

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2017年3月9日(09.03.2017)



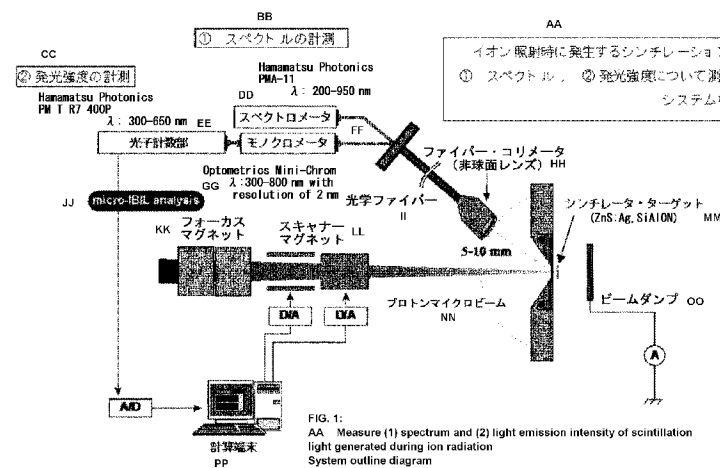
(10) 国際公開番号
WO 2017/038622 A1

- (51) 国際特許分類:
G01T 1/20 (2006.01) C09K 11/64 (2006.01)
C09K 11/00 (2006.01) G01T 1/202 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2016/074813
- (22) 国際出願日: 2016年8月25日(25.08.2016)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2015-169363 2015年8月28日(28.08.2015) JP
- (71) 出願人: 国立大学法人群馬大学(NATIONAL UNIVERSITY CORPORATION GUNMA UNIVERSITY) [JP/JP]; 〒3718510 群馬県前橋市荒牧町四丁目2番地 Gunma (JP). 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構(JAPAN ATOMIC ENERGY AGENCY) [JP/JP]; 〒3191184 茨城県那珂郡東海村大字舟石川765番地1 Ibaraki (JP). デンカ株式会社(DENKA COMPANY LIMITED) [JP/JP]; 〒1038338 東京都中央区日本橋室町二丁目1番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 加田 渉(KADA Wataru); 〒3718510 群馬県前橋市荒牧町四丁目2番地 国立大学法人群馬大学内 Gunma (JP). 三浦 健太(MIURA Kenta); 〒3718510 群馬県前橋市荒牧町四丁目2番地 国立大学法人群馬大学内 Gunma (JP). 花泉 修(HANAIZUMI Osamu); 〒3718510 群馬県前橋市荒牧町四丁目2番地 国立大学法人群馬大学内 Gunma (JP). 神谷 富裕(KAMIYA Tomihiro); 〒3701292 群馬県高崎市綿貫町1233番地 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 高崎量子応用研究所内 Gunma (JP). 佐藤 隆博(SATOH Takahiro); 〒3701292 群馬県高崎市綿貫町1233番地 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 高崎量子応用研究所内 Gunma (JP). 須崎 純一(SUSAKI Junichi); 〒1038338 東京都中央区日本橋室町二丁目1番1号 デンカ株式会社内 Tokyo (JP). 山田 鈴弥(YAMADA Suzuya); 〒1948560 東京都町田市旭町三丁目5番1号 デンカ株式会社 デンカイノベーションセンター内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 園田・小林特許業務法人(SONODA & KOBAYASHI INTELLECTUAL PROPERTY LAW);

[続葉有]

(54) Title: CHARGED PARTICLE RADIATION MEASURING METHOD AND CHARGED PARTICLE RADIATION MEASURING DEVICE

(54) 発明の名称: 荷電粒子放射線計測方法および荷電粒子放射線計測装置



(57) Abstract: [Problem] To provide a radiation measuring instrument having good heat resistance and radiation resistance. [Solution] Provided are a charged particle radiation measuring method and a charged particle radiation measuring device employing a scintillator containing a phosphor having SiAlON phosphor as the main component.

(57) 要約: 【課題】耐熱性及び放射線照射耐性の高い放射線計測機器を提供する。【解決手段】SiAlON蛍光体を主成分とする蛍光体を含むシンチレータを用いる荷電粒子放射線計測方法および荷電粒子放射線計測装置を提供する。



WO 2017/038622 A1



〒1630434 東京都新宿区西新宿二丁目1番1号
新宿三井ビル3 4階 Tokyo (JP).

- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

- 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

発明の名称：

荷電粒子放射線計測方法および荷電粒子放射線計測装置

技術分野

[0001] 本発明は、荷電粒子放射線計測方法および荷電粒子放射線計測装置に関する。

背景技術

[0002] 重粒子線治療装置等の放射線発生装置を利用した高度医療や、関連加速器施設における基礎実験では、荷電粒子の照射量やエネルギーを高い照射密度の条件下で正確にかつ連続的に計測する必要がある。他方で、核分裂を利用した原子力発電所等の原子力施設での事故時、ならびに近年開発が進められている核融合炉の炉内環境では、高温・高環境負荷、ならびに高放射線照射環境下に放射線計測機器を設置し、計測を行う必要がある。

[0003] 加速器施設から発生するイオンビームや原子力施設からの放射線は一般的に高密度であり、荷電粒子照射環境下でかつ周辺環境が高温である場合、多くの放射線計測機器は高い信頼性を有する必要がある。

