

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges

Eigentum

Internationales Büro

(43) Internationales

Veröffentlichungsdatum

3. April 2014 (03.04.2014)



(10) Internationale Veröffentlichungsnummer

WO 2014/048577 A1

(51) Internationale Patentklassifikation:

G07D 7/00 (2006.01) B42D 15/10 (2006.01)

B42D 15/00 (2006.01) G07D 7/12 (2006.01)

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2013/002918

(22) Internationales Anmeldedatum:

27. September 2013 (27.09.2013)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:

102012019251.7

28. September 2012 (28.09.2012)

DE

(71) Anmelder: GIESECKE & DEVRIENT GMBH  
[DE/DE]; Prinzregentenstrasse 159, 81677 München (DE).

(72) Erfinder: GIERING, Thomas; Am Kleinfeld 12, 85614  
Kirchseeon (DE). KECHT, Johann; Beblostraße 3, 81677  
München (DE). RAUSCHER, Wolfgang; Untere  
Ringstraße 4, 94365 Parkstetten (DE). STEINLEIN,  
Stephan; Oettingenstraße 60, 80538 München (DE).

(81) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für  
jede verfügbare nationale Schutzrechtsart): 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, IS, JP, KE, KG, KN, KP,  
KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, 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.

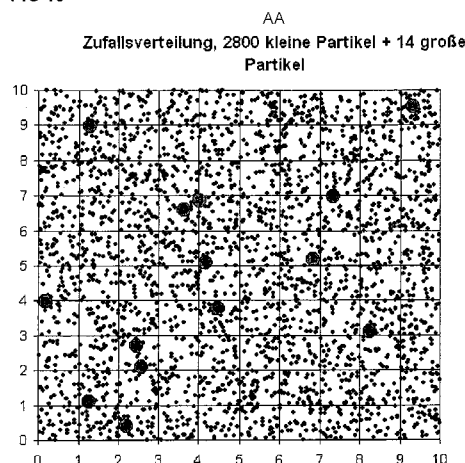
(84) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für  
jede verfügbare regionale Schutzrechtsart): ARIPO (BW,  
GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ,  
TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches (AM, AZ, BY, KG, KZ,  
RU, TJ, TM), europäisches (AL, AT, BE, BG, CH, CY,  
CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, 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).

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: METHOD FOR CHECKING A VALUE DOCUMENT, VALUE DOCUMENT, USE THEREOF AND VALUE  
DOCUMENT SYSTEM

(54) Bezeichnung : VERFAHREN ZUR PRÜFUNG EINES WERTDOKUMENTS, WERTDOKUMENT, VERWENDUNG  
DESSELBEN UND WERTDOKUMENTSYSTEM

FIG 13



(57) Abstract: The invention relates to a method for checking a value  
document, especially the authenticity and/or the nominal value of a value  
document having characteristic luminescent substances, the method  
comprising the steps of: a1) carrying out a location-specific measurement  
of first luminescence intensities (L1) at a first emission wavelength in  
different locations of the value document having the location coordinates  
(O), to thereby obtain pairs of measured values (O/L1); b1) statistically  
analyzing the first luminescence intensities (L1) measured on the basis of  
the individual location coordinates (O), by determining at least one  
statistical parameter by way of a statistical method; and c1) comparing the  
statistical parameter determined in step b1) to one or more threshold  
values.

(57) Zusammenfassung: Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Prüfung,  
insbesondere der Echtheit und/ oder des Nennwerts, eines Wertdokuments  
mit lumineszierenden Merkmalsstoffen, umfassend: a1) den Schritt des  
Durchführens einer ortspezifischen Messung von ersten  
Lumineszenzintensitäten (L1) bei einer ersten Emissionswellenlänge an  
verschiedenen, die Ortskoordinaten (O) aufweisenden Orten des  
Wertdokuments, um auf diese Weise (O/L1)-Meßwertpaare zu gewinnen;  
b1) den Schritt des statistischen Analysierens der in Abhängigkeit von den  
einzelnen Ortskoordinaten (O) gemessenen ersten Lumineszenzintensitäten  
(L1), indem anhand einer statistischen Methode zumindest eine statistische  
Kenngröße bestimmt wird; und c1) den Schritt des Vergleichens der im  
Schritt b1) bestimmten statistischen Kenngröße mit einem oder mehreren  
Schwellwerten.

AA Random distribution, 2800 small particles + 14 large particles

WO 2014/048577 A1



**Erklärungen gemäß Regel 4.17:**

— *hinsichtlich der Berechtigung des Anmelders, ein Patent zu beantragen und zu erhalten (Regel 4.17 Ziffer ii)*

**Veröffentlicht:**

— *mit internationalem Recherchenbericht (Artikel 21 Absatz 3)*

Verfahren zur Prüfung eines Werdokuments, Werdokument, Verwendung desselben und Werdokumentsystem

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Prüfung, insbesondere der Echtheit  
5 und/oder des Nennwerts, eines Werdokuments mit lumineszierenden  
Merkmalsstoffen. Die Erfindung betrifft darüber hinaus Werdokumente, die  
an das Verfahren zur Prüfung angepasst sind, und deren Verwendung in  
dem Verfahren. Die Erfindung betrifft des Weiteren Werdokumentsysteme  
mit Werdokumenten verschiedener Nennwerte oder Währungen.

10

Die Echtheitssicherung von Werdokumenten mittels lumineszierender Sub-  
stanzen ist seit langem bekannt. Bevorzugt werden mit Seltenerdmetallen  
dotierte Wirtsgitter eingesetzt, wobei durch geeignete Abstimmung von Sel-  
tenerdmetall und Wirtsgitter die Absorptions- und Emissionsbereiche in ei-  
15 nem breiten Bereich variiert werden können. Auch die Verwendung magne-  
tischer und elektrisch leitfähiger Materialien zur Echtheitssicherung ist be-  
kannt. Magnetismus, elektrische Leitfähigkeit und Lumineszenzemission  
sind durch im Handel verfügbare Messgeräte maschinell nachweisbar, Lu-  
minescenz bei Emission im sichtbaren Bereich in ausreichender Intensität  
20 auch visuell.

Die WO 2005/036481 A1 beschreibt eine Vorrichtung und ein Verfahren zur  
Prüfung von Werdokumenten mit lumineszierenden Merkmalsstoffen. In-  
dem die Auswertung der erfassten Lumineszenzstrahlung auf der Grundla-  
25 ge einer integrierten Lumineszenzmessung durchgeführt wird, d.h. durch  
eine Integration der gemessenen Lumineszenzstrahlung einer sich quer über  
das Werdokument erstreckenden Spur, ist eine besonders leichte Erfassung  
und Unterscheidung von schwach leuchtenden Merkmalsstoffen möglich.

30 Aus der DE 10 2005 033 598 A1 ist ein blattförmiges Werdokument mit lu-  
mineszierenden Merkmalsstoffen und die Herstellung und Prüfung eines

solchen Wertdokuments bekannt. Das darin beschriebene Wertdokument enthält einen lumineszierenden Merkmalsstoff, der sowohl vollflächig mit geringer Konzentration, als auch an bestimmten Teilflächen mit höherer Konzentration vorhanden ist.

5

Ausgehend von dem vorangehend zitierten Stand der Technik liegt der vorliegenden Erfindung die Aufgabe zugrunde, ein mit Bezug auf die Fälschungssicherheit verbessertes Wertdokument sowie ein Verfahren zum Überprüfen des Vorliegens desselben bereitzustellen.

10

Zusammenfassung der Erfindung

1. (Erster Aspekt) Verfahren zur Prüfung, insbesondere der Echtheit und/oder des Nennwerts, eines Wertdokuments mit lumineszierenden

15 Merkmalsstoffen, umfassend:

a1) den Schritt des Durchführens einer ortspezifischen Messung von ersten Lumineszenzintensitäten (L1) bei einer ersten Emissionswellenlänge an verschiedenen, die Ortskoordinaten (O) aufweisenden Orten des Wertdokuments, um auf diese Weise (O/L1)-Meßwertpaare zu gewinnen;

20 b1) den Schritt des statistischen Analysierens der in Abhängigkeit von den einzelnen Ortskoordinaten (O) gemessenen ersten Lumineszenzintensitäten (L1), indem anhand einer statistischen Methode zumindest eine statistische Kenngröße bestimmt wird; und

c1) den Schritt des Vergleichens der im Schritt b1) bestimmten statistischen

25 Kenngröße mit einem oder mehreren Schwellwerten.

Der Schritt c1) ist insbesondere der Schritt des Überprüfens, ob die im Schritt b1) bestimmte statistische Kenngröße oberhalb oder unterhalb eines bestimmten Grenzwerts liegt, oder ob die im Schritt b1) bestimmte statistische

- 3 -

Kenngröße innerhalb eines Bereichs, der von einem unteren Grenzwert und einem oberen Grenzwert gebildet wird, liegt.

- 1a. (Erster Aspekt – Variante von Absatz 1) Verfahren zur Prüfung, insbesondere der Echtheit und/oder des Nennwerts, eines Wertdokuments mit nicht-lumineszierenden Merkmalsstoffen, umfassend:
- 5      a1) den Schritt des Durchführens einer ortspezifischen Messung von ersten Messsignalintensitäten (L1) an verschiedenen, die Ortskoordinaten (O) aufweisenden Orten des Wertdokuments, um auf diese Weise (O/L1)-
- 10     Meßwertpaare zu gewinnen;
- b1) den Schritt des statistischen Analysierens der in Abhängigkeit von den einzelnen Ortskoordinaten (O) gemessenen ersten Messsignalintensitäten (L1), indem anhand einer statistischen Methode zumindest eine statistische Kenngröße bestimmt wird; und
- 15     c1) den Schritt des Vergleichens der im Schritt b1) bestimmten statistischen Kenngröße mit einem oder mehreren Schwellwerten.
- Der Schritt c1) ist insbesondere der Schritt des Überprüfens, ob die im Schritt b1) bestimmte statistische Kenngröße oberhalb oder unterhalb eines bestimmten Grenzwerts liegt, oder ob die im Schritt b1) bestimmte statistische
- 20     Kenngröße innerhalb eines Bereichs, der von einem unteren Grenzwert und einem oberen Grenzwert gebildet wird, liegt. Der nicht-lumineszierende Merkmalsstoff kann insbesondere ein mittels Kernresonanzspektroskopie, Eltronenspinresonanzspektroskopie, Kernquadrupolresonanzspektroskopie, SER(Surface Enhanced Raman)-Spektroskopie oder SEIRA(Surface Enhanced
- 25     Infrared Absorption)-Spektroskopie nachweisbarer Stoff sein.

2. (bevorzugt) Verfahren nach Absatz 1, wobei die statistische Methode und die statistische Kenngröße von den Methoden und Kenngrößen des Gebietes der deskriptiven Statistik oder der numerischen Klassifikationsverfahren

- 4 -

gewählt sind, wobei das Gebiet der deskriptiven Statistik bevorzugt wird und darunter insbesondere das Gebiet der Streuungsmaße bevorzugt wird, und wobei das Gebiet der numerischen Klassifikationsverfahren ebenfalls bevorzugt wird und darunter insbesondere eine Anwendung auf Häufigkeitsverteilungsdaten und/oder Häufigkeitsräume bevorzugt wird.

3. (bevorzugt) Verfahren nach Absatz 1, wobei zur Bestimmung der statistischen Kenngröße pro Werdokument mindestens 20, bevorzugt mindestens 40, besonders bevorzugt mindestens 100 (O/L1)-Meßwertpaare ausgewertet werden.

4. (bevorzugt) Verfahren nach einem der Absätze 1 bis 3, wobei die für den Schritt des statistischen Analysierens herangezogenen Lumineszenzintensitäten jeweils mittels eines Algorithmus umgerechnete, korrigierte Lumineszenzintensitäten sind.

5. (bevorzugt) Verfahren nach Absatz 4, wobei das Werdokument einen zusätzlichen, als Normierstoff geeigneten, lumineszierenden Merkmalsstoff aufweist, so dass Effekte, die die Messung der Lumineszenzintensitäten beeinflussen, wie z.B. eine Abschwächung von gemessenen Lumineszenzintensitäten durch partielle Überdruckung des Werdokuments, auf Basis der gemessenen Lumineszenzintensität des Normierstoffes korrigierbar sind.

6. (bevorzugt) Verfahren nach einem der Absätze 1 bis 5, wobei die im Schritt b1) genannten Lumineszenzintensitäten eine bimodale Häufigkeitsverteilung bilden, d.h. in einem Histogramm, in dem die relative Häufigkeit in Abhängigkeit von der Intensität aufgetragen wird, hat die Häufigkeitsverteilung die Form von insgesamt zwei Gipfeln mit genau zwei Maxima.

- 5 -

6a. (bevorzugt – Variante von Absatz 6) Verfahren nach Absatz 1a, wobei die  
im Schritt b1) genannten Messsignalintensitäten eine bimodale Häufigkeits-  
verteilung bilden, d.h. in einem Histogramm, in dem die relative Häufigkeit  
in Abhängigkeit von der Intensität aufgetragen wird, hat die Häufigkeitsver-  
teilung die Form von insgesamt zwei Gipfeln mit genau zwei Maxima.

7. (bevorzugt) Verfahren nach einem der Absätze 1 bis 5, wobei:  
die im Schritt b1) genannten Lumineszenzintensitäten eine multimodale  
bzw. polymodale Häufigkeitsverteilung bilden, d.h. in einem Histogramm,  
in dem die relative Häufigkeit in Abhängigkeit von der Intensität aufgetra-  
gen wird, hat die Häufigkeitsverteilung die Form einer Mehrzahl (n) von  
Gipfeln mit genau (n) Maxima, wobei  $n \geq 3$  ist.

7a. (bevorzugt – Variante von Absatz 7) Verfahren nach Absatz 1a, wobei:  
die im Schritt b1) genannten Messsignalintensitäten eine multimodale bzw.  
polymodale Häufigkeitsverteilung bilden, d.h. in einem Histogramm, in dem  
die relative Häufigkeit in Abhängigkeit von der Intensität aufgetragen wird,  
hat die Häufigkeitsverteilung die Form einer Mehrzahl (n) von Gipfeln mit  
genau (n) Maxima, wobei  $n \geq 3$  ist.

20

8. (Zweiter Aspekt) Werdokument, das an das Verfahren zur Prüfung, ins-  
besondere seiner Echtheit und/oder seines Nennwerts, nach Absatz 1 oder 6  
angepasst ist, wobei:

das Werdokument erste lumineszierende Partikel, die mit einer ersten  
Emissionswellenlänge emittieren, aufweist;

die ersten lumineszierenden Partikel mit bimodaler Größenverteilung,  
d.h. mit zwei voneinander abgegrenzten, bestimmten Größen, gebildet sind;  
und

die ersten lumineszierenden Partikel in homogener Verteilung im  
Wertdokument vorliegen.

5 Mit der Formulierung „lumineszierende Partikel, die mit zwei voneinander  
abgegrenzten, bestimmten Größen, gebildet sind“ ist insbesondere gemeint,  
dass im Histogramm der Korngrößenverteilung (siehe Fig. 26, die Auftra-  
gung der relativen Häufigkeit in Abhängigkeit von der Korngröße) zwei  
separate Maxima bzw. Gipfel vorliegen, die voneinander verschieden, d.h.  
nicht identisch, sind. Dabei kann zum Teil eine Überlappung der beiden Gip-  
10 fel vorliegen, d.h. die beiden Gipfel müssen nicht zu 100% voneinander ge-  
trennt sein.

8a. (Zweiter Aspekt – Variante von Absatz 8) Wertdokument, das an das Ver-  
fahren zur Prüfung, insbesondere seiner Echtheit und/oder seines Nenn-  
15 werts, nach Absatz 1a oder 6a angepasst ist, wobei:

das Wertdokument erste nicht-lumineszierende Partikel aufweist;

die ersten nicht-lumineszierenden Partikel mit bimodaler Größenver-  
teilung, d.h. mit zwei voneinander abgegrenzten, bestimmten Größen, gebil-  
det sind; und

20 die ersten nicht-lumineszierenden Partikel in homogener Verteilung  
im Wertdokument vorliegen. Die ersten nicht-lumineszierenden Partikel  
können insbesondere von der Gruppe bestehend aus mittels Kernresonanz-  
spektroskopie, Elektronenspinresonanzspektroskopie, Kernquadrupolreso-  
nanzspektroskopie, SER(Surface Enhanced Raman)-Spektroskopie oder  
25 SEIRA(Surface Enhanced Infrared Absorption)-Spektroskopie nachweisbaren  
Stoffen gewählt sein.

9. (bevorzugt) Wertdokument nach Absatz 8, wobei die bimodale Größenver-  
teilung im Histogramm so ausgestaltet ist, dass das eine Maximum mit Be-



- 7 -

zug auf dessen Korngröße anderthalb bis 50 Mal, bevorzugt 2 bis 20 Mal, besonders bevorzugt 4 bis 10 Mal, größer als das andere Maximum ist.

10. (bevorzugt) Werdokument nach einem der Absätze 8 oder 9, wobei die  
5 bimodale Größenverteilung durch ein Gemisch aus kleineren Partikeln und größeren Einkristallen erzeugt wird.

11. (bevorzugt) Werdokument nach einem der Absätze 8 oder 9, wobei die  
bimodale Größenverteilung durch ein Gemisch aus kleineren Partikeln und  
10 größeren Partikeln erzeugt wird, und die größeren Partikel lumineszierende, partikuläre Agglomerate einer festen homogenen Phase eines Luminophors sind.

12. (Dritter Aspekt) Werdokument, das an das Verfahren zur Prüfung, ins-  
15 besondere seiner Echtheit und/oder seines Nennwerts, nach Absatz 1 oder 7 angepasst ist, wobei:

das Werdokument erste lumineszierende Partikel, die mit einer ersten Emissionswellenlänge emittieren, aufweist;

20 die ersten lumineszierenden Partikel mit polymodaler Größenverteilung, d.h. mit mindestens drei voneinander abgegrenzten, bestimmten Größen, gebildet sind; und

die ersten lumineszierenden Partikel in homogener Verteilung im Werdokument vorliegen.

25 12a. (Dritter Aspekt – Variante von Absatz 12) Werdokument, das an das Verfahren zur Prüfung, insbesondere seiner Echtheit und/oder seines Nennwerts, nach Absatz 1a oder 7a angepasst ist, wobei:

das Werdokument erste nicht-lumineszierende Partikel aufweist;

die ersten nicht-lumineszierenden Partikel mit polymodaler Größenverteilung, d.h. mit mindestens drei voneinander abgegrenzten, bestimmten Größen, gebildet sind; und

5 die ersten nicht-lumineszierenden Partikel in homogener Verteilung im Werten dokument vorliegen. Die ersten nicht-lumineszierenden Partikel können insbesondere von der Gruppe bestehend aus mittels Kernresonanzspektroskopie, Elektronenspinresonanzspektroskopie, Kernquadrupolresonanzspektroskopie, SER(Surface Enhanced Raman)-Spektroskopie oder SEIRA(Surface Enhanced Infrared Absorption)-Spektroskopie nachweisbaren  
10 Stoffen gewählt sein.

13. (bevorzugt) Werten dokument nach einem der Absätze 8 bis 12, wobei die Korngröße (D99) der lumineszierenden Partikel kleiner als 30µm, bevorzugt kleiner als 20µm, ist.

15

14. (Vierter Aspekt) Verwendung des Werten dokument nach Absatz 8 im Verfahren nach Absatz 1 oder 6.

15. (Fünfter Aspekt) Verwendung des Werten dokument nach Absatz 12 im  
20 Verfahren nach Absatz 1 oder 7.

