

(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
2022年10月20日(20.10.2022)



(10) 国際公開番号

WO 2022/220171 A1

(51) 国際特許分類:

C09K 11/00 (2006.01) H01L 33/50 (2010.01)
C09K 11/64 (2006.01) G02B 5/20 (2006.01)
G03B 21/14 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2022/017050

(22) 国際出願日: 2022年4月4日(04.04.2022)

(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 2021-067670 2021年4月13日(13.04.2021) JP

(71) 出願人: 住友化学株式会社
(SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LIMITED) [JP/JP]; 〒1036020 東京都中央区日本橋
二丁目7番1号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 神波正樹 (KANNAMI, Masaki);
〒3003294 茨城県つくば市北原6番住友
化学株式会社内 Ibaraki (JP). 内藤翔太
(NAITO, Shota); 〒7928521 愛媛県新居浜市惣
開町5番1号住友化学株式会社内 Ehime
(JP). 岩▲崎▼健太郎 (IWASAKI, Kentaro);
〒7928521 愛媛県新居浜市惣開町5番1号
住友化学株式会社内 Ehime (JP).

(74) 代理人: 中山 亨, 外 (NAKAYAMA, Tohru et al.);
〒5418550 大阪府大阪市中央区北浜四丁目5番
33号住友化学株式会社内 Osaka (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, IT, JM, 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,
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,
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))

(54) Title: PHOSPHOR

(54) 発明の名称: 蛍光体

(57) Abstract: A phosphor which is represented by formula (1) $M_xM_gA_lO_zN_w$ (in formula (1), M represents at least one metal element that is selected from the group consisting of manganese, strontium, cerium, praseodymium, neodymium, samarium, europium, gadolinium, terbium, dysprosium, thulium and ytterbium; and if $(x + a + y + z + w) = 1$, x satisfies $0.00001 \leq x \leq 0.2$, a satisfies $0 \leq a \leq 0.4$, y satisfies $0.01 \leq y \leq 0.9$, z satisfies $0.1 \leq z \leq 0.98$ and w satisfies $0 < w \leq 0.5$). With respect to this phosphor, the half-value width of the XRD peak at $2\theta = 36.8 \pm 0.5^\circ$ is more than 0.093 but less than 0.134.

(57) 要約: 式 $M_xM_gA_lO_zN_w$ (1) [式(1)中、Mは、マンガン、ストロンチウム、セリウム、プラセオジウム、ネオジウム、サマリウム、ユウロピウム、ガドリニウム、テルビウム、ジスプロシウム、ツリウム及びイッテルビウムからなる群から選択される少なくとも1つの金属元素を表し、 $x + a + y + z + w = 1$ としたとき、xは0.00001 ≤ x ≤ 0.2であり、aは0 ≤ a ≤ 0.4であり、yは0.01 ≤ y ≤ 0.9であり、zは0.1 ≤ z ≤ 0.98であり、wは0 < w ≤ 0.5である。]で表され、 $2\theta = 36.8 \pm 0.5^\circ$ におけるXRDピークの半値幅が0.093より大きく0.134未満である蛍光体。



WO 2022/220171 A1

明 細 書

発明の名称： 蛍光体

技術分野

[0001] 本発明は、蛍光体、特に発光素子に使用される蛍光体に関する。

背景技術

[0002] 特許文献1には、赤色蛍光発光体として利用することができる、Mnがドーピングされた MgAl_2O_4 系スピネル型酸化物蛍光体が記載されている。特許文献1の蛍光体には、過剰量のMgが含まれている。特定範囲内のMnのドーピング量及びMgの過剰量を有する MgAl_2O_4 系酸化物蛍光発光体は、高い強度で赤色発光することができる。

[0003] 特許文献2には、少なくともMnとMgとが固溶し、主結晶相が立方晶系スピネル型結晶構造を有する AlON であり、全組成に対するNの含有割合が0.5モル%～6.0モル%であることを特徴とする緑色蛍光体が記載されている。特許文献2の緑色蛍光体は、特にMgとNの含有割合を上記範囲に制御することで、発光輝度が高められたものである。また、特許文献2には、実施例及び比較例の各緑色蛍光体に関し、励起波長445nmでの発光スペクトルを測定した結果、発光スペクトルのピーク波長が520nmから530nmの範囲であったことが記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開2016-17125号公報

特許文献2：特開2019-99617号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 白色LED等の発光素子に使用される蛍光体には、優れた発光強度が要求される。

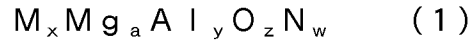
[0006] 本発明は前記課題を解決するものであり、その目的とするところは、発光

強度に優れる 蛍光体を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0007] 本発明は、以下の [1] ～ [15] を提供する。

[0008] [1] 式



[式 (1) 中、Mは、マンガン、ストロンチウム、セリウム、プラセオジウム、ネオジウム、サマリウム、ユウロピウム、ガドリニウム、テルビウム、ジスプロシウム、ツリウム及びイッテルビウムからなる群から選択される少なくとも1つの金属元素を表し、 $x + a + y + z + w = 1$ としたとき、 x は $0.00001 \leq x \leq 0.2$ であり、 a は $0 \leq a \leq 0.4$ であり、 y は $0.01 \leq y \leq 0.9$ であり、 z は $0.1 \leq z \leq 0.98$ であり、 w は $0 < w \leq 0.5$ である。]

で表され、 $2\theta = 36.8 \pm 0.5^\circ$ におけるXRDピークの半値幅が 0.093 より大きく 0.134 未満である、蛍光体。

[0009] [2] w は $0 < w \leq 0.027$ である、[1]の蛍光体。

[0010] [3] w は $0 < w < 0.005$ である、[1]又は[2]の蛍光体。

[0011] [4] a は $0 \leq a \leq 0.13$ である、[1]～[3]のいずれか一つの蛍光体。

[0012] [5] $2\theta = 36.8 \pm 0.5^\circ$ におけるXRDピークの半値幅が $0.094 \sim 0.106$ である、[1]～[4]のいずれか一つの蛍光体。

[0013] [6] Mはマンガン、ストロンチウム、ユウロピウム、セリウム及びテルビウムからなる群から選択される少なくとも1つの金属元素を表す、[1]～[5]のいずれか一つの蛍光体。

[0014] [7] スピネル型結晶構造を有する[1]～[6]のいずれか一つの蛍光体。

[0015] [8] [1]～[7]のいずれか一つの蛍光体から成るコア部と、該コア部の表面の少なくとも一部に形成されたシェル部とを有する蛍光体。

[0016] [9] [1]～[8]のいずれか一つの蛍光体を含む、フィルム。

- [0017] [1 0] [1] ~ [8] のいずれか一つの蛍光体を含む、発光素子。
- [0018] [1 1] [1 0] の発光素子を備える、発光装置。
- [0019] [1 2] [1 0] の発光素子を備える、ディスプレイ。
- [0020] [1 3] [1] ~ [8] のいずれか一つの蛍光体を含む、焼結体。
- [0021] [1 4] [1] ~ [8] のいずれか一つの蛍光体を含む、蛍光体ホイール。
- [0022] [1 5] [1 4] の蛍光体ホイールを使用したプロジェクター。

発明の効果

- [0023] 本発明によれば、発光強度に優れる蛍光体を提供することができる。

発明を実施するための形態

- [0024] <蛍光体>

本発明の蛍光体は、式



で表される蛍光体である。式(1)中、M、x、a、y、z及びwの意義は、以下に説明する通りである。尚、本明細書に記載されている数値範囲の上限、及び下限は当該数値を任意に選択して、組み合わせることが可能である。

- [0025] 式(1)中のMは、このMgAl₂O₄系酸化物蛍光体にドーピングされた金属元素を表す。金属元素Mとしては、例えば、マンガン、ストロンチウム、セリウム、プラセオジウム、ネオジウム、サマリウム、ユウロピウム、ガドリニウム、テルビウム、ジスプロシウム、ツリウム及びイッテルビウムからなる群から選択される少なくとも一つの金属元素が挙げられ、マンガン、ストロンチウム、ユウロピウム、セリウム及びテルビウムからなる群から選択される少なくとも一つの金属元素が好ましく、マンガン、セリウム及びストロンチウムから選択される少なくとも一つの金属元素がより好ましく、マンガン、及びセリウムから選択される少なくとも一つの金属元素がより好ましく、マンガンがさらに好ましい。

- [0026] 金属元素Mがマンガンの場合には、マンガンが発光中心イオンを構成し、

緑色発光する緑色発光蛍光体となることができる。本発明の蛍光体は、好ましい実施形態において、450nm付近に励起波長を有し、470nm～800nmの範囲で発光波長を測定した際に、510nm～550nmの範囲に極大を持つ発光ピークを示す蛍光体である。

[0027] 蛍光体は、励起光を照射すると、蛍光体中に含まれる発光中心イオンが励起光を吸収し、基底準位にある電子が励起準位へと遷移する。該励起された電子が、励起準位から基底準位へと再び戻る際、エネルギー準位の差に相当する分のエネルギーが蛍光として放出される。基底準位から励起準位への電子の遷移確率は、発光中心イオンの電子配置により異なり、遷移確率の低い禁制遷移であれば、吸光度は小さく発光強度は見かけ上小さくなる。他方、遷移確率の高い許容遷移であれば、吸光度は大きく発光強度は見かけ上大きくなる。

[0028] 2価のマンガン (Mn^{2+}) は3d軌道に5個の電子を持ち、光照射による励起準位への遷移は同種軌道間 (d-d) のため禁制遷移であり、吸光度は小さく発光強度も小さい。他方、例えば、2価のユウロピウム (Eu^{2+}) は4f軌道に7個の電子を持ち、光照射による励起準位への遷移は異種軌道間 (f-d) のため許容遷移であり、吸光度は大きく発光強度も大きい。

[0029] 化合物の発光強度は、化合物の吸光度 (吸収フォトン数) に依存して変化する。金属元素Mがマンガンの化合物とユウロピウムの化合物を比較する場合のように、吸光度の異なる化合物間で発光強度を比較する時は、発光強度を比較して、発光特性の優劣を決定することは不適切である。吸光度の異なる化合物間の発光特性は、例えば、吸光度の相違を補正した発光強度、即ち、量子効率を用いることで、適切に比較することができる。

[0030] 定義：「量子効率 (量子収率) = 発光強度 (蛍光フォトン数) / 吸光度 (吸収フォトン数)」

[0031] 式 (1) 中の x、a、y、z 及び w は、式 (1) の蛍光体の組成比率を表す。x、a、y、z 及び w の値は、これらの合計を 1 としたときの比率として示す。金属元素Mの組成比率 x は、 $0.00001 \leq x \leq 0.2$ であり、

例えば $0.0001 \leq x \leq 0.15$ 、好ましくは $0.0005 \leq x \leq 0.1$ 、より好ましくは $0.001 \leq x \leq 0.05$ 、さらに好ましくは $0.005 \leq x \leq 0.02$ である。 x が 0.00001 より小さい場合には、発光中心となる元素 M が少なく、発光強度が低下し易くなる。また、 x が 0.2 より大きい場合には、濃度消光と呼ばれる元素 M 同士の干渉現象により、発光強度が低下し易くなる。

[0032] Mg の組成比率 a は、 $0 \leq a \leq 0.4$ であり、例えば $0.01 \leq a \leq 0.3$ 、好ましくは $0.05 \leq a \leq 0.2$ 、より好ましくは $0.1 \leq a \leq 0.15$ である。 Al の組成比率 y は、 $0.01 \leq y \leq 0.9$ であり、例えば $0.05 \leq y \leq 0.7$ 、好ましくは $0.15 \leq y \leq 0.5$ 、より好ましくは $0.25 \leq y \leq 0.30$ である。 O の組成比率 z は、 $0.1 \leq z \leq 0.98$ であり、例えば $0.15 \leq z \leq 0.8$ 、好ましくは $0.35 \leq z \leq 0.7$ 、より好ましくは $0.5 \leq z \leq 0.6$ である。 N の組成比率 w は、 $0 < w \leq 0.5$ である。

