屈折率 (nd)：1.58)

AlN粒子 (熱伝導率：約180 W/m・K、平均粒子径：0.6 μm、屈折率 (nd) 2.2)

[0078] 上記で得られた混合物を金型に入れ、表1、2に記載の条件で焼成を行った後、常温まで徐冷した。これにより、混合物の焼結体からなる波長変換部材を作製した。

[0079] 得られた波長変換部材について、以下の方法で焼成体密度、相対密度、熱伝導率、量子効率、変換効率が基準変換効率の95%となる励起光強度を評

価した。結果を表 1、2 に示す。

[0080] 相対密度は、見かけ密度／真密度×100(%)で算出した。見かけ密度は焼成体密度を採用した。焼成体密度はアルキメデス法により測定した。真密度は、構成要素(無機蛍光体、無機粒子)の密度と体積%を掛け合わせたものを足し合わせたのち、100で除した値とした。具体的には下記式により算出した。

[0081] 真密度 = { (無機蛍光体の密度) × (無機蛍光体の体積%) + (無機粒子の密度) × (無機粒子の体積%) } / 100

[0082] 熱伝導率は下記式により算出した。熱拡散率はレーザーフラッシュ装置(NETZSCH社製)を用いて、フラッシュ法により25℃における値を測定した。また、比熱は示差走査熱量計熱量計(リガク社製)を用いて、25℃における値を測定した。

[0083] 熱伝導率 = 焼成体密度 × 熱拡散率 × 比熱

[0084] 量子効率(絶対PL量子収率)装置(浜松ホトニクス社製)及び下記式を用いて算出した。

[0085] 量子効率 = { (蛍光としてサンプルから放出されたフォトン数) / (サンプルにより吸収されたフォトン数) } × 100 (%)

[0086] 得られた波長変換部材に対して、励起光源の出力を上げながら励起光を照射し、変換効率が基準変換効率の95%まで低下する励起光源出力を測定した。ここで、基準変換効率は、励起光源出力が0.1Wのときの変換効率とした。具体的には以下のように測定した。はじめに、作製した波長変換部材を5mm×5mm×0.2mmのサイズに加工し、表面を鏡面研磨することにより、測定試料を得た。次に、測定試料を1mmφの貫通孔の空いた2枚のアルミ板で挟み機械固定し、一方の主面は青色LED光源(中心波長450nm)側に、もう一方の主面は積分球側に向けた。次に、青色LED光源から測定試料の一方の面に対し励起光を照射した。測定試料を透過した光を集光することにより、分光器(浜松ホトニクス社製)にて光束値を測定した。なお、変換効率は下記式を用いて算出した。

[0087] 変換効率＝（光束値（l m）／励起光源出力（w））×１００

[0088] 実施例であるN o. ４～１０、１２～１７、１９は、相対密度が９０％以上、熱伝導率が１０W／m・K以上、量子効率が５０％以上となった。また、変換効率が基準変換効率の９５％となる励起光源出力が２．６６W以上と高かった。一方、比較例であるN o. １～３、１０、１８は、変換効率が基準変換効率の９５％となる励起光源出力が２．４８W以下と低かった。

