(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
2009 年 8 月 27 日(27.08.2009)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2009/104652 A1

(51) 国際特許分類:
H01L 33/00 (2006.01) *F21S 8/10* (2006.01)
C09K 11/08 (2006.01) *F21Y 101/02* (2006.01)
C09K 11/59 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2009/052819

(22) 国際出願日: 2009 年 2 月 18 日(18.02.2009)

(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 2008-035461 2008 年 2 月 18 日(18.02.2008) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 株式会社小糸製作所 **(KOITO MANUFACTURING CO., LTD.)** [JP/JP]; 〒1088711 東京都港区高輪４丁目８番３号 Tokyo (JP).

(71) 出願人 および
(72) 発明者 (米国を除く全ての指定国について): 宮本 快暢 **(MIYAMOTO, Yoshinobu)**. 尹 奉九 **(YUN, Bonggoo)**.

(72) 発明者; および
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 大長 久芳 **(DAICHO, Hisayoshi)**. 水野 正宣 **(MIZUNO, Masanobu)**. 山元 明 **(YAMAMOTO, Hajime)**.

(74) 代理人: 内藤 照雄 **(NAITO, Teruo)**; 〒1050003 東京都港区西新橋一丁目７番１３号 信栄特許事務所 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, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, 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, KM, 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, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

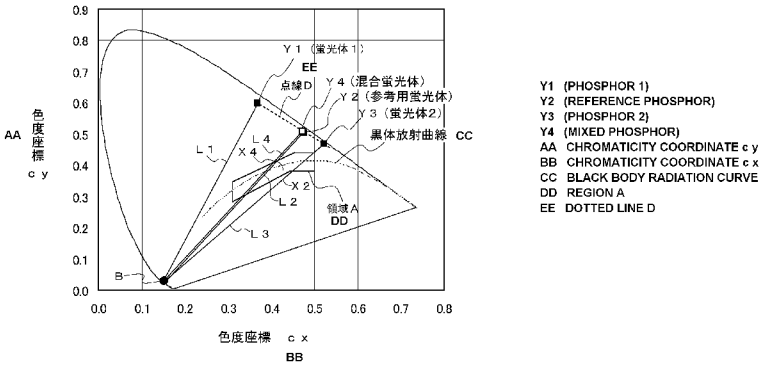
(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ

[続葉有]

(54) Title: WHITE LIGHT EMITTING DEVICE AND LIGHTING FITTING FOR VEHICLES USING THE WHITE LIGHT EMITTING DEVICE

(54) 発明の名称: 白色発光装置及びこれを用いた車両用灯具

[図9]



(57) Abstract: Disclosed is a white light emitting device, for use in lighting fittings for vehicles, using a light emitting element and a phosphor that is efficiently excited and emits light upon exposure to light emitted from the semiconductor light emitting element. The white light emitting device can emit a white light having a high visual sensitivity, which is in a chromaticity range specified for a white light source, with a high luminescence intensity and a high level of color rendering properties. Also disclosed is a lighting fitting for vehicles using the white light emitting device. The white light emitting device is characterized in that the white light emitting device comprises a semiconductor light emitting element having an emission spectrum peak in a wavelength range of 370 to 480 nm and two or more phosphors that are excited upon exposure to light emitted from the semiconductor light emitting element to emit visible light, and the phosphors include a first phosphor represented by general formula $Sr_xBa_ySi_2O_2N_2:Eu^{2+}$, wherein the ratio of x to y in the general formula, i.e., x/y, is in the range of 100/0 to 60/40, and a second phosphor that is the same as the first phosphor except that the x/y ratio is in the range of 45/55 to 5/95.

(57) 要約:

[続葉有]

WO 2009/104652 A1

(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, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:
— 国際調査報告（条約第 21 条(3)）

発光素子とこの半導体発光素子の光で効率よく励起され発光する蛍光体を用いた白色発光装置であって、車両用灯具に用いられる白色光源の色度規定の範囲内にある視感度の高い白色光を高い発光強度且つ高い演色性で発光可能な白色発光装置、及びこれを用いた車両用灯具を提供することを目的としている。　車両用灯具に用いられる白色発光装置、及びこれを用いた車両用灯具であって、前記白色発光装置は、３７０～４８０ｎｍの波長域に発光スペクトルのピークを持つ半導体発光素子と、前記半導体発光素子の発する光により励起され可視光を発光する少なくとも２種以上の蛍光体を備え、前記蛍光体は、$Sr_xBa_ySi_2O_2N_2:Eu^{2+}$の一般式で表され、前記一般式におけるｙに対するｘの比の値ｘ／ｙが１００／０～６０／４０の範囲内にある第一の蛍光体と、前記比の値ｘ／ｙが４５／５５～５／９５の範囲内にある第二の蛍光体とを備えることを特徴とする。

明 細 書

白色発光装置及びこれを用いた車両用灯具

技術分野

[0001] 本発明は、車両用灯具に用いられる白色発光装置、及びこれを用いた車両用灯具に関する。より詳しくは、半導体発光素子とこの半導体発光素子の光で効率よく励起され発光する蛍光体を用いて、車両用灯具に用いられる白色光源の色度規定の範囲内にある視感度の高い白色光を高い発光強度及び高い演色性で発光可能な白色発光装置、及びこれを用いた車両用灯具に関する。

背景技術

[0002] 近年、長寿命且つ消費電力が少ない白色発光装置として、青色光を発光する発光ダイオード(LED)やレーザダイオード(LD)等の半導体発光素子と、これらを励起光源とする蛍光体とを組み合わせ、両者から得られる発光の加色混合による合成スペクトルとして白色光を得るように構成された白色発光装置が注目されており、その用途として、車両用灯具、特に車両用前照灯の白色光源としての利用が期待されている。(特許文献1参照)