[0004] これらの計測時には、シンチレータを用いたシンチレーション型検出器が用いられるが、放射線を光に変換する発光材料部分の耐性や発光効率が極めて重要である。シンチレータとは放射線が入射すると発光する物質で、前述の放射線計測用途・重粒子線治療等の加速器施設の他に、陽電子消滅断層撮影（PET）装置や産業用途で利用される。現在の α 線計測機器には、その発光効率から、ZnS：Ag，Cu等といった材料が広く利用されている（特許文献1、特許文献2または非特許文献1参照）。

[0005] しかしながら、現在使用されているZnS：Ag，Cu等のシンチレータ材料は、100℃程度の温度領域以上での利用は推奨されていない。そのため、高温環境下での使用が想定される原子力施設での放射線計測には材料特性が適していない。

他方でZnS : Ag, Cu等は、高密度の放射線による、その発光強度の著しい劣化が問題となっており、高頻度の交換が必要である。

先行技術文献

特許文献

- [0006] 特許文献1：特開2007-70496号公報
特許文献2：特開2010-127862号公報

非特許文献

- [0007] 非特許文献1：Transactions of the Materials Research Society of Japan
Vol. 38, No. 3; 2013 p443-446

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0008] 原子力施設では放射線に起因する劣化は、その放射線量測定に悪影響があり、信頼性の点で問題である。また加速器施設ならびにこれを利用した重粒子線治療施設などの医療用設備においても、高密度の荷電粒子照射が想定される。これらの機器におけるビーム品質の性能確保や、交換手順から来る作業効率の劣化は加速器装置の運転効率を著しく阻害する点で、既存のシンチレータを利用した放射線計測機器には未だ問題点が残る。
- [0009] 従来のシンチレータ型荷電粒子（ α 線）検出器に広く用いられる既存のシンチレータ材料（ZnS : Ag, Cu）では、百数十度（ $^{\circ}$ C）を越える高温環境下に長時間設置した場合に、荷電粒子による線量を長時間にわたり正確に計測することができず、また、測定された線量についても正確な計測ができないという問題があった。
- [0010] 他方で、加速器施設から発生する荷電粒子ビームなどのビームモニタ計測用途では、高密度のイオン流が想定され、既存のシンチレータ材料（ZnS : Ag, Cu）では発光量の減衰が著しく、例えば1平方cmあたり 10^{15} 個のイオン（以下、 10^{15} [ions/cm²] のように表記）を超える積算量では交換が必要となる。また、これ以前の測定においても、発光量から照

射線量を求めるには発光効率の劣化を勘案する必要があるため、正確な計測を行うことができないという問題があった。

[0011] これらは原子力施設で利用される α 線を計測対象とする放射線計測機器、重粒子線治療装置などの放射線発生装置を利用した先進医療装置設備や、その他の荷電粒子利用関連加速器施設における基礎・応用物理分野から、イオン注入装置のような小型加速機構を有する産業機器分野に関連する課題である。

[0012] 本発明は、上記の背景に鑑みてなされたものであり、耐熱性及び放射線照射耐性の高い放射線計測機器を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0013] 本発明によれば、SiAlON蛍光体を主成分とする蛍光体を含むシンチレータを用いる荷電粒子放射線計測方法が提供される。

[0014] 本発明によれば、SiAlON蛍光体を主成分とする蛍光体を含むシンチレータと、シンチレータからの光を選択的に集光する光学部品と、放射線に起因する光を読み取る計測部とを含む、荷電粒子放射線計測装置が提供される。

[0015] 本発明の一態様においては、上記SiAlON蛍光体が、一般式： $Eu_xSi_{16-z}Al_zO_zN_{8-z}$ で示され、 $0.01 \leq x \leq 0.5$ 、 $0 < z \leq 4.2$ であり、発光中心Euを含有する β 型SiAlONを主成分とする蛍光体である。

[0016] 本発明の一態様においては、上記SiAlON蛍光体が、一般式： $M_ySi_{12-(m+n)}Al_{(m+n)}O_nN_{16-n}$ （Mは、Li、Ca、Mg、Y及びランタニド元素（LaとCeを除く）から選ばれる少なくとも1種の元素とEu、Ce、Tb、Yb、Sm、Dy、Er、Prから選ばれる少なくとも1種の発光中心を含む。 $y = m/p$ （ p ：Mの原子価））で示され、 $0.3 < m < 4.5$ 、 $0 \leq n < 2.5$ の範囲の α 型SiAlONを主成分とする蛍光体である。

発明の効果

[0017] 本発明によれば、耐熱性及び放射線照射耐性の高い放射線計測機器を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0018] [図1]本発明の一実施形態に係る放射線量測定装置の概略的な構成図である。

[図2]実施例の放射線量測定装置におけるビーム計測例である。

[図3]実施例の放射線量測定装置における波長計測の例である。

[図4]放射線量測定装置の放射線耐性を高密度放射線により試験した例である。

発明を実施するための形態

[0019] 以下、添付図面を参照して、本発明に係る荷電粒子放射線計測方法および荷電粒子放射線計測装置を実施するための形態について説明する。しかしながら、本発明がこれらの実施形態に限定されないことは自明である。

