

(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 2016/117561 A1

- (51) 国際特許分類:
C09K 11/61 (2006.01) C09K 11/67 (2006.01)
C09K 11/08 (2006.01) H01L 33/50 (2010.01)
C09K 11/66 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2016/051443
- (22) 国際出願日: 2016年1月19日(19.01.2016)
- (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 2015-008208 2015年1月20日(20.01.2015) JP
- (71) 出願人: デンカ株式会社(DENKA COMPANY LIMITED) [JP/JP]; 〒1038338 東京都中央区日本橋室町二丁目1番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 近藤 良祐(KONDO, Ryosuke); 〒8368510 福岡県大牟田市新開町1番地 デンカ株式会社 大牟田工場内 Fukuoka (JP). 市川 真義(ICHIKAWA, Masayoshi); 〒8368510 福岡県大牟田市新開町1番地 デンカ株式会社 大牟田工場内 Fukuoka (JP). 江本 秀幸(EMOTO, Hideyuki); 〒8368510 福岡県大牟田市新開町1番地 デンカ株式会社 大牟田工場内 Fukuoka (JP). 田中 基(TANAKA, Motoi); 〒1948560 東京都町田市旭町3-5-1 デンカ株式会社 デンカイノベーションセンター内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: アクシス国際特許業務法人(AXIS PATENT INTERNATIONAL); 〒1050004 東京都港区新橋二丁目6番2号 新橋アイマークビル Tokyo (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, JP, 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), ユーロピア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ユーロッパ (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))

(54) Title: PHOSPHOR AND LIGHT-EMITTING DEVICE

(54) 発明の名称: 蛍光体及び発光装置

(57) Abstract: Provided is a phosphor that emits red light, is represented by the general formula, $A_2MF_6:Mn$, and exhibits little reduction in intensity even when exposed to a high-temperature, high-humidity atmosphere over a long period of time. Also provided is a light-emitting device using said phosphor. The present invention is a phosphor in which the main crystal phase thereof is represented by the general formula, $A_2MF_6:Mn$. The element A is an alkali metal element including at least K, and the element M is one or more tetravalent elements selected from the group consisting of Si, Ge, Sn, Ti, Zr, and Hf. The phosphor has a coating layer on the surface thereof. The coating layer is a hydrophobic organic substance having a hydrophobicity of 10% or more.

(57) 要約: 高温高湿度雰囲気中に長時間暴露しても発光強度の低下が少ない一般式 $A_2MF_6:Mn$ で表される赤色発光の蛍光体及びこの蛍光体を用いた発光装置を提供する。本発明は、蛍光体の主結晶相が一般式 $A_2MF_6:Mn$ で示される蛍光体である。元素Aは少なくともKを含有するアルカリ金属元素であり、元素MはSi、Ge、Sn、Ti、Zr及びHfからなる群から選ばれる1種以上の4価元素である。蛍光体の表面にコーティング層を有する。コーティング層が疎水化度10%以上の疎水性を備えた有機物である。

WO 2016/117561 A1

明 細 書

発明の名称： 蛍光体及び発光装置

技術分野

[0001] 本発明は、青色光で励起された際に赤色発光する蛍光体及びこの蛍光体を有する発光装置に関する。

背景技術

[0002] 特許文献 1 に一般式 $A_2MF_6 : Mn^{4+}$ で表される赤色発光の蛍光体が開示されている。

[0003] 当該蛍光体は、高温高湿の雰囲気中に長時間暴露すると、蛍光体自体の発光強度が低下するという課題があった。この蛍光体の発光強度の低下は、当該蛍光体を用いる LED の輝度の低下と発光色の変化を生じさせるという課題が原因であった。

[0004] この課題を解決するために、特許文献 2 に示すような表面コーティングが考えられる。

[0005] しかしながら、一般式 $A_2MF_6 : Mn$ の蛍光体では、フッ化水素や水で蛍光体自体が溶けてしまうので、単なる表面コーティング、水を用いた表面処理をすることができない。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献 1：特表 2009-528429 号公報

特許文献 2：特開 2002-322473 号公報

非特許文献 1：A. G. Paulusz, ジャーナル オブ エレクトロケミカル ソサイエティ (Journal of The Electrochemical Society), 1973 年、第 120 巻、第 7 号、p. 942-947