ここで、車両用灯具の白色光源は、色度規定により発光スペクトルが所定の色度座標(cx, cy)の範囲内にあることが要求されており、例えば、JIS:D5500によれば、図1の色度図に示す領域Aの範囲内にあることが要求される。

尚、領域Aは下記式によって表される。

＜車両用前照灯の白色光源の色度規定(JIS:D5500)＞

黄色方向 $cx \leqq 0.50$

青色方向 $cx \geqq 0.31$

緑色方向 $cy \leqq 0.44$ 及び $cy \leqq 0.15+0.64cx$

紫色方向 $cy \geqq 0.05+0.75cx$ 及び $cy \geqq 0.382$

[0003] このような色度規定に合致した白色光を高い発光強度で発光可能とした白色発光装置の例として、青色波長域(420～490nm)に発光ピーク波長を持つInGaN系の半導体発光素子と、510～600nmの間に発光ピーク波長を持つセリウム付活のイッ

トリウム・アルミニウム・ガーネット（YAG）系の黄色蛍光体とを組み合わせて白色発光を実現する白色発光装置が知られている。（特許文献2参照）

特許文献1：日本国特許出願公開2004－095480号公報

特許文献2：日本国特許第3503139号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0004] ところで、青色光を発光する半導体発光素子と黄色蛍光体とを組み合わせた白色発光装置が再現可能な色度範囲は、半導体発光素子が発光する青色光の色度座標と蛍光体の発光する黄色光の色度座標とを結んだ直線により近似的に表すことができ、両者の発光強度を調整することで当該直線上における任意の色度座標の光を得ることができる。

図1の色度図に示す直線Lは、このような直線の一例であり、発光ピーク波長が450nmの青色半導体発光素子と色度座標がP（cx＝0．43,cy＝0．54）である黄色蛍光体とを組み合わせた白色発光装置によって再現可能な色度範囲を示す直線である。

[0005] ここで、人の目が明るさを感じる視感度は、青色光に比べ黄色光は約20倍高いことから、青色光と黄色光を加色混合した白色光の場合、同じ発光強度であっても黄色光成分が多い白色光のほうが人の目には明るく感じられる。このことは、前記直線L上の各色度座標の光は、同じ発光強度であれば黄色蛍光体側に近い方が人の目に明るく感じられることを示す。また、前記領域A（車両用灯具の白色光源の色度規定）の範囲内において最も視感度が高い色度座標は領域Aの黄色蛍光体側境界線と前記直線Lの交差点Xとなる。

[0006] 従って、前記領域A（車両用灯具の白色光源の色度規定）の範囲内において白色光の視感度の高さを追求すると、交差点Xの座標がより黄色蛍光体側（図1中のX’側）へと近くなるように半導体発光素子の発光色と蛍光体の発光色を選択する必要がある。

具体的には、半導体発光素子の発光ピーク波長を450nm前後とした場合に、前記交差点Xの座標が視感度の高い範囲となるのは、黄色蛍光体のドミナント波長が5

75nm～590nmの範囲である。

[0007] しかし、従来知られた青色光を発光する半導体発光素子とYAG系蛍光体を組み合わせた白色発光装置においては、ドミナント波長が575nm～590nmの範囲内において高い発光強度が得られるYAG系蛍光体が知られていないため、視感度の高い白色光を高い発光強度で発光可能な白色発光装置の実現が困難であった。

[0008] 尚、前記YAG系の黄色蛍光体においては、ガドリニウムを混合することにより発光スペクトルのドミナント波長が長波長側へシフトすることが知られている。

そこで、発明者らは、ガドリニウムを含有していない一般式$Y_3Al_5O_{12}$:Ceで表されるYAG系蛍光体(Phosphor Technology社(英)製:QUM58／F－U1、以下Gd非含有蛍光体)と、このYAG系蛍光体にガドリニウムを混入した一般式$(Y,Gd)_3Al_5O_{12}$:Ceで表される蛍光体(化成オプトニクス社製: P46－Y3、以下Gd含有蛍光体)について、これらの蛍光体の発光特性を測定したところ、下記の結果が得られた。

[0009] 表1に、450nm励起下における各蛍光体の色度座標(cx,cy)、ピーク波長(nm)、及びドミナント波長(nm)を示す。

[表1]

表1

	色度座標 (ｃｘ，ｃｙ)	ピーク波長 (ｎｍ)	ドミナント波長 (ｎｍ)
$Y_3Al_5O_{12}$：Ce (Ｇｄ非含有蛍光体)	０．４３，０．５４	５４６	５６９
$(Y,Gd)_3Al_5O_{12}$：Ce (Ｇｄ含有蛍光体)	０．４５，０．５３	５６０	５７２