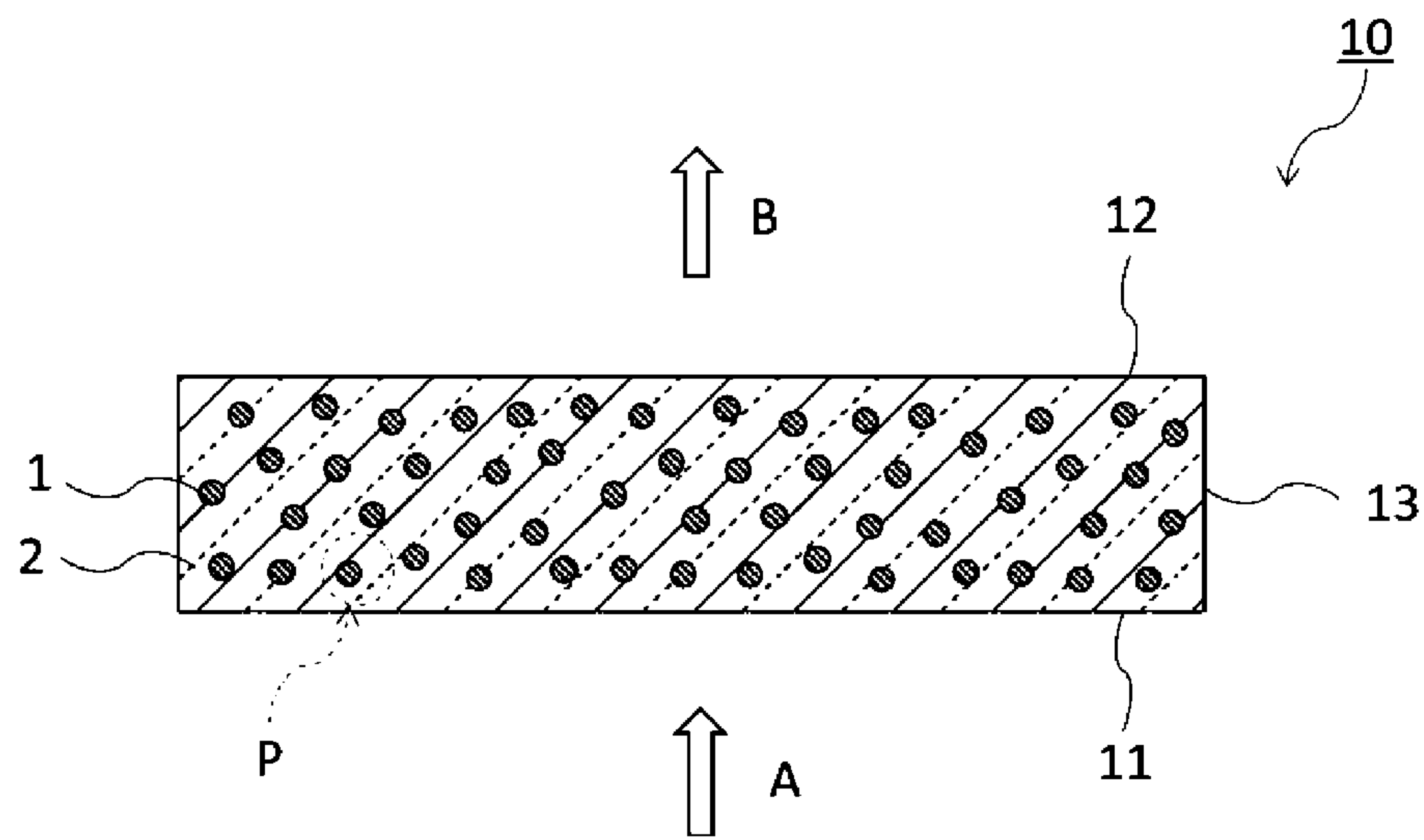
符号の説明

- [0089]
- １ 無機蛍光体
 - ２ マトリクス
 - ３ 無機粒子
 - ５、５H 基板
 - ６ 接着層
 - ８ 反射基板
 - ７ 励起光源
 - １０ 波長変換部材
 - １１ 第１の主面
 - １２ 第２の主面
 - １３ 側面
 - ２０、２１、３０ 発光素子
 - ５０ 発光装置
 - A 励起光
 - B 合成光