[0033] 組成比率 a 、 y 、 z 及び w の値が上記数値範囲を充足しない場合、蛍光体の結晶構造が不安定化し易くなり、また、消光過程が増加して、発光強度が低下し易くなる。また、 Mg の組成比率 a は、 0.13 以下である場合に蛍光体の発光強度が向上し易くなることから、 $0.1 \leq a \leq 0.13$ であることが特に好ましい。

[0034] 本発明は、 Mn ドープ $MgAl_2O_4$ 系スピネル型酸化物蛍光体において、2価のアニオンである酸素部分に3価のアニオンである窒素原子を導入することで、蛍光体の発光強度が向上する現象が見出されたことに基づいている。2価のアニオンである酸素部分に3価のアニオンである窒素原子を導入することにより、蛍光体の結晶構造にアニオン欠損が生じる。アニオン欠損は増感剤として機能し、蛍光体の発光強度が向上すると考えられる。

[0035] 他方、アニオン欠損が生ずることによって蛍光体の結晶構造が不安定化する場合があり、かかる場合は、蛍光体の発光強度が低下する。蛍光体における結晶性の変化については、後述する $CuK\alpha$ 線源を用いたX線構造回析 (XRD)

測定により評価することができる。

[0036] Nの組成比率wは、好ましくは $0 < w \leq 0.027$ である。組成比率wの上限が0.027である場合、蛍光体の結晶構造は安定化し、蛍光体の発光強度が向上する。組成比率wは、好ましくは $0 < w < 0.005$ 、さらに好ましくは $0 < w \leq 0.0005$ である。

[0037] 本発明の蛍光体は、CuK α 線源を用いてXRD測定した際に、 $2\theta = 36.8 \pm 0.5^\circ$ の位置にピークを持つ。該 $2\theta = 36.8 \pm 0.5^\circ$ におけるXRDピークの半値幅は、0.093より大きく0.134未満である。該XRDピークの半値幅が0.093以下である場合、蛍光体の結晶構造のアニオン欠損が少量に過ぎ、発光強度が向上し難くなる。該XRDピークの半値幅が0.134以上である場合、蛍光体の結晶構造が不安定化することで発光強度が低下し易くなる。 $2\theta = 36.8 \pm 0.5^\circ$ におけるXRDピークの半値幅は、好ましくは0.094～0.103、より好ましくは0.096～0.098である。

[0038] ある好ましい一形態において、前記 $2\theta = 36.8 \pm 0.5^\circ$ におけるXRDピークの半値幅は、0.094～0.106である。

[0039] $2\theta = 36.8 \pm 0.5^\circ$ におけるXRDピークの半値幅は、統合粉末X線解析ソフトウェアPDXL（リガク社製）を用いて算出することができる。尚、 $2\theta = 36.8 \pm 0.5^\circ$ に複数のXRDピークが存在する場合は、最も強度が高いXRDピークを選択する。

[0040] 本発明の蛍光体は、好ましい実施形態において、結晶構造がスピネル構造を取る。スピネル構造とは、立方晶系に属する結晶構造であり、化学式： AB_2X_4 で表される。スピネル構造におけるAサイトは、4つのXサイトの陰イオンに囲まれており、孤立した四面体を形成している。スピネル構造におけるBサイトは、6つの陰イオンに囲まれ、辺を共有した八面体を形成している。Aが2価の金属元素、Bが3価の金属元素、Xが酸素で表される酸化物に見られる。蛍光体の結晶構造がスピネル構造となることで、熱、イオン衝撃、及び真空紫外線照射等の外部の影響から保護され、同時に、蛍光体の

発光強度を向上させることができる。

[0041] 本発明の蛍光体は、好ましい実施形態において、結晶相からなるコア部と、コア部の表面の少なくとも一部に形成されたシェル部とを、有する蛍光体である。ここで、結晶相とは、原子が規則正しく配列している固体の相であり、単結晶から成る複数の結晶子を含む相であってよい。シェル部は、一般に、ホウ素及びケイ素からなる群から選択される少なくとも一つの元素を含む酸化物である。本発明のシェル部を有する蛍光体は、シェル部に金属元素Mを含む。

[0042] 本発明の蛍光体がシェル部を有する場合、発光強度がさらに向上し易くなる。この発光強度向上の機構は、結晶の元素組成を最適化することで光の発生量を増大させるものではない。この機構は、発生した光を結晶相の外部に放出する効率を向上する機構によるものである。具体的には、発光強度を低下させる結晶相表面の欠陥部を形成する金属元素Mが、シェル部に移行することによるものである。それゆえ、蛍光体がシェル部を有することによる発光強度の向上は、結晶相の元素組成にかかわらず達成されと考えられる。

[0043] したがって、本発明の蛍光体がシェル部を有する場合、蛍光体は、アニオン欠損の増感剤の働きにより、光の発生量が増大し、シェル部を有することにより、発生した光が外部に効率よく放出され、発光強度がさらに向上し易くなる。

[0044] シェル部の量は、コア部を基準にして、好ましくは30重量%以下、より好ましくは0.01～20重量%、さらに好ましくは0.05～10重量%である。シェル部の量がコア部を基準にして30重量%より大きくなると、蛍光体全重量に対するコア部の割合が少なくなり、蛍光体として発光強度が低下し易くなる。

[0045] ある好ましい一形態において、シェル部の量は、コア部を基準にして、0.5～5重量%である。

[0046] 本発明の蛍光体に含まれる結晶相表面に存在するシェル部は、X線光電子分光分析(XPS: X-ray Photoelectron Spect

roscopy) やエネルギー分散型X線分析 (EDX: Energy dispersive X-ray spectroscopy)、誘導結合プラズマ発光分析 (ICP-AES: Inductively coupled plasma atomic emission spectroscopy) などの組成分析によって、シェル部を構成するホウ素または／かつケイ素が検出されることで確認することができる。

[0047] 本発明の蛍光体のコアシェル構造は、蛍光体の断面のEDX測定を行い、元素マッピング像を得ることで確認することができる。元素マッピング像において、金属元素Mと、ホウ素または／かつケイ素が共存する領域がシェル部となる。

[0048] EDX測定は、測定する試料の厚さに応じて、適した測定方法を選択することができる。測定方法としては、例えば、SEM-EDXやTEM-EDX、STEM-EDX等が挙げられる。なお、EDX測定でホウ素を正確に検出するためには、ウィンドウレス型EDXを用いることが好ましい。

[0049] 空間分解能が高く、かつ、一度に多くの蛍光体の断面を観察できる観点から、蛍光体をイオンミリング装置で加工して蛍光体の断面を得て、その後、得られた蛍光体の断面をSEM-EDX測定する方法が好ましい。

[0050] <蛍光体の原料>

本発明の蛍光体を製造する原料としては、M元素、Al、Mg、酸素、窒素を含む化合物、又は単体を用いる。かかる原料化合物としては、M元素、Al又はMgを含む酸化物、水酸化物、炭酸塩、酢酸塩、硝酸塩、フッ化物、塩化物又は窒化物等が挙げられる。例えば、M元素を含む原料化合物として、酸化マンガン、炭酸マンガン、酢酸マンガン、硝酸マンガン、フッ化マンガン、塩化マンガン、窒化マンガン；Mgを含む原料化合物として、酸化マグネシウム、水酸化マグネシウム、炭酸マグネシウム、酢酸マグネシウム、硝酸マグネシウム、フッ化マグネシウム、塩化マグネシウム、窒化マグネシウム；及びAlを含む原料化合物として、酸化アルミニウム、水酸化アルミニウム、炭酸アルミニウム、酢酸アルミニウム、硝酸アルミニウム、フッ

化アルミニウム、塩化アルミニウム、窒化アルミニウム等が挙げられる。窒素を含む化合物は、窒化マンガン、窒化マグネシウム、窒化アルミニウム等が挙げられる。

[0051] また好ましい実施形態において、シェル部の原料として、ホウ素及びケイ素からなる群から選択される少なくとも一つの元素を含む化合物を用いることができる。これらの原料としては、例えば酸化ホウ素、窒化ホウ素、ホウ酸、ガラスフリット等が挙げられる。

[0052] ガラスフリットとは、ガラスを粉砕した粉末ガラスである。主成分は二酸化ケイ素であるが、酸化アルミニウム、酸化ビスマス、酸化カルシウム、酸化ホウ素、酸化バリウム、酸化ストロンチウム、酸化カルシウム、酸化ナトリウム、酸化亜鉛、酸化リチウム、酸化カリウム、酸化ジルコニウム等を含んでもよい。

[0053] 本発明の蛍光体を製造する際に、上述の原料化合物以外の原料として、結晶性を高める観点から、フッ化リチウムを添加してもよい。

[0054] <蛍光体の製造方法>

本発明に係る蛍光体の製造方法は、M元素原料であるM化合物と、Al元素原料であるAl化合物と、Mg元素原料であるMg化合物と、N元素原料であるN化合物を準備する工程と、その原材料を固相で混合した後に焼成する工程とを有する。この製造方法により、本発明の蛍光体を製造することができる。

[0055] 本発明の蛍光体は、例えば、次の方法によって製造することができる。即ち、まず元素M、Mg、Al、O及びNを含む原料を、各元素が焼成後の蛍光体において式(1)に規定された所定のモル比率になるように秤量し、それらを混合する。この際、前記合計量に対して所定の比率のシェル部の原料又はフッ化リチウムを他の原料とともに混合してもよい。混合は、混合装置、例えばボールミル、サンドミル、ピコミル等を用いて行うことができる。

[0056] 次に、調製された原料混合物を加熱する。加熱温度は、例えば、1250℃～1700℃、好ましくは1300℃～1650℃、より好ましくは1

350℃～1600℃、さらに好ましくは1400℃～1600℃で行うことができる。

[0057] 加熱雰囲気は、好ましくは水素と窒素の混合雰囲気である。加熱雰囲気に使用する混合雰囲気は、好ましくは水素と窒素の比が1：99～100：0であり、より好ましくは水素と窒素の比が5：95～10：90である。

[0058] 加熱時間は、工業的に現実的な時間であれば問題ないが、たとえば加熱温度が前記範囲にある場合、1～10時間、好ましくは2～8時間である。加熱時間がこの範囲にあることで、蛍光体の母体結晶が崩壊することなく、所望の結晶構造を得ることができる。本発明の蛍光体は、前記固相反応法を用いて製造してもよいし、他の製造方法、例えば溶液法、溶融合成法等を用いて合成してもよい。

[0059] <組成物>

本発明の蛍光体は、モノマー中、樹脂中、又はモノマーと樹脂との混合物中に分散させて、組成物として使用することができる。組成物の樹脂成分は、モノマーを重合させたポリマーでもよい。