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] 本発明の目的は、高温高湿度雰囲気中に長時間暴露しても発光強度の低下が少ない一般式 $A_2MF_6 : Mn$ で表される赤色発光の蛍光体及びこの蛍光体を用いた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

[0008] 本発明は、蛍光体の主結晶相が一般式 $A_2MF_6 : Mn$ で示される蛍光体であり、元素Aは少なくともKを含有するアルカリ金属元素であり、元素MはSi、Ge、Sn、Ti、Zr及びHfからなる群から選ばれる1種以上の4価元素であり、当該蛍光体の表面にコーティング層を有し、当該コーティング層が疎水化度10%以上の疎水性を備えた有機物である蛍光体である。

[0009] 前記有機物は、脂肪酸が好ましい。

[0010] 前記脂肪酸は、長鎖脂肪酸が好ましい。

[0011] 本発明は、前記蛍光体と、発光素子を有する発光装置である。

発明を実施するための形態

[0012] 本発明は、蛍光体の主結晶相が一般式 $A_2MF_6 : Mn$ で示される蛍光体であり、元素Aは少なくともKを含有するアルカリ金属元素であり、元素MはSi、Ge、Sn、Ti、Zr及びHfからなる群から選ばれる1種以上の4価元素であり、当該蛍光体の表面にコーティング層を有し、当該コーティング層が疎水化度10%以上の疎水性を備えた有機物である蛍光体である。

[0013] 前記元素Aは、少なくともKを含有するアルカリ金属元素であり、具体的にはK単独、KとLi、KとNa、KとRb、KとCsがあり、好ましくはK単独である。

[0014] 前記元素Mは、Si、Ge、Sn、Ti、Zr及びHfから選ばれる1種以上の金属元素であり、具体的にはSi単独、Ge単独、SiとGe、SiとSn、SiとTiがあり、好ましくはSi単独である。

[0015] 前記Fはフッ素であり、前記Mnはマンガンである。

[0016] 本発明の蛍光体のコーティング層を形成する疎水性を備えた有機物は、蛍光体のコーティング層として用いた場合の蛍光体全体での疎水化度が10%以上、好ましくは30%以上、より好ましくは50%以上のものであり、具体

的には、脂肪酸である。疎水性を備える有機物をコーティング層とした蛍光体は、水に対する安定性が高くなり、高温高湿下の雰囲気にも暴露しても発光強度の低下が抑制できる。

[0017] 疎水化度は、次の方法によって測定した。

(1) 500 ml の三角フラスコに測定対象の蛍光体 0.2 g を秤量した。

(2) イオン交換水 50 ml を (1) に加え、スターラーにて攪拌した。

(3) 攪拌をしたままビュレットよりメタノールを滴下させ、蛍光体の全量がイオン交換水に懸濁された時の滴下量を測定した。

(4) 次式より疎水化度を求めた。

疎水化度 (%) = (メタノール滴下量 (ml)) × 100 / (メタノール滴下量 (ml) + イオン交換水量 (ml))

[0018] 前記脂肪酸としては、炭素数 2 から 4 の短鎖脂肪酸、炭素数 5 から 11 の中鎖脂肪酸、炭素数 12 以上の長鎖脂肪酸があり、長鎖脂肪酸が好ましく、具体的には、オレイン酸、ラウリン酸、ステアリン酸、ベヘン酸、ミリスチン酸、エルカ酸及びリノール酸がある。

[0019] 有機物の含有率は、蛍光体 100 質量%に対して 1.0 質量%以上 5.0 質量%以下が好ましい。有機物の量が少な過ぎると有機物を積層したことによる水に対する安定化効果が発揮され難くなる傾向にあり、有機物の量が多すぎると蛍光体表面近傍の樹脂の硬化が阻害され、経時変化によって蛍光体の色ずれを生じてしまう。

[0020] 蛍光体のコーティング層の膜厚は 0.02 μm 以上 0.5 μm 以下であることが好ましい。

[0021] 本発明は、上述の蛍光体と、発光素子を有する発光装置である。発光装置としては、照明装置、液晶パネルのバックライト、信号機、プロジェクターの光源がある。