16. (Sechster Aspekt) Werten dokumentensystem, umfassend Werten dokumente mit einem ersten Nennwert oder einer ersten Währung (sogenannte erste Gruppe von Werten dokumenten), Werten dokumente mit einem zweiten Nennwert  
25 oder einer zweiten Währung (sogenannte zweite Gruppe von Werten dokumenten) und Werten dokumente mit einem dritten Nennwert oder einer dritten Währung (sogenannte dritte Gruppe von Werten dokumenten), wobei zumindest

zwei der drei Gruppen von Werdokumenten von den drei folgenden Arten von Werdokumenten gewählt sind, und bevorzugt alle drei Gruppen von Werdokumenten durch die drei folgenden Arten von Werdokumenten repräsentiert sind:

- 5           erste Werdokumente, wobei jedes Werdokument erste lumineszierende Partikel, die mit einer ersten Emissionswellenlänge emittieren, aufweist, und die ersten lumineszierenden Partikel in homogener Verteilung im Werdokument vorliegen, und die ersten lumineszierenden Partikel mit monomodaler Korngrößenverteilung, d.h. mit einer bestimmten Korngröße, gebildet sind, und die ersten lumineszierenden Partikel insbesondere lumineszierende, partikuläre Agglomerate einer festen homogenen Phase eines Lumino-
- 10           phors sind;

- zweite Werdokumente, die jeweils gemäß Absatz 8 definiert sind, wobei jedes Werdokument die lumineszierenden Partikel in einer bimoda-
- 15           len Korngrößenverteilung besitzt; und

- dritte Werdokumente, die jeweils gemäß Absatz 12 definiert sind, wobei jedes Werdokument die lumineszierenden Partikel in einer polymodalen Korngrößenverteilung besitzt.
- 20   17. (bevorzugt) Werdokumentsystem nach Absatz 16, wobei die Konzentrationen der lumineszierenden Partikel in den jeweiligen ersten, zweiten und dritten Werdokumenten so gewählt sind, dass lumineszierende Partikel mit einer ersten Korngrößenverteilung, die eine höhere Lumineszenzintensität als lumineszierende Partikel mit einer zweiten Korngrößenverteilung besit-
- 25           zen, in einer geringeren Konzentration eingesetzt werden, wobei bevorzugt die Konzentrationen der lumineszierenden Partikel in den entsprechenden Werdokumenten so gewählt werden, dass alle Werdokumente die gleiche mittlere Lumineszenzintensität aufweisen.

18. (bevorzugt) Werdokumentsystem nach Absatz 16 oder 17, wobei zumindest in einer Gruppe von Werdokumenten die lumineszierenden Partikel vollständig oder zum Teil durch lumineszierende, partikuläre Agglomerate einer festen homogenen Phase eines Luminophors gebildet sind.

5

19. (bevorzugt) Werdokumentsystem nach einem der Absätze 16 bis 18, welches zusätzlich zu den genannten Gruppen von Werdokumenten weitere Gruppen von Werdokumenten umfasst, die jeweils von ersten, zweiten oder dritten Arten an Werdokumenten gewählt sind, wobei sich Gruppen von

10 Werdokumenten der jeweils gleichen Art von Werdokumenten in der Position mindestens eines Maximums der Korngrößenverteilung der enthaltenen lumineszierenden Partikel voneinander unterscheiden.

20. (bevorzugt) Werdokumentsystem nach einem der Absätze 16 bis 19, wobei die Werdokumente zusätzlich zu den genannten lumineszierenden Partikeln weitere Luminophore mit unterschiedlichen spektralen Eigenschaften enthalten, bevorzugt weitere lumineszierende Partikel mit unterschiedlicher Emission.

20 Ausführliche Beschreibung der Erfindung

Die Begriffe Häufigkeitsverteilung, Kenngröße, Varianz, Standardabweichung, Histogramm, relative Häufigkeit, Modus bzw. Modalwert bzw. Gipfel, unimodale bzw. eingipflige (Häufigkeits-)Verteilung, bimodale bzw.

25 zweigipflige (Häufigkeits-)Verteilung sind literaturbekannt (siehe z.B.: E. Hering, R. Martin, M. Stohrer „Physik für Ingenieure“, VDI-Verlag GmbH, 3. Auflage 1989, Kapitel 1.3.2. „Meßgenauigkeit“; K. Ulshöfer, H. Hornschuh „Mathematische Formelsammlung“, Verlag Konrad Wittwer Stuttgart, 1984, Kapitel 6.1 „Beschreibende Statistik, Datenerhebung“; Wikipedia (Stand:

21.09.2012) – Die freie Enzyklopädie:

[http://de.wikipedia.org/wiki/Bimodale\\_Verteilung](http://de.wikipedia.org/wiki/Bimodale_Verteilung)).

5 Zur statistischen Analyse der ortsabhängigen Lumineszenzdaten können unterschiedliche mathematische Verfahren verwendet werden. Im Folgenden werden einige bevorzugte statistische Methoden und Kenngrößen genannt, welche für diesen Zweck besonders gut geeignet sind.

10 Bevorzugt erfolgt eine Auswertung der ortsabhängigen Lumineszenzdaten mit Methoden der deskriptiven Statistik (Descriptive Statistics). Dabei wird beispielsweise eine Banknote pixelweise gerastert, oder an mehreren, zufällig ausgewählten Stellen, vermessen, und aus den resultierenden Daten eine oder mehrere der folgenden Kennzahlen aus dem Gebiet der deskriptiven Statistik berechnet. Diese werden dann zur Sortierung bzw. Echtheitsbe-  
15 stimmung der Banknoten mit Schwellwerten verglichen. Dabei bezeichnet ein Schwellwert (alternativ auch als Schwelle oder Grenzwert bezeichnet) einen bestimmten absoluten oder relativen Zahlenwert, bei dessen Über- oder Unterschreiten eine unterschiedliche Einteilung in der Klassifizierung des Werdokuments vorgenommen wird, beispielsweise die Unterscheidung  
20 von echten/unechten Werdokumenten oder die Einteilung in unterschiedliche Denominationen und/oder Währungen.

Die deskriptive Statistik unterteilt Kenngrößen unter anderem in Lagemaße (Location Measures) wie Mittelwert, Median und Quantile, sowie Streu-  
25 ungsmaße (auch Dispersionsmaße oder Dispersion Measures genannt) wie Standardabweichung, mittlere absolute Abweichung und Interquartilebereich. Bevorzugt wird zur Bewertung der ortsabhängigen Lumineszenzdaten mindestens eine Kenngröße aus dem Bereich der Streuungsmaße verwendet. Bevorzugt werden intensitätskorrigierte Streuungsmaße verwendet, das

heißt, die Streuungsmaße werden unter Zuhilfenahme von Lagemaßen normiert oder korrigiert.

Ein weiteres Teilgebiet der deskriptiven Statistik sind Formmaße (Shape Measures) wie die Schiefe (Skewness) und die Quartile Schiefe (Quartile

- 5 Skewness) einer Verteilung. Diese werden bevorzugt zur Analyse von Lumineszenzintensitätsverteilungen eingesetzt, welche eine Rechts- oder Linksschiefe aufweisen. Solche Verteilungen können beispielsweise durch Verwendung rechts- oder linksschiefer monomodaler bzw. bimodaler oder polymodaler Korngrößenverteilungen von Luminophoren erzeugt werden.

- 10 Weiterhin können allgemeine Maße (General Measures) der deskriptiven Statistik verwendet werden, beispielsweise das  $k$ -te Zentralmoment  $E((X-\mu)^k)$ , welches für  $k=2$  die Varianz, für  $k=3$  die Schiefe und für  $k=4$  die Wölbung einer Verteilung beschreibt.

- 15 Alternativ oder ergänzend zu den eben beschriebenen Methoden der deskriptiven Statistik werden bevorzugt Methoden aus dem Bereich der numerischen Klassifikationsverfahren verwendet, wobei diese bevorzugt auf Häufigkeitsverteilungsdaten angewendet werden. Hierzu wird beispielsweise eine Banknote pixelweise gerastert, oder an mehreren, zufällig ausgewählten
- 20 Stellen, vermessen, und die resultierenden Intensitätswerte in  $n$  Häufigkeitsklassen unterteilt, so dass man für jede Banknote einen Häufigkeitsvektor als  $n$ -Tupel erhält. Dieser Vektor entspricht einem Punkt im  $n$ -dimensionalen Raum  $\mathbb{R}^n$ . Die so bei einer Vielzahl von Noten erhaltenen Punktwolken in diesem Raum können besonders vorteilhaft mit Methoden der numerischen
- 25 Klassifikationsverfahren bewertet werden, um die Banknoten in unterschiedliche Klassifikationen wie echt/unecht oder unterschiedliche Denominationen und/oder Währungen einzuteilen. Beispiele für geeignete numerische Klassifikationsverfahren sind die statistische Klassifikation, die Nächste-

Nachbarn-Klassifikation, die Quader-Klassifikation, der Polynomklassifikator, Support Vektor Maschinen (SVM), und neuronale Netze.

Weiterführende Literatur zum obigen Thema:

- 5 (1) H. Niemann: „Klassifikation von Mustern“, Springer-Verlag, Berlin 1983, ISBN 3-540-12642-2. Seiten 159-261, sowie erweiterte Online-Version, Seiten 303-481, erhältlich unter (Stand: 21.09.2012): <http://www5.informatik.uni-erlangen.de/fileadmin/Persons/NiemannHeinrich/klassifikation-von-mustern/m00links.html>
- 10 (2) Software „Mathematica“ von der Firma Wolfram Research.

Weiterführende Informationen zum obigen Thema sind im Internet (Stand: 21.09.2012) auf den folgenden Seiten erhältlich:

- [http://en.wikipedia.org/wiki/Descriptive\\_statistics](http://en.wikipedia.org/wiki/Descriptive_statistics)
- 15 [http://de.wikipedia.org/wiki/Dispersionsmaße](http://de.wikipedia.org/wiki/Dispersionsma%C3%9Fe)
  - [http://de.wikipedia.org/wiki/Schiefe\\_\(Statistik\)](http://de.wikipedia.org/wiki/Schiefe_(Statistik))

- Wertdokumente im Rahmen der Erfindung sind Gegenstände wie Banknoten, Schecks, Aktien, Wertmarken, Ausweise, Pässe, Kreditkarten, Urkunden
- 20 und andere Dokumente, Etiketten, Siegel, und zu sichernde Gegenstände wie beispielsweise CDs, Verpackungen und ähnliches. Das bevorzugte Anwendungsgebiet sind Banknoten, die insbesondere auf einem Papiersubstrat beruhen.

- 25 Lumineszierende Stoffe (hierin auch als Luminophore bezeichnet) werden standardmäßig zur Absicherung von Banknoten eingesetzt. Im Falle eines lumineszierenden Echtheitsmerkmals, das z.B. an verschiedenen Stellen im Papier einer Banknote eingebracht ist, unterliegen die Lumineszenzsignale des Merkmals an den verschiedenen Stellen natürlicherweise gewissen

Schwankungen. Der vorliegenden Erfindung liegt die Erkenntnis zugrunde, dass sich die statistische Fluktuation der räumlichen Signalintensitätsverteilung durch Wahl geeigneter Faktoren, z.B. durch Einstellen bestimmter Korngrößenverteilungen des lumineszierenden Echtheitsmerkmals, gezielt  
5 beeinflussen lässt. Dabei werden vorzugsweise Korngrößenverteilungen gewählt, die mittels eines herkömmlichen Mahl- oder Herstellungsprozess nicht, oder nur schwer erreichbar sind. Geeignete Korngrößenverteilungen sind z.B.

- lumineszierende Partikel mit monomodaler Größenverteilung, die insbesondere eng teilchengrößenverteilt sind und insbesondere Korngrößen (D99)  
10 zwischen 10µm und 30µm besitzen;

- lumineszierende Partikel mit bimodaler Korngrößenverteilung, d.h. neben einer ersten Spezies mit einem Durchmesser  $d_{m1}$  ist eine zweite Spezies mit einem Durchmesser  $d_{m2}$  vorhanden, wobei  $d_{m1} < d_{m2}$  ist.

15

Die lumineszierenden Partikel können z.B. auf einem eine Matrix bildenden anorganischen Festkörper basieren, der mit einem oder mehreren Seltenerdmetallen oder Übergangsmetallen dotiert ist.

20 Geeignete anorganische Festkörper, die zur Bildung einer Matrix geeignet sind, sind beispielsweise:

Oxide, insbesondere 3- und 4-wertige Oxide wie z. B. Titanoxid, Aluminiumoxid, Eisenoxid, Boroxid, Yttriumoxid, Ceroxid, Zirkonoxid, Bismutoxid, sowie komplexere Oxide wie z. B. Granate, darunter u. A. z.B. Yttrium-Eisen-

25 Granate, Yttrium-Aluminium-Granate, Gadolinium-Gallium-Granate;

Perowskite, darunter u.A. Yttrium-Aluminium-Perowskit, Lanthan-Gallium-Perowskit; Spinelle, darunter u. A. Zink-Aluminium-Spinelle, Magnesium-Aluminium-Spinelle, Mangan-Eisen-Spinelle; oder Mischoxide wie z.B. ITO (Indiumzinnoxid);



- 15 -

Oxyhalogenide und Oxychalkogenide, insbesondere Oxychloride wie z. B. Yttriumoxychlorid, Lanthanoxychlorid; sowie Oxysulfide, wie z.B. Yttriumoxysulfid, Gadoliniumoxysulfid;

Sulfide und andere Chalkogenide, z.B. Zinksulfid, Cadmiumsulfid, Zinkselenid, Cadmiumselenid;

Sulfate, insbesondere Bariumsulfat und Strontiumsulfat;

Phosphate, insbesondere Bariumphosphat, Strontiumphosphat, Calciumphosphat, Yttriumphosphat, Lanthanphosphat, sowie komplexere phosphatbasierte Verbindungen wie z.B. Apatite, darunter u. A. Calciumhydroxylapatite,

Calciumfluoroapatite, Calciumchloroapatite; oder Spodiosite, darunter z.B. Calcium-Fluoro-Spodiosite, Calcium-Chloro-Spodiosite;

Silicate und Aluminosilicate, insbesondere Zeolithe wie z.B. Zeolith A, Zeolith Y; zeolithverwandte Verbindungen wie z.B. Sodalithe; Feldspate wie z.B. Alkalifeldspate, Plagioklase;

weitere anorganische Verbindungsklassen wie z.B. Vanadate, Germanate, Arsenate, Niobate, Tantalate.

Es wird bevorzugt, lumineszierende Partikel zu verwenden, die im nicht sichtbaren Spektrum, d.h. im UV- oder NIR-Bereich, emittieren (die Abkürzung „NIR“ bezeichnet den Begriff „nahes Infrarot“). Mit Bezug auf die Einbringung der lumineszierenden Partikel in Wertaspekte, z.B. Banknoten, wird bevorzugt, dass die Partikel höchstens eine Korngröße von 30 µm, besonders bevorzugt höchstens eine Korngröße von 20 µm aufweisen.

Das der Erfindung zugrunde liegende Prinzip wird nachstehend im Detail in Verbindung mit den Figuren 1 bis 6 anhand einer ersten bevorzugten Ausführungsform beschrieben.

Erste bevorzugte Ausführungsform

- Die Echtheitsbestimmung eines lumineszierenden Echtheitsmerkmals erfolgt herkömmlich mittels geeigneter Sensoren, die die Lumineszenz an mindestens einem Ort, in der Regel an mehreren Orten, des Werdokuments durch
- 5 Anregung mit Licht einer geeigneten Wellenlänge detektieren. Mit Bezug auf eine korrekte Erkennung und Beurteilung der Echtheit wäre es wünschenswert, an allen potentiellen Messpunkten des Werdokuments ein konstantes Lumineszenzsignal zu messen, z.B. über den gesamten Papierkörper einer Banknote hinweg ein homogenes Lumineszenzsignal zu detektieren. Dies
- 10 wird unter Anderem durch eine hohe Luminophorkonzentration und eine große Messfläche begünstigt, da hier bei jeder Messung eine hohe Anzahl von Luminophorpartikeln erfasst wird und somit eine gute Mittelung entsteht.
- 15 Demgegenüber werden aus Sicherheits- und Kostengründen üblicherweise möglichst geringe Mengen an Merkmalsstoff eingesetzt. Es herrscht also eine relativ geringe Konzentration an Luminophorpartikeln vor. Die minimale einzubringende Menge hängt unter Anderem von der Effizienz und Leuchtkraft des Merkmalsstoffs ab, somit werden gerade die zur Absicherung am
- 20 geeignetsten, hocheffizienten Merkmalsstoffe in besonders geringer Konzentration eingesetzt. Ebenso ist es aus messtechnischer Sicht oft vorteilhafter, die Anregung durch intensive Bestrahlung eines kleinen Messflecks zu erreichen, anstatt großflächig mit niedriger Intensität anzuregen. Die Kombination aus geringer Luminophorkonzentration und kleinem Messbereich
- 25 fördert dabei eine erhöhte statistische Fluktuation des Messsignals. Figuren 1 bis 6 zeigen diesen Zusammenhang schematisch.

In den Figuren 1 bis 6 ist der Einsatz dreier verschiedener Luminophorpartikel-Klassen gezeigt, die eine unterschiedliche Leuchtkraft pro Partikel auf-

weisen. Die unterschiedliche Leuchtkraft kann dabei z.B. auf unterschiedlichen Partikelgrößen oder auf einer Änderung der chemischen Zusammensetzung, wie z.B. der Dotierstoffkonzentration, beruhen. Zur Vereinfachung wurde hierbei die Annahme getroffen, dass alle Luminophorpartikel einer  
5 jeweiligen Klasse homogen sind, d.h. alle Luminophorpartikel weisen die gleiche Größe und eine identische Zusammensetzung auf.

Fig. 1 zeigt die Zufallsverteilung von 28 000 Luminophorpartikeln mit einer relativen Leuchtkraft von 0,1 in einem 10x10-Feld. Fig. 2 zeigt das resultierende Lumineszenzsignal (d.h. die gemessene Lumineszenzintensität) für  
10 jedes der Felder 1 bis 10 (Y-Achse) in den Reihen 1 bis 10 (X-Achse).

Fig. 3 zeigt die Zufallsverteilung von 2 800 Luminophorpartikeln mit einer relativen Leuchtkraft von 1,0 in einem 10x10-Feld. Fig. 4 zeigt das resultierende Lumineszenzsignal (d.h. die gemessene Lumineszenzintensität) für  
15 jedes der Felder 1 bis 10 (Y-Achse) in den Reihen 1 bis 10 (X-Achse).

Fig. 5 zeigt die Zufallsverteilung von 700 Luminophorpartikeln mit einer relativen Leuchtkraft von 4,0 in einem 10x10-Feld. Fig. 6 zeigt das resultierende Lumineszenzsignal (d.h. die gemessene Lumineszenzintensität) für jedes der  
20 jedes der Felder 1 bis 10 (Y-Achse) in den Reihen 1 bis 10 (X-Achse).

Um in allen drei Fällen ein im Mittel gleich starkes Signal zu erhalten, müssen jeweils eine unterschiedliche Anzahl an Partikeln eingesetzt werden. Die  
25 im Falle des Einsatzes von vielen, schwach leuchtenden Partikeln erhaltene, sehr homogene Signalverteilung (siehe Fig. 2) fängt im Zuge des Übergangs zu wenigen, intensiver leuchtenden Partikeln immer stärker an zu fluktuieren (siehe Figuren 4 und 6).

Aufgrund der beschriebenen Unterschiede in der statistischen Signalfuktuation ist es möglich, Wertdokument-Klassen, in denen unterschiedliche Lumino-  
phorpartikel-Klassen zum Einsatz kommen, sogar bei ansonsten identi-  
schen spektralen Eigenschaften, wie z.B. der Lumineszenzbandenlage, dem  
5 Anregungsspektrum und der Abklingzeit, voneinander zu unterscheiden,  
z.B. über eine Analyse der Verteilung und Höhe der Abweichungen vom  
Signalmittelwert.

10 Anhand des folgenden Ausführungsbeispiels 1 wird die vorstehend erläuterte,  
erste bevorzugte Ausführungsform näher beschrieben.

<Ausführungsbeispiel 1>

15 Ausgehend von einem Seltenerd-dotierten Lumineszenzpigment auf YAG-  
Basis mit einer mittleren Korngröße (A2) werden durch Zermahlen in einer  
Rührwerkskugelmühle ein feineres Pigment (A1), sowie durch kontrollierte  
Agglomeration ein gröberes Pigment (A3) hergestellt (siehe Tabelle 1).

20 Tabelle 1: Korngrößen (die Angaben D50, D90 und D99 bezeichnen, dass 50%  
bzw. 90% bzw. 99% der Partikel einer Korngrößenverteilung Korngrößen  
aufweisen, die kleiner oder gleich dem angegebenen Wert sind)

Bezeichnung	D50 [ $\mu\text{m}$ ]	D90 [ $\mu\text{m}$ ]	D99 [ $\mu\text{m}$ ]
A1	0,3	1,4	2,2
A2	2,4	7	11,4
A3	11	17	20

25 Anschließend wurde in einem Blattbildner je ein Blatt Papier hergestellt, wo-  
bei pro Blatt 2 Promille (A1) bzw. 1 Promille (A2, A3) Gewichtsanteil an

Merkmalsstoff enthalten ist. Die das Merkmal enthaltenden Blätter wurden danach mittels eines Sensors vermessen. Figuren 7, 9 und 11 zeigen die Messsignale der Blätter. Dabei wurden mehrere Messpunkte an unterschiedlichen Stellen des Blattes vermessen, und die dabei ermittelten Messsignale von aufeinanderfolgenden Messpunkten mit einer Linie verbunden (Messreihe). Die Figuren 7, 9 und 11 zeigen jeweils die Überlagerung einer Vielzahl solcher Messreihen.