[0060] 前記組成物に使用するモノマーとしては、例えば、メチル（メタ）アクリレート、エチル（メタ）アクリレート、メトキシエチル（メタ）アクリレート、エトキシエチル（メタ）アクリレート、n-プロピル（メタ）アクリレート、イソプロピル（メタ）アクリレート、n-ブチル（メタ）アクリレート、イソブチル（メタ）アクリレート、tert-ブチル（メタ）アクリレート、2-エチルヘキシル（メタ）アクリレート、シクロヘキシル（メタ）アクリレート、ヘプチル（メタ）アクリレート、オクチル（メタ）アクリレート、ノニル（メタ）アクリレート、ドデシル（メタ）アクリレート、ラウリル（メタ）アクリレート、ステアリル（メタ）アクリレート、シクロペンチル（メタ）アクリレート、シクロヘキシル（メタ）アクリレート、2-メチルシクロヘキシル（メタ）アクリレート、イソボルニル（メタ）アクリレート、アダマンチル（メタ）アクリレート、アリル（メタ）アクリレート、プロパルギル（メタ）アクリレート、フェニル（メタ）アクリレート、ナフ

チル（メタ）アクリレート、ベンジル（メタ）アクリレート、ノニルフェニルカルビトル（メタ）アクリレート、2-ヒドロキシ-3-フェノキシプロピル（メタ）アクリレート、2-エチルヘキシルカルビトル（メタ）アクリレート、2-ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、2-ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、エチレングリコールジ（メタ）アクリレート、トリエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、ネオペンチルグリコールジ（メタ）アクリレート、1, 6-ヘキサンジオールジ（メタ）アクリレート、1, 7-ヘプタンジオールジ（メタ）アクリレート、1, 8-オクタンジオールジ（メタ）アクリレート、1, 9-ノナンジオールジ（メタ）アクリレート、1, 10-デカンジオールジ（メタ）アクリレート、ビスフェノールAのビス〔（メタ）アクリロイルオキシエチル〕エーテル、3-エチルペンタンジオールジ（メタ）アクリレート、トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、ペンタエリスリトールトリ（メタ）アクリレート、ペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールペンタ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレート、トリペンタエリスリトールオクタ（メタ）アクリレート、トリペンタエリスリトールヘプタ（メタ）アクリレート、テトラペンタエリスリトールデカ（メタ）アクリレート、テトラペンタエリスリトールノナ（メタ）アクリレート、エチレングリコール変性トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、プロピレングリコール変性トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、エチレングリコール変性ペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート、プロピレングリコール変性ペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート、エチレングリコール変性ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレート、プロピレングリコール変性ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレート、カプロラクトン変性ペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート、カプロラクトン変性ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールペンタ（メタ）アクリレートコハク酸モノエステル、トリス（2-（メタ）アクリロイル

オキシエチル) イソシアヌレート、ジシクロペンタニル (メタ) アクリレート等が挙げられる。

[0061] 耐熱性、耐水性、耐光性や発光強度を向上させる観点から、好ましい (メタ) アクリレートとしては、イソボルニル (メタ) アクリレート、ステアリル (メタ) アクリレート、メチル (メタ) アクリレート、シクロヘキシル (メタ) アクリレート、ジシクロペンタニル (メタ) アクリレートが挙げられる。

[0062] これらのモノマーは単独で使用しても複数種類を混合して使用してもよい。

[0063] 前記組成物に使用する樹脂としては、特に制限はないが、(メタ) アクリル樹脂、スチレン樹脂、エポキシ樹脂、ウレタン樹脂及びシリコン樹脂等が挙げられる。

[0064] シリコン樹脂としては、特に制限はないが、シリル基とビニル基の付加重合反応で重合する付加重合性シリコンや、アルコキシシランの縮合重合で重合する縮合重合性のシリコンが挙げられる。

[0065] シリコン樹脂としては、シリコン中の Si 元素に有機基が結合しているものが好ましく、メチル基、エチル基、プロピル基等のアルキル基、フェニル基、エポキシ基等の官能基が挙げられ、耐熱性、耐水性、耐光性や発光強度を向上させる観点から、フェニル基が好ましい。

[0066] シリコン樹脂としては、KE-108 (信越化学工業株式会社製)、KE-1031 (信越化学工業株式会社製)、KE-109E (信越化学工業株式会社製)、KE-255 (信越化学工業株式会社製)、KR-112 (信越化学工業株式会社製)、KR-251 (信越化学工業株式会社製)、KR-300 (信越化学工業株式会社製) が挙げられる。

[0067] これらのシリコンは単独で使用しても複数種類を混合して使用してもよい。

[0068] 前記組成物中に含まれるモノマー成分及び／又は樹脂成分の割合としては、特に制限はないが、10wt%以上、99wt%以下であり、好ましくは

、20wt%以上、80wt%以下であり、より好ましくは、30wt%以上、70wt%以下である。

[0069] 前記組成物は、モノマー成分及び／又は樹脂成分を硬化させ、耐熱性、耐水性、耐光性や発光強度を向上させる観点から、硬化剤を含んでいてもよい。硬化剤としては、複数の官能基を有する硬化剤が挙げられる。複数の官能基を有する硬化剤としては、トリメチロールプロパントリアクリレート、ペンタエリスリトールテトラアクリレート、ジトリメチロールプロパンテトラアクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサアクリレート、チオール基を含有するメルカプト化合物等が挙げられる。

[0070] 前記組成物中に含まれる硬化剤の割合としては、特に制限はないが、0.1wt%以上、20wt%以下であり、好ましくは、1wt%以上、10wt%以下であり、より好ましくは、2wt%以上、7wt%以下である。

[0071] 前記組成物は、モノマー成分及び／又は樹脂成分を重合させて、耐熱性、耐水性、耐光性や発光強度を向上させる観点から、開始剤を含んでいてもよい。開始剤としては、光重合性の開始剤でもよく、熱重合性の開始剤でもよい。

[0072] 本発明に用いられる熱重合開始剤としては特に制限はないが、アゾ系開始剤、過酸化物、過硫酸酸、及びレドックス開始剤が挙げられる。

[0073] アゾ系開始剤としては、特に制限はないが、2, 2'-アゾビス(4-メトキシ-2, 4-ジメチルバレロニトリル)、2, 2'-アゾビス(2-アミジノプロパン)二塩酸塩、2, 2'-アゾビス(2, 4-ジメチルバレロニトリル)、2, 2'-アゾビス(イソブチロニトリル)、2, 2'-アゾビス-2-メチルブチロニトリル、1, 1'-アゾビス(1-シクロヘキサンカルボニトリル)、2, 2'-アゾビス(2-シクロプロピルプロピオニトリル)、及び2, 2'-アゾビス(メチルイソブチレート)等が挙げられる。

[0074] 過酸化物開始剤としては、特に制限はないが、過酸化ベンゾイル、過酸化アセチル、過酸化ラウロイル、過酸化デカノイル、過酸化ジクミル、ジセチ

ルパーオキシジカーボネート、*t*-ブチルパーオキシイソプロピルモノカーボネート、ジ（4-*t*-ブチルシクロヘキシル）パーオキシジカーボネート、ジ（2-エチルヘキシル）パーオキシジカーボネート、*t*-ブチルパーオキシピバレート、*t*-ブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート等が挙げられる。

[0075] 過硫酸塩開始剤としては、特に制限はないが、過硫酸カリウム、過硫酸ナトリウム、及び過硫酸アンモニウムが挙げられる。

[0076] レドックス（酸化還元）開始剤としては、特に制限はないが、前記過硫酸塩開始剤のメタ亜硫酸水素ナトリウム及び亜硫酸水素ナトリウムのような還元剤との組み合わせ；有機過酸化物と第3級アミンに基づく系、例えば過酸化ベンゾイルとジメチルアニリンに基づく系；並びに有機ヒドロパーオキシドと遷移金属に基づく系、例えばクメンヒドロパーオキシドとコバルトナフテートに基づく系等が挙げられる。

[0077] 他の開始剤としては、特に制限はないが、テトラフェニル1, 1, 2, 2-エタンジオールのようなピナコール等が挙げられる。

[0078] 熱重合開始剤としては、アゾ系開始剤、過酸化物系開始剤が好ましく、より好ましくは、2, 2'-アゾビス（メチルイソブチレート）、*t*-ブチルパーオキシピバレート、及びジ（4-*t*-ブチルシクロヘキシル）パーオキシジカーボネート、*t*-ブチルパーオキシイソプロピルモノカーボネート、過酸化ベンゾイルが挙げられる。

[0079] 光重合開始剤としては、特に制限されないが、*O*-アシルオキシム化合物等のオキシム系化合物、アルキルフェノン化合物、アシルホスフィンオキサイド化合物等が挙げられる。

[0080] *O*-アシルオキシム化合物としては、*N*-ベンゾイルオキシ-1-（4-フェニルスルファニルフェニル）ブタン-1-オン-2-イミン、*N*-ベンゾイルオキシ-1-（4-フェニルスルファニルフェニル）オクタン-1-オン-2-イミン、*N*-ベンゾイルオキシ-1-（4-フェニルスルファニルフェニル）-3-シクロペンチルプロパン-1-オン-2-イミン、*N*-

アセトキシ-1-[9-エチル-6-(2-メチルベンゾイル)-9H-カルバゾール-3-イル]エタン-1-イミン、N-アセトキシ-1-[9-エチル-6-{2-メチル-4-(3,3-ジメチル-2,4-ジオキサシクロペンタニルメチルオキシ)ベンゾイル}-9H-カルバゾール-3-イル]エタン-1-イミン、N-アセトキシ-1-[9-エチル-6-(2-メチルベンゾイル)-9H-カルバゾール-3-イル]-3-シクロペンチルプロパン-1-イミン、N-ベンゾイルオキシ-1-[9-エチル-6-(2-メチルベンゾイル)-9H-カルバゾール-3-イル]-3-シクロペンチルプロパン-1-オン-2-イミン、N-アセチルオキシ-1-[4-(2-ヒドロキシエチルオキシ)フェニルスルファニルフェニル]プロパン-1-オン-2-イミン、N-アセチルオキシ-1-[4-(1-メチル-2-メトキシエトキシ)-2-メチルフェニル]-1-(9-エチル-6-ニトロ-9H-カルバゾール-3-イル)メタン-1-イミン等が挙げられる。

[0081] イルガキュア（商品名）OXE01、同OXE02、同OXE03（以上、BASF社製）、N-1919、NCI-930、NCI-831（以上、ADEKA社製）等の市販品を用いてもよい。

[0082] アルキルフェノン化合物としては、2-メチル-2-モルホリノー1-(4-メチルスルファニルフェニル)プロパン-1-オン、2-ジメチルアミノ-1-(4-モルホリノフェニル)-2-ベンジルブタン-1-オン、2-(ジメチルアミノ)-2-[(4-メチルフェニル)メチル]-1-[4-(4-モルホリニル)フェニル]ブタン-1-オン、2-ヒドロキシ-2-メチル-1-フェニルプロパン-1-オン、2-ヒドロキシ-2-メチル-1-[4-(2-ヒドロキシエトキシ)フェニル]プロパン-1-オン、1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン、2-ヒドロキシ-2-メチル-1-(4-イソプロペニルフェニル)プロパン-1-オンのオリゴマー、 α , α -ジエトキシアセトフェノン、ベンジルジメチルケタール等が挙げられる。