[0010] また、図2は、Gd非含有蛍光体の発光スペクトル(実線)、及びGd含有蛍光体の発光スペクトル(点線)を示す。

[0011] 表1及び図2に示すように、Gd含有蛍光体は、Gd非含有蛍光体に対して、ピーク波長とドミナント波長がいずれも長波長である。

[0012] 図1の色度図は、Gd非含有蛍光体の色度座標をPとして、Gd含有蛍光体の色度座標をP´として示したものである。

この図1の色度座標から、色度座標がPからP´へシフトすると、発光ピーク波長が4

50nmの青色半導体発光素子と組み合わせた場合に再現可能な色度範囲は直線Lから点線L´へ、前記領域Aとの交差点はXからX´へとそれぞれシフトすることが分かる。

このことから、前記領域A内において、Gd含有蛍光体はGd非含有蛍光体よりも視感度の高い白色発光装置を実現可能であることが予想される。

[0013] しかし、本発明者らの測定結果によれば、前記Gd含有蛍光体は、前記Gd非含有蛍光体蛍光体に比べて、高温下における発光特性が低いことが分かった。

以下、その測定結果を詳述する。

[0014] 図3は、温度条件の変化による蛍光体の発光特性の変化(以下、温度特性)を測定する装置を示す概略図である。

図3に示す測定装置10において、アルミ基板11の上面にはサンプルセット用の開口部11aが形成されている。また、アルミ基板11の内部には開口部11aの直下に位置する熱電対12及び面状ヒーター13が埋設されている。また、これらの熱電対12及び面状ヒーター13は温度コントローラーに接続されている。

[0015] 開口部11aの上方には励起光を出射する集光レンズ14と、蛍光体の発光を受光する受光用石英ファイバー17が設置されている。集光レンズ14には、励起光源としてのキセノンランプが石英ファイバー15及び分光器16aを介して接続されている。受光用石英ファイバー17には、計測器としてのフォトマルが分光器16bを介して接続されている。

[0016] 上記のように構成された測定装置10において、各蛍光体の温度特性を下記の通り測定した。まず、サンプルとなる各蛍光体18を開口部11aに充填し、充填表面をスキージ等で平滑面とした。次に、温度コントローラーにより面状ヒーター13の出力を調整し、その出力に応じて変化するアルミ基板11の温度を熱電対12を介して温度コントローラーにフィードバックし、アルミ基板の温度を所定の温度で維持した。

[0017] このアルミ基板の温度を蛍光体18の温度と見なし、アルミ基板の温度が各温度条件に達してから10分経過した後に、キセノンランプ(ウシオ電機製:UXL－150D－O)の光を分光器16a(堀場製作所製:H－20UV)を介して450nmに分光した光を集光レンズ14より励起光として蛍光体18に照射し、発光した蛍光体の光を受光用石

英ファイバー17及び分光器16b(堀場製作所:H－20VIS)を介してフォトマル(浜松ホトニクス製:R955－07)で測定した。

[0018] 図4は、450nm励起下における前記Gd含有蛍光体及び前記Gd非含有蛍光体の温度特性を示す。図4におけるグラフの縦軸は、それぞれの蛍光体について、各温度条件下における積分発光強度を、30℃条件下における積分発光強度を100%とする比率として示したものである。

[0019] 図4に示すように、前記Gd含有蛍光体及び前記Gd非含有蛍光体は、いずれも温度条件が高温になるに従って積分発光強度が低下するが、Gd含有蛍光体はGd非含有蛍光体に比べてその維持率が低く、200℃条件下においては、Gd非含有蛍光体が80%程度の維持率であるのに対しGd含有蛍光体は50%程度の維持率であり、約1．6倍以上の発光強度の差が生じている。

[0020] 以上より、Gd含有蛍光体はガドリニウムの影響により発光スペクトルのドミナント波長が長波長側へシフトするが、高温下における発光特性は低下する。したがって、Gd含有蛍光体は、大電流を必要とするため発熱量が大きい高出力の白色発光装置での利用には向いていなかった。

[0021] また、従来知られた青色光を発光する半導体発光素子とYAG系蛍光体を組み合わせた白色発光装置においては、青色と黄色の中間の波長領域の光、及び蛍光体から得られる赤色領域の光が少ないことから、演色性が低いという問題があった。

[0022] 本発明は、上記のような事情を鑑みてなされたものであり、その目的は、半導体発光素子とこの半導体発光素子の光で効率よく励起され発光する蛍光体を用いた白色発光装置であって、車両用灯具に用いられる白色光源の色度規定の範囲内にある白色光を高い発光強度で発光可能であり、且つ高温下においても発光特性が低下しない良好な温度特性を有する白色発光装置、及びこれを用いた車両用灯具を提供することを目的としている。

課題を解決するための手段

[0023] 本発明者らは、上記課題を解決すべく研究を重ねた結果、一般式が$Sr_xBa_ySi_2O_2N_2:Eu^{2+}$で表される蛍光体は、370～480nmの波長域で効率良く励起され、黄色成分を多く含む可視光を高い発光強度で発光すること、及び高温下においても発光

特性が低下しない良好な温度特性を有することを新たに見出した。

さらに、本発明者らは、前記一般式で表される蛍光体であって、前記一般式におけるyに対するxの比の値x／yが異なる範囲にある2種類以上の蛍光体を組み合わせることにより、さらに演色性が高い可視光を得られることを新たに見出し、これら2種以上の蛍光体を用いて白色発光装置を構成することで本発明を完成するに至った。

[0024] すなわち、本発明の第1の形態である白色発光装置は、車両用灯具に用いられる白色発光装置であって、370～480nmの波長域に発光スペクトルのピークを持つ半導体発光素子と、前記半導体発光素子の発する光により励起され可視光を発光する少なくとも2種以上の蛍光体を備え、前記蛍光体として、一般式$Sr_xBa_ySi_2O_2N_2:Eu^{2+}$で表される蛍光体であって、前記比の値x／yが100／0～60／40の範囲内にある第一の蛍光体と、前記比の値x／yが45／55～5／95の範囲内にある第二の蛍光体とを備えることを特徴とする。