Zusätzlich ist in den Figuren 8, 10 und 12 für je drei zufällig gewählte einzelne Messreihen jeweils der Absolutwert der Differenz eines Messsignals zum vorangehenden Messsignal aufgetragen. Die drei verschiedenen Messreihen tragen zur besseren Unterscheidung jeweils unterschiedliche Symbole: weiße Dreiecke, graue Quadrate und schwarze Kreise.

Eine Kenngröße für die Fluktuation des Messsignals ist z.B. der Mittelwert der Absolutwerte dieser Differenzen bei Messung von Messreihen mit 90 Messpunkten. Es ergeben sich hier deutliche Unterschiede für die jeweiligen Proben, wobei nachfolgend jeweils der Mittelwert der Kenngröße gefolgt von seiner Standardabweichung zwischen mehreren Messreihen angegeben ist: A1 (Mittelwert:  $16 \pm 2$ ); A2 (Mittelwert:  $45 \pm 4$ ); A3 (Mittelwert:  $96 \pm 8$ ).

#### Zweite bevorzugte Ausführungsform

Eine zweite bevorzugte Ausführungsform beruht auf dem Vermischen verschiedener Partikelklassen mit unterschiedlichen Leuchtstärken. So erzeugt z.B. ein lumineszierendes Echtheitsmerkmal mit einer bimodalen, oder allgemein multimodalen, Partikelgrößenverteilung eine völlig andere Art von Signalfluktuation als entsprechende monomodale Verteilungen (siehe Figuren 13, 14, 26 und 27).

Fig. 13 zeigt die Zufallsverteilung von Luminophorpartikeln in einem 10x10-Feld, wobei die Luminophorpartikel 2800 Partikel mit einer relativen Leuchtkraft von 1 (kleine Kästchen in der Fig. 13), und 14 Partikel mit einer relativen Leuchtkraft von 100 (große kreisrunde Flecken in Fig. 13) beinhalten. Fig. 14 zeigt das resultierende Lumineszenzsignal (d.h. die gemessene Lumineszenzintensität) für jedes der Felder 1 bis 10 (Y-Achse) in den Reihen 1 bis 10 (X-Achse).

Die verglichen mit der Signalfuktuation in den Figuren 2, 4 und 6 völlig andere Art von Signalfuktuation in der Fig. 14 lässt sich damit begründen, dass die Lumineszenzintensität stark von der Partikelgröße abhängt. So besitzt ein Luminophorpartikel mit einem Durchmesser von 10  $\mu\text{m}$  ein tausendmal höheres Volumen als ein Luminophorpartikel mit einem Durchmesser von nur 1  $\mu\text{m}$ , und eine entsprechend höhere Leuchtkraft. Zusätzlich kann bei kleinen Partikeln leichter Energie an Oberflächendefekten strahlungslos abgegeben werden („Oberflächenquenching“), wodurch dieser Effekt noch verstärkt wird.

Die jeweils größere Partikelklasse ist somit in der Lage, die kleinere Partikelklasse deutlich zu „überstrahlen“, wodurch an Messstellen, die solche Partikel beinhalten, charakteristische, starke Anstiege auf hohe Signalwerte entstehen (sogenannte „Ausreißer“ bzw. „Ausreißer-Signale“). Somit entsteht ein Fluktuationsmuster mit eingestreuten starken Peaks, das sich deutlich von dem eines Stoffes mit monomodaler Partikelgrößenverteilung unterscheidet. Dabei kann sowohl die Höhe als auch die Häufigkeit dieser stärkeren Signale ausgewertet werden. Mit geeigneten mathematischen Methoden können auch solche charakteristische, durch bi- oder polymodale Korngrößen verursachte, Fluktuationsmuster identifiziert werden, welche keine starken „Ausreißer“ beinhalten. Denn auch wenn die Korngrößen der kleineren

und größeren Partikelklasse nicht weit genug auseinander liegen um deutliche „Ausreißer“ zu verursachen, können sich die statistischen Kenngrößen solcher Fluktuationsmuster deutlich von denen eines durch monomodale Korngrößenverteilungen verursachten Fluktuationsmusters unterscheiden.

5

Um reproduzierbare und eindeutig voneinander unterscheidbare Intensitätsverteilungsmuster zu erhalten, ist es vorteilhaft, die Korngrößenverteilung der Ausgangsstoffe maßzuschneidern, um z.B. im Falle von monomodalen Verteilungen großer Partikel eine geringe Größenverteilungsbreite und  
10 eine Abwesenheit von Feinanteilen zu erreichen, oder im Falle von bimodalen Verteilungen einen geeigneten Abstand der einzelnen Moden zu erhalten.

Klassischerweise werden Luminophorpartikel nach der Festkörpersynthese  
15 mittels Mühlen, z.B. Stiftmühlen oder Rührwerkskugelmühlen, kleingemahlen, bis die zur Anwendung gewünschte Korngröße erreicht ist. Bimodale Verteilungen oder relativ schmale Verteilungen „großer“ Partikel (z.B. in einem Bereich von 10 bis 20  $\mu\text{m}$ ) können dabei typischerweise nicht erhalten werden. Zwar ist es möglich, durch klassische Zerkleinerungstechniken, wie  
20 z.B. Festkörpermahlungen, über eine Variation der Mahldauer oder der Mahlart, unterschiedliche Korngrößenverteilungen zu erzeugen, die sich anhand ihres Fluktuationsverhaltens voneinander unterscheiden lassen. Durch zusätzliche Verfahren lassen sich die Korngrößenverteilungen aber optimieren. Darüber hinaus können auch solche Korngrößenverteilungen erhalten  
25 werden, die ansonsten für Sicherheitsmerkmale auf Luminophorbasis ungewöhnlich sind.

So ist es z.B. möglich, durch eine kontrollierte Agglomeration von mittels Vermahlen erhaltenem Feinmaterial wieder größere Partikel-Einheiten zu

erzeugen. Durch Wahl geeigneter Agglomerationstechniken können dabei monomodale Korngrößenverteilungen in einem Bereich von 10  $\mu\text{m}$  bis 20  $\mu\text{m}$  erreicht werden. Dieser Größenbereich ist mittels klassischer Synthesetechniken, wie etwa Ofenglühungen, nur schwer erreichbar, da entweder zu kleine  
5 Kristallite erzeugt werden, oder zu große Partikel, die beim Mahlprozess wiederum kleinere Bruchstücke erzeugen und somit zu einer breiten Korngrößenverteilung führen.

Aufgrund des deutlichen Unterschieds in der Größenverteilung eignen sich  
10 solche Agglomerate bedingt zur Erzeugung von bimodalen Verteilungen, nämlich durch Kombination mit gemahlenem Material mit Korngrößen in einem Bereich von 1 bis 10  $\mu\text{m}$ . Dabei ist zu beachten, dass der Einsatz von entsprechend großen Einkristallen in bestimmten Fällen bevorzugt wird. Durch den Effekt des Oberflächenquenching ist je nach Größe der das Agglomerat zusammensetzenden kleineren Partikel die Lumineszenzintensität  
15 im Vergleich zu einem Einkristall deutlich verringert. Somit können hier auch bei scheinbar gleicher Korngrößenverteilung deutliche Unterschiede im Fluktuationsverhalten entstehen.

20 Es wird daher besonders bevorzugt, Synthesebedingungen zu wählen, in denen z.B. über Ostwaldreifung ohne zusätzliche Mahlschritte bimodale Produkte erhalten werden können. Alternativ werden die Synthesebedingungen mit Bezug auf das Wachstum großer Kristalle optimiert, die dann in einem geeigneten Verhältnis mit separat synthetisierten, kleineren Kristallen  
25 bzw. Mahlgut vermischt werden. Unter Umständen kann eine geeignete bimodale Verteilung auch durch Vermischen von stark unterschiedlich gemahlenem Material erzeugt werden. Gegebenenfalls ist hierbei jedoch eine weitere Anpassung der Korngrößenverteilungen, z.B. über Trockensichtungen oder Sedimentationstrennung, notwendig. Nur bei solchen Wirtsgittern,



- 23 -

mit denen die Synthese größerer Kristallite unverhältnismäßig aufwändig ist, wird die oben erwähnte Herstellung von Agglomeraten aus Feinmaterial gegenüber dem Zusatz von größeren Kristalliten bevorzugt.

- 5 Ergänzend zu der anhand von Figuren 13 und 14 beschriebenen Ausführungsform zeigt Fig. 26 ein schematisches Korngrößen-Histogramm (d.h. die Auftragung der relativen Häufigkeit in Abhängigkeit von der Korngröße) für eine willkürlich gewählte bimodale Verteilung. Die in Fig. 26 gezeigte Verteilung weist eine Überlappung der beiden Gipfel bzw. Maxima auf. Grundsätzlich ist aber auch eine deutlich stärkere Überlappung, oder gar keine
- 10 Überlappung, der beiden Gipfel möglich.

- Fig. 27 zeigt ein hypothetisches Histogramm der Lumineszenzintensitäten von 250 Messpunkten unter den gleichen Bedingungen wie die des Modells
- 15 der Figuren 13 und 14.

#### Dritte bevorzugte Ausführungsform

- Die dritte bevorzugte Ausführungsform beruht auf dem Vermischen verschiedener Lumineszenzpartikel mit unterschiedlicher Lumineszenzwellenlänge (siehe das folgende Ausführungsbeispiel).
- 20

<Allgemeine Vorschrift 1 zur Erzeugung eines Lumineszenzpartikel-Agglomerats>

25

10g NIR-Lumineszenzpigment werden in 60 g Wasser dispergiert. Es werden 120 ml Ethanol sowie 3,5ml Ammoniak (25%ig) zugegeben. Unter Rühren werden 10 ml Tetraethylorthosilikat zugegeben und die Reaktionsmischung weitere 8 Stunden gerührt.

- 24 -

Das Produkt wird abfiltriert, zweimal mit 40 ml Wasser gewaschen und bei 60°C im Trockenschrank getrocknet. Es werden Partikelagglomerate mit einer Korngröße  $D_{99}=20-30\text{ }\mu\text{m}$  erhalten.

- Die erhaltenen Agglomerate werden eine Stunde lang bei 300°C getempert  
5 und anschließend mit einer Ultrazentrifugalmühle behandelt. Man erhält ein Produkt mit einer reduzierten Korngröße von  $D_{99} = 15-18\text{ }\mu\text{m}$ .

<Allgemeine Vorschrift 2 zur Erzeugung eines Lumineszenzpartikel-Agglomerats>

10

33 g NIR-Lumineszenzpigment werden in 245g Wasser dispergiert. Es werden 44g Kaliumhydrogencarbonat hinzugefügt und unter Rühren über den Verlauf einer Stunde eine Kaliumwasserglas-Lösung hinzugetropft, so dass am Ende ein  $\text{SiO}_2$ -Anteil von ca. 20% im Produkt vorliegt.

- 15 Das Produkt wird abfiltriert, zweimal mit 150 ml Wasser gewaschen und bei 60°C im Trockenschrank getrocknet. Es werden Partikelagglomerate mit einer Korngröße  $D_{99} = 18-20\text{ }\mu\text{m}$  erhalten.

<Ausführungsbeispiel 2>

20

Ausgehend von einem NIR-Lumineszenzpigment (Emission bei 1000 nm) mit einer mittleren Korngröße (A2) werden durch Zermahlen in einer Rührwerkskugelmühle ein feineres Pigment (A1), sowie durch kontrollierte Agglomeration nach Vorschrift 2 ein gröberes Pigment (A3) hergestellt (siehe  
25 Tabelle 2).

Durch identische Behandlung eines zweiten NIR-Lumineszenzpigments, das sich vom ersten NIR-Lumineszenzpigment in der Wellenlänge der Emission (1082 nm) unterscheidet, werden die analogen Pigmente B1, B2 und B3 hergestellt.

Tabelle 2: Korngrößen der Pigmente

Bezeichnung	D50 [ $\mu\text{m}$ ]	D90 [ $\mu\text{m}$ ]	D99 [ $\mu\text{m}$ ]
A1/B1	0,3	1,4	2,2
A2/B2	2,4	7	11,4
A3/B3	11	16	20

- 5    Anschließend werden in einem Blattbildner Papier-Blätter mit unterschiedlichen Kombinationen eines A-Pigments und eines B-Pigments hergestellt. Dabei werden die Lumineszenzpigmente in passenden Konzentrationen eingesetzt, typischerweise 0,1 Gewichtsprozent für die Pigmente A2, B2, A3 und
- 10    B3, so dass in allen Blättern eine im Mittel gleich starke Lumineszenzintensität erhalten wird. Die Pigmente A1 bzw. B1 werden entsprechend höher dosiert, z.B. mit 0,2 Gewichtsprozent, um ihre aufgrund der kleinen Korngröße verringerte Lumineszenzintensität zu kompensieren.

15    Die Lumineszenzintensität des A-Pigments sowie des B-Pigments bei ihren jeweiligen Emissionswellenlängen werden anschließend an mehreren unterschiedlichen Stellen (Größe des Meßflecks  $< 1 \text{ mm}^2$ ) des Blattes gemessen (siehe Figuren 15 bis 20).

20    Figuren 15 bis 20 zeigen die Lumineszenzintensität bei 1000 nm (A1, A2, A3) bzw. 1080 nm (B1, B2, B3) an jeweils 100 verschiedenen Stellen eines die entsprechenden Lumineszenzpigmente enthaltenden Blatts.

25    Anhand der Figuren 15 bis 20 ist ein deutlicher Einfluss der Korngröße auf die räumliche Homogenität der Signalintensität erkennbar. Mathematisch lässt sich dieser Sachverhalt beispielsweise durch Angabe der Standardab-

weichung der Lumineszenzintensität an 100 unterschiedlichen Messpunkten angeben. Sie liegt für die Pigmente A1 bzw. B1 mit geringer Korngröße typischerweise im Bereich von 25 bis 35, für die Pigmente A2 bzw. B2 mit mittlerer Korngröße typischerweise im Bereich von 45 bis 55, und für die Pigmente  
5 A3 bzw. B3 mit großer Korngröße typischerweise im Bereich von 95 bis 105. Der Mittelwert der Lumineszenzintensität liegt bei allen in den Beispielen verwendeten Blättern bei ungefähr 600 beliebig gewählten Einheiten.

Geht man davon aus, dass die Kombination der Lumineszenzpigmente A  
10 und B eine zur Absicherung eines Werdokuments verwendete Lumineszenzstoffkodierung ist, so lassen sich durch Einbeziehung der Schwankungsbreite als Absicherungskriterium die Anzahl möglicher Kodierungen um den Faktor 9 erhöhen. Durch geschickte Manipulation der Korngrößenverteilung der eingesetzten Lumineszenzpigmente sind die neun Kombinati-  
15 onen A1+B1, A1+B2, A1+B3, A2+B1, A2+B2, A2+B3, A3+B1, A3+B2, A3+B3 voneinander unterscheidbar, obwohl die eingesetzten Pigmenttypen jeweils spektral identisch sind.

Die folgende Beschreibung beinhaltet bevorzugte Ausgestaltungen mit Be-  
20 zug auf die Auswertung der Lumineszenzfluktuation im Allgemeinen.

Grundsätzlich kann die Fluktuation eines Merkmals absolut, relativ zu sich selbst, oder relativ zu der Fluktuation eines anderen Merkmals analysiert werden.

25

Als „absolut“ wird hierin verstanden, dass z.B. überprüft wird, ob die mittlere Abweichung vom Signalmittelwert einen bestimmten absoluten Wert über- oder unterschreitet, oder ob die „Ausreißersignale“, die durch eine bimodale Verteilung mit hohen Größenunterschieden entstehen, innerhalb

eines bestimmten Wertebereichs der Signalintensität liegen. Ebenso kann analysiert werden, ob die prozentuale Anzahl an Messstellen mit einer spezifischen Eigenschaft, z.B. das Überschreiten eines bestimmten Schwellwerts, innerhalb eines festgelegten Bereichs liegt.

5

Die Bezeichnung „relativ zu sich selbst“ bezeichnet hierin Verfahren, in denen keine Absolutwerte überprüft werden, sondern in denen beispielsweise überprüft wird, ob die mittlere Abweichung relativ zum Mittel der Merkmalsintensität innerhalb oder außerhalb eines bestimmten Prozentsatzes

10 liegt.

Für viele Anwendungen ist jedoch die dritte Methode, die Messung der Fluktuation „relativ zu einem anderen Merkmal“, besonders vorteilhaft. Insbesondere wären hierbei die Fälle zu nennen, in denen sich Fremdeffekte,

15 wie etwa eine Überdruckung der Banknote oder ein Wasserzeichen (d.h. eine lokale Dicken- oder Dichtenänderung im Papiersubstrat), störend auf die Messungen auswirken. So verursacht z.B. die Überdruckung mit einem Streifenmuster, das die Anregungswellenlänge teilweise absorbiert, eine Fluktuation des Merkmalsignals, die nicht durch die Natur des Merkmals allein ent-

20 steht (siehe Figur 21).

Figur 21 zeigt die durch Überdruckung mit einem Streifenmuster verursachte Lumineszenzfluktuation.

25 Wird jedoch ein zweites Merkmal hinzugefügt, dessen Fluktuation durch das Streifenmuster auf ähnliche Art und Weise beeinflusst wird, lässt sich der störende Effekt durch Vergleich beider Signale kompensieren. So ist es z.B. möglich, einen „Normierstoff“ mit einem räumlich besonders homogenen Signal hinzuzufügen, dessen Signalschwankung somit fast ausschließlich

durch äußere Faktoren, wie etwa die Überdruckung, bestimmt wird. Durch Korrektur eines Merkmalssignals durch das an der Messstelle gemessene Signal des Normierstoffs werden diese äußeren Faktoren somit „herausgerechnet“ (Figur 22).

5

Figur 22 zeigt die Eliminierung von Überdruckungseffekten durch Zugabe einer Normierungskomponente.

Die Methode ist dabei nicht nur auf die Ausführungsform eines solchen „signalhomogenen Normierstoffs“ beschränkt. So lässt sich z.B. auch das relative Ausmaß der Fluktuation zweier Stoffe miteinander vergleichen. Zur Erklärung dieser Zusammenhänge bietet sich die Darstellung in Form von Punktwolken an (siehe Figur 23). Die Position des Wolkenmittelpunkts gibt dabei Aufschluss über die mittleren Signalintensitäten, und die Ausdehnung der Wolke zeigt das Ausmaß an Signalfluktuation an.

15

Figur 23 zeigt eine Punktwolken-Darstellung der Signalintensitäten zweier Merkmale an der jeweils gleichen Messstelle.

Als Anwendungsbeispiel zeigt Figur 24 verschiedene Kombinationen aus feinen und groben Partikeln zweier Luminophore in jeweils einem Blatt. Dabei bestehen die „grogen“ Luminophorpartikel jeweils aus mit Silika verkapselten Agglomeraten der „feinen“ Luminophore. Es ist deutlich erkennbar, dass die Agglomerate stärker fluktuieren (breitere Punktwolken).

25

Figur 24 zeigt Punktwolken für verschiedene Kombinationen aus feinen und groben Luminophoren.

Idealisierte Punktwolken weiterer Stoffkombinationen sind in Figur 25 abgebildet. Es ist deutlich zu erkennen, dass sich die Punktwolken verschiedener Kombinationen z.B. in ihrem Längen- zu Breitenverhältnis oder in ihrer Ausdehnung stark unterscheiden. Die Ausdehnung solcher Punktwolken  
5 kann z.B. mathematisch über die Abstände geeigneter Quantile erfasst werden, um so die Fluktuation der beiden Merkmale relativ zueinander zu vergleichen und verschiedene Kodierungen voneinander zu unterscheiden.

Natürlich ist eine Auswertung auch über Kombination der Überprüfung von  
10 absoluten und relativen Grenzwerten, sowie durch eine Kombination der Einzelbetrachtung des Merkmals und des Vergleichs mit einer (oder mehreren) zusätzlichen Komponente(n) möglich.

Ebenso sind nicht alle Auswertungsverfahren für alle Kombinationsmöglichkeiten gleich gut geeignet. Bei stark bimodalen Verteilungen z.B. ist eine Berücksichtigung von Überdruckeffekten etc. meistens unnötig, da die Signalunterschiede zwischen kleinen und großen Partikeln groß genug sind, um trotzdem eindeutig von einer monomodalen Verteilung unterscheidbar zu sein. Ein Vergleich mit z.B. einer zweiten Merkmalskomponente ist in diesem Fall nicht zwingend notwendig.  
20

Grundsätzlich können die erfindungsgemäß verwendeten lumineszierenden Stoffe im Werdokument selbst, insbesondere im Papiersubstrat, eingebracht sein. Zusätzlich oder alternativ können die lumineszierenden Stoffe auf dem  
25 Werdokument aufgebracht sein (z.B. können die lumineszierenden Stoffe auf dem Papiersubstrat aufgedruckt sein). Bei dem Werdokumentsubstrat muss es sich nicht zwangsläufig um ein Papiersubstrat handeln, es könnte auch ein Kunststoffsubstrat sein oder ein Substrat, das sowohl Papier-Bestandteile als auch Kunststoffbestandteile aufweist.