- [0083] Omnirad (商品名) 369、同907、同379 (以上、IGM Resins B. V. 社製) 等の市販品を用いてもよい。
- [0084] アシルホスフィンオキサイド化合物としては、フェニルビス (2, 4, 6-トリメチルベンゾイル) ホスフィンオキサイド (例えば、商品名「omnirad 819」 (IGM Resins B. V. 社製))、2, 4, 6-トリメチルベンゾイルジフェニルホスフィンオキサイド等が挙げられる。光重合開始剤のさらなる例としては、ベンゾイン、ベンゾインメチルエーテル、ベンゾインエチルエーテル、ベンゾインイソプロピルエーテル、ベンゾインイソブチルエーテル等のベンゾイン化合物；ベンゾフェノン、*o*-ベンゾイル安息香酸メチル、4-フェニルベンゾフェノン、4-ベンゾイル-4'-メチルジフェニルサルファイド、3, 3', 4, 4'-テトラ (tert-ブチルパーオキシカルボニル) ベンゾフェノン、2, 4, 6-トリメチルベンゾフェノン、4, 4'-ジ (N, N'-ジメチルアミノ) -ベンゾフェノン等のベンゾフェノン化合物；2-イソプロピルチオキサントン、2, 4-ジエチルチオキサントン等のキサントン化合物；9, 10-ジメトキシアントラセン、2-エチル-9, 10-ジメトキシアントラセン、9, 10-ジエトキシアントラセン、2-エチル-9, 10-ジエトキシアントラセン等のアントラセン化合物；9, 10-フェナンスレンキノン、2-エチルアントラキノン、カンファーキノン等のキノン化合物；ベンジル、フェニルグリオキシル酸メチル、チタノセン化合物等が挙げられる。
- [0085] 前記組成物は、組成物の酸化を抑制し、耐熱性、耐水性、耐光性や発光強度を向上させる観点から、酸化防止剤を含んでもよい。酸化防止剤としては、例えば、アミン系酸化防止剤、硫黄系酸化防止剤、フェノール系酸化防止剤、リン系酸化防止剤、リン-フェノール系酸化防止剤、金属化合物系酸化防止剤等が挙げられ、好ましくは、アミン系酸化防止剤、硫黄系酸化防止剤、フェノール系酸化防止剤及びリン系酸化防止剤からなる群より選ばれる少なくとも一つを含み、より好ましくは、硫黄系酸化防止剤、フェノール系酸化防止剤及びリン系酸化防止剤からなる群より選ばれる少なくとも一つ

を含む。

[0086] アミン系酸化防止剤とは、分子内にアミノ基を有する酸化防止剤である。アミン系酸化防止剤としては、例えば、1-ナフチルアミン、フェニル-1-ナフチルアミン、p-オクチルフェニル-1-ナフチルアミン、p-ノニルフェニル-1-ナフチルアミン、p-ドデシルフェニル-1-ナフチルアミン、フェニル-2-ナフチルアミン等のナフチルアミン系酸化防止剤；N，N'-ジイソプロピル-p-フェニレンジアミン、N，N'-ジイソブチル-p-フェニレンジアミン、N，N'-ジフェニル-p-フェニレンジアミン、N，N'-ジ-β-ナフチル-p-フェニレンジアミン、N-フェニル-N'-イソプロピル-p-フェニレンジアミン、N-シクロヘキシル-N'-フェニル-p-フェニレンジアミン、N-1，3-ジメチルブチル-N'-フェニル-p-フェニレンジアミン、ジオクチル-p-フェニレンジアミン、フェニルヘキシル-p-フェニレンジアミン、フェニルオクチル-p-フェニレンジアミン等のフェニレンジアミン系酸化防止剤；ジピリジルアミン、ジフェニルアミン、p，p'-ジ-n-ブチルジフェニルアミン、p，p'-ジ-tert-ブチルジフェニルアミン、p，p'-ジ-tert-ペンチルジフェニルアミン、p，p'-ジオクチルジフェニルアミン、p，p'-ジノニルジフェニルアミン、p，p'-ジデシルジフェニルアミン、p，p'-ジドデシルジフェニルアミン、p，p'-ジスチリルジフェニルアミン、p，p'-ジメトキシジフェニルアミン、4，4'-ビス（4-α，α-ジメチルベンゾイル）ジフェニルアミン、p-イソプロポキシジフェニルアミン、ジピリジルアミン等のジフェニルアミン系酸化防止剤；フェノチアジン、N-メチルフェノチアジン、N-エチルフェノチアジン、3，7-ジオクチルフェノチアジン、フェノチアジンカルボン酸エステル、フェノセレナジン等のフェノチアジン系酸化防止剤；セバシン酸ビス（2，2，6，6-テトラメチル-4-ピペリジニル）（BASF社製 商品名「Tinuvin 770」）；マロン酸〔（4-メトキシフェニル）-メチレン〕-ビス（1，2，2，6，6-ペンタメチル-4-ピペリジニル）（ク

ラリアント社製 商品名「Hostavin PR31」)等が挙げられる。
。

[0087] 硫黄系酸化防止剤とは、分子内に硫黄原子を有する酸化防止剤である。硫黄系酸化防止剤としては、例えば、チオジプロピオン酸ジラウリル、ジミリスチル又はジステアリル等のジアルキルチオジプロピオネート化合物（「スミライザー TPM」（商品名、住友化学（株）製）等）、テトラキス〔メチレン（3-ドデシルチオ）プロピオネート〕メタン、テトラキス〔メチレン（3-ラウリルチオ）プロピオネート〕メタン等のポリオール β -アルキルメルカプトプロピオン酸エステル化合物、2-メルカプトベンズイミダゾール等が挙げられる。

[0088] フェノール系酸化防止剤とは、分子内にフェノール性ヒドロキシ基を有する酸化防止剤である。本明細書では、フェノール性ヒドロキシ基とリン酸エステル構造又は亜リン酸エステル構造とをともに有するリン-フェノール系酸化防止剤は、フェノール系酸化防止剤として分類する。フェノール系酸化防止剤としては、例えば、1, 1, 3-トリス（2-メチル-4-ヒドロキシ-5-tert-ブチルフェニル）ブタン、4, 4'-ブチリデン-ビス（3-メチル-6-tert-ブチルフェノール）、1, 3, 5-トリメチル-2, 4, 6-トリス（3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル）ベンゼン、2-tert-ブチル-6-（3-tert-ブチル-2-ヒドロキシ-5-メチルベンジル）-4-メチルフェニルアクリレート、（テトラキス〔メチレン-3-（3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル）プロピオネート〕メタン、ペンタエリスリトールテトラキス〔3-（3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル）プロピオネート〕、オクタデシル-3-（3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル）プロピオネート（「Irganox 1076」（商品名、BASF社製））、3, 3', 3'', 5, 5', 5''-ヘキサ-tert-ブチル-a, a', a''-（メシチレン-2, 4, 6-トリイル）トリ-p-クレゾール、1, 3, 5-トリス（3, 5-ジ-te

tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)-1, 3, 5-トリアジン-2, 4, 6 (1H, 3H, 5H)-トリオン、1, 3, 5-トリス ((4-tert-ブチル-3-ヒドロキシ-2, 6-キシリル)メチル)-1, 3, 5-トリアジン-2, 4, 6 (1H, 3H, 5H)-トリオン、チオジエチレンビス [3-(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]、ベンゼンプロパン酸、3, 5-ビス (1, 1-ジメチルエチル)-4-ヒドロキシC7-C9側鎖アルキルエステル、4, 6-ビス (オクチルチオメチル)-o-クレゾール、2, 4-ビス (n-オクチルチオ)-6-(4-ヒドロキシ3', 5'-ジ-tert-ブチルアニリノ)-1, 3, 5-トリアジン、3, 9-ビス (2-(3-(3-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-5-メチルフェニル)プロピオニルオキシ)-1, 1-ジメチルエチル)-2, 4, 8, 10-テトラオキサスピロ (5, 5)ウンデカン ((株)ADEKA製 商品名「アデカスタブ AO-80」)、トリエチレングリコール-ビス [3-(3-tert-ブチル-5-メチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]、4, 4'-チオビス (6-tert-ブチル-3-メチルフェノール)、トリス-(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)-イソシアヌレート、1, 3, 5-トリス (4-tert-ブチル-3-ヒドロキシ-2, 6-ジメチルベンジル)-イソシアヌレート、1, 6-ヘキサンジオール-ビス [3-(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]、N, N'-ヘキサメチレンビス (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-ヒドロシンナムアミド)、1, 3, 5-トリメチル-2, 4, 6-トリス (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)ベンゼン、1, 6-ヘキサンジオール-ビス [3-(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]、2, 2'-メチレンビス (4-メチル-6-tert-ブチルフェノール)、1, 3, 5-トリス (4-ヒドロキシベンジル)ベンゼン、6, 6'-ジ-tert-ブチル-4, 4'-ブチリデンジ-m-クレゾール ((株)ADEKA製 商品名

「アデカスタブ AO-40」）、「Irganox 3125」（商品名、BASF社製）、「スミライザー BHT」（商品名、住友化学（株）製）、「スミライザー GA-80」（商品名、住友化学（株）製）、「スミライザー GS」（商品名、住友化学（株）製）、「シアノックス 1790」（商品名、（株）サイテック製）、ビタミンE（エーザイ（株）製）等が挙げられる。

[0089] リンフェノール系酸化防止剤としては、例えば、2, 10-ジメチルー4, 8-ジ-tert-ブチル-6-[3-(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロポキシ]-12H-ジベンゾ[d, g][1, 3, 2]ジオキサホスホシン、2, 4, 8, 10-テトラ-tert-ブチル-6-[3-(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロポキシ]ジベンゾ[d, f][1, 3, 2]ジオキサホスフェピン、2, 4, 8, 10-テトラ-tert-ブチル-6-[3-(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオニルオキシ]-ジベンゾ[d, f][1, 3, 2]ジオキサホスフェピン（住友化学（株）製 商品名「スミライザー GP」）等が挙げられる。

[0090] リン系酸化防止剤とは、リン酸エステル構造又は亜リン酸エステル構造を有する酸化防止剤である。リン系酸化防止剤としては、例えば、ジフェニルイソオクチルフォスファイト、2, 2'-メチレンビス(4, 6-ジ-tert-ブチルフェニル)オクチルフォスファイト、ジフェニルイソデシルフォスファイト、ジフェニルイソデシルフォスファイト、トリフェニルフォスフェート、トリブチルフォスフェート、ジイソデシルペンタエリスリトールジフォスファイト、ジステアリルペンタエリスリトールジフォスファイト、サイクリックネオペンタンテトライルビス(2, 4-ジ-tert-ブチルフェニル)フォスファイト、サイクリックネオペンタンテトライルビス(2, 6-ジ-tert-ブチルフェニル)フォスファイト、サイクリックネオペンタンテトライルビス(2, 6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェニル)フォスファイト、6-[3-(3-tert-ブチル-4-ヒドロキ

シー5-メチルフェニル)プロポキシ]-2, 4, 8, 10-テトラ-tert-
 ブチルベンゾ[d, f][1, 3, 2]ジオキサフォスフェピン、トリ
 ス(ノニルフェニル)フォスファイト((株)ADEKA製 商品名「ア
 デカスタブ 1178」)、トリス(モノー及びジ-ノニルフェニルミッ
 クスド)フォスファイト、ジフェニルモノ(トリデシル)フォスファイト、2
 , 2'-エチリデンビス(4, 6-ジ-tert-ブチルフェノール)フル
 オロフォスファイト、フェニルジイソデシルフォスファイト、トリス(2-
 エチルヘキシル)フォスファイト、トリス(イソデシル)フォスファイト、
 トリス(トリデシル)フォスファイト、トリス(2, 4-ジ-tert-ブ
 チルフェニル)フォスファイト、テトラキス(2, 4-ジ-tert-ブチ
 ルフェニル)-4, 4'-ビフェニレン-ジ-フォスフォナイト、4, 4'-
 -イソプロピリデンジフェニルテトラアルキル(C12-C15)ジフォス
 ファイト、4, 4'-ブチリデンビス(3-メチル-6-tert-ブチル
 フェニル)-ジトリデシルフォスファイト、ビス(ノニルフェニル)ペンタ
 エリトリトールジフォスファイト、ビス(2, 4-ジ-tert-ブチルフ
 ェニル)ペンタエリトリトール-ジ-フォスファイト、シクリックネオペン
 タンテトライルビス(2, 6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェニル
 -フォスファイト)、1, 1, 3-トリス(2-メチル-4-ジトリデシル
 フォスファイト-5-tert-ブチルフェニル)ブタン、テトラキス(2
 , 4-ジ-tert-ブチル-5-メチルフェニル)-4, 4'-ビフェニ
 ルエンジフォスフォナイト、トリ-2-エチルヘキシルフォスファイト、ト
 リイソデシルフォスファイト、トリステアリルフォスファイト、フェニルジ
 イソデシルフォスファイト、トリラウリルトリチオフォスファイト、ジステ
 アリルペンタエリトリトールジフォスファイト、トリス(ノニルアテドフェ
 ニル)フォスファイトトリス[2-[2, 4, 8, 10-テトラ-tert-
 ブチルジベンゾ[d, f][1, 3, 2]ジオキサフォスフィン-6-
 イル]オキシ]エチル]アミン、ビス(2, 4-ビス(1, 1-ジメチルエ
 チル)-6-メチルフェニル)エチルエステル亜リン酸、3, 9-ビス(2

