

【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 0 9 K 11/59 (2006.01)

C 0 9 K 11/08 (2006.01)

H 0 1 L 33/50 (2010.01)

【F I】

C 0 9 K 11/59

C 0 9 K 11/08 B

H 0 1 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 NH_3 、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 X I I I 族、X I V 族または X V 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。

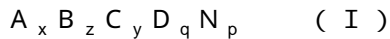
【請求項 9】

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)



[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 XIII 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

$$0 \leq x \leq 2$$

$$0 \leq z \leq 2$$

$$0 \leq y \leq 4$$

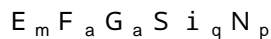
$$1 \leq q \leq 8、特に q = 5、且つ、$$

$$1 \leq p \leq 10、特に p = 8$$
]

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)



[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、

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

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

$$1 \leq q \leq 8、特に q = 5 または 7$$

$$1 \leq p \leq 10、特に p = 8 または 10$$
]

を有する蛍光体。

【請求項 12】

$Sr_{2-2a} Tb_a Li_a Si_5 N_8$ 、 $Ca_{2-2a} Tb_a Li_a Si_5 N_8$ 、 $Ba_{1-2a} Ce_a Li_a Si_7 N_{10}$ および / または $Ba_{1-2a} Tb_a Li_a Si_7 Si_7 N_{10}$ 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 13】

(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 10 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 11 または 12 に記載の蛍光体材料を含む光源。

【請求項 14】

さらに、緑色発光蛍光体材料を含む、請求項 13 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】0022

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0022】

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】0053

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0053】

さらなる実施態様において、本発明は、 SiCl_4 と金属 M^{I} および M^{II} ($\text{M}^{\text{I}} = \text{Li}$ 、Na、K、Rb、Cs、好ましくは $\text{M}^{\text{I}} = \text{Li}$ 、Na、K、且つ、 $\text{M}^{\text{II}} = \text{Ca}$ 、Sr、Ba) および金属錯体 $\text{R}[\text{N}(\text{Si}(\text{CH}_3)_3)_2]_3$ ($\text{R} = \text{Ce}$ 、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 $\text{R} = \text{Ce}$ 、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モニア中での直接反応に基づく、蛍光体 $\text{M}^{\text{II}}_{2-2x}\text{R}_x\text{M}^{\text{I}}_x\text{Si}_5\text{N}_8$ 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 11】