Die obigen Ausführungsbeispiele basieren auf lumineszierenden Merkmalsstoffen. Anstelle der lumineszierenden Merkmalsstoffe können auch nicht-lumineszierende Merkmalsstoffe herangezogen werden, die insbesondere  
5 mittels Kernresonanzspektroskopie, Elektronenspinresonanzspektroskopie, Kernquadrupolresonanzspektroskopie, SER(Surface Enhanced Raman)-Spektroskopie oder SEIRA(Surface Enhanced Infrared Absorption)-Spektroskopie nachweisbar sind.

10 Zusammenfassung der bevorzugten Ausgestaltungen:

1. Verfahren zur Prüfung, insbesondere der Echtheit und/oder des Nennwerts, eines Wertdokuments mit lumineszierenden Merkmalsstoffen, umfassend:
  - 15 a1) den Schritt des Durchführens einer ortspezifischen Messung von ersten Lumineszenzintensitäten (L1) bei einer ersten Emissionswellenlänge an verschiedenen, die Ortskoordinaten (O) aufweisenden Orten des Wertdokuments, um auf diese Weise (O/L1)-Meßwertpaare zu gewinnen;
  - b1) den Schritt des statistischen Analysierens der in Abhängigkeit von den  
20 einzelnen Ortskoordinaten (O) gemessenen ersten Lumineszenzintensitäten (L1), indem anhand einer statistischen Methode zumindest eine statistische Kenngröße bestimmt wird; und
  - c1) den Schritt des Vergleichens der im Schritt b1) bestimmten statistischen Kenngröße mit einem oder mehreren Schwellwerten bzw. Grenzwerten.

25

Der Schritt c1) ist insbesondere der Schritt des Überprüfens, ob die im Schritt b1) bestimmte statistische Kenngröße oberhalb oder unterhalb eines bestimmten Grenzwerts liegt, oder ob die im Schritt b1) bestimmte statistische



- 31 -

Kenngroße innerhalb eines Bereichs, der von einem unteren Grenzwert und einem oberen Grenzwert gebildet wird, liegt.

2. Verfahren nach Absatz 1, wobei das Verfahren zusätzlich zu den Teilschritten a1), b1) und c1) die folgenden Teilschritte a2), b2) und c2) aufweist:
- 5 a2) den Schritt des Durchführens einer ortspezifischen Messung von zweiten Lumineszenzintensitäten (L2) bei einer zweiten Emissionswellenlänge an den verschiedenen, die Ortskoordinaten (O) aufweisenden Orten des Wertdokuments, um auf diese Weise (O/L2)-Meßwertpaare zu gewinnen;
- 10 b2) den Schritt des statistischen Analysierens der in Abhängigkeit von den einzelnen Ortskoordinaten (O) gemessenen zweiten Lumineszenzintensitäten (L2), indem anhand einer statistischen Methode zumindest eine statistische Kenngroße bestimmt wird; und
- c2) den Schritt des Vergleichens der im Schritt b2) bestimmten statistischen
- 15 Kenngroße mit einem oder mehreren Schwellwerten.

- Der Schritt c2) ist insbesondere der Schritt des Überprüfens, ob die im Schritt b2) bestimmte statistische Kenngroße oberhalb oder unterhalb eines bestimmten Grenzwerts liegt, oder ob die im Schritt b2) bestimmte statistische
- 20 Kenngroße innerhalb eines Bereichs, der von einem unteren Grenzwert und einem oberen Grenzwert gebildet wird, liegt.

3. Verfahren nach Absatz 1 oder 2, wobei die statistische Methode und die statistische Kenngroße von den Methoden und Kenngroßen des Gebietes der
- 25 deskriptiven Statistik oder der numerischen Klassifikationsverfahren gewählt sind, wobei das Gebiet der deskriptiven Statistik bevorzugt wird und darunter insbesondere das Gebiet der Streuungsmaße bevorzugt wird, und wobei das Gebiet der numerischen Klassifikationsverfahren ebenfalls bevor-

zugt wird und darunter insbesondere eine Anwendung auf Häufigkeitsverteilungsdaten und/oder Häufigkeitsräume bevorzugt wird.

4. Verfahren nach Absatz 1, wobei zur Bestimmung der statistischen Kenngröße pro Werdokument mindestens 20, bevorzugt mindestens 40, besonders bevorzugt mindestens 100 (O/L1)-Meßwertpaare ausgewertet werden.
5. Verfahren nach Absatz 2, wobei das Verfahren zusätzliche Teilschritte a), b) und c), die analog zu den Teilschritten a2), b2) und c2) definiert sind, aufweist, in denen das Durchführen der Messung und das Analysieren der daraus gewonnenen Messdaten basierend auf weiteren Emissionswellenlängen zusätzlich zur ersten und zweiten Emissionswellenlänge, z.B. basierend auf einer dritten Emissionswellenlänge, erfolgt.
- 10 6. Verfahren nach einem der Absätze 1 bis 5, wobei die für den Schritt des statistischen Analysierens herangezogenen Lumineszenzintensitäten jeweils mittels eines Algorithmus umgerechnete, korrigierte Lumineszenzintensitäten sind.
- 15 7. Verfahren nach Absatz 6, wobei das Werdokument einen zusätzlichen, als Normierstoff geeigneten, lumineszierenden Merkmalsstoff aufweist, so dass Effekte, die die Messung der Lumineszenzintensitäten beeinflussen, wie z.B. eine Abschwächung von gemessenen Lumineszenzintensitäten durch partielle Überdruckung des Werdokuments, auf Basis der gemessenen Lumineszenzintensität des Normierstoffes korrigierbar sind.
- 20 8. Verfahren nach einem der Absätze 1 bis 7, wobei die im Schritt b1) genannten Lumineszenzintensitäten eine unimodale Häufigkeitsverteilung bilden, d.h. in einem Histogramm, in dem die relative Häufigkeit in Abhängigkeit

von der Intensität aufgetragen wird, hat die Häufigkeitsverteilung die Form eines einzelnen Gipfels mit genau einem Maximum.

9. Verfahren nach einem der Absätze 1 bis 7, wobei die im Schritt b1) genannten Lumineszenzintensitäten eine bimodale Häufigkeitsverteilung bilden, d.h. in einem Histogramm, in dem die relative Häufigkeit in Abhängigkeit von der Intensität aufgetragen wird, hat die Häufigkeitsverteilung die Form von insgesamt zwei Gipfeln mit genau zwei Maxima.
10. Verfahren nach einem der Absätze 1 bis 7, wobei:  
die im Schritt b1) genannten Lumineszenzintensitäten eine multimodale Häufigkeitsverteilung bilden, d.h. in einem Histogramm, in dem die relative Häufigkeit in Abhängigkeit von der Intensität aufgetragen wird, hat die Häufigkeitsverteilung die Form einer Mehrzahl (n) von Gipfeln mit genau (n) Maxima, wobei  $n \geq 3$  ist.
11. Werdokument, das an das Verfahren zur Prüfung, insbesondere seiner Echtheit und/oder seines Nennwerts, nach Absatz 1 oder 8 angepasst ist, wobei:
- das Werdokument erste lumineszierende Partikel, die mit einer ersten Emissionswellenlänge emittieren, aufweist;
  - die ersten lumineszierenden Partikel in homogener Verteilung im Werdokument vorliegen;
  - die ersten lumineszierenden Partikel mit monomodaler Größenverteilung, d.h. mit einer bestimmten Größe, gebildet sind; und
  - die ersten lumineszierenden Partikel insbesondere lumineszierende, partikuläre Agglomerate einer festen homogenen Phase eines Luminophors sind.

- 34 -

12. Wertdokument, das an das Verfahren zur Prüfung, insbesondere seiner Echtheit und/oder seines Nennwerts, nach Absatz 1 oder 2 angepasst ist, wobei:

das Wertdokument erste lumineszierende Partikel, die mit einer ersten  
5 Emissionswellenlänge emittieren, und zweite lumineszierende Partikel, die mit einer zweiten Emissionswellenlänge emittieren, aufweist;

die ersten und die zweiten lumineszierenden Partikel jeweils in homogener Verteilung im Wertdokument vorliegen;

die ersten und die zweiten lumineszierenden Partikel jeweils mit mono-  
10 nomodaler Größenverteilung, d.h. mit einer bestimmten Größe, gebildet sind; und

die ersten und/oder zweiten lumineszierenden Partikel insbesondere lumineszierende, partikuläre Agglomerate einer festen homogenen Phase eines Luminophors sind.

15

13. Wertdokument nach Absatz 12, wobei die ersten lumineszierenden Partikel eine ähnliche Korngröße wie die zweiten lumineszierenden Partikel besitzen, wobei die Korngröße (D99) der ersten und zweiten Partikel um weniger als 50%, bevorzugt um weniger als 30%, voneinander abweicht.

20

14. Wertdokument nach Absatz 12, wobei die Korngröße (D99) der zweiten lumineszierenden Partikel anderthalb bis 50 Mal, bevorzugt 2 bis 20 Mal, besonders bevorzugt 4 bis 10 Mal größer als die Korngröße der ersten lumineszierenden Partikel ist.

25

15. Wertdokument, das an das Verfahren zur Prüfung, insbesondere seiner Echtheit und/oder seines Nennwerts, nach Absatz 1 oder 9 angepasst ist, wobei:

das Werdokument erste lumineszierende Partikel, die mit einer ersten Emissionswellenlänge emittieren, aufweist;

die ersten lumineszierenden Partikel mit bimodaler Größenverteilung, d.h. mit zwei voneinander abgegrenzten, bestimmten Größen, gebildet sind;

5 und

die ersten lumineszierenden Partikel in homogener Verteilung im Werdokument vorliegen.

16. Werdokument, das an das Verfahren zur Prüfung, insbesondere seiner  
10 Echtheit und/oder seines Nennwerts, nach Absatz 1 oder 2 angepasst ist, wobei:

das Werdokument erste lumineszierende Partikel, die mit einer ersten Emissionswellenlänge emittieren, und zweite lumineszierende Partikel, die mit einer zweiten Emissionswellenlänge emittieren, aufweist;

15 die ersten und die zweiten lumineszierenden Partikel jeweils in homogener Verteilung im Werdokument vorliegen; und  
die ersten lumineszierenden Partikel mit bimodaler Größenverteilung, d.h. mit zwei voneinander abgegrenzten, bestimmten Größen, gebildet sind; und  
die zweiten lumineszierenden Partikel eine monomodale, bimodale, oder  
20 polymodale Größenverteilung aufweisen.

17. Werdokument nach Absatz 15 oder 16, wobei die bimodale Größenverteilung im Histogramm so ausgestaltet ist, dass das eine Maximum mit Bezug auf dessen Korngröße anderthalb bis 50 Mal, bevorzugt 2 bis 20 Mal, besonders bevorzugt 4 bis 10 Mal, größer als das andere Maximum ist.  
25

18. Werdokument nach einem der Absätze 15 bis 17, wobei mindestens eine bimodale Größenverteilung durch ein Gemisch aus kleineren Partikeln und größeren Einkristallen erzeugt wird.

19. Wertdokument nach einem der Absätze 15 bis 17, wobei mindestens eine bimodale Größenverteilung durch ein Gemisch aus kleineren Partikeln und größeren Partikeln erzeugt wird, und die größeren Partikel lumineszierende, partikuläre Agglomerate einer festen homogenen Phase eines Luminophors sind.

20. Wertdokument, das an das Verfahren zur Prüfung, insbesondere seiner Echtheit und/oder seines Nennwerts, nach Absatz 1 oder 10 angepasst ist, wobei:

das Wertdokument erste lumineszierende Partikel, die mit einer ersten Emissionswellenlänge emittieren, aufweist;

die ersten lumineszierenden Partikel mit polymodaler Größenverteilung, d.h. mit mindestens drei voneinander abgegrenzten, bestimmten Größen, gebildet sind; und

die ersten lumineszierenden Partikel in homogener Verteilung im Wertdokument vorliegen.

21. Wertdokument, das an das Verfahren zur Prüfung, insbesondere seiner Echtheit und/oder seines Nennwerts, nach Absatz 1 oder 2 angepasst ist, wobei:

das Wertdokument erste lumineszierende Partikel, die mit einer ersten Emissionswellenlänge emittieren, und zweite lumineszierende Partikel, die mit einer zweiten Emissionswellenlänge emittieren, aufweist;

die ersten und die zweiten lumineszierenden Partikel jeweils in homogener Verteilung im Wertdokument vorliegen; und  
die ersten lumineszierenden Partikel mit polymodaler Größenverteilung, d.h. mit mindestens drei voneinander abgegrenzten, bestimmten Größen, gebildet sind; und

- 37 -

die zweiten lumineszierenden Partikel eine monomodale, bimodale, oder polymodale Größenverteilung aufweisen.

22. Wertdokument nach einem der Absätze 11 bis 21, wobei die Korngröße  
5 (D99) der lumineszierenden Partikel kleiner als 30µm, bevorzugt kleiner als 20µm, ist.

23. Verwendung des Wertdokuments nach Absatz 11 im Verfahren nach Absatz 1 oder 8.  
10

24. Verwendung des Wertdokuments nach einem der Absätze 12 bis 14 im Verfahren nach Absatz 2.

25. Verwendung des Wertdokuments nach Absatz 15 im Verfahren nach Absatz 1 oder 9.  
15

26. Verwendung des Wertdokuments nach einem der Absätze 16 bis 19 im Verfahren nach Absatz 2.

27. Verwendung des Wertdokuments nach Absatz 20 im Verfahren nach Absatz 1 oder 10.  
20

28. Verwendung des Wertdokuments nach Absatz 21 im Verfahren nach Absatz 2.  
25

29. Wertdokumentsystem, umfassend Wertdokumente mit einem ersten Nennwert oder einer ersten Währung (sogenannte erste Gruppe von Wertdokumenten), Wertdokumente mit einem zweiten Nennwert oder einer zweiten Währung (sogenannte zweite Gruppe von Wertdokumenten) und

Wertdokumente mit einem dritten Nennwert oder einer dritten Währung (sogenannte dritte Gruppe von Wertdokumenten), wobei zumindest zwei der drei Gruppen von Wertdokumenten von den drei folgenden Arten von Wertdokumenten gewählt sind, und bevorzugt alle drei Gruppen von Wertdokumenten durch die drei folgenden Arten von Wertdokumenten repräsentiert sind:

erste Wertdokumente, die jeweils gemäß Absatz 11 definiert sind, wobei jedes Wertdokument die lumineszierenden Partikel in einer bestimmten Korngröße besitzt;

10       zweite Wertdokumente, die jeweils gemäß Absatz 11 definiert sind, wobei jedes Wertdokument die lumineszierenden Partikel in einer geringeren Korngröße als die Korngröße der lumineszierenden Partikel der ersten Wertdokumente besitzt; und

15       dritte Wertdokumente, die jeweils gemäß Absatz 11 definiert sind, wobei jedes Wertdokument die lumineszierenden Partikel in einer größeren Korngröße als die Korngröße der lumineszierenden Partikel der ersten Wertdokumente besitzt.

30. Wertdokumentsystem nach Absatz 29, wobei die Konzentration der lumineszierenden Partikel der zweiten Wertdokumente höher ist als die Konzentration der lumineszierenden Partikel der ersten Wertdokumente und/oder die Konzentration der lumineszierenden Partikel der dritten Wertdokumente geringer ist als die Konzentration der lumineszierenden Partikel der ersten Wertdokumente, wobei

25       bevorzugt die Konzentrationen der lumineszierenden Partikel in den zweiten und/oder dritten Wertdokumenten so gewählt werden, dass die mittlere Lumineszenzintensität der zweiten und/oder dritten Wertdokumente mit der mittleren Lumineszenzintensität der ersten Wertdokumente übereinstimmt.



31. Werdokumentsystem nach Absatz 29 oder 30, wobei die lumineszierenden Partikel der dritten Werdokumente lumineszierende, partikuläre Agglomerate einer festen homogenen Phase eines Luminophors sind.

5

32. Werdokumentsystem nach einem der Absätze 29 bis 31, welches zusätzlich zu den zweiten und/oder dritten Werdokumenten noch weitere Arten von Werdokumenten umfasst, von denen jede einzelne Art von Werdokumenten lumineszierende Partikel mit geringeren oder größeren Korngrößen als die der ersten Werdokumente enthalten.

10

33. Werdokumentsystem nach einem der Absätze 29 bis 32, wobei die Werdokumente zusätzlich zu den genannten lumineszierenden Partikeln weitere Luminophore mit unterschiedlichen spektralen Eigenschaften bezüglich Anregungswellenlänge und/oder Emissionswellenlänge enthalten, bevorzugt weitere lumineszierende Partikel mit unterschiedlicher Emissionswellenlänge.

15

34. Werdokumentsystem, umfassend Werdokumente mit einem ersten

20

Nennwert oder einer ersten Währung (sogenannte Gruppe I von Werdokumenten), Werdokumente mit einem zweiten Nennwert oder einer zweiten Währung (sogenannte Gruppe II von Werdokumenten), optional Werdokumente mit einem dritten Nennwert oder einer dritten Währung (sogenannte Gruppe III von Werdokumenten), optional Werdokumente mit einem vierten Nennwert oder einer vierten Währung (sogenannte Gruppe IV von Werdokumenten), optional Werdokumente mit einem fünften Nennwert oder einer fünften Währung (sogenannte Gruppe V von Werdokumenten), optional Werdokumente mit einem sechsten Nennwert oder einer sechsten Währung (sogenannte Gruppe VI von Werdokumenten), optional

25

Wurtdokumente mit einem siebten Nennwert oder einer siebten Währung (sogenannte Gruppe VII von Wurtdokumenten), optional Wurtdokumente mit einem achten Nennwert oder einer achten Währung (sogenannte Gruppe VIII von Wurtdokumenten), und optional Wurtdokumente mit einem neun-

5 ten Nennwert oder einer neunten Währung (sogenannte Gruppe IX von Wurtdokumenten), wobei

mindestens eine der Gruppen I bis IX aus den folgenden Wurtdokumenten A besteht, und zumindest eine weitere der Gruppen I bis IX von Wurtdokumenten von den folgenden Arten B bis J von Wurtdokumenten

10 gewählt ist,

bevorzugt mindestens eine der Gruppen I bis IX aus den folgenden Wurtdokumenten A besteht, und zwei weitere der Gruppen I bis IX von Wurtdokumenten von den folgenden Arten B bis J von Wurtdokumenten gewählt sind,

15 weiter bevorzugt mindestens eine der Gruppen I bis IX aus den folgenden Wurtdokumenten A besteht, und drei weitere der Gruppen I bis IX von Wurtdokumenten von den folgenden Arten B bis J von Wurtdokumenten gewählt sind, und

insbesondere bevorzugt die Gruppen I bis IX von Wurtdokumenten

20 durch die folgenden Arten von Wurtdokumenten A bis J repräsentiert sind:

Wurtdokumente A, die jeweils gemäß Absatz 12 definiert sind, wobei jedes Wurtdokument sowohl die ersten lumineszierenden Partikel in einer bestimmten Korngröße enthält, als auch die zweiten lumineszierenden Partikel in einer bestimmten Korngröße enthält;

25 Wurtdokumente B, die jeweils gemäß Absatz 12 definiert sind, wobei jedes Wurtdokument sowohl die ersten lumineszierenden Partikel in einer geringeren Korngröße als die Korngröße der ersten lumineszierenden Partikel der Wurtdokumente A enthält, als auch die zweiten lumineszierenden

Partikel in einer geringeren Korngröße als die Korngröße der zweiten lumineszierenden Partikel der Werdokumente A enthält;

Werdokumente C, die jeweils gemäß Absatz 12 definiert sind, wobei jedes Werdokument die ersten lumineszierenden Partikel in der gleichen  
5 Korngröße wie die Korngröße der ersten lumineszierenden Partikel der Werdokumente A enthält, und die zweiten lumineszierenden Partikel in einer geringeren Korngröße als die Korngröße der zweiten lumineszierenden Partikel der Werdokumente A enthält;

Werdokumente D, die jeweils gemäß Absatz 12 definiert sind, wobei  
10 jedes Werdokument die ersten lumineszierenden Partikel in einer geringeren Korngröße als die Korngröße der ersten lumineszierenden Partikel der Werdokumente A enthält und die zweiten lumineszierenden Partikel in der gleichen Korngröße wie die Korngröße der zweiten lumineszierenden Partikel der Werdokumente A enthält;

15 Werdokumente E, die jeweils gemäß Absatz 12 definiert sind, wobei jedes Werdokument sowohl die ersten lumineszierenden Partikel in einer größeren Korngröße als die Korngröße der ersten lumineszierenden Partikel der Werdokumente A enthält, als auch die zweiten lumineszierenden Partikel in einer größeren Korngröße als die Korngröße der zweiten lumineszierenden Partikel der Werdokumente A enthält;  
20

Werdokumente F, die jeweils gemäß Absatz 12 definiert sind, wobei jedes Werdokument die ersten lumineszierenden Partikel in der gleichen Korngröße wie die Korngröße der ersten lumineszierenden Partikel der Werdokumente A enthält und die zweiten lumineszierenden Partikel in einer größeren Korngröße als die Korngröße der zweiten lumineszierenden Partikel der Werdokumente A enthält;  
25

Werdokumente G, die jeweils gemäß Absatz 12 definiert sind, wobei jedes Werdokument die ersten lumineszierenden Partikel in einer größeren Korngröße als die Korngröße der ersten lumineszierenden Partikel der

Werte dokumente A enthält, und die zweiten lumineszierenden Partikel in der gleichen Korngröße wie die Korngröße der zweiten lumineszierenden Partikel der Werte dokumente A enthält;

5         Werte dokumente H, die jeweils gemäß Absatz 12 definiert sind, wobei jedes Werte dokument die ersten lumineszierenden Partikel in einer geringeren Korngröße als die Korngröße der ersten lumineszierenden Partikel der Werte dokumente A enthält, und die zweiten lumineszierenden Partikel in einer größeren Korngröße als die Korngröße der zweiten lumineszierenden Partikel der Werte dokumente A enthält;

10         Werte dokumente J, die jeweils gemäß Absatz 12 definiert sind, wobei jedes Werte dokument die ersten lumineszierenden Partikel in einer größeren Korngröße als die Korngröße der ersten lumineszierenden Partikel der Werte dokumente A enthält, und die zweiten lumineszierenden Partikel in einer geringeren Korngröße als die Korngröße der zweiten lumineszierenden  
15         Partikel der Werte dokumente A enthält.