[0022] 本発明の蛍光体を LED の発光面に搭載する場合、当該蛍光体を常温で流動性を有する熱硬化性樹脂に対して 30 質量%以上 50 質量%以下のいずれかの値で混合してから搭載する。当該熱硬化性樹脂としては、シリコーン樹脂

、具体的には東レ・ダウコーニング株式会社製 J C R 6 1 7 5 がある。

[0023] 本発明の蛍光体である $A_2M F_6 : Mn$ は、波長 4 2 0 n m 以上 4 8 0 n m 以下の範囲の L E D からの励起光を吸収し、6 0 0 n m より大きく 6 5 0 n m 以下の光を放出する。

実施例

[0024] <比較例 1>

本発明に係る蛍光体は、従来の蛍光体にコーティング層を積層させたものである。そのため、従来の蛍光体を比較例 1 とする。比較例 1 の蛍光体について説明する。

[0025] 比較例 1 の蛍光体は、 $K_2S i F_6 : Mn$ で示され、元素 A を K、M を S i とした蛍光体である。この蛍光体の製造方法について説明する。当該製造方法は、溶液調製工程、析出工程、洗浄工程及び分級工程で構成した。

[0026] 「溶液調製工程」

常温下で、容量 5 0 0 m l のテフロン（登録商標）製のビーカーに濃度 5 5 質量%フッ化水素酸（ステラケミファ株式会社製）1 0 0 m l を入れ、 $K_2S i F_6$ 粉末（森田化学株式会社製）3 g、及び次の製造工程で製造した粉末状の $K_2Mn F_6$ の 0. 5 g を溶解させ、溶液を調製した。

[0027] < $K_2Mn F_6$ の製造工程>

$K_2Mn F_6$ の製造工程は、非特許文献 1 に記載されている製造工程を採用した。具体的には次のとおりである。

[0028] 容量 1 リットルのテフロン（登録商標）製のビーカーに濃度 4 0 重量%フッ化水素酸 8 0 m l を入れ、 $K H F_2$ 粉末（和光純薬工業株式会社製、特級試薬）2 6 0 g 及び過マンガン酸カリウム粉末（和光純薬工業株式会社製、試薬 1 級）1 2 g を溶解させた。

[0029] このフッ化水素酸反応液をマグネティックスターラーで攪拌しながら、3 0 %過酸化水素水（特級試薬）8 m l を少しずつ滴下した。

[0030] 過酸化水素水の滴下量が一定量を超えると $K_2Mn F_6$ が析出し始め、反応液の色が紫色から変化し始めた。

[0031] 過酸化水素水を一定量滴下後、しばらく攪拌を続けた後、攪拌を止め、 K_2MnF_6 を沈殿させた。

[0032] K_2MnF_6 の沈殿後、上澄み液を除去し、メタノールを加え、攪拌・静置し、上澄み液を除去し、更にメタノールを加えるという操作を、液が中性になるまで繰り返した。

[0033] その後、濾過により、 K_2MnF_6 を回収し、更に乾燥を行い、メタノールを完全に蒸発除去し、 K_2MnF_6 を19 g得た。 K_2MnF_6 の形態は、粉末であった。

[0034] これらの操作は全て常温で行った。

[0035] 「析出工程」

溶液調整工程後の溶液に、水150 mlを入れた後、10分攪拌した。攪拌後、静置して固形分を沈殿させた。この固形分が蛍光体である。該溶液に水を加えることで、前記式のフッ化物蛍光体の飽和濃度が変化し、これにより蛍光体が析出する。

[0036] 「洗浄工程」

析出工程後の溶液の上澄み液を除去した後、20質量%のフッ化水素酸で洗浄を行い、さらにメタノールでの洗浄を行った。メタノールでの洗浄は、フッ化水素酸の残存分の除去を目的としたものである。

[0037] 洗浄後、濾過により固形部を分離回収した。分離回収後、洗浄で用いたメタノールの残存分を乾燥により除去した。

[0038] 「分級工程」

分級工程は、蛍光体の粒度のばらつきを抑制し、一定範囲内に調整するものであり、具体的には、所定の大きさの開口部のある篩を通過したもの、なかったものに分ける工程である。目開き75 μm のナイロン製篩を用い、この篩を通過したものだけを分級し、最終的に $K_2SiF_6:Mn$ の蛍光体1.3 gを得た。この蛍光体を比較例1とする。