[0020] 本実施形態に係る荷電粒子放射線計測方法および荷電粒子放射線計測装置では、シンチレータ材料としてS i A l O N蛍光体を主成分とする蛍光体を採用する。

[0021] S i A l O N蛍光体は、代表的な酸窒化物蛍光体である。高温で高機械的特性を維持するエンジニアリングセラミックスとして開発されたS i A l O Nをホスト結晶に用いて発光中心を賦活した蛍光体であり、結晶構造の異なる二つの種類がある。

[0022] β 型S i A l O Nは、一般式： $E u_x S i_{6-z} A l_z O_z N_{8-z}$ で示され、 $0.1 \leq x \leq 0.5$ 、 $0 < z \leq 4.2$ である発光中心E uを含有する、緑色発光する蛍光体である。

α 型S i A l O Nは、一般式： $M_y S i_{12-(m+n)} A l_{(m+n)} O_n N_{16-n}$ (Mは、L i、C a、M g、Y及びランタニド元素(L aとC eを除く)から選ばれる少なくとも1種の元素とE u、C e、T b、Y b、S m、D y、E r、P rから選ばれる少なくとも1種の発光中心を含む。 $y = m/p$ (p : Mの原子価))で示され、 $0.3 < m < 4.5$ 、 $0 \leq n < 2.5$ の範囲の蛍光体である。

- [0023] これらのSiAlON蛍光体は、青色LEDチップの青色光によって励起発光を行う白色LEDデバイス用の蛍光体としては、300℃まで環境温度が上がっても発光強度の低下があまり生じないことや高温耐湿（85℃、85%相対湿度）の環境下で放置しても劣化が見られないことが知られている。
- [0024] 本願発明者らは、ZnS:Ag, Cu蛍光体等の既存のシンチレータ材料と比較して、SiAlON蛍光体の高温環境や高密度の放射線照射による劣化が極めて生じ難いことを見出して本発明を完成させるに至った。
- [0025] 本実施形態における放射線計測機器では、耐熱性及び放射線照射耐性の高いSiAlON蛍光体から放射線に起因して発生する発光のスペクトルを、光センサにおける量子効率が高い波長をピーク波長とするように調整することが好ましい。
- [0026] 本実施形態に係る荷電粒子放射線計測装置は、SiAlON蛍光体を主成分とする蛍光体を含むシンチレータと、シンチレータからの光を選択的に集光する光学部品と、放射線に起因する光を読み取る計測部とを含む。
- [0027] 本実施形態に係る放射線計測機器は、粉末、焼結体、単結晶、薄膜などの形状を有するSiAlON蛍光体を保持固定するホルダ他の機構部品と、放射線起因のシンチレータからの光を選択的に集光する光学部品、ならびに1次の放射線に起因する光子を読み取るカメラ機器、アバランシェフォトダイオード（Avalanche Photo-Diode: APD）、光電子増倍管（Photomultiplier: PMT）、CCD素子、フォトダイオード（Photodiode: PD）などの計測部を組み合わせることで装置を構成することができる。
- [0028] 図1は放射線計測機器を示す概略的な構成図の一例である。加速器施設からの放射線を1次の放射線として用いている。
- シンチレータを構成するSiAlON蛍光体の組成によって発光波長の調整が可能であり、これにより、計測機器の読み取り効率を改善することができる。
- [0029] 環境放射線などの α 線では、放射線の発生源が1点ではなく、シンチレー

タ材料を囲む形で四方から発生するが、シンチレータ材料とこれに付随する機構部品、光学部品、計測部は図1と同様の構成としてもよい。

また機構部品、光学部品、ならびに計測部は測定対象に適した幾何学的構造、配置を行う必要があるため、その構造は目的に応じて種々の形態をとってよい。計測部は1次元、2次元の計測機器を用いることで、観察様式を変更可能である。

[0030] 本発明によれば、放射線発生装置以外の放射線源による放射線の計測についても、放射線計測機器の構造は異なるものの、基本的には同一の構成素子により、高温・高負荷環境においての荷電粒子計測が可能である。

[0031] 計測機器に利用される部材の耐熱性能が問題となるが、S i A I O N蛍光体は、高温まで構造変化は起こりえないため、適切な構造材料ならびに光学部品、計測部と組み合わせることで、従来よりも高い放射線耐性を有した放射線計測機器の動作温度範囲を改善させることが可能である。これにより通常の放射能汚染検査を目的とした α 線計測機器の高寿命化や、高温耐性を必要とする原子力施設内部他での α 線計測用の放射線計測機器が実現し、これを提供することができる。

[0032] 本実施形態に係る荷電粒子放射線計測方法および荷電粒子放射線計測装置は、イ)原子力施設で利用される α 線を計測対象とする放射線計測機器のうち、シンチレーション方式により計測を行うもの、ロ)重粒子線や陽子線の治療装置などの放射線発生装置(加速器)におけるビーム品質計測用のビームモニタ・放射線測定器、ハ)その他の荷電粒子利用関連加速器施設、ならびに産業用イオン注入装置のような小型加速機構を有する産業機器におけるビーム品質計測装置等に利用することができる。