35. Werte dokumentensystem nach Absatz 34, wobei die Konzentration der jeweils ersten und/oder zweiten lumineszierenden Partikel in einer Gruppe von Werte dokumenten höher ist als die entsprechende Konzentration der jeweils ersten und/oder zweiten lumineszierenden Partikel in Werte dokumen-  
20         ten A, wenn die Korngröße der jeweils ersten und/oder zweiten lumineszierenden Partikel geringer ist als die Korngröße der jeweils ersten und/oder zweiten lumineszierenden Partikel in Werte dokumenten A,  
und/oder

25         die Konzentration der jeweils ersten und/oder zweiten lumineszierenden Partikel in einer Gruppe von Werte dokumenten geringer ist als die entsprechende Konzentration der jeweils ersten und/oder zweiten lumineszierenden Partikel in Werte dokumenten A, wenn die Korngröße der jeweils ersten und/oder zweiten lumineszierenden Partikel größer ist als die Korngröße

- der jeweils ersten und/oder zweiten lumineszierenden Partikel in Wertdokumenten A,  
wobei bevorzugt die Konzentration der jeweils ersten und/oder zweiten lumineszierenden Partikel so gewählt wird, dass die resultierende mittlere erste und/oder zweite Lumineszenzintensität der die jeweils ersten und/oder zweiten lumineszierenden Partikel enthaltenden Wertdokumente mit den entsprechenden mittleren ersten und/oder zweiten Lumineszenzintensitäten der Wertdokumente A übereinstimmt.
- 10 36. Wertdokumentsystem nach Absatz 34 oder 35, wobei in mindestens einer Gruppe von Wertdokumenten die ersten und/oder zweiten lumineszierenden Partikel lumineszierende, partikuläre Agglomerate einer festen homogenen Phase eines Luminophors sind.
- 15 37. Wertdokumentsystem nach einem der Absätze 34 bis 36, welches zusätzlich zu den genannten Wertdokumenten noch weitere Wertdokumente umfasst, welche erste und/oder zweite lumineszierende Partikel mit geringeren und/oder größeren Korngrößen als die Wertdokumente A enthalten.
- 20 38. Wertdokumentsystem nach Absatz 34, wobei zusätzlich zu den ersten und zweiten lumineszierenden Partikeln weitere Luminophore, beispielsweise mindestens dritte lumineszierende Partikel, in den Wertdokumenten enthalten sind.
- 25 39. Wertdokumentsystem, umfassend Wertdokumente mit einem ersten Nennwert oder einer ersten Währung (sogenannte erste Gruppe von Wertdokumenten), Wertdokumente mit einem zweiten Nennwert oder einer zweiten Währung (sogenannte zweite Gruppe von Wertdokumenten) und

Wertdokumente mit einem dritten Nennwert oder einer dritten Währung (sogenannte dritte Gruppe von Wertdokumenten), wobei zumindest zwei der drei Gruppen von Wertdokumenten von den drei folgenden Arten von Wertdokumenten gewählt sind, und bevorzugt alle drei Gruppen von  
5 Wertdokumenten durch die drei folgenden Arten von Wertdokumenten repräsentiert sind:

erste Wertdokumente, die jeweils gemäß Absatz 11 definiert sind, wobei jedes Wertdokument die lumineszierenden Partikel in einer monomodalen Korngrößenverteilung besitzt;

10 zweite Wertdokumente, die jeweils gemäß Absatz 15 definiert sind, wobei jedes Wertdokument die lumineszierenden Partikel in einer bimodalen Korngrößenverteilung besitzt; und

15 dritte Wertdokumente, die jeweils gemäß Absatz 20 definiert sind, wobei jedes Wertdokument die lumineszierenden Partikel in einer polymodalen Korngrößenverteilung besitzt.

40. Wertdokumentsystem nach Absatz 39, wobei die Konzentrationen der lumineszierenden Partikel in den jeweiligen ersten, zweiten und dritten Wertdokumenten so gewählt sind, dass lumineszierende Partikel mit einer  
20 ersten Korngrößenverteilung, die eine höhere Lumineszenzintensität als lumineszierende Partikel mit einer zweiten Korngrößenverteilung besitzen, in einer geringeren Konzentration eingesetzt werden, wobei bevorzugt die Konzentrationen der lumineszierenden Partikel in den entsprechenden Wertdokumenten so gewählt werden, dass alle Wertdokumente  
25 die gleiche mittlere Lumineszenzintensität aufweisen.

41. Wertdokumentsystem nach Absatz 39 oder 40, wobei zumindest in einer Gruppe von Wertdokumenten die lumineszierenden Partikel vollständig

oder zum Teil durch lumineszierende, partikuläre Agglomerate einer festen homogenen Phase eines Luminophors gebildet sind.

42. Wertdokumentsystem nach einem der Absätze 39 bis 41, welches zusätzlich zu den genannten Gruppen von Wertdokumenten weitere Gruppen von Wertdokumenten umfasst, die jeweils von ersten, zweiten oder dritten Arten an Wertdokumenten gewählt sind, wobei sich Gruppen von Wertdokumenten der jeweils gleichen Art von Wertdokumenten in der Position mindestens eines Maximums der Korngrößenverteilung der enthaltenen lumineszierenden Partikel voneinander unterscheiden.

43. Wertdokumentsystem nach einem der Absätze 39 bis 42, wobei die Wertdokumente zusätzlich zu den genannten lumineszierenden Partikeln weitere Luminophore mit unterschiedlichen spektralen Eigenschaften enthalten, bevorzugt weitere lumineszierende Partikel mit unterschiedlicher Emission.

44. Wertdokumentsystem, umfassend Wertdokumente mit einem ersten Nennwert oder einer ersten Währung (sogenannte Gruppe I von Wertdokumenten), Wertdokumente mit einem zweiten Nennwert oder einer zweiten Währung (sogenannte Gruppe II von Wertdokumenten), optional Wertdokumente mit einem dritten Nennwert oder einer dritten Währung (sogenannte Gruppe III von Wertdokumenten), optional Wertdokumente mit einem vierten Nennwert oder einer vierten Währung (sogenannte Gruppe IV von Wertdokumenten), optional Wertdokumente mit einem fünften Nennwert oder einer fünften Währung (sogenannte Gruppe V von Wertdokumenten), optional Wertdokumente mit einem sechsten Nennwert oder einer sechsten Währung (sogenannte Gruppe VI von Wertdokumenten), optional Wertdokumente mit einem siebten Nennwert oder einer siebten Währung (sogenannte Gruppe VII von Wertdokumenten), optional Wertdokumente

mit einem achten Nennwert oder einer achten Währung (sogenannte Gruppe VIII von Wertdokumenten), und optional Wertdokumente mit einem neunten Nennwert oder einer neunten Währung (sogenannte Gruppe IX von Wertdokumenten), wobei

5           mindestens eine der Gruppen I bis IX von einer der acht folgenden Arten von Wertdokumenten B bis J gewählt ist, und zumindest eine weitere der Gruppen I bis IX von Wertdokumenten von den neun folgenden Arten von Wertdokumenten A bis J gewählt sind,

              bevorzugt mindestens eine der Gruppen I bis IX von einer der acht  
10       folgenden Arten von Wertdokumenten B bis J gewählt ist, und zwei weitere der Gruppen I bis IX von Wertdokumenten von den neun folgenden Arten von Wertdokumenten A bis J gewählt sind,

              weiter bevorzugt mindestens eine der Gruppen I bis IX von einer der acht folgenden Arten von Wertdokumenten B bis J gewählt ist, und drei wei-  
15       tere der Gruppen I bis IX von Wertdokumenten von den neun folgenden Arten von Wertdokumenten A bis J gewählt sind, und

              insbesondere bevorzugt die Gruppen I bis IX von Wertdokumenten durch die neun folgenden Arten von Wertdokumenten A bis J repräsentiert sind:

20           Wertdokumente A, die jeweils gemäß Absatz 12 definiert sind, wobei jedes Wertdokument sowohl die ersten lumineszierenden Partikel in einer monomodalen Korngrößenverteilung enthält, als auch die zweiten lumineszierenden Partikel in einer monomodalen Korngrößenverteilung enthält;

              Wertdokumente B, die jeweils gemäß Absatz 16 definiert sind, wobei  
25       jedes Wertdokument sowohl die ersten lumineszierenden Partikel in einer bimodalen Korngrößenverteilung enthält, als auch die zweiten lumineszierenden Partikel in einer bimodalen Korngrößenverteilung enthält;

              Wertdokumente C, die jeweils gemäß Absatz 16 definiert sind, wobei jedes Wertdokument die ersten lumineszierenden Partikel in einer monomo-



dalen Korngrößenverteilung enthält, und die zweiten lumineszierenden Partikel in einer bimodalen Korngrößenverteilung enthält;

5       Wertdokumente D, die jeweils gemäß Absatz 16 definiert sind, wobei jedes Wertdokument die ersten lumineszierenden Partikel in einer bimodalen Korngrößenverteilung enthält, und die zweiten lumineszierenden Partikel in einer monomodalen Korngrößenverteilung enthält;

10       Wertdokumente E, die jeweils gemäß Absatz 21 definiert sind, wobei jedes Wertdokument die ersten lumineszierenden Partikel in einer polymodalen Korngrößenverteilung enthält, und die zweiten lumineszierenden Partikel in einer polymodalen Korngrößenverteilung enthält;

      Wertdokumente F, die jeweils gemäß Absatz 21 definiert sind, wobei jedes Wertdokument die ersten lumineszierenden Partikel in einer monomodalen Korngrößenverteilung enthält, und die zweiten lumineszierenden Partikel in einer polymodalen Korngrößenverteilung enthält;

15       Wertdokumente G, die jeweils gemäß Absatz 21 definiert sind, wobei jedes Wertdokument die ersten lumineszierenden Partikel in einer polymodalen Korngrößenverteilung enthält, und die zweiten lumineszierenden Partikel in einer monomodalen Korngrößenverteilung enthält;

20       Wertdokumente H, die jeweils gemäß Absatz 16 definiert sind, wobei jedes Wertdokument die ersten lumineszierenden Partikel in einer bimodalen Korngrößenverteilung enthält, und die zweiten lumineszierenden Partikel in einer polymodalen Korngrößenverteilung enthält;

25       Wertdokumente J, die jeweils gemäß Absatz 21 definiert sind, wobei jedes Wertdokument die ersten lumineszierenden Partikel in einer polymodalen Korngrößenverteilung enthält, und die zweiten lumineszierenden Partikel in einer bimodalen Korngrößenverteilung enthält.

45. Wertdokumentsystem nach Absatz 44, wobei die Konzentration der jeweils ersten und/oder zweiten lumineszierenden Partikel in einem Wertdo-

kument so gewählt ist, dass lumineszierende Partikel mit einer ersten Korngrößenverteilung, die eine höhere Lumineszenzintensität, als lumineszierende Partikel mit einer zweiten Korngrößenverteilung besitzen, in einer geringeren Konzentration eingesetzt werden, wobei

- 5 bevorzugt die Konzentration der jeweils ersten und/oder zweiten lumineszierenden Partikel so gewählt wird, dass die resultierende mittlere erste und/oder zweite Lumineszenzintensität der die jeweils erste und/oder zweite lumineszierende Partikel enthaltenden Werdokumente mit den entsprechenden mittleren ersten und/oder zweiten Lumineszenzintensitäten  
10 der Werdokumente A übereinstimmt.

46. Werdokumentsystem nach Absatz 44 oder 45, wobei zumindest in einer der Gruppen von Werdokumenten die lumineszierenden Partikel vollständig oder zum Teil durch lumineszierende, partikuläre Agglomerate einer  
15 festen homogenen Phase eines Luminophors gebildet sind.

47. Werdokumentsystem nach einem der Absätze 44 bis 46, welches zusätzlich zu den genannten Gruppen von Werdokumenten weitere Gruppen von Werdokumenten umfasst, die jeweils von den Arten von Werdokumenten  
20 A bis J gewählt sind, wobei sich Gruppen von Werdokumenten der jeweils gleichen Art von Werdokumenten in der Position mindestens eines Maximums der Korngrößenverteilung der enthaltenen lumineszierenden Partikel voneinander unterscheiden.

- 25 48. Werdokumentsystem nach Absatz 44, wobei zusätzlich zu den ersten und zweiten lumineszierenden Partikeln weitere Luminophore, beispielsweise mindestens dritte lumineszierende Partikel, in den Werdokumenten enthalten sind.

## Patentansprüche

1. Verfahren zur Prüfung, insbesondere der Echtheit und/oder des Nennwerts, eines Werdokuments mit lumineszierenden Merkmalsstoffen, umfassend:
  - a1) den Schritt des Durchführens einer ortspezifischen Messung von ersten Lumineszenzintensitäten (L1) bei einer ersten Emissionswellenlänge an verschiedenen, die Ortskoordinaten (O) aufweisenden Orten des Werdokuments, um auf diese Weise (O/L1)-Meßwertpaare zu gewinnen;
  - b1) den Schritt des statistischen Analysierens der in Abhängigkeit von den einzelnen Ortskoordinaten (O) gemessenen ersten Lumineszenzintensitäten (L1), indem anhand einer statistischen Methode zumindest eine statistische Kenngröße bestimmt wird; und
  - c1) den Schritt des Vergleichens der im Schritt b1) bestimmten statistischen Kenngröße mit einem oder mehreren Schwellwerten.
2. Verfahren nach Anspruch 1, wobei zur Bestimmung der statistischen Kenngröße pro Werdokument mindestens 20, bevorzugt mindestens 40, besonders bevorzugt mindestens 100 (O/L1)-Meßwertpaare ausgewertet werden.
3. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 oder 2, wobei die für den Schritt des statistischen Analysierens herangezogenen Lumineszenzintensitäten jeweils mittels eines Algorithmus umgerechnete, korrigierte Lumineszenzintensitäten sind.
4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, wobei die im Schritt b1) genannten Lumineszenzintensitäten eine bimodale Häufigkeitsverteilung bilden, d.h. in einem Histogramm, in dem die relative Häufigkeit in Abhängig-

keit von der Intensität aufgetragen wird, hat die Häufigkeitsverteilung die Form von insgesamt zwei Gipfeln mit genau zwei Maxima.

5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, wobei:

- 5 die im Schritt b1) genannten Lumineszenzintensitäten eine multimodale Häufigkeitsverteilung bilden, d.h. in einem Histogramm, in dem die relative Häufigkeit in Abhängigkeit von der Intensität aufgetragen wird, hat die Häufigkeitsverteilung die Form einer Mehrzahl (n) von Gipfeln mit genau (n) Maxima, wobei  $n \geq 3$  ist.

10

6. Wertenorm, das an das Verfahren zur Prüfung, insbesondere seiner Echtheit und/oder seines Nennwerts, nach Anspruch 4 angepasst ist, wobei:

das Wertenorm erste lumineszierende Partikel, die mit einer ersten Emissionswellenlänge emittieren, aufweist;

- 15 die ersten lumineszierenden Partikel mit bimodaler Größenverteilung, d.h. mit zwei voneinander abgegrenzten, bestimmten Größen, gebildet sind; und

die ersten lumineszierenden Partikel in homogener Verteilung im Wertenorm vorliegen.

20

7. Wertenorm nach Anspruch 6, wobei die bimodale Größenverteilung im Histogramm so ausgestaltet ist, dass das eine Maximum mit Bezug auf dessen Korngröße anderthalb bis 50 Mal, bevorzugt 2 bis 20 Mal, besonders bevorzugt 4 bis 10 Mal, größer als das andere Maximum ist.

25

8. Wertenorm nach einem der Ansprüche 6 oder 7, wobei die bimodale Größenverteilung durch ein Gemisch aus kleineren Partikeln und größeren Einkristallen erzeugt wird, oder die bimodale Größenverteilung durch ein Gemisch aus kleineren Partikeln und größeren Partikeln erzeugt wird, und

die größeren Partikel lumineszierende, partikuläre Agglomerate einer festen homogenen Phase eines Luminophors sind.

9. Wertdokument, das an das Verfahren zur Prüfung, insbesondere seiner  
5 Echtheit und/oder seines Nennwerts, nach Anspruch 5 angepasst ist, wobei:  
das Wertdokument erste lumineszierende Partikel, die mit einer ersten Emissionswellenlänge emittieren, aufweist;  
die ersten lumineszierenden Partikel mit polymodaler Größenverteilung, d.h. mit mindestens drei voneinander abgegrenzten, bestimmten Größen,  
10 gebildet sind; und  
die ersten lumineszierenden Partikel in homogener Verteilung im Wertdokument vorliegen.

10. Wertdokument nach einem der Ansprüche 6 bis 9, wobei die Korngröße  
15 (D99) der lumineszierenden Partikel kleiner als 30µm, bevorzugt kleiner als 20µm, ist.

11. Verwendung des Wertdokuments nach Anspruch 6 im Verfahren nach Anspruch 4.

20

12. Verwendung des Wertdokuments nach Anspruch 9 im Verfahren nach Anspruch 5.

13. Wertdokumentsystem, umfassend Wertdokumente mit einem ersten  
25 Nennwert oder einer ersten Währung (sogenannte erste Gruppe von Wertdokumenten), Wertdokumente mit einem zweiten Nennwert oder einer zweiten Währung (sogenannte zweite Gruppe von Wertdokumenten) und Wertdokumente mit einem dritten Nennwert oder einer dritten Währung (sogenannte dritte Gruppe von Wertdokumenten), wobei zumindest

zwei der drei Gruppen von Werdokumenten von den drei folgenden Arten von Werdokumenten gewählt sind, und bevorzugt alle drei Gruppen von Werdokumenten durch die drei folgenden Arten von Werdokumenten repräsentiert sind:

5           erste Werdokumente, wobei jedes Werdokument erste lumineszierende Partikel, die mit einer ersten Emissionswellenlänge emittieren, aufweist, und die ersten lumineszierenden Partikel in homogener Verteilung im Werdokument vorliegen, und die ersten lumineszierenden Partikel mit monomodaler Korngrößenverteilung, d.h. mit einer bestimmten Korngröße, gebildet sind, und die ersten lumineszierenden Partikel insbesondere lumineszierende, partikuläre Agglomerate einer festen homogenen Phase eines Lumino-  
10           phors sind;

              zweite Werdokumente, die jeweils gemäß Anspruch 6 definiert sind, wobei jedes Werdokument die lumineszierenden Partikel in einer bimoda-  
15           len Korngrößenverteilung besitzt; und

              dritte Werdokumente, die jeweils gemäß Anspruch 9 definiert sind, wobei jedes Werdokument die lumineszierenden Partikel in einer polymodalen Korngrößenverteilung besitzt.