実施例 1

[0039] 実施例1の蛍光体は、比較例1の蛍光体の表面にコーティング層の素材とし

てのオレイン酸を厚さ 0.04 μm 積層したものである。オレイン酸は炭素数 18 の長鎖脂肪酸である。

[0040] コーティング層の積層は、比較例 1 の蛍光体とオレイン酸（関東化学株式会社製、鹿 1 級）を 10 分間混合することによって行った。混合の際の混合比は、比較例 1 の蛍光体 100 質量%、オレイン酸 1.0 質量%とした。混合後の蛍光体を、目開き 75 μm の篩を用いて分級し、通過したものだけにした。オレイン酸の厚みは、混合の際の質量%の大小で調整できる。

[0041] 実施例及び比較例 1 の蛍光体の評価を表 1 に記載する。

[0042] [表1]

				実施例							比較例 1
				1	2	3	4	5	6	7	
コーティング層 の膜厚 (μm)	オレイン酸			0.04	0.12	0.20	—	—	—	—	—
	ラウリン酸			—	—	—	0.04	—	—	—	—
	ステアリン酸			—	—	—	—	0.04	—	—	—
	ベヘン酸			—	—	—	—	—	0.04	—	—
	エルカ酸			—	—	—	—	—	—	0.04	—
評価	疎水化度(%)			75	86	91	75	78	75	82	0
	内部量子効率(%)			81.2	79.7	78.6	78.2	77.4	78.8	75.5	79.5
	外部量子効率(%)			61.3	59.5	59.2	59.0	57.5	58.9	58.6	60.2
	色度CIE _x			0.691	0.692	0.693	0.690	0.692	0.691	0.689	0.689
	色度CIE _y			0.307	0.307	0.306	0.307	0.306	0.305	0.308	0.308
	外部量子効率 保持率 (%)	駆動 時間 (hr)	0	100	100	100	100	100	100	100	100
			25	95.8	97.2	96.6	94.2	95.4	96.3	99.0	79.1

[0043] 表 1 の「コーティング層の膜厚」は、実施例の蛍光体のコーティング層として用いた「疎水性を備えた有機物」とその膜厚値であり、その単位は μm である。比較例 1 の場合は、コーティング層を設けていないので値がない。

[0044] オレイン酸炭素数 18 の長鎖脂肪酸であり、ラウリン酸は炭素数 12 の長鎖脂肪酸であり、ステアリン酸は炭素数 18 の長鎖脂肪酸であり、ベヘン酸及びエルカ酸は炭素数 22 の長鎖脂肪酸である。

[0045] コーティング層の膜厚は次式より算出した。

$$\text{膜厚}(\mu\text{m}) = (\text{コーティング層の体積}(\text{m}^3) / \text{蛍光体の表面積}(\text{m}^2)) \times 10^6$$

$$\text{コーティング層の体積}(\text{m}^3) = \text{コーティング層の質量}(\text{g}) / (\text{コーティン}$$

グ層の密度 (g / cm^3) $\times 10^6$)

蛍光体の表面積 (m^2) = 蛍光体の比表面積 (m^2 / g) $\times$ 蛍光体全体の質量 (g)

[0046] 表1の評価において、疎水化度は上述の記載と同じであり、他は、次のように行った。

[0047] <内部量子効率及び外部量子効率>

内部量子効率及び外部量子効率は、分光光度計（大塚電子株式会社製MCPD-7000）を用いて測定した。励起光として波長455nmの青色光を用いた。

[0048] 分光光度計の試料部に測定対象の蛍光体を充填し、反射率99%の標準反射板（Labsphere社製スペクトラロン）をセットし、励起光のスペクトルを測定し、450nmから465nmの波長範囲のスペクトルから Q_{ex} （励起光フォトン数）を算出した。

[0049] 試料部に測定対象の蛍光体をセットし、得られたスペクトルデータから Q_{ref} （励起反射光フォトン数）及び Q_{em} （蛍光フォトン数）を算出した。 Q_{ref} は、 Q_{ex} と同じ波長範囲で算出し、 Q_{em} は465nmから800nmの波長範囲で算出した。