[0033] 本実施形態に係る荷電粒子放射線計測装置として、放射線-光変換材料である新規シンチレータ材料としてS i A I O N蛍光体を主成分とする蛍光体を用いることにより、シンチレータ材料と、これを保持固定する機構部品ならびにシンチレータからの光を選択的に集光する光学部品と、放射線起因の光を読み取る計測部とで構成された、耐熱性及び放射線照射耐性の高い放射

線計測装置を提供することができる。

- [0034] 以上のように、本実施形態に係る荷電粒子放射線計測方法および荷電粒子放射線計測装置により、従来の荷電粒子放射線計測機器の利用が困難な数百度（℃）程度の温度や集束荷電粒子照射環境等の高い放射線照射量の条件において、その状況に関わらず荷電粒子の照射量を計測し、また従来よりも長寿命に利用できる放射線測定器を提供することができる。

実施例

- [0035] 以下、本発明の実施例を説明する。

（実施例 1）

β 型 SiAlON : Eu 粉末（デンカ（株）製 GR-200 グレード、 β 型 SiAlON、平均粒子径：21 μm ）を水ガラスに分散させて炭素製の板上に塗膜厚み 10 μm 以下で塗布して均一に固定させ、シンチレータを作製した。このシンチレータを図 1 に示すような放射線計測機器に取り付けて荷電粒子の照射試験を行った。

- [0036] 隣接する加速器施設から 3 MeV の H^+ （プロトン）集束イオンビームを局所的（400 μm × 400 μm ）なターゲットへ連続的に照射した。

- [0037] 本発明における放射線計測機器では、光の空間分布や波長分布により、1 次放射線の分布や強度を測定することが可能である。ここで、図 2 は、放射線計測機器におけるビーム計測の例である。図 3 は、試験開始時における、荷電粒子によって励起発光したスペクトル・発光強度の計測結果を示している。

- [0038] （実施例 2）

α 型 SiAlON : Eu 粉末（デンカ（株）製 YL-600A グレード、 α 型 SiAlON、平均粒子径：15 μm ）を用い、実施例 1 と同様の方法にてシンチレータを作製し、荷電粒子の照射試験を行った。

- [0039] （比較例 1）

比較例 1 として、上記の β 型 SiAlON : Eu 粉末に替えて ZnS : Ag 蛍光体粉末を用い、実施例 1 と同様の条件にて荷電粒子の照射試験を行っ

た。

[0040] 図3に実施例1、2と比較例1の試験開始時におけるスペクトル・発光強度の計測結果を示す。同一の照射量下において、試験開始時には、 β 型SiAlON:Eu蛍光体を用いた実施例1では、ZnS:Agを用いた比較例1よりもやや長波長側に同程度の発光強度の荷電粒子励起発光が観察された。 β 型SiAlON:Eu蛍光体の発光波長は、ZnS:Agの発光波長と比較して光センサの量子効率が高い点で有利である。

また、 α 型SiAlONを用いた実施例2では、 β 型SiAlONと比較して長波長側に荷電粒子励起発光が観察された。 α 型SiAlONの発光強度の高さは、 β 型SiAlONに比較して低いが、発光スペクトルを積分した発光強度では、同程度の値が得られた。

[0041] 図4に放射線計測機器の実施例1、2と比較例1における高密度照射試験の結果を示す。横軸方向に荷電粒子の照射量を、縦軸方向に同一の放射線照射強度における発光強度を示す。

荷電粒子の照射量の増加とともにZnS:Agを用いた比較例1の発光強度は著しく減衰していくことがわかる。一方、 β 型SiAlON:Eu蛍光体を用いた実施例1の場合は、発光強度の減衰が見られず高密度照射により蛍光特性が劣化しないことが確認できる。 α 型SiAlON:Eu蛍光体を用いた実施例2では、発光強度の減衰は見られるが、ZnS:Agを用いた比較例1に比べると減衰は小さいことが分かる。

[0042] 以上の結果より、本発明のSiAlON蛍光体を利用する荷電粒子放射線計測方法は、耐熱性及び放射線照射耐性の高い放射線測定器に十分使用可能であることがわかる。これより、SiAlON蛍光体を利用した放射線測定器の計測部の出力より、発光強度からの放射線の照射強度や照射量の測定が長時間に渡って可能である。