[0025] また、前記第一の蛍光体は、前記一般式におけるyに対するxの比の値x／yが100／0～70／30の範囲内にあることがより好ましく、前記第二の蛍光体は、前記比の値x／yが40／60～5／95の範囲内にあることがより好ましい。このような第一の蛍光体及び第二の蛍光体を用いることにより、さらに良好な演色性を確保することができる。

[0026] また、前記第一の蛍光体は、前記一般式のxが0．60＜x＜0．97、yが0≦y＜0．35、x＋yはx＋y＜0．97の範囲であることがより好ましく、前記第二の蛍光体は、xが0．03＜x＜0．40、yが0．40＜y＜0．90、x＋yはx＋y＜0．97の範囲であることがより好ましい。このような第一の蛍光体及び第二の蛍光体を用いることにより、発光効率をさらに向上させることができる。

[0027] 前記第一の蛍光体は、発光スペクトルのドミナント波長が550～565nmの波長域にあることがより好ましく、前記第二の蛍光体は、発光スペクトルのドミナント波長が578～600nmの波長域にあることがより好ましい。このような第一の蛍光体及び第二の蛍光体を用いることにより、視感度が高く、色温度3000K～4000Kの暖色系の白色光を発光する白色発光装置を得ることができる。

[0028] また、同様の理由により、前記第一の蛍光体は、発光スペクトルのピーク波長が53

5～570nmの波長域にあることがより好ましく、前記第二の蛍光体は、発光スペクトルのピーク波長が575～610nmの波長域にあることがより好ましい。

[0029] 前記第一の蛍光体及び前記第二の蛍光体の合成スペクトルのドミナント波長及び半値幅は、白色発光装置の演色性の観点から、ドミナント波長が565～580nmの波長域にあり、半値幅が100nm以上であることが好ましい。

[0030] 前記第一の蛍光体及び前記第二の蛍光体は、$SrCO_3$、$BaCO_3$、SiO_2及びEu_2O_3の混合物を還元雰囲気中で1次焼成して作製したユーロピウム付活のオルソ珪酸塩を前駆体とし、この前駆体とSi_3N_4及びNH_4Clの混合物を還元雰囲気中で2次焼成することにより製造されることが好ましい。このように製造された前記第一の蛍光体及び前記第二の蛍光体は、良好な緑～橙色の発光を示すことができる。

[0031] 上記半導体発光素子は、370～480nmの波長域に発光スペクトルのピークを持つものであれば特に限定されるものではないが、前記蛍光体の励起波長域の観点から、発光スペクトルのピークが430nm～470nmの波長域にあることが好ましい。具体的には、上記半導体発光素子には、例えば、450nm付近の波長域の発光特性が良好であるInGaN系LEDが好ましく用いられる。

[0032] 本発明の第2の形態である車両用灯具は、上記の白色発光装置を光源として用いることを特徴とする。

発明の効果

[0033] 本発明の白色発光装置は、車両用灯具に用いられる白色光源の色度規定の範囲内にある視感度の高い白色光を高い発光強度且つ高い演色性で発光することができる。また、このような白色発光装置を光源として用いた車両用灯具においても、同様の効果を奏する。

図面の簡単な説明

[0034] [図1]Gd非含有蛍光体及びGd含有蛍光体の色度座標、並びにこれらの蛍光体を用いた白色発光装置の再現可能な色度範囲等を示す色度図である。

[図2]Gd非含有蛍光体の発光スペクトル(実線)及びGd含有蛍光体の発光スペクトル(点線)を示す図面である。

[図3]蛍光体の温度特性を測定する装置を示す概略図である。

[図4]Gd含有蛍光体及びGd非含有蛍光体の温度特性を示す図面である。

[図5]本発明の実施形態である白色発光装置20の概略断面図である。

[図6]蛍光体1の励起スペクトルを示す図である。

[図7]蛍光体2の励起スペクトルを示す図である。

[図8]参考用蛍光体の励起スペクトルを示す図である。

[図9]各蛍光体の色度座標及びこれらの蛍光体を用いた白色発光装置の再現可能な色度範囲等を示す色度図である。

[図10]蛍光体1の発光スペクトル(実線)、蛍光体2の発光スペクトル(点線)、及び参考用蛍光体の発光スペクトル(一点鎖線)を示す図面である。

[図11]混合蛍光体の発光スペクトル(実線)及び参考用蛍光体の発光スペクトル(一点鎖線)を示す図面である。

[図12]実施例の発光スペクトル(実線)及び比較例1の発光スペクトル(点線)を示す。

[図13]温度特性を測定する際における発光装置を示す概略断面図である。

[図14]実施例の発光スペクトルを示す図である。

[図15]比較例の発光スペクトルを示す図である。

符号の説明

[0035] 10:測定装置

11:アルミ基板

11a:開口部

12:熱電対

13:面状ヒーター

14:集光レンズ

15:石英ファイバー

16a、16b:分光器

17:受光用石英ファイバー

18:蛍光体

20:白色発光装置

21：基板

22a：電極（陽極）

22b：電極（陰極）

23：半導体発光素子

24：マウント部材

25：ワイヤー

26：蛍光層

27：ヒートシンク

発明を実施するための最良の形態

[0036] 以下、本発明の実施の形態について図面を参照して説明する。なお、本発明は、以下の説明における例示などによって何ら限定されるものではない。

[0037] 図5は、本発明の実施形態である白色発光装置20の概略断面図である。図5に示すように、白色発光装置20は、基板21上に一対の電極22a（陽極）及び22b（陰極）が形成されている。電極22a上には半導体発光素子23がマウント部材24により固定されている。半導体発光素子23と電極22aは前記マウント部材24により通電されており、半導体発光素子23と電極22bはワイヤー25により通電されている。半導体発光素子23の上には蛍光層26が形成されている。