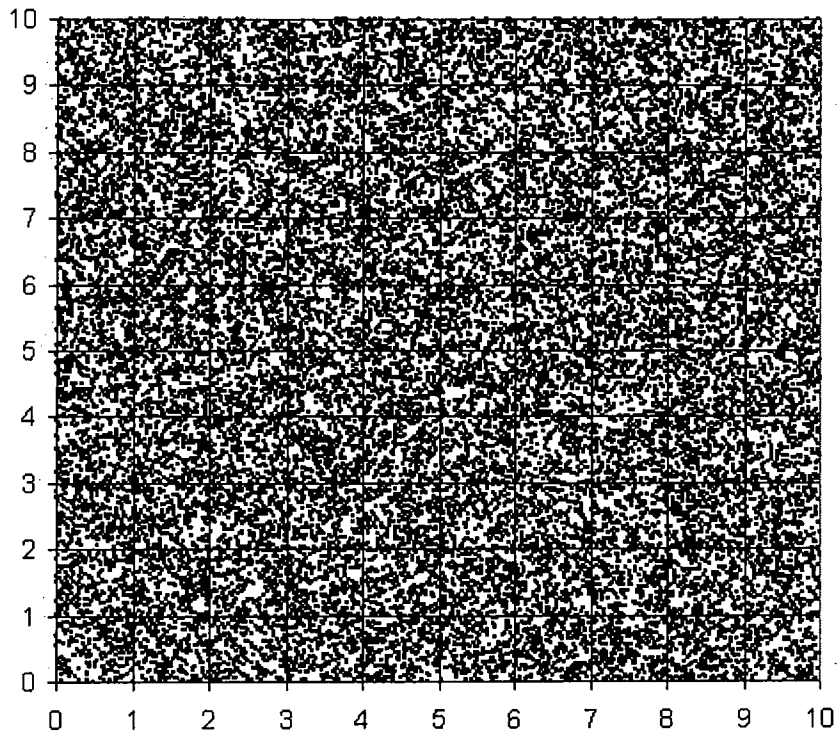
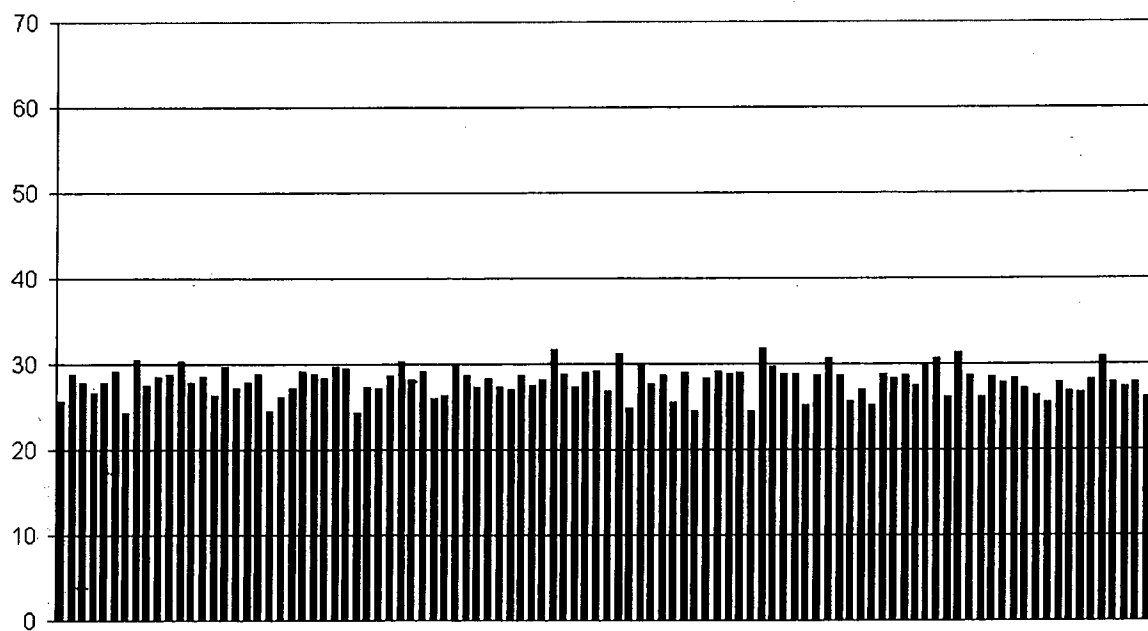
20   14. Werdokumentsystem nach Anspruch 13, wobei die Konzentrationen der lumineszierenden Partikel in den jeweiligen ersten, zweiten und dritten Werdokumenten so gewählt sind, dass lumineszierende Partikel mit einer ersten Korngrößenverteilung, die eine höhere Lumineszenzintensität als lumineszierende Partikel mit einer zweiten Korngrößenverteilung besitzen, in  
25           einer geringeren Konzentration eingesetzt werden, wobei bevorzugt die Konzentrationen der lumineszierenden Partikel in den entsprechenden Werdokumenten so gewählt werden, dass alle Werdokumente die gleiche mittlere Lumineszenzintensität aufweisen.

- 53 -

15. Werdokumentsystem nach Anspruch 13 oder 14, wobei zumindest in einer Gruppe von Werdokumenten die lumineszierenden Partikel vollständig oder zum Teil durch lumineszierende, partikuläre Agglomerate einer festen homogenen Phase eines Luminophors gebildet sind.

**FIG 1**

Zufallsverteilung, 28000 Partikel

**FIG 2**



**FIG 3**

Zufallsverteilung, 2800 Partikel

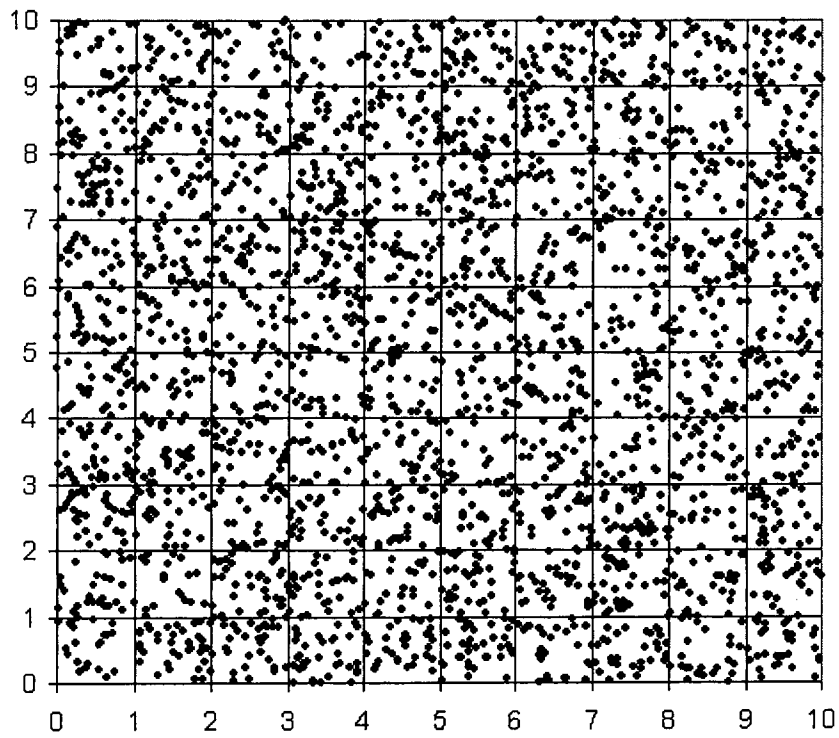
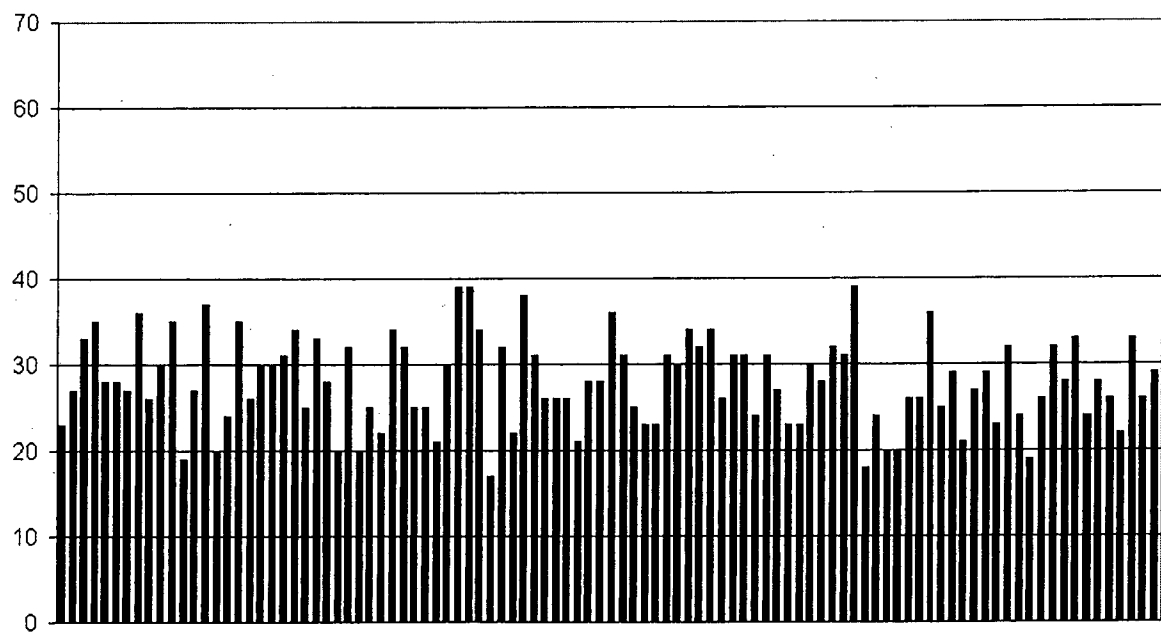
**FIG 4**

FIG 5

Zufallsverteilung, 2800 Partikel

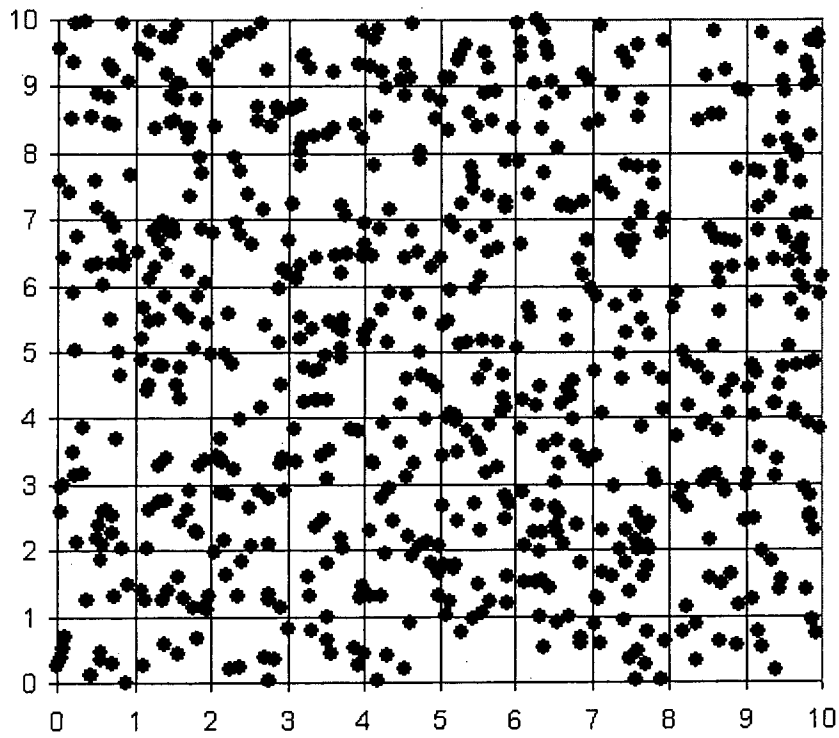
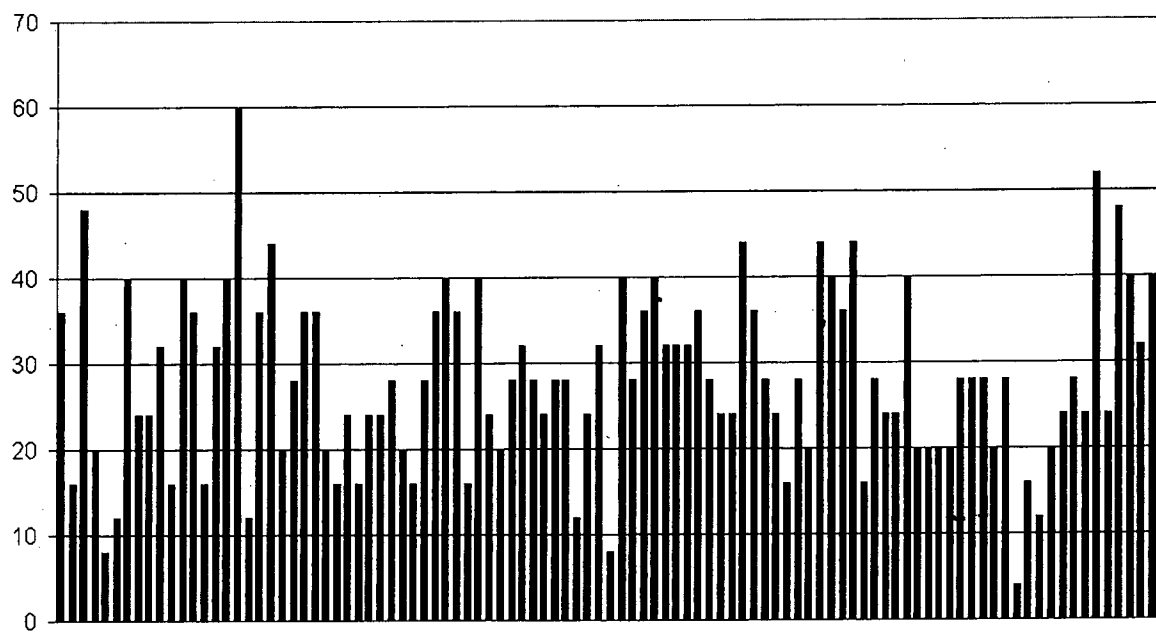


FIG 6



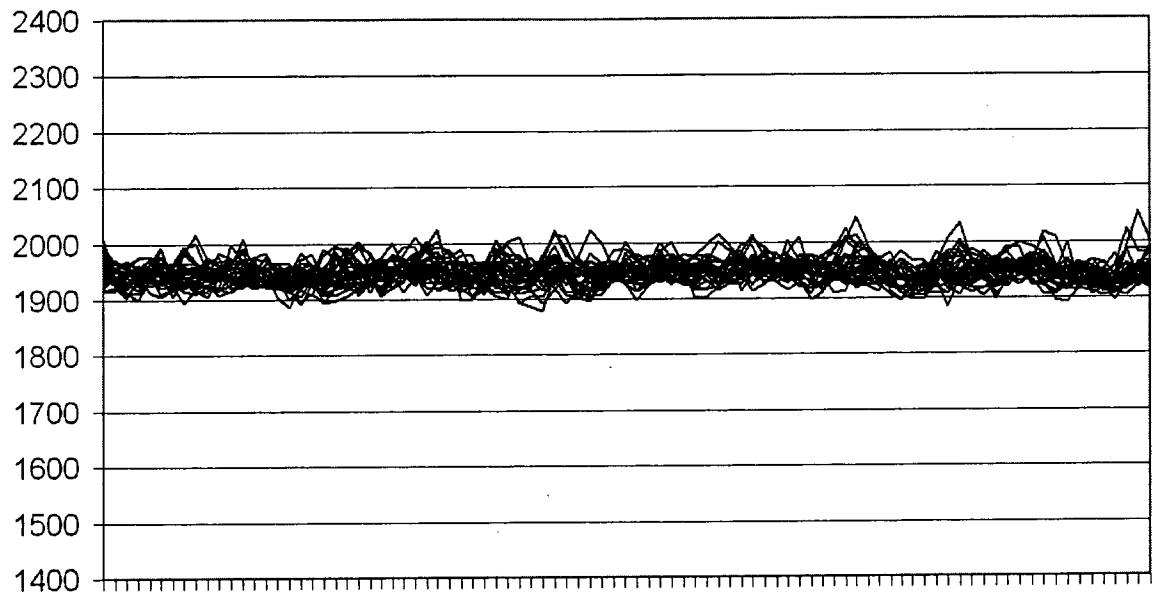
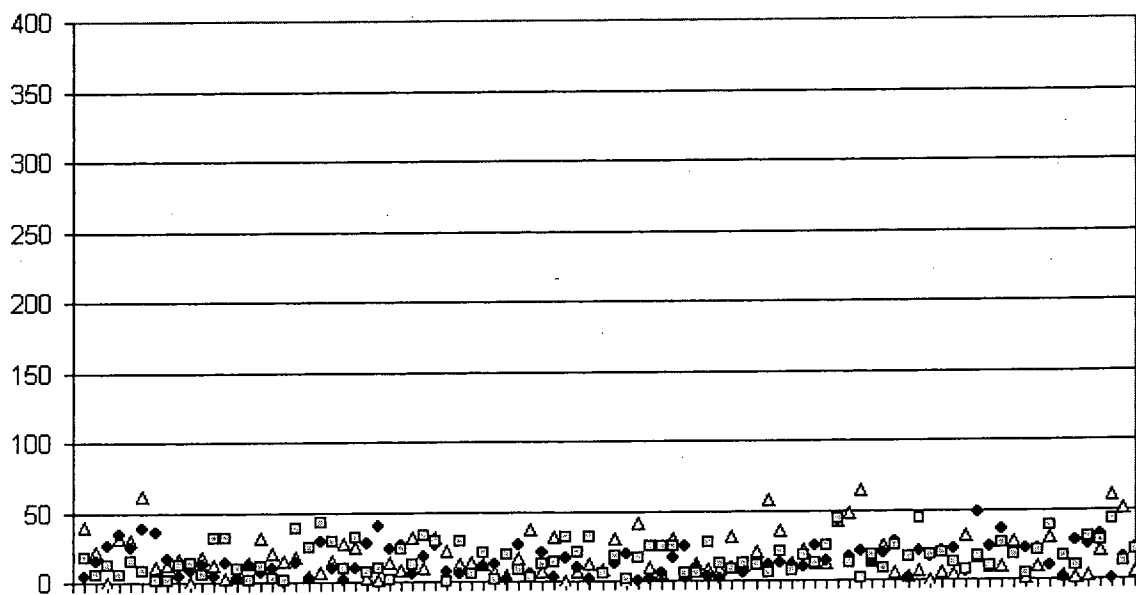
**FIG 7****A1****FIG 8****Absolute Differenz (A1)**

FIG 9

A2

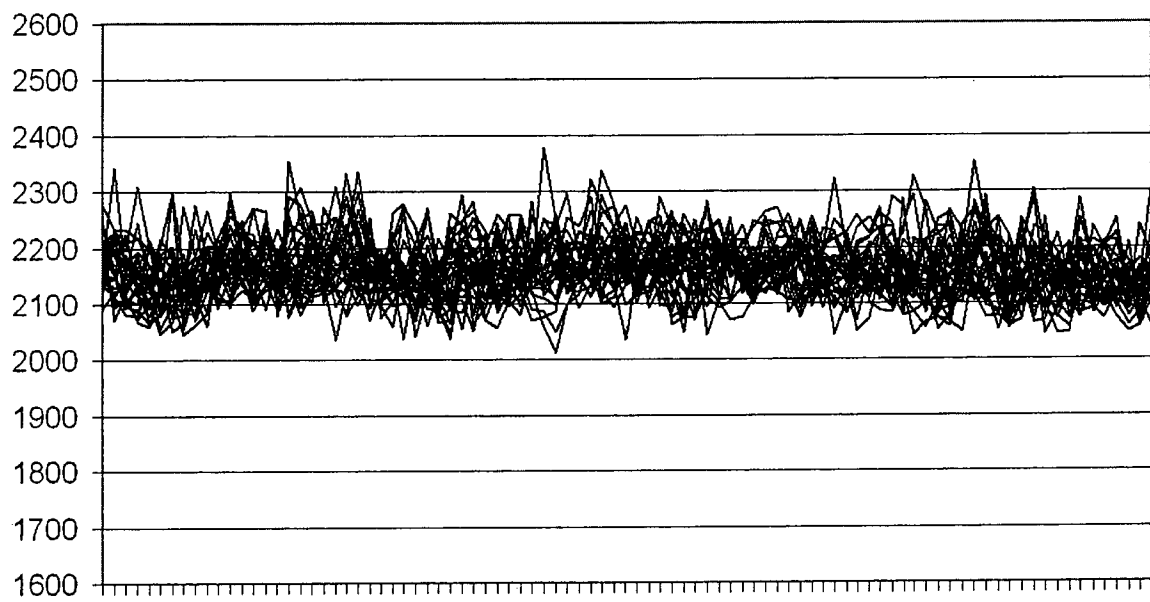


FIG 10

Absolute Differenz (A2)