、6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェノキシ)-2,4,8,10-テトラオキサー3,9-ジホスファスピロ[5.5]ウンデカン、ビス(2,4-ジ-tert-ブチルフェニル)ペンタエリスリトールジホスファイト、2,2'-メチレンビス(4,6-ジ-tert-ブチル-1-フェニルオキシ)(2-エチルヘキシルオキシ)ホスホラス、トリフェニルホスファイト、4,4'-ブチリデン-ビス(3-メチル-6-tert-ブチルフェニルジトリデシル)ホスファイト、オクタデシルホスファイト、9,10-ジヒドロ-9-オキサー10-ホスファフェナントレン-10-オキサイド、10-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)-9,10-ジヒドロ-9-オキサー10-ホスファフェナントレン-10-オキサイド、10-デシルオキシ-9,10-ジヒドロ-9-オキサー10-ホスファフェナントレン-10-オキサイド、2,2'-メチレンビス(4,6-ジ-tert-ブチルフェニル)オクチルホスファイト、テトラキス(2,4-ジ-tert-ブチルフェニル)[1,1-ビフェニル]-4,4'-ジイルビスホスホナイト、ビス[2,4-ビス(1,1-ジメチルエチル)-6-メチルフェニル]エチルエステル、ホスホン酸、「アデカスタブ 329K」(商品名、(株)ADEKA製)、「アデカスタブ PEP36」(商品名、(株)ADEKA製)、「アデカスタブ PEP-8」(商品名、(株)ADEKA製)、「Sandstab P-EPQ」(商品名、クラリアント社製)、「ウェストン 618」(商品名、GE社製)、「ウェストン 619G」(商品名、GE社製)、「ウルトラノックス 626」(商品名、GE社製)等が挙げられる。

[0091] 前記組成物中に含まれる酸化防止剤の割合としては、特に制限はないが、0.1wt%以上、20wt%以下であり、好ましくは、1wt%以上、10wt%以下であり、より好ましくは、2wt%以上、7wt%以下である。

[0092] 前記組成物は、組成物中を通過した光を散乱させて組成物の光の吸収量を向上させ、発光強度を向上させる観点から、光散乱材を含んでいてもよい。

光散乱材としては、特に制限はないが、ポリマー微粒子や無機微粒子が挙げられる。ポリマー微粒子に使用されるポリマーとしては、アクリル樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂、ウレタン樹脂が挙げられる。

[0093] 光散乱材に使用される無機微粒子としては、酸化物、水酸化物、硫化物、窒化物、炭化物、塩化物、臭化物、ヨウ化物及びフッ化物等の公知の無機化合物を含む微粒子が挙げられる。

[0094] 前記光散乱材において、無機微粒子に含まれる酸化物としては、酸化ケイ素、酸化アルミニウム、酸化亜鉛、酸化ニオブ、酸化ジルコニウム、酸化チタン、酸化マグネシウム、酸化セリウム、酸化イットリウム、酸化ストロンチウム、酸化バリウム、酸化カルシウム、酸化タングステン、酸化インジウム及び酸化ガリウム、酸化チタン等の公知の酸化物、又はそれらの混合物が挙げられ、酸化アルミニウム、酸化亜鉛、酸化ニオブが好ましく、酸化アルミニウム、酸化ニオブがさらに好ましい、酸化ニオブがもっとも好ましい。

[0095] 前記光散乱材において、無機微粒子に含まれる酸化アルミニウムとしては、 α アルミナ、 γ アルミナ、 θ アルミナ、 δ アルミナ、 η アルミナ、 κ アルミナ及び χ アルミナ等の公知の酸化アルミニウムが挙げられ、 α アルミナ、 γ アルミナが好ましく、 α アルミナがより好ましい。

[0096] 前記光散乱材において、酸化アルミニウムは、市販品であってよく、硝酸アルミニウム、塩化アルミニウム、及びアルミニウムアルコキシド等の原料を焼成して、アルミナを得てもよい。市販品の酸化アルミニウムとしては、AKP-20（住友化学社製）、AKP-30（住友化学社製）、AKP-50（住友化学社製）、AKP-53（住友化学社製）、AKP-3000（住友化学社製）、AA-02（住友化学社製）、AA-03（住友化学社製）、AA-04（住友化学社製）、AA-05（住友化学社製）、AA-07（住友化学社製）、AA-1.5（住友化学社製）、AA-3（住友化学社製）、及びAA-18（住友化学社製）が挙げられ、吸光度の観点から、AA-02（住友化学社製）、AA-3（住友化学社製）、AA-18（住友化学社製）、AKP-20（住友化学社製）、AKP-3000（住友

化学社製)、AKP-53(住友化学社製)、AKP-30(住友化学社製)、AKP-50(住友化学社製)、が好ましく、AA-02(住友化学社製)、AA-3(住友化学社製)、AKP-53(住友化学社製)、AKP-3000(住友化学社製)、AKP-30(住友化学社製)、AKP-50(住友化学社製)、がさらに好ましい。

[0097] 前記光散乱材において、無機微粒子に含まれる水酸化物としては、水酸化アルミニウム、水酸化亜鉛、水酸化マグネシウム、水酸化セリウム、水酸化イットリウム、水酸化ストロンチウム、水酸化バリウム、水酸化カルシウム、水酸化インジウム及び水酸化ガリウム等の公知の酸化物、又はそれらの混合物が挙げられ、水酸化アルミニウム、水酸化亜鉛が好ましい。

[0098] 前記光散乱材において、無機微粒子に含まれる硫化物としては、硫化ケイ素、硫化アルミニウム、硫化亜鉛、硫化ニオブ、硫化ジルコニウム、硫化チタン、硫化マグネシウム、硫化セリウム、硫化イットリウム、硫化ストロンチウム、硫化バリウム、硫化カルシウム、硫化タングステン、硫化インジウム、及び硫化ガリウム等の公知の硫化物、又はそれらの混合物が挙げられ、硫化アルミニウム、硫化亜鉛、硫化ニオブが好ましく、硫化亜鉛、硫化ニオブがさらに好ましく、硫化ニオブがもっとも好ましい。

[0099] 前記光散乱材において、無機微粒子に含まれる窒化物としては、窒化ケイ素、窒化アルミニウム、窒化亜鉛、窒化ニオブ、窒化ジルコニウム、窒化チタン、窒化マグネシウム、窒化セリウム、窒化イットリウム、窒化ストロンチウム、窒化バリウム、窒化カルシウム、窒化タングステン、窒化インジウム、及び窒化ガリウム等の公知の窒化物、又はそれらの混合物が挙げられ、窒化アルミニウム、窒化亜鉛、窒化ニオブが好ましく、窒化アルミニウム、窒化ニオブがさらに好ましく、窒化ニオブがもっとも好ましい。

[0100] 前記光散乱材において、無機微粒子に含まれる炭化物としては、炭化ケイ素、炭化アルミニウム、炭化亜鉛、炭化ニオブ、炭化ジルコニウム、炭化チタン、炭化マグネシウム、炭化セリウム、炭化イットリウム、炭化ストロンチウム、炭化バリウム、炭化カルシウム、炭化タングステン、炭化インジウム

ム、及び炭化ガリウム等の公知の硫化物、又はそれらの混合物が挙げられ、炭化アルミニウム、炭化亜鉛、炭化ニオブが好ましく、炭化アルミニウム、炭化ニオブがさらに好ましく、炭化ニオブがもっとも好ましい。

[0101] 前記光散乱材において、無機微粒子に含まれる塩化物としては、塩化ケイ素、塩化アルミニウム、塩化亜鉛、塩化ニオブ、塩化ジルコニウム、塩化チタン、塩化マグネシウム、塩化セリウム、塩化イットリウム、塩化ストロンチウム、塩化バリウム、塩化カルシウム、塩化タングステン、塩化インジウム及び塩化ガリウム等の公知の塩化物、又はそれらの混合物が挙げられ、塩化アルミニウム、塩化亜鉛、塩化ニオブが好ましく、塩化アルミニウム、塩化ニオブがさらに好ましく、塩化ニオブがもっとも好ましい。

[0102] 前記光散乱材において、無機微粒子に含まれる臭化物としては、臭化ケイ素、臭化アルミニウム、臭化亜鉛、臭化ニオブ、臭化ジルコニウム、臭化チタン、臭化マグネシウム、臭化セリウム、臭化イットリウム、臭化ストロンチウム、臭化バリウム、臭化カルシウム、臭化タングステン、臭化インジウム及び臭化ガリウム等の公知の臭化物、又はそれらの混合物が挙げられ、臭化アルミニウム、臭化亜鉛、臭化ニオブが好ましく、臭化アルミニウム、臭化ニオブがさらに好ましく、臭化ニオブがもっとも好ましい。

[0103] 前記光散乱材において、無機微粒子に含まれるヨウ化物としては、ヨウ化ケイ素、ヨウ化アルミニウム、ヨウ化亜鉛、ヨウ化ニオブ、ヨウ化ジルコニウム、ヨウ化チタン、ヨウ化マグネシウム、ヨウ化ガリウム、ヨウ化セリウム、ヨウ化イットリウム、ヨウ化ストロンチウム、ヨウ化バリウム、ヨウ化カルシウム、ヨウ化タングステン、ヨウ化インジウム等の公知のヨウ化物、又はその混合物が挙げられ、ヨウ化アルミニウム、ヨウ化亜鉛、ヨウ化ニオブが好ましく、ヨウ化アルミニウム、ヨウ化ニオブがさらに好ましく、ヨウ化ニオブがもっとも好ましい。

[0104] 前記光散乱材において、無機微粒子に含まれるフッ化物としては、フッ化ケイ素、フッ化アルミニウム、フッ化亜鉛、フッ化ニオブ、フッ化ジルコニウム、フッ化チタン、フッ化マグネシウム、フッ化セリウム、フッ化イット

リウム、フッ化ストロンチウム、フッ化バリウム、フッ化カルシウム、フッ化タングステン、フッ化インジウム、及びフッ化ガリウム等の公知のフッ化物、又はそれらの混合物が挙げられ、フッ化アルミニウム、フッ化亜鉛、フッ化ニオブが好ましく、フッ化アルミニウム、フッ化ニオブがさらに好ましく、フッ化ニオブがもっとも好ましい。

[0105] 光散乱材としては、組成物中を通過した光を散乱させて組成物の光の吸収量を向上させ、発光強度を向上させる観点から、酸化アルミニウム、酸化ケイ素、酸化亜鉛、酸化チタン、酸化ニオブ、酸化ジルコニウムが好ましく、酸化アルミニウムが好ましい。