更に、図2に示すようにビームスポットの2次元的な計測が可能であり、一次放射線の分布を測定することが可能である。

[0043] 本例では加速器施設からの放射線を放射線源とするため、計測時間が数時

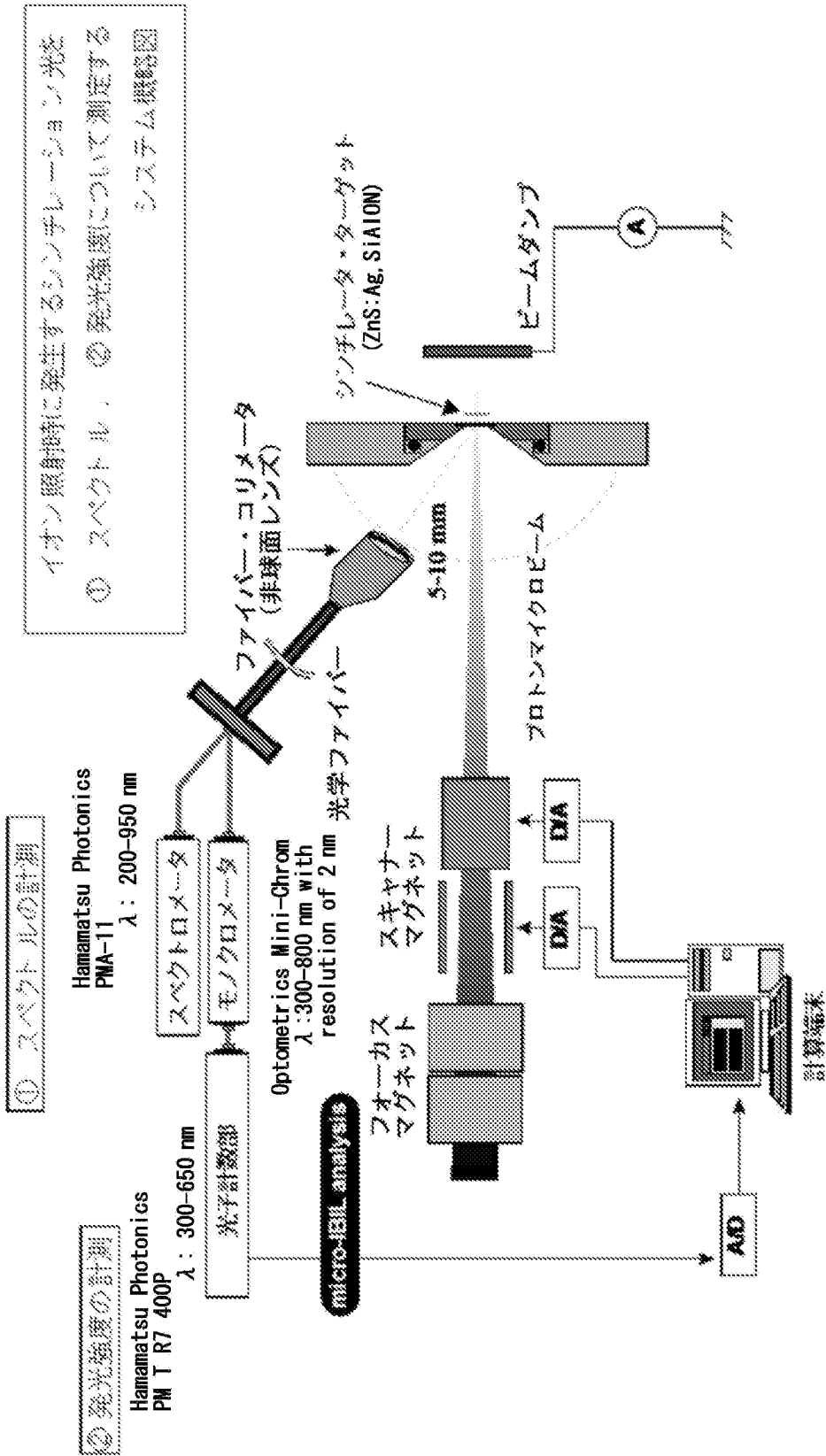
間程度の著しい加速試験となっているが、環境放射線などの α 線ではこれらは数年単位の劣化に対しても耐性が高いことを意味している。また荷電粒子が局所的に加熱し続ける条件下でもS i A I O Nはその蛍光特性を維持するため、数百度（ $^{\circ}\text{C}$ ）程度の高温環境下でも利用可能である。