[0038] 基板21は、導電性を有しないが熱伝導性は高い材料によって形成されることが好ましく、例えば、セラミック基板（窒化アルミニウム基板、アルミナ基板、ムライト基板、ガラスセラミック基板）やガラスエポキシ基板等を用いることができる。

[0039] 電極22a及び22bは、金や銅等の金属材料によって形成された導電層である。

[0040] 半導体発光素子23は、白色発光装置20に用いられる発光素子の一例であり、例えば、紫外線又は短波長可視光を発光するLEDやLD等を用いることができる。具体例として、InGaN系の化合物半導体を挙げることができる。InGaN系の化合物半導体は、Inの含有量によって発光波長域が変化する。Inの含有量が多いと発光波長が長波長となり、少ない場合は短波長となる傾向を示す。

[0041] マウント部材24は、例えば銀ペースト等の導電性接着材または金錫共晶はんだ等であり、半導体発光素子23の下面を電極22aに固定し、半導体発光素子23の下面

側電極と基板21上の電極22aを電気的に接続する。

[0042] ワイヤー25は、金ワイヤー等の導電部材であり、例えば超音波熱圧着等により半導体発光素子23の上面側電極及び電極22bに接合され、両者を電気的に接続する。

[0043] 蛍光層26には、後述する蛍光体がバインダー部材によって半導体発光素子23の上面を覆う膜状に封止されている。このような蛍光層26は、例えば、液状又はゲル状のバインダー部材に蛍光体を混入した蛍光体ペーストを作製した後、当該蛍光体ペーストを半導体発光素子23の上面に塗布し、その後に塗布した蛍光体ペーストのバインダー部材を硬化することにより形成することができる。バインダー部材としては、例えば、シリコーン樹脂やフッ素樹脂等を用いることができる。

[0044] 本実施形態の白色発光装置20に用いられる第一の蛍光体及び第二の蛍光体は、$Sr_xBa_ySi_2O_2N_2:Eu^{2+}$の一般式で表される蛍光体である。この第一の蛍光体及び第二の蛍光体は、例えば、$SrCO_3$、$BaCO_3$、SiO_2、Eu_2O_3の混合粉末を還元雰囲気中で焼成し、ユーロピウム付活のオルソ珪酸塩を前駆体として作製する。この前駆体を粉砕し、Si_3N_4とNH_4Clを加え、還元雰囲気中で焼成することで得ることができる。

[0045] 蛍光層26には、上記第一の蛍光体及び第二の蛍光体に加え、これらとは異なる発光特性を有する1種又は複数種類の蛍光体を混入することができる。これらの蛍光体の配合量を変化させることにより白色発光装置から得られる白色光の色度を調整することができる。

[0046] また、蛍光層26には、種々の物性を有する蛍光体以外の物質を混入することもできる。例えば、金属酸化物、フッ素化合物、硫化物等のバインダー部材よりも屈折率の高い物質を蛍光層26に混入することにより、蛍光層26の屈折率を高めることができる。これにより、半導体発光素子4から発生する光が蛍光層26入射する際に生ずる全反射を低減させ、蛍光層26への励起光の取り込み効率を向上させるという効果が得られる。更に、混入する物質の粒子径をナノサイズにすることで、蛍光層26の透明度を低下させることなく屈折率を高めることができる。

また、アルミナ、ジルコニア、酸化チタン等の平均粒径0．3～2μm程度の白色粉末を光散乱剤として蛍光層26に混入することもできる。これにより、発光面の輝度、色度むらを防止することができる。

[0047] 上記白色発光装置20において、電極22a、22bに対し駆動電流を印加すると、半導体発光素子23が通電され、半導体発光素子23は蛍光層26へ向けて青色光を含む固有の波長域の光を照射する。この光の一部は蛍光層26内の蛍光体の励起に用いられ、残りの光は蛍光層26を透過してそのまま外部へと照射される。蛍光体は半導体発光素子23からの光により励起され固有の波長域の光を照射する。蛍光層26を透過した半導体発光素子23からの光と蛍光体が発する光を加色混合することにより白色光を得ることができる。

実施例

[0048] 上記の白色発光装置20について、以下において、発光装置の実施例を用いて更に具体的に説明する。なお、下記の発光装置の原料、製造方法、蛍光体の化学組成等の記載は本発明を何ら限定するものではない。

[0049] まず、本実施例の発光装置において用いた蛍光体について詳述する。

[0050] ＜蛍光体1＞

$Sr_{0.93}Si_2O_2N_2:Eu^{2+}_{0.07}$で表される蛍光体。

[0051] 本蛍光体1は前記第一の蛍光体の一例であり、$Sr_xBa_ySi_2O_2N_2:Eu^{2+}$の一般式で表され、当該一般式におけるyに対するxの比の値x／yを100／0とした蛍光体である。

[0052] 本蛍光体1の製造は、まず、$SrCO_3$を3．051g、Eu_2O_3を0．0274g、SiO_2を0．668gそれぞれ秤量し、各原料をアルミナ乳鉢に入れ約20分混合粉砕し、この混合物をアルミナ坩堝に入れ蓋をし、還元雰囲気H_2／N_2（5／95）、1100℃の電気炉で3時間焼成し、前駆体$Sr_{1.86}SiO_4:Eu^{2+}_{0.14}$を得た。