[0106] 前記組成物中に含まれる光散乱材の粒径としては、特に制限はないが、 $0.1\ \mu\text{m}$ 以上、 $50\ \mu\text{m}$ 以下であり、好ましくは、 $0.3\ \mu\text{m}$ 以上、 $10\ \mu\text{m}$ 以下であり、より好ましくは、 $0.5\ \mu\text{m}$ 以上、 $5\ \mu\text{m}$ 以下である。

[0107] 前記組成物中に含まれる光散乱材の割合としては、特に制限はないが、 $0.1\ \text{wt}\%$ 以上、 $20\ \text{wt}\%$ 以下であり、好ましくは、 $1\ \text{wt}\%$ 以上、 $10\ \text{wt}\%$ 以下であり、より好ましくは、 $2\ \text{wt}\%$ 以上、 $7\ \text{wt}\%$ 以下である。

[0108] 前記組成物は、組成物が発する発光色を調整し、高色域化を図る得る観点から、本発明の蛍光体以外に別の発光材料を含んでいてもよい。前記組成物に含まれる本発明の蛍光体以外の別の発光材料としては、本発明の蛍光体以外の蛍光体や量子ドットが挙げられる。

[0109] 前記組成物中に含まれる量子ドットは、可視光波長領域において蛍光を発することができる量子ドット粒子であれば特に限定されず、例えば、 $\text{I}-\text{I}-\text{V}$ 族半導体化合物； $\text{I}-\text{I}-\text{I}-\text{V}$ 族半導体化合物； $\text{I}-\text{V}-\text{V}$ 族半導体化合物； $\text{I}-\text{V}$ 族元素又はこれを含む化合物；及びこれらの組み合わせからなる群より選択できる。これらは、単独又は2種以上を混合して使用することができる。

[0110] $\text{I}-\text{I}-\text{V}$ 族半導体化合物は、 CdS 、 CdSe 、 CdTe 、 ZnS 、 ZnSe 、 ZnTe 、 ZnO 、 HgS 、 HgSe 、 HgTe 及びこれらの混合物からなる群より選ばれる二元化合物； CdSeS 、 CdSeTe 、 CdS

Te、ZnSeS、ZnSeTe、ZnSTe、HgSeS、HgSeTe、HgSTe、CdZnS、CdZnSe、CdZnTe、CdHgS、CdHgSe、CdHgTe、HgZnS、HgZnSe、HgZnTe及びこれらの混合物からなる群より選ばれる三元化合物；並びにCdZnSeS、CdZnSeTe、CdZnSTe、CdHgSeS、CdHgSeTe、CdHgSTe、HgZnSeS、HgZnSeTe、HgZnSTe及びこれらの混合物からなる群より選ばれる四元化合物からなる群より選択されることができる。

[0111] 前記ⅢⅢ－Ⅴ族半導体化合物は、GaN、GaP、GaAs、GaSb、AlN、AlP、AlAs、AlSb、InN、InP、InAs、InSb及びこれらの混合物からなる群より選ばれる二元化合物；GaNP、GaNA s、GaNSb、GaPA s、GaPSb、AlNP、AlNA s、AlNSb、AlPA s、AlPSb、InNP、InNA s、InNSb、InPA s、InPSb、GaAlNP及びこれらの混合物からなる群より選ばれる三元化合物；並びにGaAlNA s、GaAlNSb、GaAlPA s、GaAlPSb、GaInNP、GaInNA s、GaInNSb、GaInPA s、GaInPSb、InAlNP、InAlNA s、InAlNSb、InAlPA s、InAlPSb及びこれらの混合物からなる群より選ばれる四元化合物からなる群より選択されることができる。

[0112] 前記Ⅴ－ⅤⅠ族半導体化合物は、SnS、SnSe、SnTe、PbS、PbSe、PbTe及びこれらの混合物からなる群より選ばれる二元化合物；SnSeS、SnSeTe、SnSTe、PbSeS、PbSeTe、PbSTe、SnPbS、SnPbSe、SnPbTe及びこれらの混合物からなる群より選ばれる三元化合物；並びにSnPbSSe、SnPbSeTe、SnPbSTe及びこれらの混合物からなる群より選ばれる四元化合物からなる群より選択されることができる。

[0113] 前記Ⅴ族元素又はこれを含む化合物は、Si、Ge及びこれらの混合物からなる群より選ばれる元素化合物；並びにSiC、SiGe及びこれらの

混合物からなる群より選ばれる二元化合物からなる群より選択されることができる。

[0114] 量子ドットは、均質の (homogeneous) 単一構造；コア－シェル (core-shell)、勾配 (gradient) 構造等のような二重構造；又はこれらの混合構造であることができる。

[0115] コア－シェル (core-shell) の二重構造において、各々のコア (core) とシェル (shell) を構成する物質は、前記言及された互いに相異なっている半導体化合物からなることができる。例えば、前記コアは、CdSe、CdS、ZnS、ZnSe、ZnTe、CdTe、CdSeTe、CdZnS、PbSe、AgInZnS、HgS、HgSe、HgTe、GaN、GaP、GaAs、InP、InAs及びZnOからなる群より選ばれる一つ以上の物質を含むことができるが、これに限定されるものではない。例えば、前記シェルは、CdSe、ZnSe、ZnS、ZnTe、CdTe、PbS、TiO₂、SrSe及びHgSeからなる群より選ばれる一つ以上の物質を含むことができるが、これに限定されるものではない。

[0116] 白色光を得る観点から、量子ドットはInPやCdSeが好ましい。

[0117] 量子ドットの直径は、特に限定されないが、赤色、緑色及び青色の量子ドット粒子は、粒径によって分類されることができ、赤色、緑色、青色の順に粒径が小さくなる。具体的には、赤色量子ドット粒子は、粒径が5 nm以上10 nm以下、緑色量子ドット粒子は、粒径が3 nm超5 nm以下、青色量子ドット粒子は、粒径が1 nm以上3 nm以下であることができる。光の照射時に、赤色量子ドット粒子は赤色光を放出し、緑色量子ドット粒子は緑色光を放出し、青色量子ドット粒子は青色光を放出する。

[0118] 前記組成物に含まれる本発明の蛍光体以外の蛍光体としては、特に制限はないが、例えば、硫化物系蛍光体、酸化物系蛍光体、窒化物系蛍光体、フッ化物系蛍光体、等が挙げられる。これらは、1種単独で使用してもよい、2種以上を併用してもよい。

[0119] 前記硫化物系蛍光体としては、例えば、CaS:Eu、SrS:Eu、S

$r\text{Ga}_2\text{S}_4:\text{Eu}$ 、 $\text{CaGa}_2\text{S}_4:\text{Eu}$ 、 $\text{Y}_2\text{O}_2\text{S}:\text{Eu}$ 、 $\text{La}_2\text{O}_2\text{S}:\text{Eu}$ 、 $\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S}:\text{Eu}$ 、等が挙げられる。

[0120] 前記酸化物系蛍光体の具体例としては、例えば、 $(\text{Ba}, \text{Sr})_3\text{SiO}_5:\text{Eu}$ 、 $(\text{Ba}, \text{Sr})_2\text{SiO}_4:\text{Eu}$ 、 $\text{Tb}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$ 、 $\text{Ca}_3\text{Sc}_2\text{Si}_3\text{O}_{12}:\text{Ce}$ 、等が挙げられる。

[0121] 前記窒化物系蛍光体の具体例としては、例えば、 $\text{CaSi}_5\text{N}_8:\text{Eu}$ 、 $\text{Sr}_2\text{Si}_5\text{N}_8:\text{Eu}$ 、 $\text{Ba}_2\text{Si}_5\text{N}_8:\text{Eu}$ 、 $(\text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba})_2\text{Si}_5\text{N}_8:\text{Eu}$ 、 $\text{Ca}_x(\text{Al}, \text{Si})_{12}(\text{O}, \text{N})_{16}:\text{Eu}$ ($0 < x \leq 1.5$)、 $\text{CaSi}_2\text{O}_2\text{N}_2:\text{Eu}$ 、 $\text{SrSi}_2\text{O}_2\text{N}_2:\text{Eu}$ 、 $\text{BaSi}_2\text{O}_2\text{N}_2:\text{Eu}$ 、 $(\text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba})\text{Si}_2\text{O}_2\text{N}_2:\text{Eu}$ 、 $\text{CaAl}_2\text{Si}_4\text{N}_8:\text{Eu}$ 、 $\text{CaSiN}_2:\text{Eu}$ 、 $\text{CaAlSiN}_3:\text{Eu}$ 、 $(\text{Sr}, \text{Ca})\text{AlSiN}_3:\text{Eu}$ 、等が挙げられる。

[0122] 前記フッ化物系蛍光体の具体例としては、特に制限はなく、例えば、 $\text{K}_2\text{TiF}_6:\text{Mn}^{4+}$ 、 $\text{Ba}_2\text{TiF}_6:\text{Mn}^{4+}$ 、 $\text{Na}_2\text{TiF}_6:\text{Mn}^{4+}$ 、 $\text{K}_3\text{ZrF}_7:\text{Mn}^{4+}$ 、 $\text{K}_2\text{SiF}_6:\text{Mn}^{4+}$ 、等が挙げられる。

[0123] 前記その他の蛍光体の具体例としては、特に制限はなく、例えば、 $(\text{Y}, \text{Gd})_3(\text{Al}, \text{Ga})_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$ (YAG:Ce) 等のYAG系蛍光体； $\text{Lu}(\text{Si}, \text{Al})_{12}(\text{O}, \text{N})_{16}:\text{Eu}$ 等のサイアロン系蛍光体；ペロブスカイト構造も持つペロブスカイト蛍光体等が挙げられる。

[0124] 前記組成物に含まれる本発明の蛍光体以外の蛍光体としては、白色光を得る観点から、赤色蛍光体であることが好ましく、 $\text{K}_2\text{SiF}_6:\text{Mn}^{4+}$ が好ましい。

[0125] 前記組成物中に含まれる本発明の蛍光体以外の発光材料の割合としては、特に制限はないが、0.1wt%以上、90wt%以下であり、好ましくは、1wt%以上、80wt%以下であり、より好ましくは、5wt%以上、60wt%以下である。

[0126] <フィルム>

本発明の蛍光体は、樹脂中に分散させ、フィルム形状として使用すること

ができる。フィルム形状は特に限定されるものではなく、シート状、バー状等の任意の形状であることができる。本明細書において「バー状の形状」とは、例えば、一方向に延在する平面視帯状の形状を意味する。平面視帯状の形状としては、例えば各辺の長さが異なる板状の形状が挙げられる。フィルムの厚さは、 $0.01\mu\text{m}\sim 1000\text{mm}$ であってよく、 $0.1\mu\text{m}\sim 10\text{mm}$ であってよく、 $1\mu\text{m}\sim 1\text{mm}$ であってもよい。本明細書においてフィルムの厚さは、フィルムの縦、横、高さの中で最も値の小さい辺を「厚さ方向」としたときの、フィルムの厚さ方向の表面と裏面との間の距離を指す。具体的には、マイクロメータを用い、フィルムの任意の3点においてフィルムの厚さを測定し、3点の測定値の平均値を、フィルムの厚さとする。また、フィルムは、単層であってよく、複層であってもよい。複層の場合、各層は同一の種類の実施形態の組成物から構成されていてよく、互いに異なる種類の実施形態の組成物から構成されていてもよい。