請求の範囲

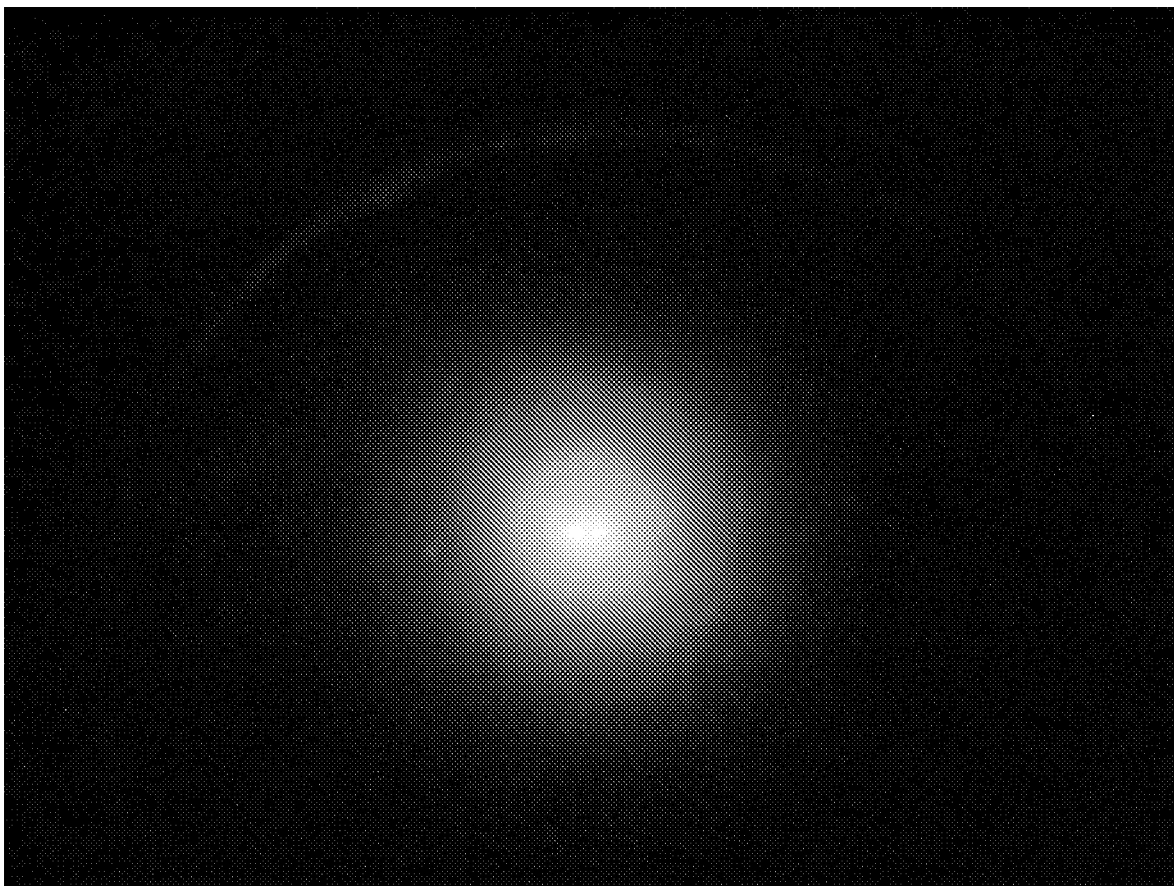
- [請求項1] SiAlON蛍光体を主成分とする蛍光体を含むシンチレータを用いる荷電粒子放射線計測方法。
- [請求項2] SiAlON蛍光体が、一般式： $Eu_xSi_{6-z}Al_zO_zN_{8-z}$ で示され、 $0.01 \leq x \leq 0.5$ 、 $0 < z \leq 4.2$ であり、発光中心Euを含有するβ型SiAlONを主成分とする蛍光体である請求項1に記載の荷電粒子放射線計測方法。
- [請求項3] SiAlON蛍光体が、一般式： $M_ySi_{12-(m+n)}Al_{(m+n)}O_nN_{16-n}$ （Mは、Li、Ca、Mg、Y及びランタニド元素（LaとCeを除く）から選ばれる少なくとも1種の元素とEu、Ce、Tb、Yb、Sm、Dy、Er、Prから選ばれる少なくとも1種の発光中心を含む。 $y = m/p$ （p：Mの原子価））で示され、 $0.3 < m < 4.5$ 、 $0 \leq n < 2.5$ の範囲のα型SiAlONを主成分とする蛍光体である請求項1に記載の荷電粒子放射線計測方法。
- [請求項4] SiAlON蛍光体を主成分とする蛍光体を含むシンチレータと、シンチレータからの光を選択的に集光する光学部品と、放射線に起因する光を読み取る計測部とを含む、荷電粒子放射線計測装置。
- [請求項5] SiAlON蛍光体が、一般式： $Eu_xSi_{6-z}Al_zO_zN_{8-z}$ で示され、 $0.01 \leq x \leq 0.5$ 、 $0 < z \leq 4.2$ であり、発光中心Euを含有するβ型SiAlONを主成分とする蛍光体である請求項4に記載の荷電粒子放射線計測装置。
- [請求項6] SiAlON蛍光体が、一般式： $M_ySi_{12-(m+n)}Al_{(m+n)}O_nN_{16-n}$ （Mは、Li、Ca、Mg、Y及びランタニド元素（LaとCeを除く）から選ばれる少なくとも1種の元素とEu、Ce、Tb、Yb、Sm、Dy、Er、Prから選ばれる少なくとも1種の発光中心を含む。 $y = m/p$ （p：Mの原子価））で示され、 $0.3 < m < 4.5$ 、 $0 \leq n < 2.5$ の範囲のα型SiAlONを主成分とする