[0050] これらフォトン数から内部量子効率及び外部量子効率を次の計算式で算出した。

内部量子効率 ($= Q_{em} / (Q_{ex} - Q_{ref}) \times 100$)

外部量子効率 ($= Q_{em} / Q_{ex} \times 100$)

[0051] <色度 CIE_x 及び色度 CIE_y >

分光光度計（大塚電子株式会社製MCPD-7000）を用いて測定した。励起光として波長455nmの青色光を用いた。

[0052] 分光光度計の試料部に測定対象の蛍光体を充填し、表面を平滑にして、積分球を取り付けた。この積分球に、発光光源としてのXeランプからの光から波長455nmの青色光に分光した単色光を、光ファイバーを用いて導入した。この単色光を蛍光体に照射し測定した。測定結果のうちの465nmか

ら780nmの波長範囲のデータから、JIS Z 8724に準じJIS Z 8701で規定されるXYZ表色系における色度座標CIE xとCIE yを算出した。

[0053] <外部量子効率保持率>

外部量子効率の測定は分光光度計（大塚電子株式会社製MCPD-7000）を用いた。

[0054] 表1の外部量子効率保持率は、測定対象の蛍光体を、温度60℃、湿度90%の環境下で25時間放置した後に、その蛍光体の外部量子効率を測定した結果であり、25時間経過後の外部量子効率を「暴露前の外部量子効率」で割った値に100を乗じた値である。外部量子効率保持率合格値は85%である。

[0055] 実施例1の蛍光体は、疎水化度75%の蛍光体であった。実施例1における内部量子効率、外部量子効率、色度CIE x、色度CIE y及び相対ピーク強度は、比較例1とほぼ同じ値であった。実施例1における外部量子効率保持率は比較例1が79.1%に対して95.8%と高い値を示した。

[0056] <実施例2乃至8>

実施例2乃至8の蛍光体は、実施例1の蛍光体のコーティング層を、表1に記載の素材、膜厚に変更した以外、実施例1と同様に製造した蛍光体である。

[0057] 実施例2、3の蛍光体は、実施例1でのコーティング層の積層工程に用いたオレイン酸1.0質量%を3.0質量%、5.0質量%とした以外、実施例1と同一条件でオレイン酸を積層した蛍光体であり、実施例1の蛍光体に対して膜厚のみ0.12μm、0.20μmに変更した蛍光体である。

[0058] 実施例4の蛍光体は、実施例1でのコーティング層の積層工程に用いたオレイン酸1.0質量%を1.0質量%の「エタノールで希釈したラウリン酸（関東化学株式会社製）」とした以外、実施例1と同一条件でコーティング層を積層した蛍光体である。ラウリン酸は炭素数12の長鎖脂肪酸である。

[0059] 実施例5の蛍光体は、実施例1でのコーティング層の積層工程に用いたオレ

イン酸 1.0 質量%を 1.0 質量%の「エタノールで希釈したステアリン酸（東京化成工業株式会社製）」とした以外、実施例 1 と同一条件でコーティング層を積層した蛍光体である。ステアリン酸は炭素数 18 の長鎖脂肪酸である。

[0060] 実施例 6 の蛍光体は、実施例 1 でのコーティング層の積層工程に用いたオレイン酸 1.0 質量%を 1.0 質量%の「エタノールで希釈したベヘン酸（関東化学株式会社製）」とした以外、実施例 1 と同一条件でコーティング層を積層した蛍光体である。ベヘン酸は炭素数 22 の長鎖脂肪酸である。

[0061] 実施例 7 の蛍光体は、実施例 1 でのコーティング層の積層工程に用いたオレイン酸 1.0 質量%を 1.0 質量%のエルカ酸（関東化学株式会社製）とした以外、実施例 1 と同一条件でコーティング層を積層した蛍光体である。エルカ酸は炭素数 22 の長鎖脂肪酸である。

[0062] 表 1 には示さなかったが、実施例 1 の蛍光体を LED の発光表面に搭載した発光装置の実施例 8 を作成した。実施例 8 の発光装置は、具体的には白色発光照明装置とした。実施例 8 は実施例 1 の蛍光体を用いているので、経時的変化の少ない発光装置であった。