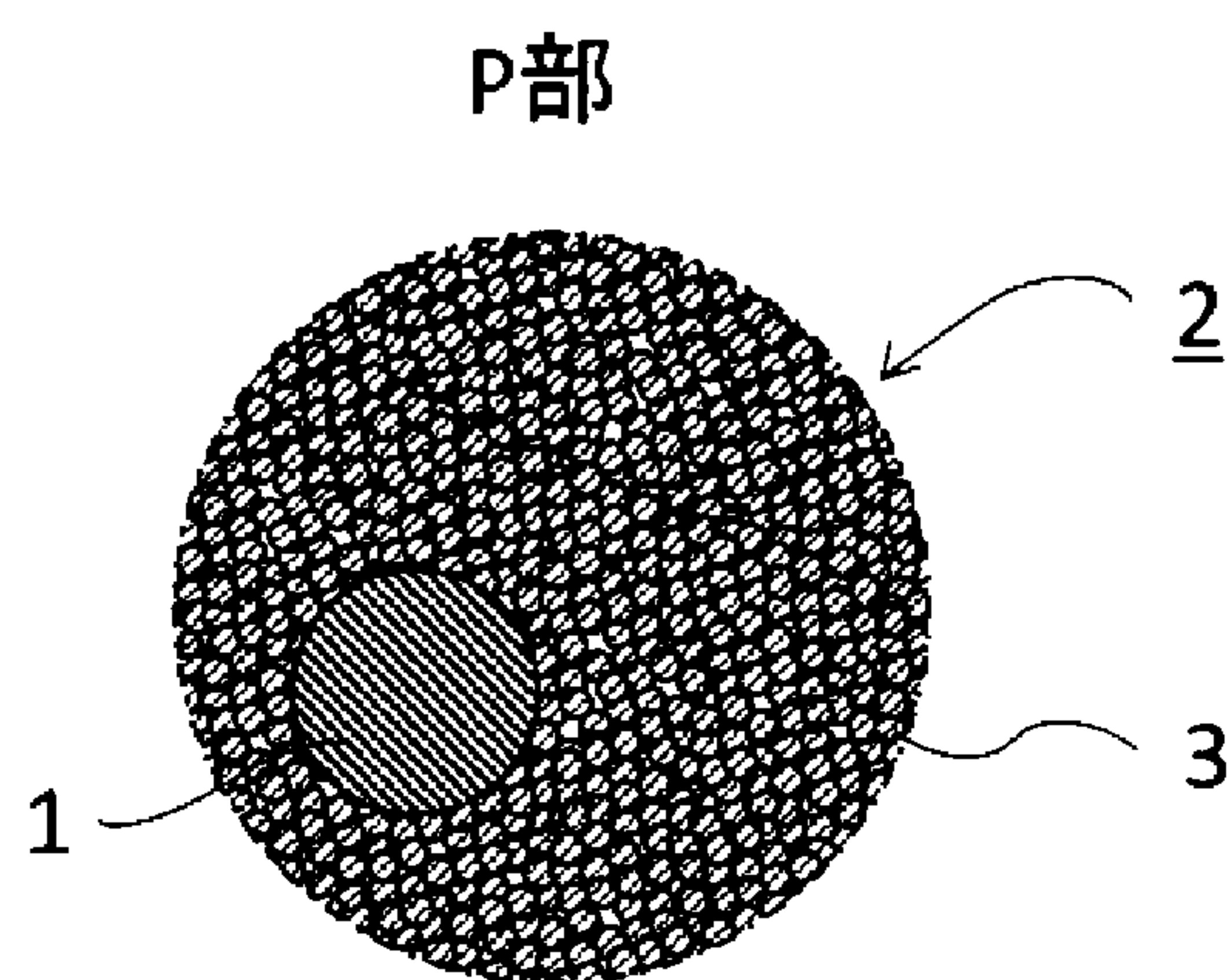
請求の範囲

- [請求項1] マトリクスと、前記マトリクス中に含まれる無機蛍光体とを備える波長変換部材であって、
- 前記波長変換部材は、相対密度が90%以上、熱伝導率が10W/m・K以上、かつ量子効率が50%以上である、波長変換部材。
- [請求項2] 前記無機蛍光体が、酸化物蛍光体、酸窒化物蛍光体及び窒化物蛍光体から選択される少なくとも1種である、請求項1に記載の波長変換部材。
- [請求項3] 前記無機蛍光体が、YAG、LuAG、SiAlON及びCASNから選択される少なくとも1種である、請求項2に記載の波長変換部材。
- [請求項4] 前記無機蛍光体の平均粒子径が0.1～25μmである、請求項1～3のいずれか一項に記載の波長変換部材。
- [請求項5] 前記マトリクスが、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、酸化亜鉛、酸化イットリウム、酸窒化アルミニウム、窒化アルミニウム及び窒化ホウ素から選択される少なくとも1種である、請求項1～4のいずれか一項に記載の波長変換部材。
- [請求項6] 前記マトリクスが酸化マグネシウムである、請求項5に記載の波長変換部材。
- [請求項7] 前記マトリクスが窒化アルミニウムである、請求項5に記載の波長変換部材。
- [請求項8] 前記無機蛍光体と無機粒子とを含む混合物の焼結体からなる、請求項1～7のいずれか一項に記載の波長変換部材。
- [請求項9] 請求項1～8のいずれか1項に記載の波長変換部材と、前記波長変換部材の主面上に配置された基板とを備える、発光素子。
- [請求項10] 請求項1～8のいずれか1項に記載の波長変換部材と、励起光源とを備える、発光装置。
- [請求項11] 前記励起光源がLDである、請求項10に記載の発光装置。