蛍光体である請求項4に記載の荷電粒子放射線計測装置。

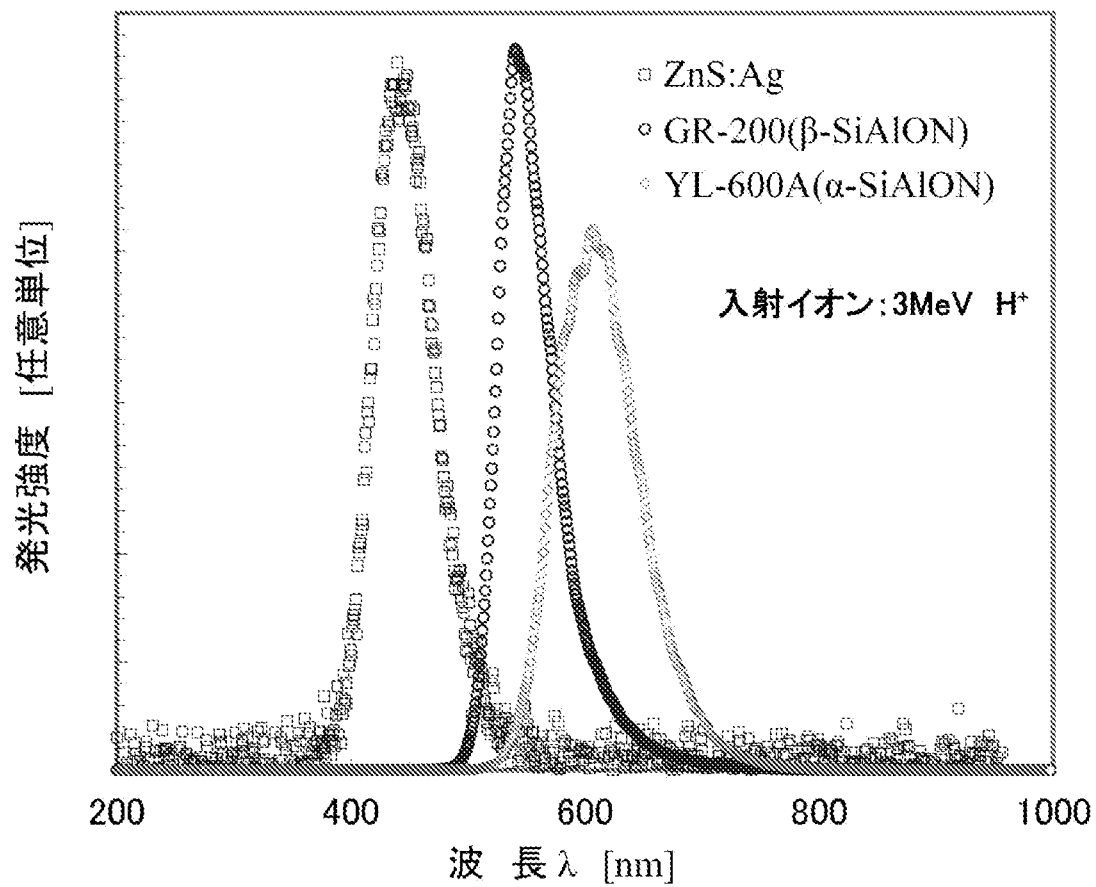
[図1]



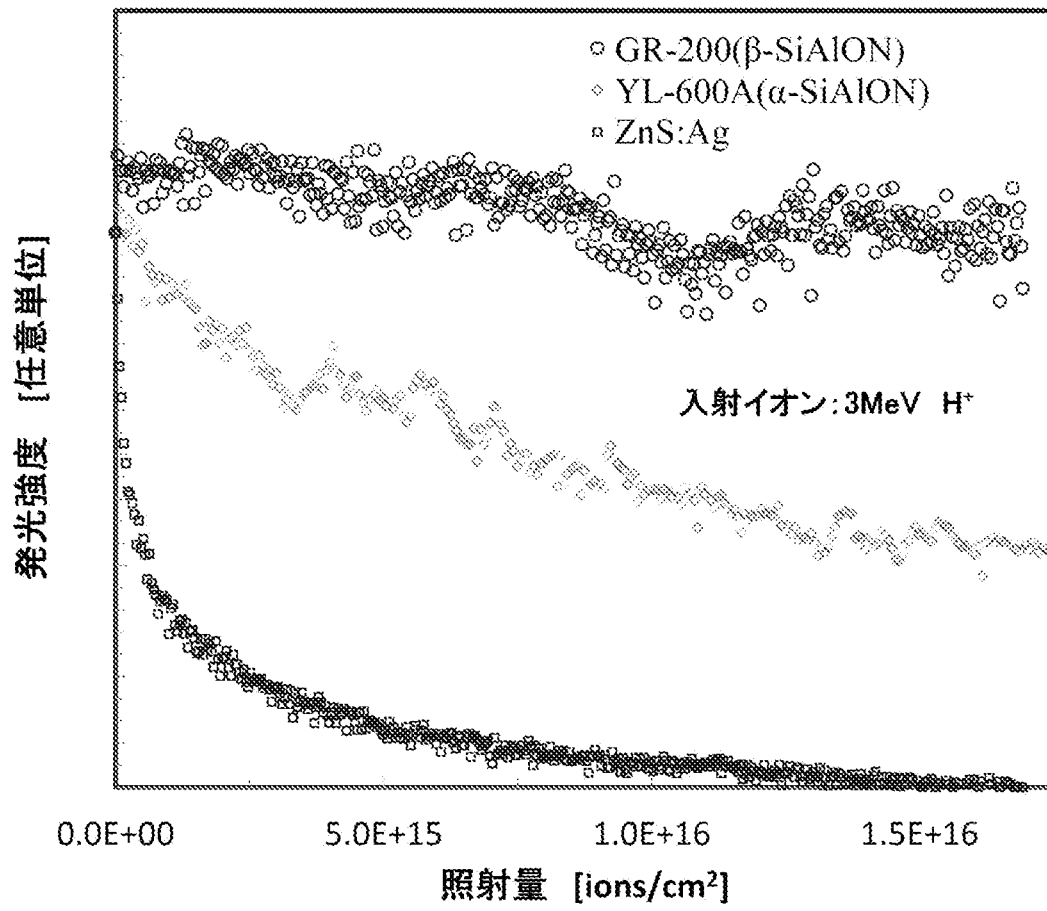
[図2]