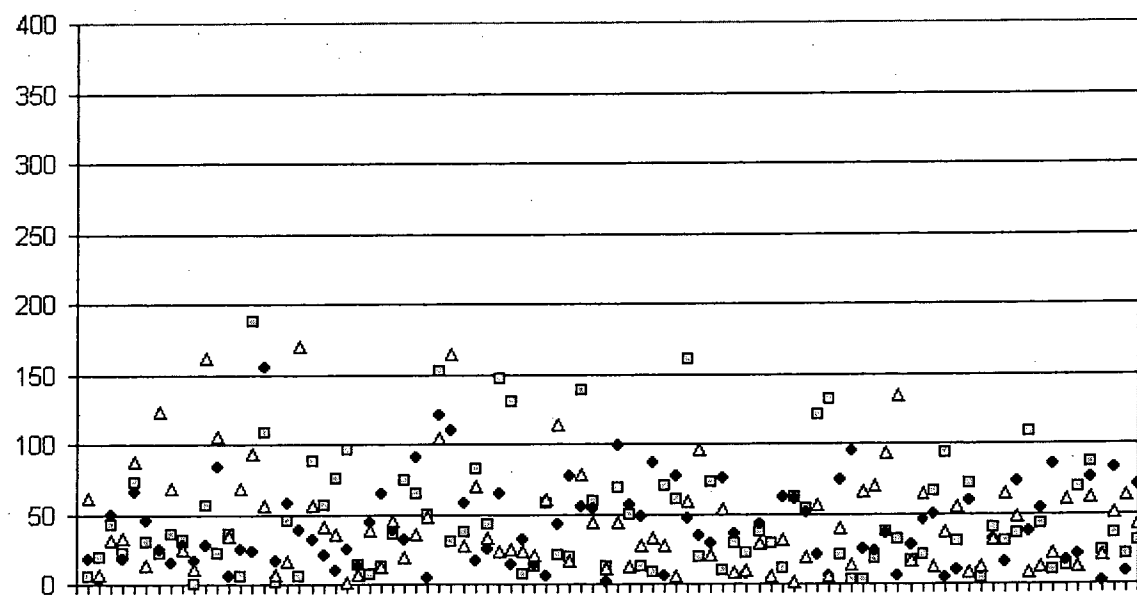


FIG 11

A3

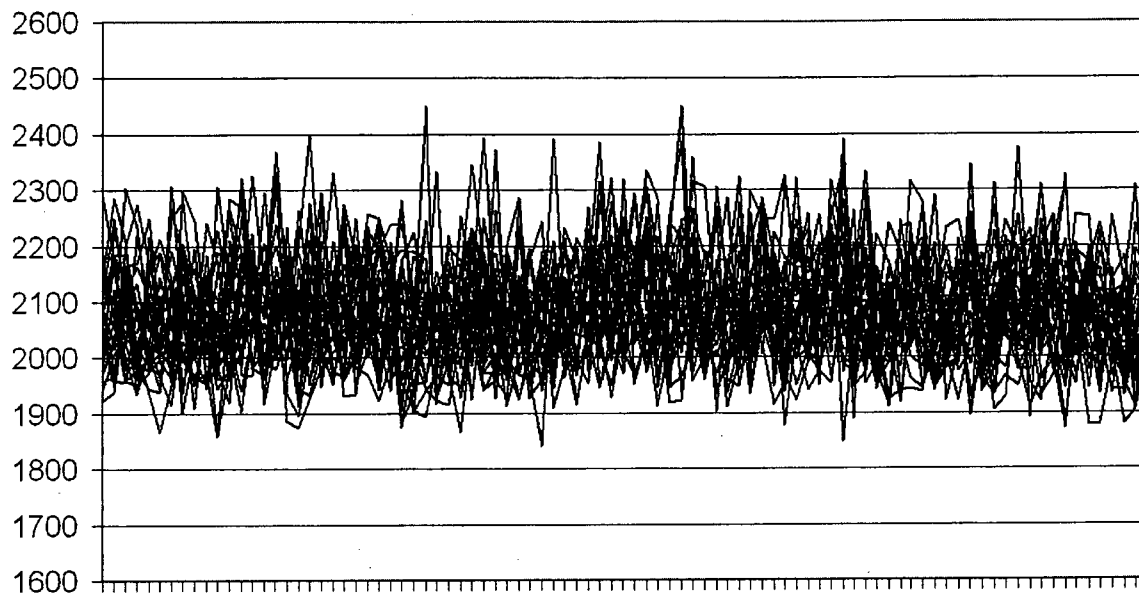
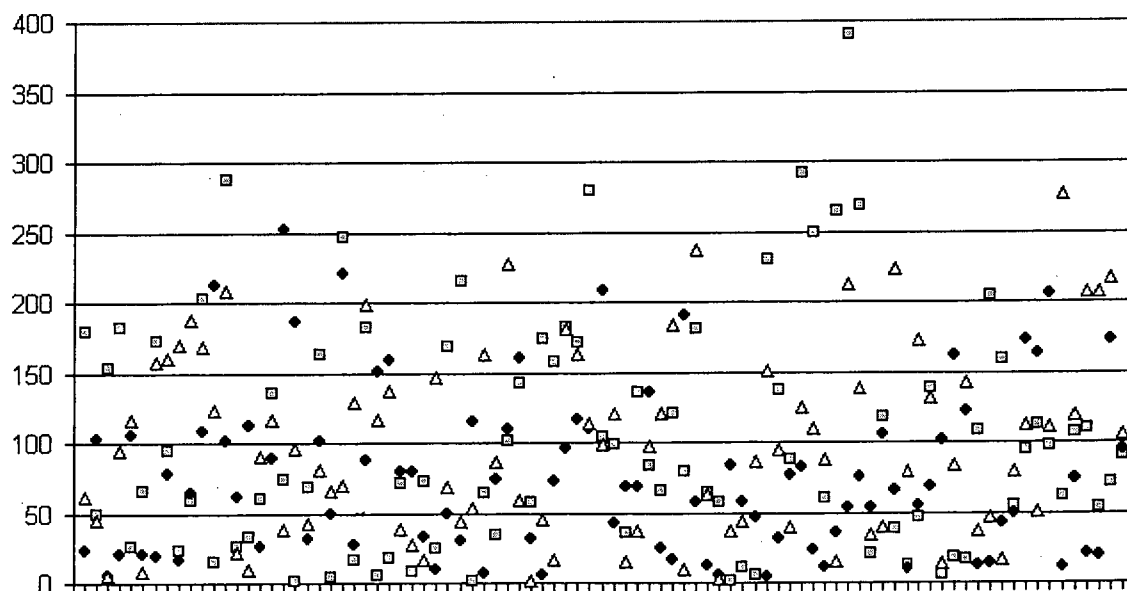


FIG 12

Absolute Differenz (A3)



**FIG 13**

Zufallsverteilung, 2800 kleine Partikel + 14 große  
Partikel

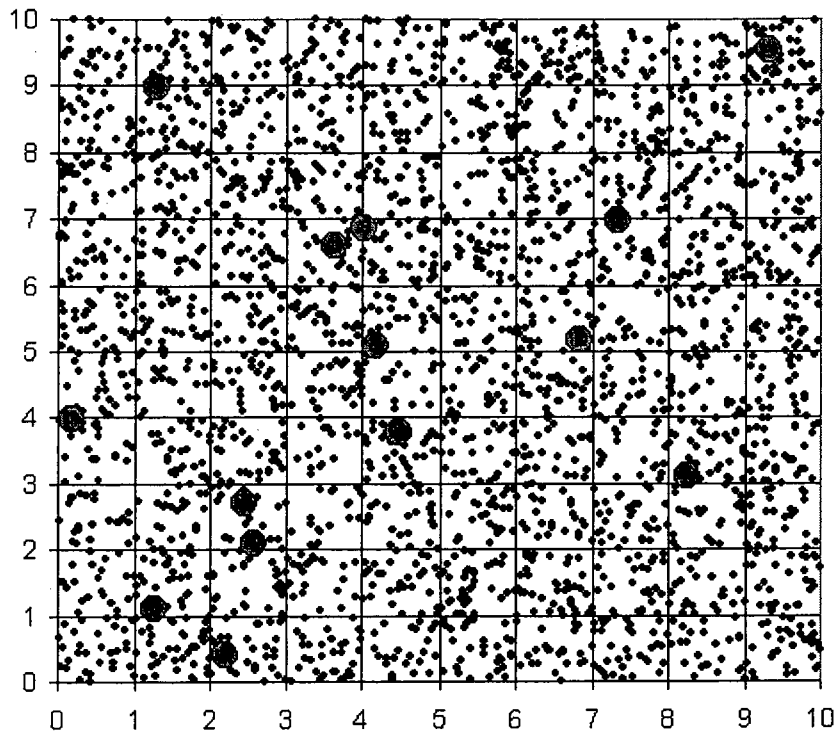
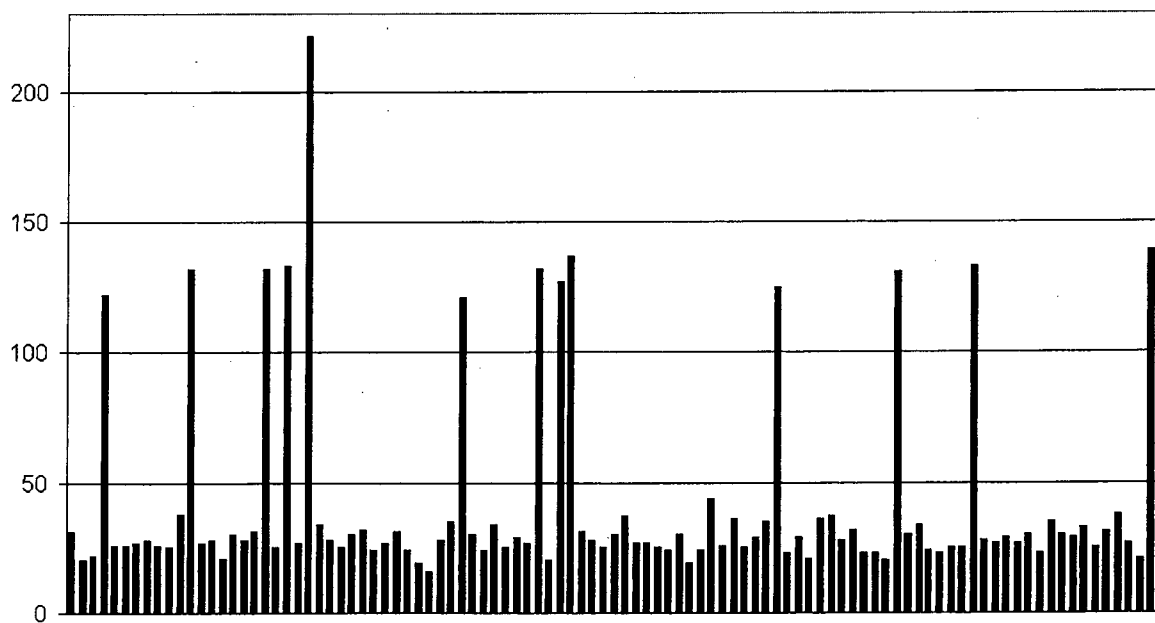
**FIG 14**

FIG 15

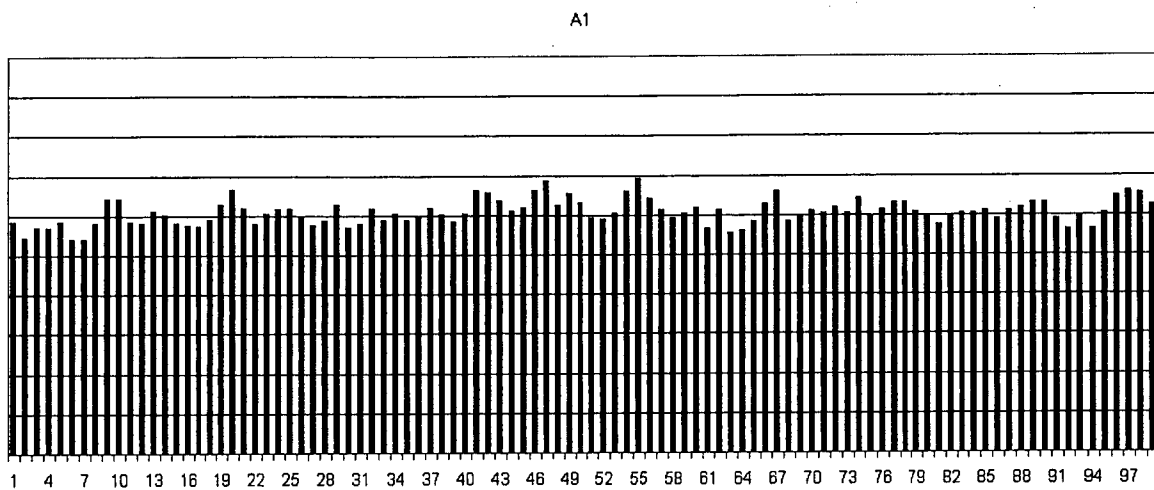


FIG 16

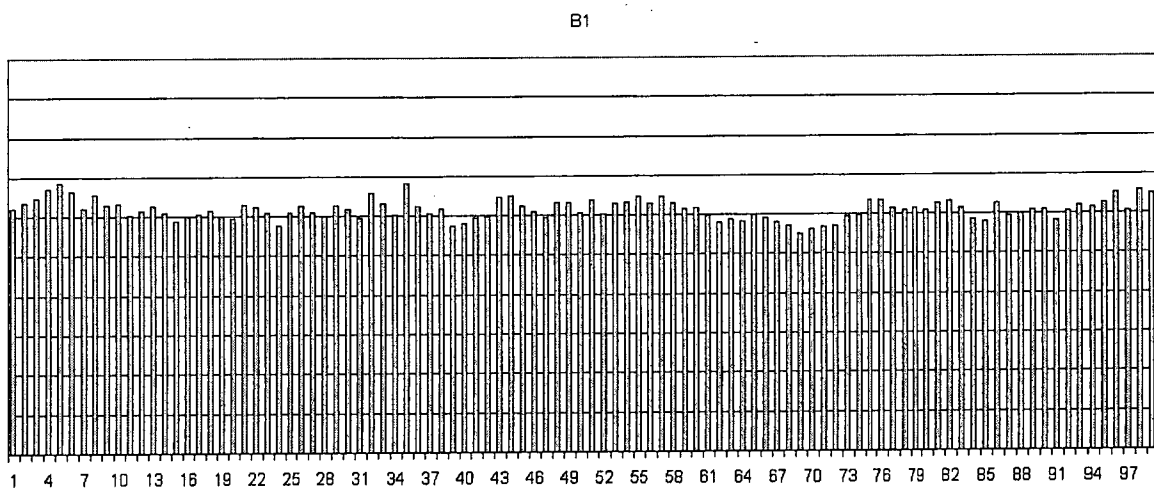
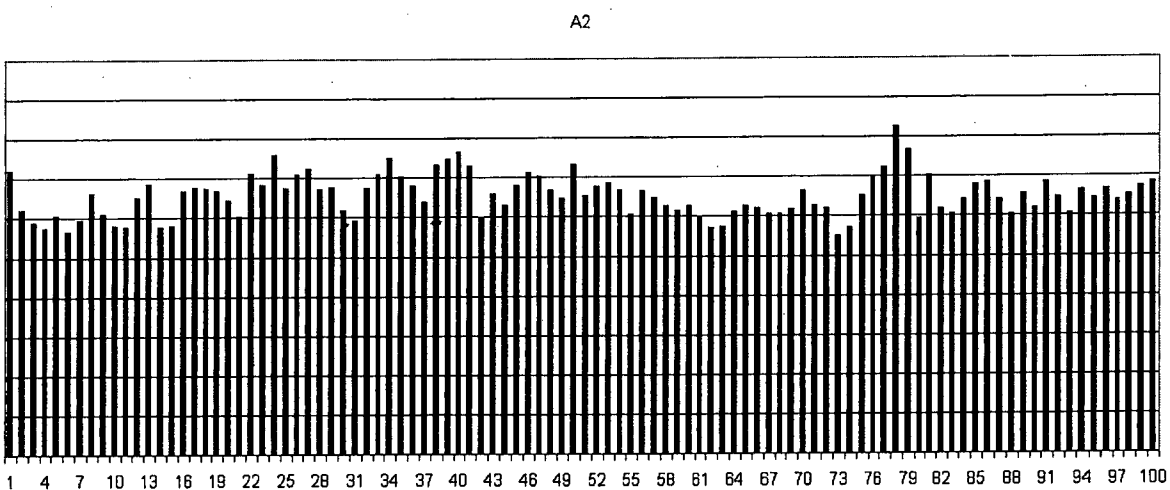
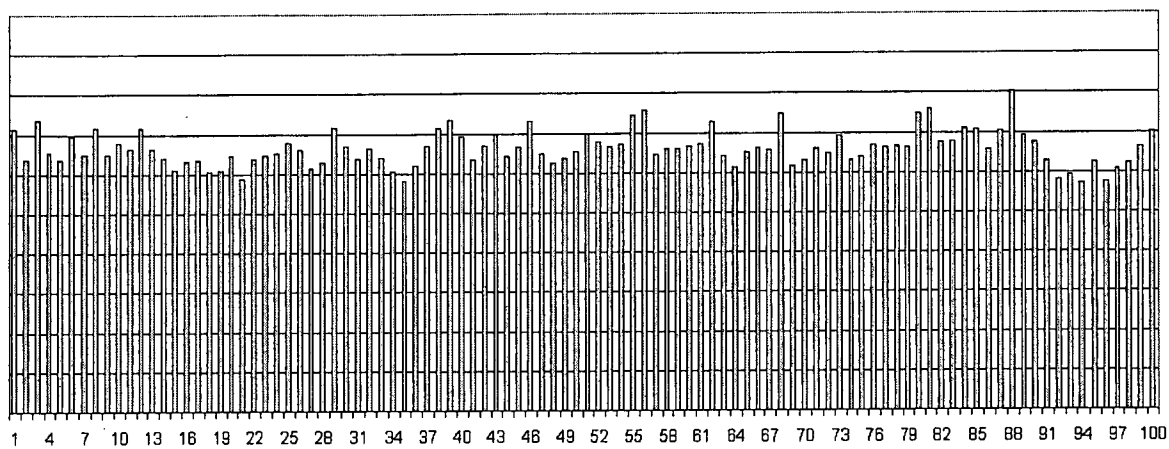