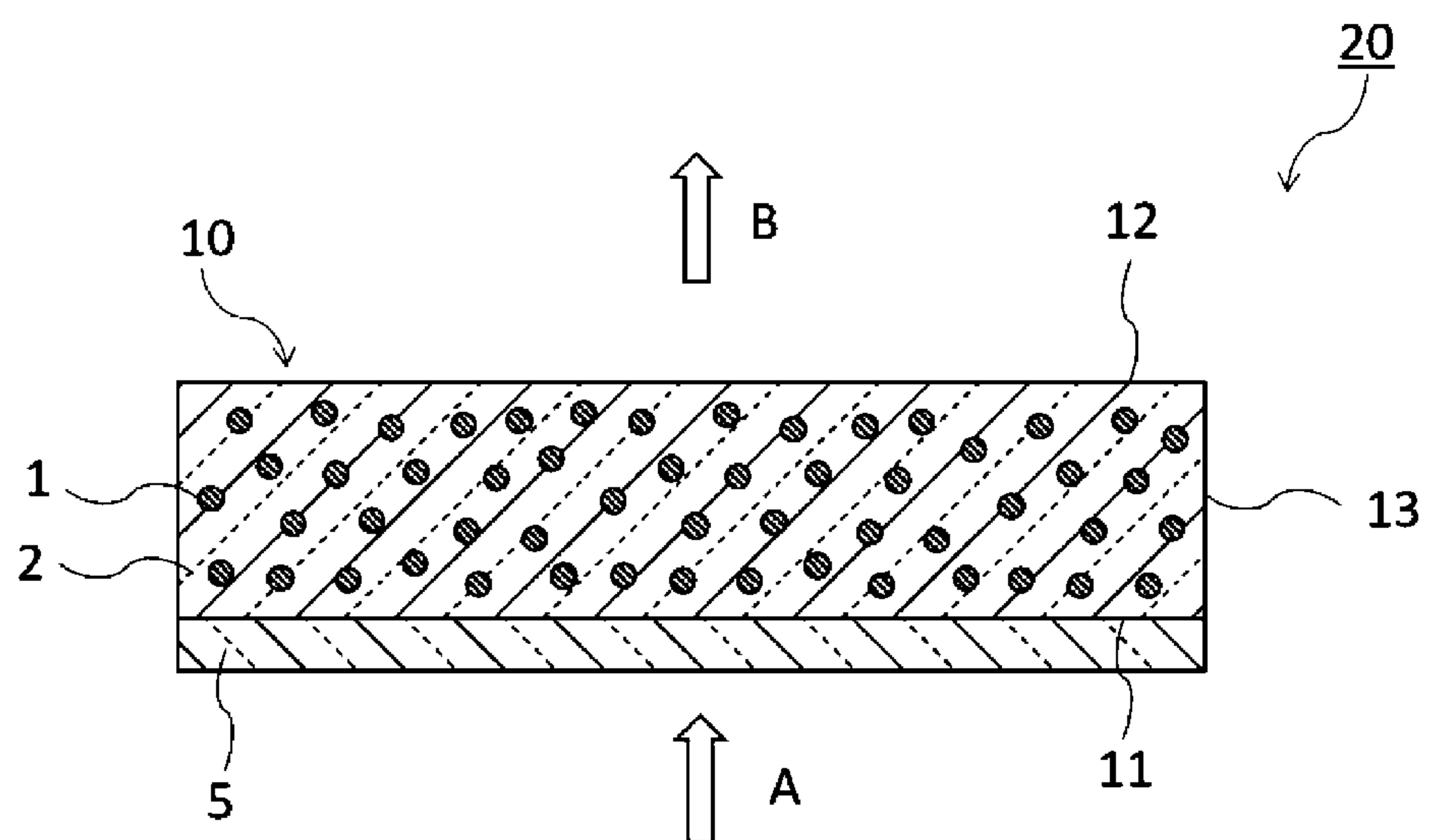
[図1]