[0053] 次に、上記前駆体を2．763g、Si_3N_4を1．403g、NH_4Clをフラックスとして0．04gそれぞれ秤量し、各原料をアルミナ乳鉢に入れ約20分混合粉砕し、この混合物をアルミナ坩堝に入れ蓋をし、還元雰囲気H_2／N_2（5／95）、1200～1400℃で6時間焼成し、蛍光体1を得た。

[0054] ＜蛍光体2＞

$Sr_{0.05}Ba_{0.75}Si_2O_2N_2:Eu^{2+}_{0.2}$で表される蛍光体。

[0055] 本蛍光体2は前記第二の蛍光体の一例であり、$Sr_xBa_ySi_2O_2N_2:Eu^{2+}$の一般式で

表され、当該一般式におけるyに対するxの比の値x／yを5／75とした蛍光体である。

[0056] 本蛍光体2の製造は、まず、$SrCO_3$を0．114g、$BaCO_3$を2．277g、Eu_2O_3を0．541g、SiO_2を0．462gそれぞれ秤量し、各原料をアルミナ乳鉢に入れ約20分混合粉砕し、この混合物をアルミナ坩堝に入れ蓋をし、還元雰囲気H_2／N_2（5／95）、1100℃の電気炉で3時間焼成し、前駆体$Sr_{0.1}Ba_{1.5}SiO_4:Eu^{2+}_{0.4}$を得た。

[0057] 次に、上記前駆体を2．451g、Si_3N_4を0．935g、NH_4Clをフラックスとして0．034gそれぞれ秤量し、各原料をアルミナ乳鉢に入れ約20分混合粉砕し、この混合物をアルミナ坩堝に入れ蓋をし、還元雰囲気H_2／N_2（5／95）、1200～1400℃で6時間焼成し、蛍光体2を得た。

[0058] ＜参考用蛍光体＞

参考用蛍光体として、$Sr_{0.425}Ba_{0.425}Si_2O_2N_2:Eu^{2+}_{0.15}$で表される蛍光体を作製した。

[0059] この参考用蛍光体は、$Sr_xBa_ySi_2O_2N_2:Eu^{2+}$の一般式で表され、当該一般式におけるyに対するxの比の値x／yを50／50とした蛍光体である。

[0060] この参考用蛍光体の製造は、まず、$SrCO_3$を1．321g、$BaCO_3$を1．766g、Eu_2O_3を0．556g、SiO_2を0．632gそれぞれ秤量し、各原料をアルミナ乳鉢に入れ約20分混合粉砕し、この混合物をアルミナ坩堝に入れ蓋をし、還元雰囲気H_2／N_2（5／95）、1100℃の電気炉で3時間焼成し、前駆体$Sr_{0.85}Ba_{0.85}SiO_4:Eu^{2+}_{0.30}$を得た。

[0061] 次に、上記前駆体を3．289g、Si_3N_4を1．403g、NH_4Clをフラックスとして0．047gそれぞれ秤量し、各原料をアルミナ乳鉢に入れ約20分混合粉砕し、この混合物をアルミナ坩堝に入れ蓋をし、還元雰囲気H_2／N_2（5／95）、1200～1400℃で6時間焼成し、参考用蛍光体を得た。

[0062] ＜混合蛍光体＞

前記蛍光体1及び前記蛍光体2を、これらの重量比が蛍光体1：蛍光体2＝5：6となるように混合した混合蛍光体を作製した。

[0063] ＜蛍光体の発光特性の評価結果＞

以下、蛍光体1、蛍光体2、参考用蛍光体、及び混合蛍光体について測定した450

nm励起下における各種の発光特性を詳述する。

[0064] 図6に蛍光体1の励起スペクトルを、図7に蛍光体2の励起スペクトルを、図8に参考用蛍光体の励起スペクトルをそれぞれ示す。

[0065] 図6～8から、いずれの蛍光体も励起スペクトルのピークが400～470nmにブロードに存在することが分かる。

このことから、これらの蛍光体は、370～480nmの波長域に発光スペクトルのピークを持つ半導体発光素子の光により効率良く励起され、発光可能であることが分かる。

[0066] 表2に、蛍光体1、蛍光体2、参考用蛍光体に関するx／yの値、並びに各蛍光体の450nm励起下における発光スペクトルの色度座標(cx,cy)及びドミナント波長(nm)を示す。

尚、x／yの値とは、$Sr_xBa_ySi_2O_2N_2:Eu^{2+}$の一般式で表される各蛍光体におけるyに対するxの比の値であり、各蛍光体におけるストロンチウムとバリウムの含有比率(モル比)である。

[表2]

表２

	ｘ／ｙ（Ｓｒ／Ｂａ）	色度座標（ｃｘ，ｃｙ）	ドミナント波長（ｎｍ）
蛍光体１	１００／０	０．３７，０．６０	５６０
参考用蛍光体	５０／５０	０．４７，０．５１	５７４
蛍光体２	５／７５	０．５２，０．４７	５８１

[0067] この表2から、蛍光体1、蛍光体2、及び参考用蛍光体は、いずれも$Sr_xBa_ySi_2O_2N_2:Eu^{2+}$の一般式で示される蛍光体であるが、ストロンチウムに対するバリウムの含有比率は、蛍光体1、参考用蛍光体、蛍光体2の順序で大きくなり、それに応じて発光スペクトルのピーク波長が長波長となることが分かる。

[0068] 図9の色度図に、各蛍光体の色度座標Y1～Y3と発光スペクトルのピークが450nmである半導体発光素子の色度座標B(cx＝0．152、cy＝0．025)を示す。