FIG 17

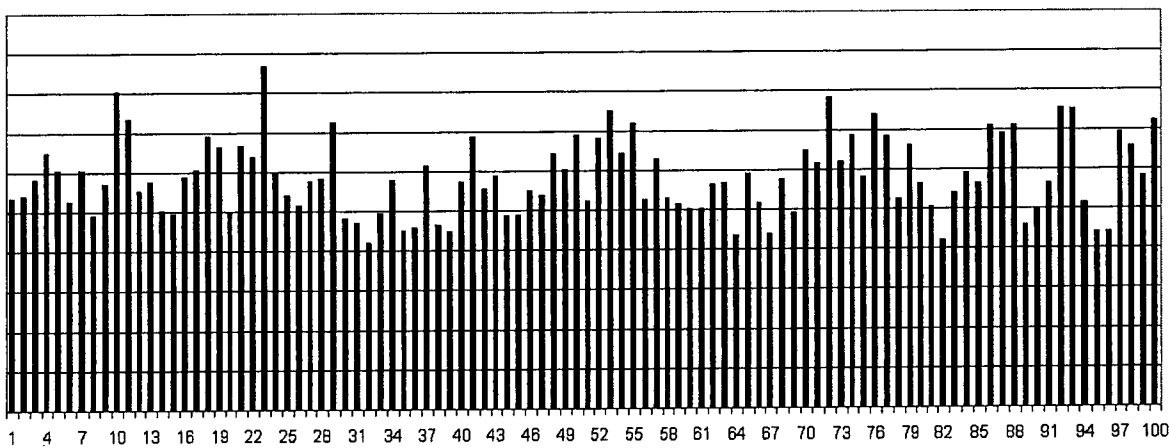


**FIG 18**

B2

**FIG 19**

A3

**FIG 20**

B3

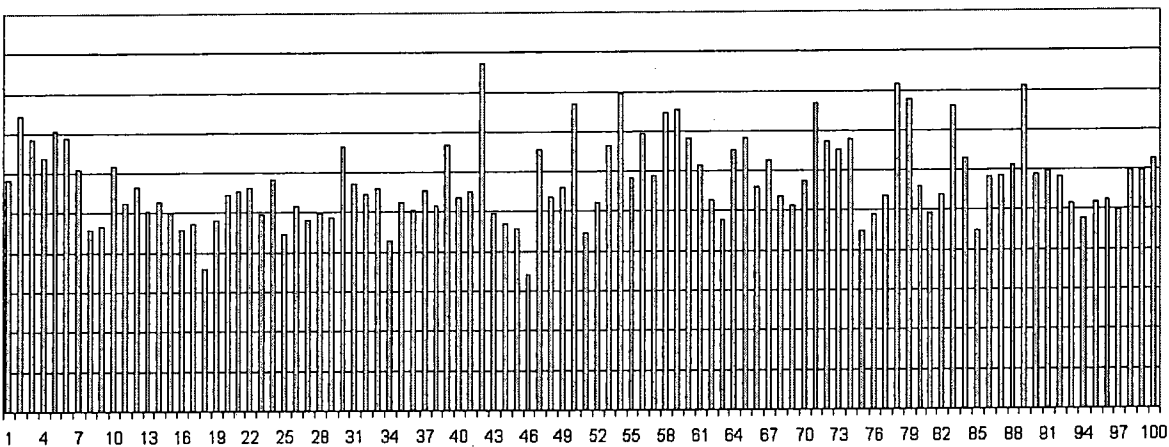




FIG 21

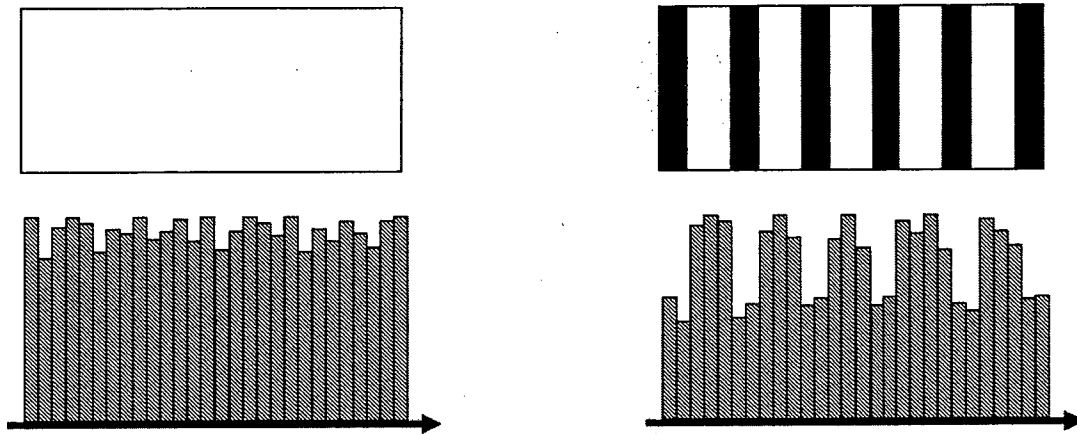


FIG 22

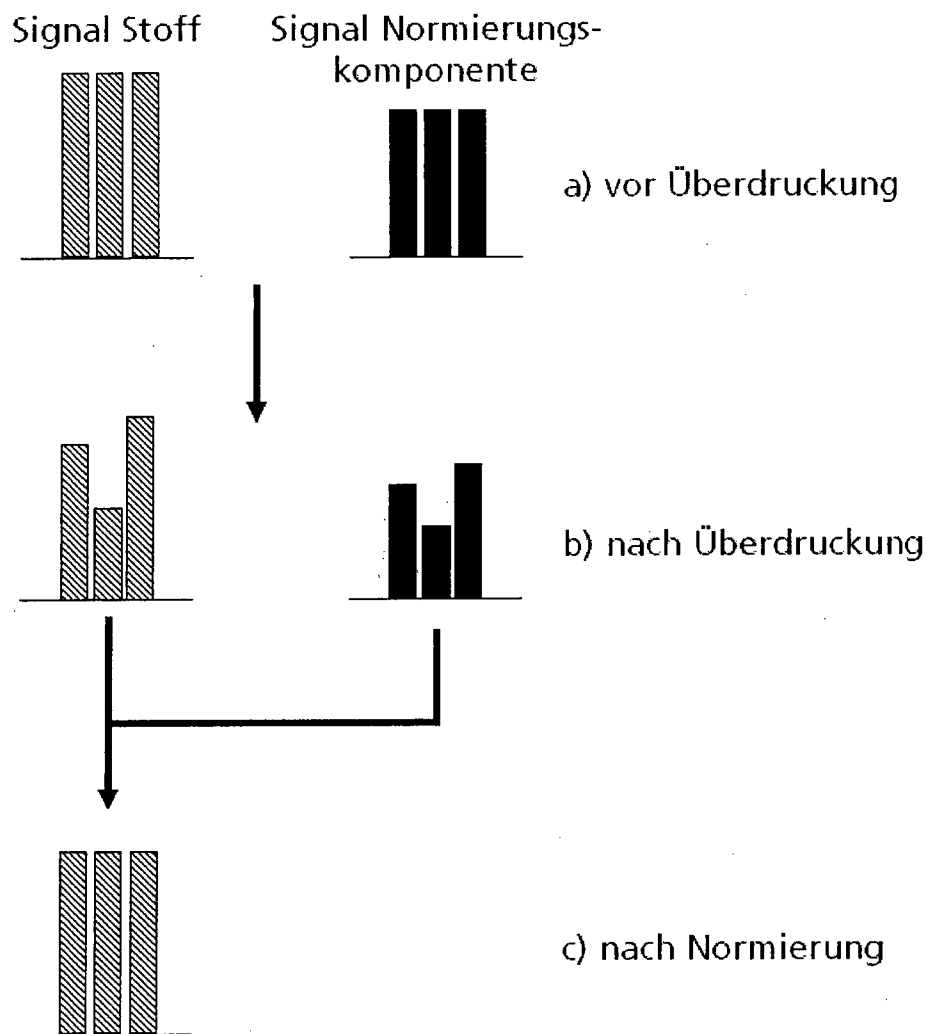


FIG 23

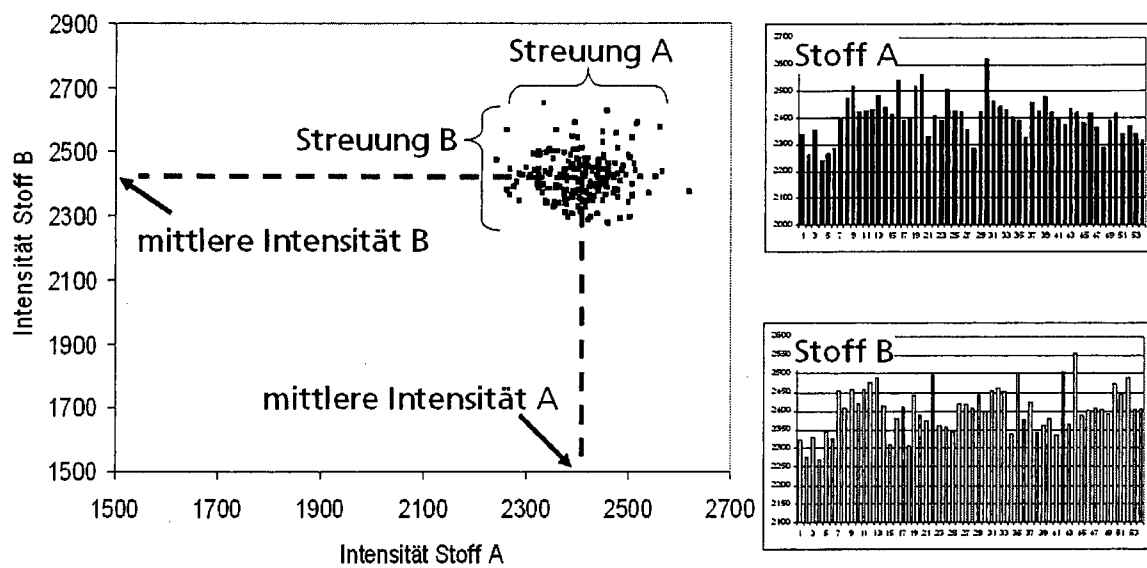


FIG 24

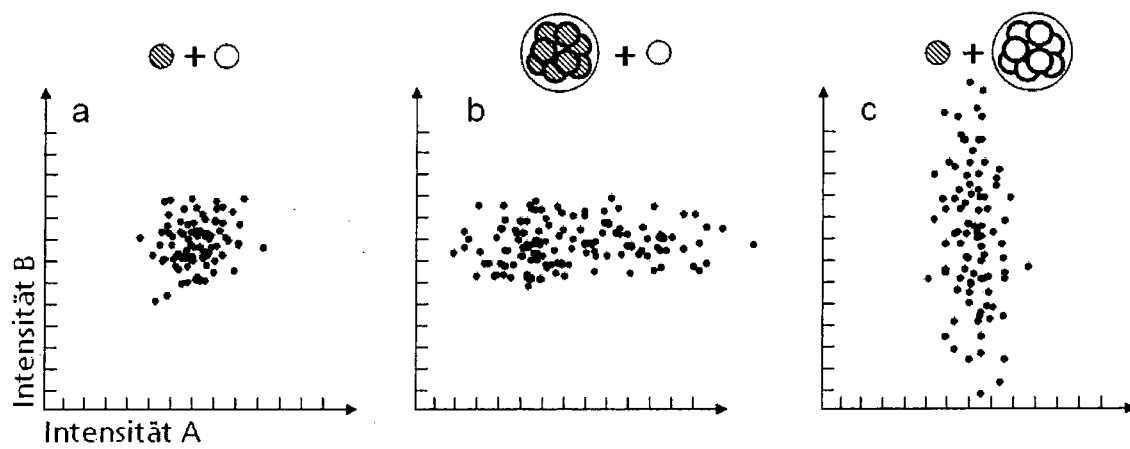


FIG 25

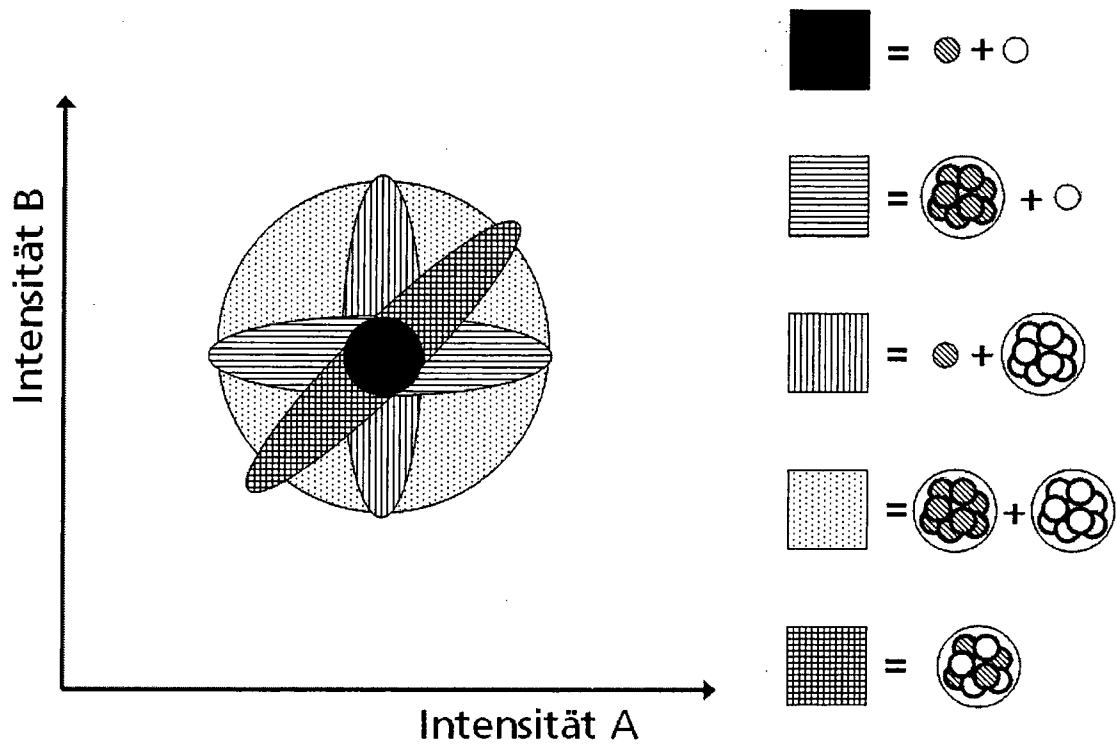


FIG 26

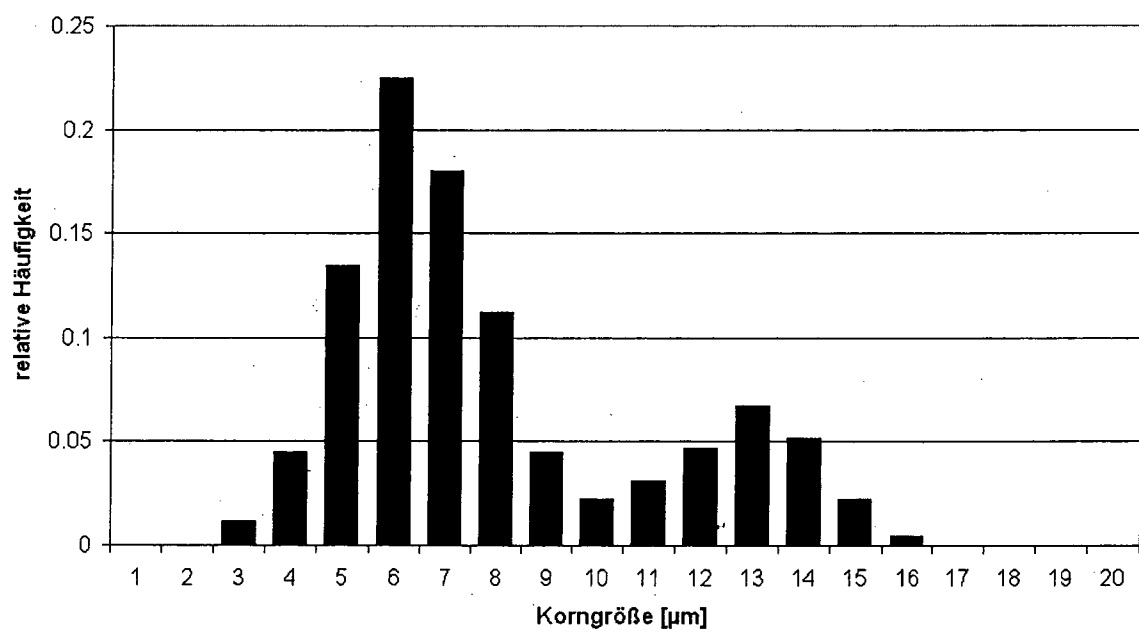
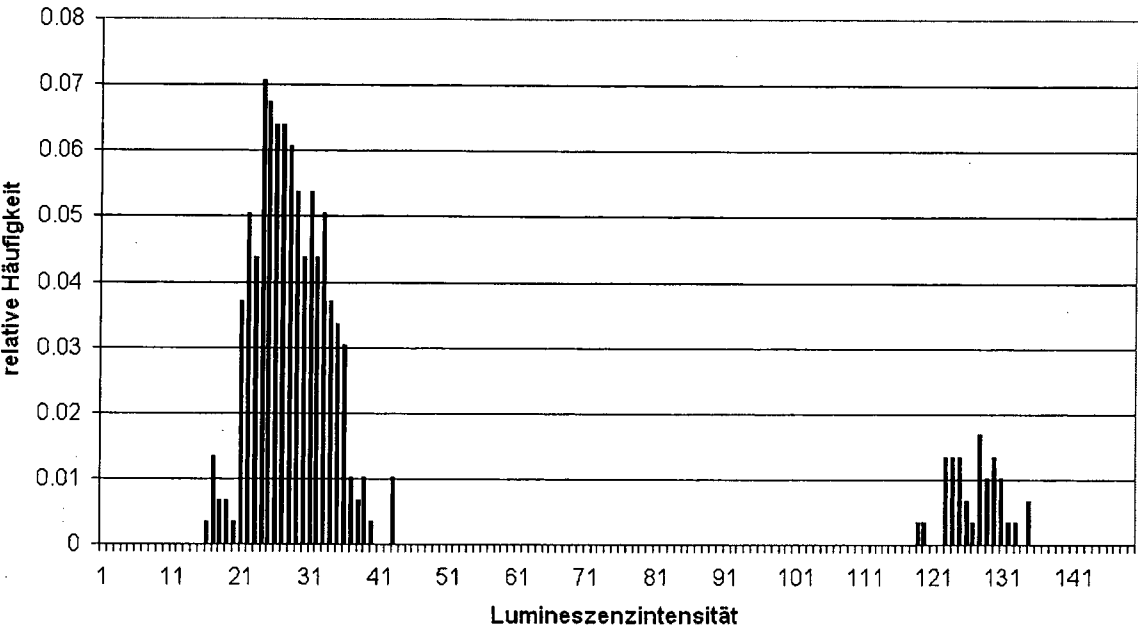


FIG 27



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No  
PCT/EP2013/002918

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

INV. G07D7/00 B42D15/00 B42D15/10 G07D7/12  
ADD.

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)

G07D B42D

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

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

EPO-Internal

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 0 947 964 A1 (ASCOM AUTELCA AG [CH]) 6 October 1999 (1999-10-06)	1-3
Y	paragraphs [0014], [0017], [0019], [0035], [0036], [0038]; figure 2 -----	4,5
X	US 2010/155679 A1 (OLM MYRA T [US] ET AL) 24 June 2010 (2010-06-24)	6-15
Y	paragraphs [0003], [0011], [0012],	4,5
A	[0016], [0022], [0023], [0035] - [0040], [0042], [0059]; figures 1-9 -----	1
A	DE 10 2008 034021 A1 (MERCK PATENT GMBH [DE]; BUNDESDRUCKEREI GMBH [DE]) 21 January 2010 (2010-01-21) paragraphs [0009], [0018], [0019], [0022], [0027], [0033], [0070], [0073], [0090]; figures -----	1,6-15



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

## \* Special categories of cited documents :

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

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

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

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

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

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

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

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

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

17 December 2013

Date of mailing of the international search report

03/01/2014

Name and mailing address of the ISA/

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Neville, David

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/EP2013/002918

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0947964	A1	06-10-1999	AU 2141899 A 14-10-1999
		CA 2266290 A1 30-09-1999	
		EP 0947964 A1 06-10-1999	
		JP 2000030107 A 28-01-2000	
-----			
US 2010155679	A1	24-06-2010	CN 102257539 A 23-11-2011
		EP 2359349 A1 24-08-2011	
		US 2010155679 A1 24-06-2010	
		US 2012138857 A1 07-06-2012	
		WO 2010071673 A1 24-06-2010	
-----			
DE 102008034021	A1	21-01-2010	CN 102099198 A 15-06-2011
		DE 102008034021 A1 21-01-2010	
		EP 2296911 A2 23-03-2011	
		WO 2010006582 A2 21-01-2010	
-----			

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES  
 INV. G07D7/00 B42D15/00 B42D15/10 G07D7/12  
 ADD.

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPC) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPC

#### B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)  
 G07D B42D

Recherchierte, aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal

#### C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	EP 0 947 964 A1 (ASCOM AUTELCA AG [CH]) 6. Oktober 1999 (1999-10-06)	1-3
Y	Absätze [0014], [0017], [0019], [0035], [0036], [0038]; Abbildung 2 -----	4,5
X	US 2010/155679 A1 (OLM MYRA T [US] ET AL) 24. Juni 2010 (2010-06-24)	6-15
Y	Absätze [0003], [0011], [0012], [0016],	4,5
A	[0022], [0023], [0035] - [0040], [0042], [0059]; Abbildungen 1-9 -----	1
A	DE 10 2008 034021 A1 (MERCK PATENT GMBH [DE]; BUNDESDRUCKEREI GMBH [DE]) 21. Januar 2010 (2010-01-21) Absätze [0009], [0018], [0019], [0022], [0027], [0033], [0070], [0073], [0090]; Abbildungen -----	1,6-15



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" frühere Anmeldung oder Patent, die bzw. das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

17. Dezember 2013

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

03/01/2014

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
 NL - 2280 HV Rijswijk  
 Tel. (+31-70) 340-2040,  
 Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Neville, David

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2013/002918

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 0947964	A1	06-10-1999	AU 2141899 A 14-10-1999
		CA 2266290 A1	30-09-1999
		EP 0947964 A1	06-10-1999
		JP 2000030107 A	28-01-2000
-----			
US 2010155679	A1	24-06-2010	CN 102257539 A 23-11-2011
		EP 2359349 A1	24-08-2011
		US 2010155679 A1	24-06-2010
		US 2012138857 A1	07-06-2012
		WO 2010071673 A1	24-06-2010
-----			
DE 102008034021	A1	21-01-2010	CN 102099198 A 15-06-2011
		DE 102008034021 A1	21-01-2010
		EP 2296911 A2	23-03-2011
		WO 2010006582 A2	21-01-2010
-----			