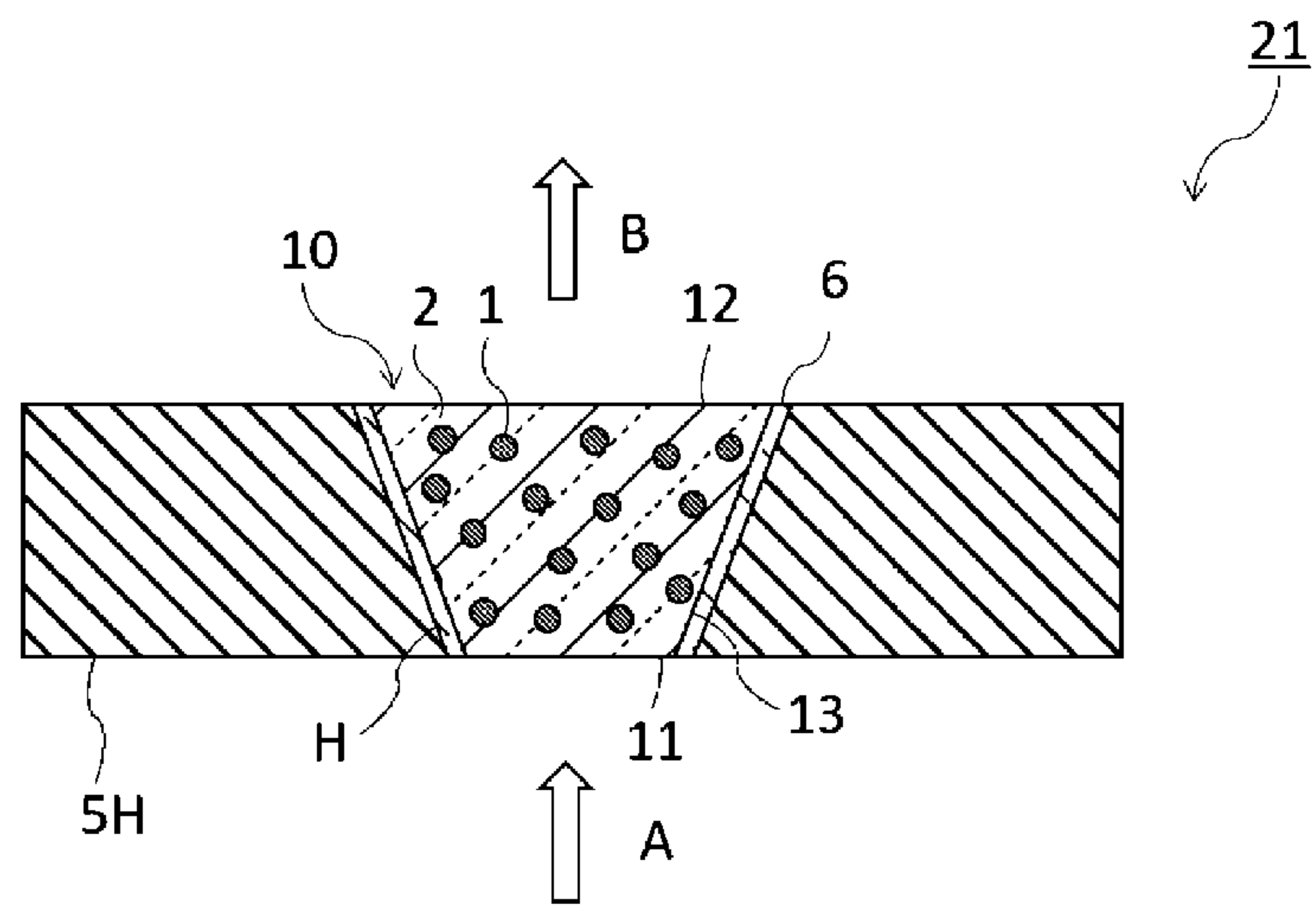
[図2]



