

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載

【部門区分】第3部門第3区分

【発行日】平成24年10月4日(2012.10.4)

【公表番号】特表2012-503034(P2012-503034A)

【公表日】平成24年2月2日(2012.2.2)

【年通号数】公開・登録公報2012-005

【出願番号】特願2011-526511(P2011-526511)

【国際特許分類】

C 09 K 11/59 (2006.01)

C 09 K 11/08 (2006.01)

H 01 L 33/50 (2010.01)

【F I】

C 09 K	11/59	
C 09 K	11/08	B
H 01 L	33/00	4 1 0

【手続補正書】

【提出日】平成24年8月17日(2012.8.17)

【手続補正1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

結晶性窒化物蛍光体の製造方法であって、

(i) ハロゲン化物を、アンモニアNH₃、および金属源Mと反応させる工程を含む製造方法。

【請求項2】

金属源Mが活性剤元素および/または電荷補償剤を含む、請求項1に記載の方法。

【請求項3】

前記活性剤元素が、希土類元素またはMn、特にCe、Pr、Nd、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、Lu、Sc、Y、およびMnの群から、且つ、特にEuおよび/またはYbから選択される、請求項1あるいは2に記載の方法。

【請求項4】

電荷補償剤が、アルカリ金属および/またはアルカリ土類金属、特にLi、Na、K、Rb、Cs、Ca、Srおよび/またはBaから、特に、Ba、Caおよび/またはSrから選択される、請求項2または3に記載の方法。

【請求項5】

金属源がさらに、特にSn、Mn、Zn、Sb、Pbおよび/またはBiから選択される増感剤を含む、請求項1から4までのいずれか1項に記載の方法。

【請求項6】

金属源Mが、元素の金属および/または金属イオンを含む、請求項1から5までのいずれか1項に記載の方法。

【請求項7】

ハロゲン化物が、二元系のハロゲン化物、特にDX_n

[式中、

Dは元素周期律表のⅠⅢ族、ⅣⅥ族またはⅤⅦ族の元素を示し、

Xはハロゲン、特にF、Cl、Brおよび/またはI、好ましくはClを示し、且つ

$n = 3, 4$ または 5]

である、請求項 1 から 6 までのいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 8】

アンモニアが純粋な液体のアンモニアとして用いられる、または、溶剤、特に炭化水素溶剤と混合されている、請求項 1 から 7 までのいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 9】

さらに、

(i i) 工程 (i) の反応生成物を $500 \sim 2500$ の温度で加熱する工程を含む、請求項 1 から 8 までのいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 10】

式 (I)

$A_x B_z C_y D_q N_p$ (I)

[式中、

A は活性剤を示し、特に希土類元素または Mn、好ましくは Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、Lu、Sc、Y および / または Mn の群から選択され、

B は増感剤を示し、特に Sn、Mn、Zn、Sb、Pb および / または Bi から選択され、

C は電荷補償剤を示し、特にアルカリ金属および / またはアルカリ土類金属、好ましくは Li、Na、K、Rb、Cs、Ca、Sr および / または Ba からなる群から選択され、D は元素周期律表の XII 群、XIV 群、または XV 群の元素を示し、特に B、Al、Ga、In、Tl、Si、Ge、Sn、Pb、P、As、Sb および / または Bi から、特に Si、Ge、B および / または Al から選択され、

N は窒素を示し、且つ、

x、z、y、q および p は、式 (I) の化合物中に含まれる元素の化学量論組成を示し、ここで特に

0 x 2

0 z 2

0 y 4

1 q 8、特に $q = 5$ 、且つ、

1 p 10、特に $p = 8$]

を有する蛍光体が形成される、請求項 1 から 9 までのいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 11】

式 (II)

$E_m F_a G_a S_i q N_p$

[式中、

E は Sr、Ca、または Ba であり；

G は Li、Na、K、Rb または Cs であり、好ましくは Li であり；

F は Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、Lu、Sc、Y および / または Mn であり、好ましくは Ce または Tb であり；

m は $1 - 2a$ または $2 - 2a$ であり、

0 a 1、 $m = 2 - 2a$ の場合、好ましくは $0 < a < 1$

0 a 0.5、 $m = 1 - 2a$ の場合、好ましくは $0 < a < 0.5$

1 q 8、特に $q = 5$ または 7

1 p 10、特に $p = 8$ または 10]

を有する蛍光体。

【請求項 12】

$S_{r_{2-2a}} T_{b_a} L_{i_a} S_{i_5} N_8$ 、 $C_{a_{2-2a}} T_{b_a} L_{i_a} S_{i_5} N_8$ 、 $B_{a_{1-2a}} C_{e_a} L_{i_a} S_{i_7} N_{10}$ および / または $B_{a_{1-2a}} T_{b_a} L_{i_a} S_{i_7} S_{i_7} N_{10}$ からなる群から選択される、請求項 11 に記載の蛍光体。

【請求項 1 3】

(a) 一次光発光素子、特に一次青色光発光素子、および
 (b) 請求項 1 から 1 0 までのいずれか 1 項に記載の方法によって得られる蛍光体材料、または請求項 1 1 または 1 2 に記載の蛍光体材料
 を含む光源。

【請求項 1 4】

さらに、緑色発光蛍光体材料を含む、請求項 1 3 に記載の光源。

【手続補正 2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 0 2 2

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0 0 2 2】

活性剤は特に希土類元素であり、好ましくは Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、Lu、Sc および / または Y の群から選択される。最も好ましくは、活性剤は Eu および / または Yb から選択される。金属源 M は、金属の形態の活性剤、例えば元素の Eu および / または元素の Yb を含んでよい。しかしながら、金属源 M は活性剤イオンの形態の活性剤を含有してもよい。好ましい実施態様において、金属源 M は活性剤イオンを含有する錯体 (RE錯体)、例えば Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、Lu、Sc、Y、および / または Mn の錯体を含む。

【手続補正 3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 0 5 3

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0 0 5 3】

さらなる実施態様において、本発明は、SiCl₄と金属M^IおよびM^{II} (M^I=Li、Na、K、Rb、Cs、好ましくはM^I=Li、Na、K、且つ、M^{II}=Ca、Sr、Ba) および金属錯体 R[N(Si(CH₃)₃)₂]₃ (R=Ce、Tb、Pr、Nd、Sm、Dy、Er、Tm、Ho、Eu、Gd、Yb、Lu、Sc、Y、および / または Mn、好ましくは R = Ce、Pr、Nd、Sm、Tb、Dy、Ho)との、随意に溶剤、例えばヘキサンで希釈された液体のアンモニア中での直接反応に基づく、蛍光体 M^{II}_{2-2x}R_xM^I_xSi₅N₈の合成を報告する。提案された反応は以下の通りである：

【化 1 1】