[0069] この図9の色度図から、Y1～Y3は仮想の直線である点線D上にほぼ並んで位置

していることがわかる。

このことから、$Sr_xBa_ySi_2O_2N_2:Eu^{2+}$の一般式で示される蛍光体の色度座標は、前記点線D上において前記一般式におけるyに対するxの比の値x／yの値に応じたいずれかの地点に位置し、前記比の値x／yの値が100／0～60／40の範囲内にある前記第一の蛍光体はY2よりもY1側に位置し、前記比の値x／yの値が45／55～5／95の範囲内にある前記第二の蛍光体はY2よりもY3側に位置することが予想される。

[0070] 図10は、450nm励起下における蛍光体1の発光スペクトル（実線）、蛍光体2の発光スペクトル（点線）、及び参考用蛍光体の発光スペクトル（一点鎖線）を示す。

尚、図10におけるグラフの縦軸は各蛍光体の相対的な発光強度を示すものである。

[0071] 図10に示すように、各蛍光体の発光スペクトルのピーク波長は、蛍光体1が535～555nm、参考用蛍光体が560～580nm、蛍光体2が575～595nmの波長域にあり、ストロンチウムに対するバリウム含有比率（モル比）が大きい蛍光体ほど、発光スペクトルのピーク波長が長波長側へシフトする傾向がある。また、図10に示すように、各蛍光体の発光スペクトルは、波形においては目立った違いが無く、いずれも半値幅は80～110である。

[0072] 図11は、450nm励起下における混合蛍光体1の発光スペクトル（実線）及び参考用蛍光体の発光スペクトル（一点鎖線）を示す。

また、表3は、450nm励起下における各蛍光体の発光スペクトルの色度座標（cx,cy）、ドミナント波長（nm）、ピーク波長（nm）、及び反値幅（nm）を示す。

[表3]

表３

	色度座標 （ｃｘ，ｃｙ）	ドミナント波長 （ｎｍ）	ピーク波長 （ｎｍ）	半値幅 （ｎｍ）
混合蛍光体	０．４６，０．５２	５７３	５６９	１１２
参考用蛍光体	０．４７，０．５１	５７５	５７０	９５

[0073] 図11及び表3に示すように、混合蛍光体と参考用蛍光体の発光スペクトルは、色度座標、ドミナント波長及びピーク波長についてはほぼ等しいが、混合蛍光体の方が参

考用蛍光体に比べて半値幅が広く、青色と黄色の中間の波長領域や赤色領域の光を多く含むブロードな発光スペクトルをしていることが分かる。

[0074] ＜加色混合による白色光化の検討＞

前述の通り、発光スペクトルのピーク波長が450nmである半導体発光素子と各蛍光体の加色混合によって再現可能な色度範囲は、図9に示す色度図における当該半導体発光素子の色度座標ポイントBと各蛍光体の色度座標ポイントY1～Y4とを結んだ直線L1～L4により近似的に表すことができる。

[0075] 図9に示す色度図より、直線L1（蛍光体1）は車両用前照灯の白色光源の色度規定（JIS：D5500）の範囲を示す領域Aの範囲を通過しないため、蛍光体1を単独で青色発光の半導体発光素子と組み合わせた場合には、当該色度規定を満たす白色光の発光は不可能であることが予想される。

[0076] 一方、直線L2（参考用蛍光体）、L3（蛍光体2）及びL4（混合蛍光体）は領域Aの範囲を通過するため、青色発光の半導体発光素子との組み合わせにより前記色度規定を満たす白色光の発光が可能であることが予想される。

特に、直線L2及びL4は領域Aのほぼ真中を通過しており、直線L2及びL4と領域Aの黄色蛍光体側境界線との交差点であるポイントX2及びX4の周辺は視感度の高い領域であることが分かる。

[0077] このことから、参考用蛍光体又は混合蛍光体は、青色発光の半導体発光素子との組み合わせることにより、領域Aの範囲において視感度の高い白色光の発光が可能であることが予想される。

ここで、参考用蛍光体と混合蛍光体を比較した場合、上述の通り、混合蛍光体は参考用蛍光体よりも半値幅が広く、青色と黄色の中間の波長領域や赤色領域の光を多く含むブロードな発光スペクトルをしていることから、混合蛍光体は参考用蛍光体よりもさらに視感度の高い白色光の発光が可能であることが予想される。

[0078] 次に、実施例の発光装置の構成について詳述する。

尚、下記発光装置の構成は、用いた蛍光体の種類を除き、実施例及び比較例について共通の構成である。

[0079] ＜発光装置の構成＞

本実施例の発光装置は、上記の実施形態において下記の具体的な構成を用いたものである。

[0080] まず、基板21として窒化アルミニウム基板を用い、その表面に金を用いて電極22a(陽極)及び電極22b(陰極)を形成した。

また、半導体発光素子23として、450nmに発光ピークを持つ1mm四方のLED(SemiLEDs社製:MvpLED^{TM}SL－V－B40AC)を用い、前記電極22a(陽極)上にディスペンサーを用いて滴下した銀ペースト(エイブルスティック社製:84－1LMISR4)の上に当該LEDの下面を接着させ、当該銀ペーストを175℃環境下で1時間硬化させた。

[0081] また、ワイヤー25としてΦ45μmの金ワイヤーを用い、この金ワイヤーを超音波熱圧着にてLEDの上面側電極及び電極22b(陰極)に接合した。

また、バインダー部材としてシリコーン樹脂(東レダウコーニングシリコーン社製:JCR6140)を用い、これに各種蛍光体を混入した30vol%蛍光体ペーストを作製し、当該蛍光体ペーストを半導体発光素子23の上面に塗布した。塗布量は所望の色度が得られるように膜厚を調整しながら塗布した。