請求の範囲

- [請求項1] 蛍光体の主結晶相が一般式 $A_2MF_6:Mn$ で示される蛍光体であり、元素Aは少なくともKを含有するアルカリ金属元素であり、元素MはSi、Ge、Sn、Ti、Zr及びHfからなる群から選ばれる1種以上の4価元素であり、当該蛍光体の表面にコーティング層を有し、当該コーティング層が疎水化度10%以上の疎水性を備えた有機物である蛍光体。
- [請求項2] 前記有機物が脂肪酸である請求項1記載の蛍光体。
- [請求項3] 前記脂肪酸が長鎖脂肪酸である請求項2記載の蛍光体。
- [請求項4] 請求項1乃至3のいずれか一項に記載の蛍光体と発光素子を有する発光装置。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/051443

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C09K11/61(2006.01)i, C09K11/08(2006.01)i, C09K11/66(2006.01)i, C09K11/67(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)

C09K11/61, C09K11/08, C09K11/66, C09K11/67, H01L33/50

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)

Japio-GPG/FX, JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2014-141684 A (Shin-Etsu Chemical Co., Ltd.), 07 August 2014 (07.08.2014), claims; paragraph [0008]; examples & US 2015/0329770 A1 claims; examples; paragraph [0011] & WO 2014/103932 A1 & EP 2774966 A1 & CN 104024374 A & TW 201430100 A & KR 10-2015-0100487 A	1, 4
A	JP 2010-102972 A (Hitachi Plasma Display Ltd.), 06 May 2010 (06.05.2010), (Family: none)	1-4
A	JP 2002-322473 A (Toshiba Corp.), 08 November 2002 (08.11.2002), (Family: none)	1-4

☒ 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
30 March 2016 (30.03.16)

Date of mailing of the international search report
19 April 2016 (19.04.16)

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/JP2016/051443

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 2013-505346 A (Nanoco Technologies Ltd.), 14 February 2013 (14.02.2013), & US 2011/0068321 A1 & US 2015/0048311 A1 & GB 916699 D0 & WO 2011/036446 A1 & EP 2481100 A1 & CA 2774838 A & IL 218709 A & AU 2010299632 A & CN 102648536 A & KR 10-2012-0062902 A & TW 201141985 A & KR 10-2015-0039127 A	1-4
A	WO 2014/196319 A1 (Konica Minolta, Inc.), 11 December 2014 (11.12.2014), & CN 105264042 A & TW 201505960 A	1-4

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. C09K11/61(2006.01)i, C09K11/08(2006.01)i, C09K11/66(2006.01)i, C09K11/67(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 (I P C))

Int.Cl. C09K11/61, C09K11/08, C09K11/66, C09K11/67, 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	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 1 6 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 6 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 6 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)

Japio-GPG/FX, JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII)

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	JP 2014-141684 A (信越化学工業株式会社) 2014.08.07, 【特許請求の範囲】、【0008】、実施例等 & US 2015/0329770 A1 Claims, Examples, [0011] & WO 2014/103932 A1 & EP 2774966 A1 & CN 104024374 A & TW 201430100 A & KR 10-2015-0100487 A	1, 4
A	JP 2010-102972 A (日立プラズマディスプレイ株式会社) 2010.05.06, (ファミリーなし)	1-4
A	JP 2002-322473 A (株式会社東芝) 2002.11.08, (ファミリーなし)	1-4

☑ 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

3 0 . 0 3 . 2 0 1 6

国際調査報告の発送日

1 9 . 0 4 . 2 0 1 6

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / J P)

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

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)

古妻 泰一

4 V

3 4 0 8

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 8 3

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2013-505346 A (ナノコ テクノロジーズ リミテッド) 2013.02.14, & US 2011/0068321 A1 & US 2015/0048311 A1 & GB 916699 D0 & WO 2011/036446 A1 & EP 2481100 A1 & CA 2774838 A & IL 218709 A & AU 2010299632 A & CN 102648536 A & KR 10-2012-0062902 A & TW 201141985 A & KR 10-2015-0039127 A	1-4
A	WO 2014/196319 A1 (コニカミノルタ株式会社) 2014.12.11, & CN 105264042 A & TW 201505960 A	1-4