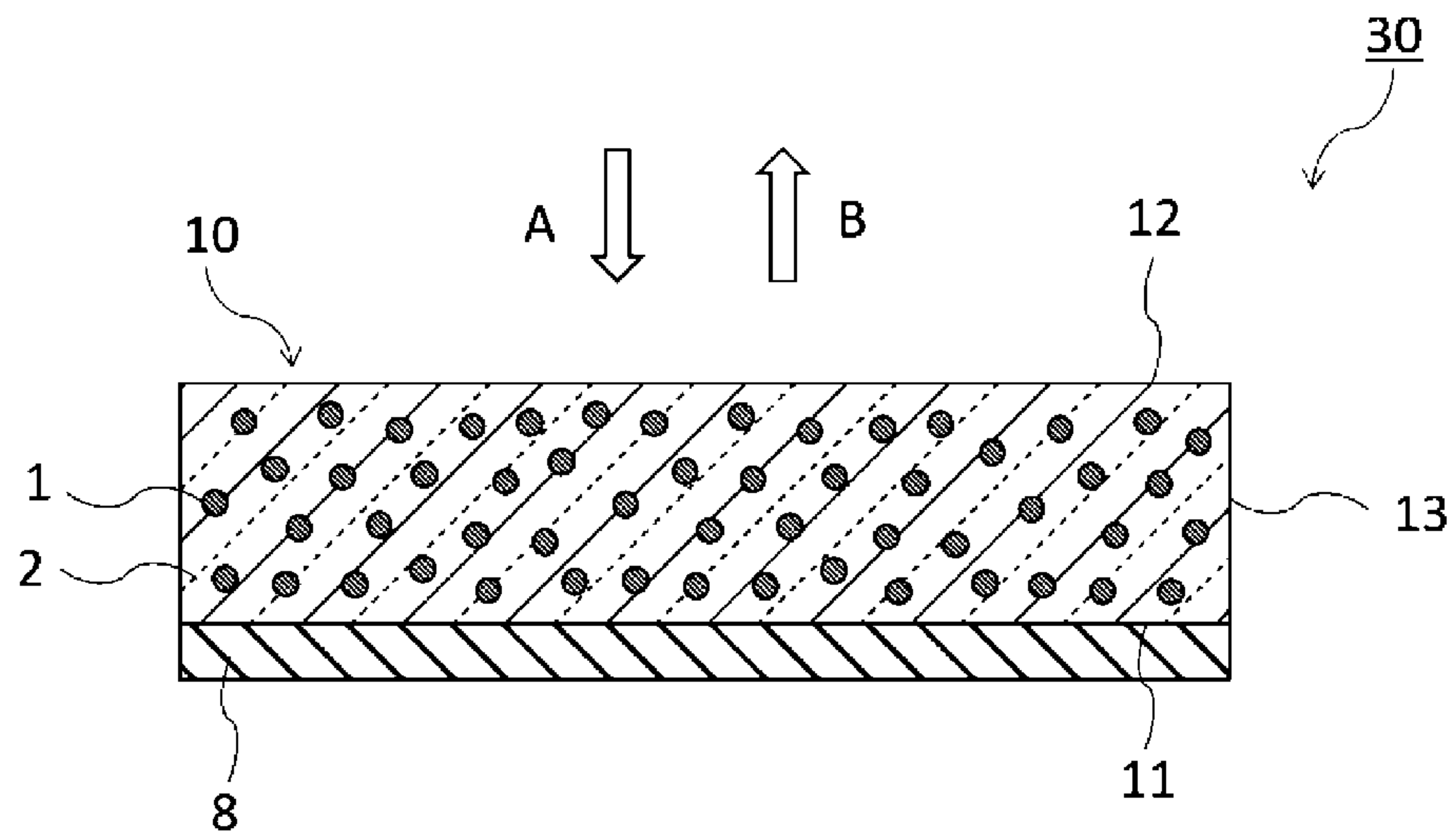
[図3]