[図3]



[図4]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2016/074813

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
G01T1/20(2006.01)i, C09K11/00(2006.01)i, C09K11/64(2006.01)i, G01T1/202(2006.01)i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
G01T1/20, C09K11/00, C09K11/64, G01T1/202

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2016
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2016	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2016

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
JSTPlus/JST7580 (JDreamIII)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2014/030637 A1 (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 27 February 2014 (27.02.2014), paragraphs [0016] to [0076] & JP 2014-830637 A	1-6
A	JP 2007-302757 A (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 22 November 2007 (22.11.2007), paragraphs [0019] to [0063] & US 2010/0237767 A1 paragraphs [0058] to [0172] & WO 2007/129713 A1 & EP 2022835 A1 & CN 101443432 A	1-6

Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"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
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"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
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"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
"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)	"&" document member of the same patent family
"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	

Date of the actual completion of the international search 12 September 2016 (12.09.16)	Date of mailing of the international search report 20 September 2016 (20.09.16)
---	--

Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Authorized officer Telephone No.
--	---

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/074813

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, X	WO 2015/133612 A1 (Kanagawa Academy of Science and Technology), 11 September 2015 (11.09.2015), paragraphs [0069], [0071] to [0124] (Family: none)	1-6
E, A	JP 2015-111322 A (Panasonic Intellectual Property Management Co., Ltd.), 18 June 2015 (18.06.2015), paragraph [0022] (Family: none)	1-6

<p>A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） Int.Cl. G01T1/20(2006.01)i, C09K11/00(2006.01)i, C09K11/64(2006.01)i, G01T1/202(2006.01)i</p>												
<p>B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC）） Int.Cl. G01T1/20, C09K11/00, C09K11/64, G01T1/202</p>												
<p>最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの</p> <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2016年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2016年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2016年</td> </tr> </table>			日本国実用新案公報	1922-1996年	日本国公開実用新案公報	1971-2016年	日本国実用新案登録公報	1996-2016年	日本国登録実用新案公報	1994-2016年		
日本国実用新案公報	1922-1996年											
日本国公開実用新案公報	1971-2016年											
日本国実用新案登録公報	1996-2016年											
日本国登録実用新案公報	1994-2016年											
<p>国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語） JSTPlus /JST7580 (JDreamIII)</p>												
<p>C. 関連すると認められる文献</p> <table border="1"> <thead> <tr> <th>引用文献の カテゴリー*</th> <th>引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示</th> <th>関連する 請求項の番号</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>A</td> <td>WO 2014/030637 A1（電気化学工業株式会社） 2014.02.27, [0016]-[0076] & JP 2014-830637 A</td> <td>1-6</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>JP 2007-302757 A（電気化学工業株式会社） 2007.11.22, [0019]-[0063] & US 2010/0237767 A1, [0058]-[0172] & WO 2007/129713 A1 & EP 2022835 A1 & CN 101443432 A</td> <td>1-6</td> </tr> </tbody> </table>			引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号	A	WO 2014/030637 A1（電気化学工業株式会社） 2014.02.27, [0016]-[0076] & JP 2014-830637 A	1-6	A	JP 2007-302757 A（電気化学工業株式会社） 2007.11.22, [0019]-[0063] & US 2010/0237767 A1, [0058]-[0172] & WO 2007/129713 A1 & EP 2022835 A1 & CN 101443432 A	1-6	
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号										
A	WO 2014/030637 A1（電気化学工業株式会社） 2014.02.27, [0016]-[0076] & JP 2014-830637 A	1-6										
A	JP 2007-302757 A（電気化学工業株式会社） 2007.11.22, [0019]-[0063] & US 2010/0237767 A1, [0058]-[0172] & WO 2007/129713 A1 & EP 2022835 A1 & CN 101443432 A	1-6										
<p><input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。</p>												
<p>* 引用文献のカテゴリー</p> <table border="0"> <tr> <td>「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの</td> <td>「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの</td> </tr> <tr> <td>「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの</td> <td>「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの</td> </tr> <tr> <td>「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）</td> <td>「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの</td> </tr> <tr> <td>「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</td> <td>「&」 同一パテントファミリー文献</td> </tr> <tr> <td>「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願</td> <td></td> </tr> </table>			「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの	「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの	「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの	「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの	「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）	「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの	「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献	「&」 同一パテントファミリー文献	「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	
「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの	「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの											
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの	「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの											
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）	「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの											
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献	「&」 同一パテントファミリー文献											
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願												
<p>国際調査を完了した日 12.09.2016</p>	<p>国際調査報告の発送日 20.09.2016</p>											
<p>国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ISA/J P） 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号</p>	<p>特許庁審査官（権限のある職員） 後藤 孝平</p> <p>電話番号 03-3581-1101 内線 3273</p>	<table border="1"> <tr> <td>21</td> <td>4641</td> </tr> </table>	21	4641								
21	4641											

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
P, X	WO 2015/133612 A1 (公益財団法人神奈川科学技術アカデミー) 2015.09.11, [0069], [0071]-[0124] (ファミリーなし)	1-6
E, A	JP 2015-111322 A (パナソニック I P マネジメント株式会社) 2015.06.18, [0022] (ファミリーなし)	1-6