[0127] <焼結体>

本発明の蛍光体は、無機材料中に含有させ、焼結成型することで、本発明の蛍光体を含む焼結体として使用することができる。焼結体に使用する無機材料はガラス成分を使用してガラス成型体としてもよく、結晶性の無機材料成分を用いてもよい。

[0128] <ガラス成型体>

本発明の蛍光体は、ガラス中に分散させ、ガラス成型体として使用することができる。ガラス組成物に使用するガラス成分は特に制限はないが、 SiO_2 、 P_2O_5 、 GeO_2 、 BeF_2 、 As_2S_3 、 SiSe_2 、 GeS_2 、 TiO_2 、 TeO_2 、 Al_2O_3 、 Bi_2O_3 、 V_2O_5 、 Sb_2O_5 、 PbO 、 CuO 、 ZrF_4 、 AlF_3 、 InF_3 、 ZnCl_2 、 ZnBr_2 、 Li_2O 、 Na_2O 、 K_2O 、 MgO 、 BaO 、 CaO 、 SrO 、 LiCl 、 BaCl 、 BaF_2 及び LaF_3 が挙げられる。中でも耐久性、耐熱性、耐光性を向上させる観点から、 SiO_2 、又は Bi_2O_3 をガラス成分として含む事が好ましい。ガラス成分は1種でもよく、2種以上でもよい。

[0129] ガラス成型体中に含まれるガラス成分の割合としては、特に制限はないが、 $10\text{wt}\%$ 以上、 $99\text{wt}\%$ 以下であり、好ましくは、 $20\text{wt}\%$ 以上、 $80\text{wt}\%$ 以下であり、より好ましくは、 $30\text{wt}\%$ 以上、 $70\text{wt}\%$ 以下である。

[0130] ガラス成型体は、成型体中を通過した光を散乱させてガラス成型体の光の吸収量を向上させ、発光強度を向上させる観点から、光散乱材を含んでいてもよい。光散乱材としては、前記樹脂組成物に使用される光散乱材の無機微粒子と同様のものを使用することができる。

[0131] ガラス成型体に添加する光散乱材の添加量としては、前記樹脂組成物に使用される光散乱材と同様の添加量で使用するすることができる。

[0132] ガラス成型体は、ガラス成型体が発する発光色を調整し、高色域化を図る得る観点から、本発明の蛍光体以外に別の発光材料を含んでいてもよい。前記ガラス成型体に含まれる本発明の蛍光体以外の別の発光材料としては、前記樹脂組成物に使用される発光材料と同様のものが使用できる。

[0133] ガラス成型体に添加する発光材料の添加量としては、前記樹脂組成物に使用される発光材料と同様の添加量で使用するすることができる。

[0134] ガラス成型体の形状は、特に制限はないが、板状、棒状、円柱状、ホイール状の形状などが挙げられる。

[0135] <発光素子>

本発明の蛍光体は、光源と併せて、発光素子を構成することができる。光源としては、特に $350\text{nm}\sim 500\text{nm}$ の波長を含む紫外光又は可視光を放射するLEDが用いることができる。本発明の蛍光体に前記波長の光を照射すると、蛍光体は波長 $510\text{nm}\sim 550\text{nm}$ にピークを有する緑色光を発する。このため、本発明の蛍光体は、例えば紫外LEDや青色LEDを光源として用い、他の赤色蛍光体とも組み合わせて、白色発光素子を構成することができる。

[0136] <発光装置>

本発明の蛍光体は、前記のように、白色発光素子を構成することができ、

該白色発光素子は、発光装置の部材として使用することができる。発光装置では、光源からの光は発光素子に照射され、照射された発光素子は発光して、該光が取り出される。

[0137] <ディスプレイ>

本発明の蛍光体と光源とを含む発光素子は、ディスプレイに使用することができる。かかるディスプレイの例としては、発光素子由来の光の透過率を液晶でコントロールし、カラーフィルタにより透過光を赤色光、青色光、及び緑色光と選択して取り出すことができる、液晶ディスプレイ等が挙げられる。

[0138] <蛍光体ホイール>

本発明の蛍光体は、蛍光体ホイールの製造に使用することができる。蛍光体ホイールは円板状基盤と、その表面に形成され蛍光体層とを有する部材である。蛍光体ホイールは、光源から照射された励起光を吸収し、励起して波長の異なる変換光を射出する。例えば、蛍光体ホイールは、青色の励起光を吸収し、蛍光体層で変換された青色の励起光とは異なる変換光を放射させるとともに、青色の励起光を反射させて、変換光と合わせて、または変換光のみを利用して、様々な色の光に変換できる。

[0139] <プロジェクター>

本発明の蛍光体は、前記蛍光体ホイールを使用したプロジェクターを構成する部材として使用することができる。プロジェクターは光源、蛍光体ホイール、ミラーデバイス、投射光学系を備える表示装置である。

実施例

[0140] 以下、実施例により本発明を更に詳細に説明する。本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

[0141] <実施例 1 ～ 6 及び比較例 1 及び 2>

蛍光体原料として、酸化アルミニウム粉末（グレード：A A 1 8（純度：99.99%、D50：20.3 μ m、比表面積：0.2 m²/g）、住友化学株式会社製）、酸化マグネシウム粉末（MgO（純度：4N）、関東化学

株式会社製)、炭酸マンガ粉末 (MnCO_3 (純度: 99.9%))、シグマアルドリッチジャパン合同会社製)、窒化アルミニウム粉末 (AlN (純度 99.9%))、株式会社 高純度化学研究所製)を用いた。焼成後に炭酸マンガ中の炭酸が二酸化炭素 (CO_2) として脱離することを考慮して、焼成後の蛍光体が $\text{Mn} : \text{Mg} : \text{Al} : \text{O} : \text{N}$ のモル比率が表 1 に示すモル比率になるように各原料を秤量し、3 分間乾式混合した。次に、混合後の原料をアルミナ製容器に充填した。続いて、アルミナ製容器を電気炉内にセットし、水素 : 窒素 = 10 : 90 の混合ガスを導入した。1550℃まで昇温し、4 時間加熱を行い、その後放冷した。容器から加熱品を回収して解砕を行い、蛍光体を得た。

[0142] <各種測定及び評価>

実施例及び比較例で作製した蛍光体について、下記項目を測定した。

[0143] (a) XRD ピークの半値幅

X 線回折装置 (PANalytical 社製「X'Pert Pro」(商品名))を用いて、 $\text{CuK}\alpha$ 線を用いた粉末 X 線回折を行った。得られた X 線回折パターンは、全てのサンプルにおいてスピネル構造であり、 $2\theta = 36.8 \pm 0.5^\circ$ の位置にピークを持つことが確認された。 $2\theta = 36.8 \pm 0.5^\circ$ における XRD ピークの半値幅は、統合粉末 X 線解析ソフトウェア PDXL (リガク社製)を用いて算出した。

[0144] (b) 発光ピークの発光強度

絶対 PL 量子収率測定装置 (浜松ホトニクス製、商品名 C9920-02、励起光 450 nm、室温、大気下、150 mg 使用)を用いて発光スペクトルを測定し、発光ピークの発光強度及び半値幅を測定した。いずれの蛍光体も 470~800 nm の発光を測定した際に、510 nm~550 nm の範囲に極大の発光ピークを示す緑色発光の蛍光体であることを確認した。発光強度の評価方法を以下に示す。

[0145] 測定したスペクトルから発光ピークの面積を決定し、実施例 1 の発光ピーク面積を 100 として換算し、相対発光強度を算出した。相対発光強度の評

価基準は次の通りとした。

A：相対発光強度が84以上（良好）

B：相対発光強度が77以上（可）

C：相対発光強度が77未満（不可）

[0146] 各実施例及び比較例の測定結果及び評価結果を表1に示す。

[0147] [表1]

No.	モル比率（合計1）					XRD半値幅 ($2\theta=36.8^\circ\pm0.5$)	相対発 光強度	評価
	M	Mg	Al	O	N			
実施 例1	0.0100	0.1329	0.2857	0.5714	0.00001	0.096	100.0	A
実施 例2	0.0100	0.1329	0.2858	0.5711	0.00029	0.094	93.2	A
実施 例3	0.0103	0.1221	0.2942	0.5732	0.00029	0.098	99.7	A
実施 例4	0.0100	0.1330	0.2861	0.5680	0.00286	0.099	83.9	B
実施 例5	0.0103	0.1224	0.2948	0.5676	0.00486	0.103	82.3	B
実施 例6	0.0101	0.1338	0.2878	0.5540	0.01439	0.098	81.3	B
比較 例1	0.0100	0.1329	0.2857	0.5714	0.00000	0.093	76.2	C
比較 例2	0.0101	0.1348	0.2899	0.5362	0.02899	0.134	65.9	C

[0148] 表1より、MnドーブMgAl₂O₄系スピネル型酸化物蛍光体に窒素原子を導入することで蛍光体の発光強度が向上し、その効果は、 $2\theta=36.8\pm0.5^\circ$ におけるXRDピークの半値幅が0.134未満である場合に維持されることがわかる。

[0149] <実施例7>

蛍光体のコア部の原料として、酸化アルミニウム粉末（グレード：AA1

8（純度：99.99%、D50：20.3 μ m、比表面積：0.2m²/g）、住友化学株式会社製）、酸化マグネシウム粉末（MgO（純度：4N）、関東化学株式会社製）、炭酸マンガン粉末（MnCO₃（純度：99.9%）、シグマアルドリッチジャパン合同会社製）、窒化アルミニウム粉末（AlN（純度99.9%）、株式会社 高純度化学研究所製）を用いた。焼成後に炭酸マンガン中の炭酸が二酸化炭素（CO₂）として脱離することを考慮して、焼成後の蛍光体がMn:Mg:Al:O:Nのモル比率が表2に示すモル比率になるように各原料を秤量した。次いで、シェル部の原料として、酸化ホウ素（B₂O₃（純度：99.995%）、株式会社高純度化学研究所製）を前記コア部の原料の1重量%秤量し、原料に加えて3分間乾式混合した。次に、混合後の原料をアルミナ製容器に充填した。続いて、アルミナ製容器を電気炉内にセットし、水素：窒素＝10：90の混合ガスを導入した。1550℃まで昇温し、4時間加熱を行い、その後放冷した。容器から加熱品を回収して解砕を行い、シェル部を有する蛍光体を得た。

[0150] <各種測定及び評価>

実施例7で作製した蛍光体について、下記項目を測定した。

[0151] (a) XRDピークの半値幅

X線回折装置（PANalytical社製「X'Pert Pro」（商品名））を用いて、CuK α 線を用いた粉末X線回折を行った。得られたX線回折パターンは、スピネル構造であり、 $2\theta = 36.8 \pm 0.5^\circ$ の位置にピークを持つことが確認された。 $2\theta = 36.8 \pm 0.5^\circ$ におけるXRDピークの半値幅は、統合粉末X線解析ソフトウェアPDXL（リガク社製）を用いて算出した。

[0152] (b) 発光ピークの発光強度

絶対PL量子収率測定装置（浜松ホトニクス製、商品名C9920-02、励起光450nm、室温、大気下、150mg使用）を用いて発光スペクトルを測定し、発光ピークの発光強度及び半値幅を測定した。実施例7で得られた蛍光体は470～800nmの発光を測定した際に、510nm～5

50 nmの範囲に極大の発光ピークを示す緑色発光の蛍光体であることを確認した。発光強度の評価方法を以下に示す。

[0153] 測定したスペクトルから発光ピークの面積を決定し、実施例1の発光ピーク面積を100として換算し、相対発光強度を算出した。相対発光強度の評価基準は次の通りとした。

A：相対発光強度が84以上（良好）

B：相対発光強度が77以上（可）

C：相対発光強度が77未満（不可）

[0154] 実施例7の測定結果及び評価結果を表2に示す。

[0155] [表2]