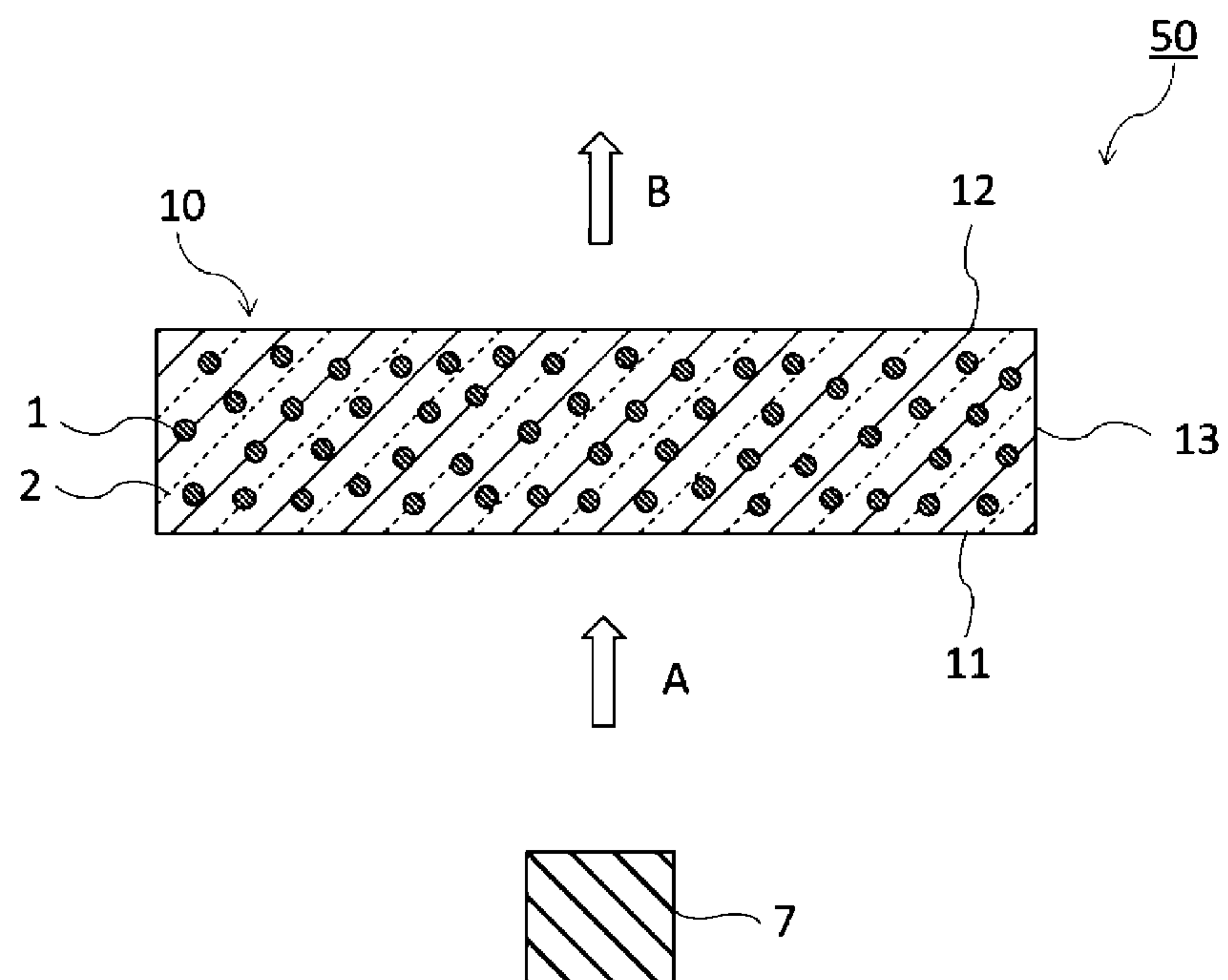
[図4]



[図5]