No.	モル比率（合計1）					XRD半値幅 ($2\theta=36.8\pm0.5^\circ$)	相対発 光強度	評価
	M	Mg	Al	O	N			
実施 例7	0.0100	0.1329	0.2858	0.5711	0.00029	0.106	98.8	A

[0156] <参考例1>

実施例1～6又は実施例7に記載の蛍光体を樹脂と複合化して、ガラスチューブ等の中に入れて封止した後に、これを光源である青色発光ダイオードと導光板の間に配置することで、青色発光ダイオードの青色光を緑色光や赤色光に変換することができるバックライトを製造する。

[0157] <参考例2>

実施例1～6又は実施例7に記載の蛍光体を樹脂と複合化してシート化する事で樹脂組成物を得ることができ、これを2枚のバリアーフィルムで挟んで封止したフィルムを導光板の上に設置することで、導光板の端面（側面）に置かれた青色発光ダイオードから導光板を通して前記シートに照射される青色の光を緑色光や赤色光に変換することができるバックライトを製造する。

[0158] <参考例3>

実施例 1 ～ 6 又は実施例 7 に記載の蛍光体を、青色発光ダイオードの発光部近傍に設置することで照射される青色の光を緑色光や赤色光に変換することができるバックライトを製造する。

[0159] <参考例 4>

実施例 1 ～ 6 又は実施例 7 に記載の蛍光体とレジストを混合した後に、溶媒を除去する事で波長変換材料を得ることができる。得られた波長変換材料を光源である青色発光ダイオードと導光板の間や、光源である OLED の後段に配置することで、光源の青色光を緑色光や赤色光に変換することができるバックライトを製造する。

[0160] <参考例 5>

実施例 1 ～ 6 又は実施例 7 に記載の蛍光体を ZnS などの導電性粒子を混合して成膜し、片面に n 型輸送層を積層し、もう片面を p 型輸送層で積層することで LED を得る。電流を流すことにより p 型半導体の正孔と、n 型半導体の電子が接合面のペロブスカイト化合物中で電荷を打ち消されることで発光させることができる。

[0161] <参考例 6>

フッ素ドーパされた酸化スズ (FTO) 基板の表面上に、酸化チタン緻密層を積層させ、その上から多孔質酸化アルミニウム層を積層し、その上に実施例 1 ～ 6 又は実施例 7 に記載の蛍光体を積層し、溶媒を除去した後にその上から 2, 2', 7, 7' - t e t r a k i s - (N , N ' - d i - p - m e t h o x y p h e n y l a m i n e) - 9 , 9 ' - s p i r o b i f l u o r e n e (Spiro-OMeTAD) などのホール輸送層を積層し、その上に銀 (Ag) 層を積層し、太陽電池を作製する。

[0162] <参考例 7>

実施例 1 ～ 6 又は実施例 7 に記載の蛍光体と樹脂を複合化して成形する事で本実施形態の組成物を得ることができ、これを青色発光ダイオードの後段に設置することで、青色発光ダイオードから組成物に照射される青色の光を緑色光や赤色光に変換して白色光を発するレーザーダイオード照明を製造す

る。

[0163] ＜参考例 8＞

実施例 1 ～ 6 又は実施例 7 に記載の蛍光体を樹脂もしくはガラスと複合化して成形する事で本実施形態の組成物を得ることができる。得られた組成物を光電変換層の一部とすることで、光を検知する検出部に使用する含まれる光電変換素子（光検出素子）材料を製造する。光電変換素子材料は、X線撮像装置及びCMOSイメージセンサーなどの固体撮像装置用のイメージ検出部（イメージセンサー）、指紋検出部、顔検出部、静脈検出部及び虹彩検出部などの生体の一部分の所定の特徴を検出する検出部、パルスオキシメーターなどの光学バイオセンサーに用いられる。またこれらの成型体を用いて、X線・ γ 線などの放射線を吸収し、可視光へ変換するシンチレータに用いられる。

[0164] ＜参考例 9＞

実施例 1 ～ 6 又は実施例 7 に記載の蛍光体を樹脂もしくはガラスと複合化して成形する事で本実施形態の組成物を得ることができる。得られた組成物を太陽電池の光変換効率を向上するフィルムとして用いることができる。前記、変換効率向上シートの形態としては、特に限定されないが、基材に塗布する形で利用する。基材に関しては特に限定されず、透明性の高い基材であればよい。例えば、PETフィルムやモスアイフィルムなどが望ましい。太陽電池変換効率向上シートを用いる太陽電池は特に限定せず、変換効率向上シートは、太陽電池の感度が低い波長領域から、感度の高い波長領域へと変換機能を有する。

[0165] ＜参考例 10＞

実施例 1 ～ 6 又は実施例 7 に記載の蛍光体を樹脂と複合化して成形する事で本実施形態の組成物を得ることができる。得られた組成物を量子コンピュータ、量子テレポーテーションおよび量子暗号通信などの単一光子発生用光源として利用することができる。

請求の範囲

[請求項1] 式

$$M_x M g_a A l_y O_z N_w \quad (1)$$

[式(1)中、Mは、マンガン、ストロンチウム、セリウム、プラセオジウム、ネオジウム、サマリウム、ユウロピウム、ガドリニウム、テルビウム、ジスプロシウム、ツリウム及びイッテルビウムからなる群から選択される少なくとも1つの金属元素を表し、 $x + a + y + z + w = 1$ としたとき、 x は $0.00001 \leq x \leq 0.2$ であり、 a は $0 \leq a \leq 0.4$ であり、 y は $0.01 \leq y \leq 0.9$ であり、 z は $0.1 \leq z \leq 0.98$ であり、 w は $0 < w \leq 0.5$ である。]

で表され、 $2\theta = 36.8 \pm 0.5^\circ$ におけるXRDピークの半値幅が 0.093 より大きく 0.134 未満である蛍光体。

[請求項2] w は $0 < w \leq 0.027$ である、請求項1に記載の蛍光体。[請求項3] w は $0 < w < 0.005$ である、請求項1に記載の蛍光体。[請求項4] a は $0 \leq a \leq 0.13$ である、請求項1に記載の蛍光体。[請求項5] $2\theta = 36.8 \pm 0.5^\circ$ におけるXRDピークの半値幅が $0.094 \sim 0.106$ である、請求項1に記載の蛍光体。

[請求項6] Mはマンガン、ストロンチウム、ユウロピウム、セリウム及びテルビウムからなる群から選択される少なくとも1つの金属元素を表す、請求項1に記載の蛍光体。

[請求項7] スピネル型結晶構造を有する、請求項1に記載の蛍光体。

[請求項8] 請求項1に記載の蛍光体から成るコア部と、該コア部の表面の少なくとも一部に形成されたシェル部とを有する蛍光体。

[請求項9] 請求項1～8のいずれか一項に記載の蛍光体を含む、フィルム。

[請求項10] 請求項1～8のいずれか一項に記載の蛍光体を含む、発光素子。

[請求項11] 請求項10に記載の発光素子を備える、発光装置。

[請求項12] 請求項10に記載の発光素子を備える、ディスプレイ。

[請求項13] 請求項1～8のいずれか一項に記載の蛍光体を含む、焼結体。

- [請求項14] 請求項1～8のいずれか一項に記載の蛍光体を含む、蛍光体ホイール。
- [請求項15] 請求項14に記載の蛍光体ホイールを使用したプロジェクター。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2022/017050

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C09K 11/00(2006.01)i; **C09K 11/64**(2006.01)i; **G03B 21/14**(2006.01)i; **H01L 33/50**(2010.01)i; **G02B 5/20**(2006.01)i
 FI: C09K11/64; C09K11/00 A; C09K11/00 Z; H01L33/50; G02B5/20; G03B21/14 A

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)

C09K11/00; C09K11/64; G03B21/14; H01L33/50; 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 1971-2022
 Registered utility model specifications of Japan 1996-2022
 Published registered utility model applications of Japan 1994-2022

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.
X	JP 2018-109078 A (DENKA CO LTD) 12 July 2018 (2018-07-12)	1-2, 4-15
A	claims, examples 1-8, comparative examples 1-3	3
X	JP 2019-99617 A (DENKA CO LTD) 24 June 2019 (2019-06-24)	1-2, 4-15
A	claims, examples 1-7, comparative examples 1-12	3
X	WO 2007/099862 A1 (NATIONAL INSTITUTE FOR MATERIALS SCIENCE) 07 September 2007 (2007-09-07)	1-2, 4, 6, 8-15
A	claims, examples 44-46	3

☐ 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

24 May 2022

Date of mailing of the international search report

07 June 2022

Name and mailing address of the ISA/JP

Japan Patent Office (ISA/JP)
 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915
 Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2022/017050

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP	2018-109078	A	12 July 2018	(Family: none)	
JP	2019-99617	A	24 June 2019	(Family: none)	
WO	2007/099862	A1	07 September 2007	US 2009/0121608 A1	
				examples 44-46, claims	
				EP 1997865 A1	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C09K 11/00(2006.01)i; C09K 11/64(2006.01)i; G03B 21/14(2006.01)i; H01L 33/50(2010.01)i; G02B 5/20(2006.01)i FI: C09K11/64; C09K11/00 A; C09K11/00 Z; H01L33/50; G02B5/20; G03B21/14 A														
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）） C09K11/00; C09K11/64; G03B21/14; H01L33/50; 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 <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2022年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2022年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2022年</td> </tr> </table> 国際調査で利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)			日本国実用新案公報	1922-1996年	日本国公開実用新案公報	1971-2022年	日本国実用新案登録公報	1996-2022年	日本国登録実用新案公報	1994-2022年				
日本国実用新案公報	1922-1996年													
日本国公開実用新案公報	1971-2022年													
日本国実用新案登録公報	1996-2022年													
日本国登録実用新案公報	1994-2022年													
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 2018-109078 A（デンカ株式会社）12.07.2018（2018-07-12） 特許請求の範囲、実施例1-8、比較例1-3	1-2, 4-15 3												
X A	JP 2019-99617 A（デンカ株式会社）24.06.2019（2019-06-24） 特許請求の範囲、実施例1-7、比較例1-12	1-2, 4-15 3												
X A	WO 2007/099862 A1（独立行政法人物質・材料研究機構）07.09.2007（2007-09-07） 特許請求の範囲、実施例44-46	1-2, 4, 6, 8-15 3												
☐ 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。														
<table border="0"> <tr> <td>* 引用文献のカテゴリー</td> <td>“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</td> </tr> <tr> <td>“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの</td> <td>“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</td> </tr> <tr> <td>“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</td> <td>“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</td> </tr> <tr> <td>“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）</td> <td>“&” 同一パテントファミリー文献</td> </tr> <tr> <td>“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</td> <td></td> </tr> <tr> <td>“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</td> <td></td> </tr> </table>			* 引用文献のカテゴリー	“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	“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの	“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	“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	“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	“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）	“&” 同一パテントファミリー文献	“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	
* 引用文献のカテゴリー	“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													
“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの	“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													
“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	“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													
“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）	“&” 同一パテントファミリー文献													
“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														
国際調査を完了した日 24.05.2022		国際調査報告の発送日 07.06.2022												
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） 黒川 美陶 4V 3342 電話番号 03-3581-1101 内線 3483												

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2022/017050

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP	2018-109078	A	12.07.2018	(ファミリーなし)	
JP	2019-99617	A	24.06.2019	(ファミリーなし)	
WO	2007/099862	A1	07.09.2007	US 2009/0121608 A1	
				Examples 44-46, Claims	
				EP 1997865 A1	