[図6]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2020/047850

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

G02B 5/20 (2006.01) i

FI: G02B5/20

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

G02B5/20

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 1971-2021

Registered utility model specifications of Japan 1996-2021

Published registered utility model applications of Japan 1994-2021

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 2016-204563 A (TAIHEIYO CEMENT CORP.) 08 December 2016 (2016-12-08) paragraphs [0002]- [0003], [0024]-[0042], fig. 1	1-5, 8-11 6-7, 11
X Y	JP 2016-204561 A (TAIHEIYO CEMENT CORP.) 08 December 2016 (2016-12-08) paragraphs [0002]- [0003], [0031]-[0047], fig. 1-2	1-5, 8-11 6-7, 11
X Y	JP 2012-211229 A (COVALENT MATERIALS CORP.) 01 November 2012 (2012-11-01) paragraphs [0024]- [0039]	1-5, 7-10 6, 11
Y	WO 2019/018299 A1 (PANASONIC IP MANAGEMENT CO., LTD.) 25 April 2019 (2019-04-25) paragraphs [0002]-[0003], [0022], [0031]-[0035]	6-7, 11
Y	JP 2018-180211 A (NIPPON ELECTRIC GLASS CO., LTD.) 15 November 2018 (2018-11-15) paragraphs [0001]- [0020]	6, 11



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
29 January 2021 (29.01.2021)Date of mailing of the international search report
09 February 2021 (09.02.2021)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/JP2020/047850

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2012-190555 A (SHARP CORP.) 04 October 2012 (2012-10-04) claims 1-13	7, 11

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2020/047850

Patent Documents referred in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
JP 2016-204563 A	08 Dec. 2016	(Family: none)	
JP 2016-204561 A	08 Dec. 2016	(Family: none)	
JP 2012-211229 A	01 Nov. 2012	(Family: none)	
WO 2019/078299 A1	25 Apr. 2019	(Family: none)	
JP 2018-180271 A	15 Nov. 2018	WO 2018/189997 A1 paragraphs [0001]-[0020] CN 108735877 A CN 208507721 U TW 201842154 A	
JP 2012-190555 A	04 Oct. 2012	US 2013/0335989 A1 claims 1-20 WO 2012/121343 A1	

国際調査報告		国際出願番号 PCT/JP2020/047850
A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C）） G02B 5/20(2006.01)i FI: G02B5/20		
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（I P C）） G02B5/20		
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 1 9 2 2 - 1 9 9 6 年 日本国公開実用新案公報 1 9 7 1 - 2 0 2 1 年 日本国実用新案登録公報 1 9 9 6 - 2 0 2 1 年 日本国登録実用新案公報 1 9 9 4 - 2 0 2 1 年		
国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の 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 Y	JP 2016-204563 A（太平洋セメント株式会社）08.12.2016（2016 - 12 - 08） 段落[0002]-[0003]，[0024]-[0042]，図 1	1-5，8-11 6-7，11
X Y	JP 2016-204561 A（太平洋セメント株式会社）08.12.2016（2016 - 12 - 08） 段落[0002]-[0003]，[0031]-[0047]，図 1 - 2	1-5，8-11 6-7，11
X Y	JP 2012-211229 A（コバレントマテリアル株式会社）01.11.2012（2012 - 11 - 01） 段落[0024]-[0039]	1-5，7-10 6，11
Y	W0 2019/078299 A1（パナソニック I P マネジメント株式会社）25.04.2019（2019 - 04 - 25） 段落[0002]-[0003]，[0022]，[0031]-[0035]	6-7，11
Y	JP 2018-180271 A（日本電気硝子株式会社）15.11.2018（2018 - 11 - 15） 段落[0001]-[0020]	6，11
☒ C 欄の続きにも文献が列挙されている。 ☒ パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー “A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの “E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの “L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） “O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 “P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献 “T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、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 29.01.2021		国際調査報告の発送日 09.02.2021
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目 4 番 3 号		権限のある職員（特許庁審査官） 酒井 康博 20 1761 電話番号 03-3581-1101 内線 3271

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP	2016-204563	A	08.12.2016	(ファミリーなし)	
JP	2016-204561	A	08.12.2016	(ファミリーなし)	
JP	2012-211229	A	01.11.2012	(ファミリーなし)	
WO	2019/078299	A1	25.04.2019	(ファミリーなし)	
JP	2018-180271	A	15.11.2018	WO 2018/189997 A1	
				段落[0001]-[0020]	
				CN 108735877 A	
				CN 208507721 U	
				TW 201842154 A	
JP	2012-190555	A	04.10.2012	US 2013/0335989 A1	
				Claims 1-20	
				WO 2012/121343 A1	