塗布した蛍光体ペーストを80℃環境下で40分、その後に150℃環境下で60分のステップ硬化にて固定化することで蛍光層26を形成した。

[0082] 以上の蛍光体及び発光装置の構成に基づいて下記実施例及び比較例の発光装置を作製した。

＜実施例＞

本実施例は、前記混合蛍光体を用いて蛍光体ペーストを作製し、当該蛍光体ペーストを用いて塗布量を図9の色度図におけるポイントX4に近づけるように調整した発光装置を作製した。

[0083] ＜比較例1＞

本比較例1は、前記参考用蛍光体を用いて蛍光体ペーストを作製し、当該蛍光体ペーストを用いて塗布量を図9の色度図におけるポイントX2に近づけるように調整した発光装置を作製した。

[0084] ＜比較例2＞

本比較例2は、前記Gd含有蛍光体（一般式$(Y,Gd)_3Al_5O_{12}$:Ceで表される蛍光体：化成オプトニクス社製：P46－Y3）を用いて蛍光体ペーストを作製し、当該蛍光体ペーストを用いて塗布量を図1の色度図におけるポイントX'に近づけるように調整した発光装置を作製した。

[0085] ＜実施例の評価＞

以下、実施例及び比較例1～2について行った各種発光特性の測定結果を示す。

まず、積分球内で実施例及び比較例1に電流を投入し発光させ、分光器（Instrument System社製 CAS140B－152）で発光出力及び分光スペクトルを測定した。その測定結果を以下詳述する。

[0086] 表4に、実施例及び比較例1に350mAの駆動電流を印加したときの積分発光強度比、色度座標（cx,cy）、及び演色係数（Ra）を示す。

[表4]

表４

	蛍光体	色度座標（ｃｘ，ｃｙ）	演色性（Ｒａ）
実施例	混合蛍光体	０．３９，０．４０	６７
比較例１	参考用蛍光体	０．３９，０．３９	６１

[0087] また、図12に、実施例及び比較例1に350mAの駆動電流を印加した場合の実施例の発光スペクトル（実線）及び比較例1の発光スペクトル（点線）を示す。

[0088] この表4より、いずれの発光装置の色度座標も図9の色度図における領域Aの範囲において蛍光体側に近い領域にあり、車両用灯具の白色光源の色度規定に合致した視感度の高い白色光であることがわかる。

さらに、表4の演色性の値と図12から、実施例は比較例1よりも演色性が高く且つブロードな発光スペクトルを持つことがわかる。

[0089] 次に、実施例の温度特性を評価するため、図13に示すように、実施例及び比較例2の発光装置20をアルミ製ヒートシンク27上に設置し、これらの発光装置に700mAの駆動電流を印加して恒温槽内において各雰囲気温度下で15分間放置した後、発光強度を瞬間マルチ測光システム（大塚電子社製：MCPD－1000）で測定した。そ

の測定結果を以下に示す。

[0090] 表5は、雰囲気温度下で測定した積分発光強度を、発光装置の全発光波長域(380～780nm)と、蛍光体の発光波長域(500～780nm)とに分け、それぞれの発光装置について30℃条件下における積分発光強度を100%とする比率として示したものである。

[表5]

表５

雰囲気温度	発光装置の全発光波長域（３８０～７８０ｎｍ）の積分発光強度		蛍光体の発光波長域（４９１～７８０ｎｍ）の積分発光強度	
	実施例	比較例２	実施例	比較例２
３０℃	１００％	１００％	１００％	１００％
８０℃	８４．３％	７６．２％	８１．５％	７４．５％

[0091] この表5から、発光装置の全発光波長域、及び蛍光体の発光波長域のいずれについても、実施例は比較例2よりも高い維持率を示しており、実施例は良好な温度特性を有することが分かる。

[0092] 図14に、実施例の発光装置について、700mAの駆動電流における30℃条件下の発光スペクトル(実線)と80℃条件下の発光スペクトル(点線)を示す。

[0093] 図15に、比較例2の発光装置について、700mAの駆動電流における30℃条件下の発光スペクトル(実線)と80℃条件下の発光スペクトル(点線)を示す。

[0094] 図14及び図15から、30℃条件下から80℃条件下への温度上昇により、いずれの発光装置も発光スペクトルの発光強度が低下するが、実施例は比較例2に比べて蛍光領域が高く維持されていることが分かる。

[0095] 以上、本発明の蛍光体を実施例に沿って説明したが、本発明はこれらの実施例に限られるものではなく、種々の変更、改良、組み合わせ、利用形態等が考えられることは言うまでもない。

[0096] 本出願は、2008年2月18日出願の日本特許出願(特願2008-035461)に基づくものであり、その内容はここに参照として取り込まれる。

産業上の利用可能性

[0097] 本発明の白色発光装置は、車両用灯具であって光源の機能色が白色系のもの、例えばヘッドランプ、フォグランプ、コーナーリングランプ、ライセンスプレートランプ、バックアップランプ、ルームランプ等に利用することができる。

また、本発明の白色発光装置は、白色光源とカラーフィルター等を組み合わせた車両用灯具であって機能色が白色系以外のもの、例えばテールランプ、ストップランプ、ターンシグナルランプ等に利用することもできる。

請求の範囲

[1] 車両用灯具に用いられる白色発光装置であって、

370～480nmの波長域に発光スペクトルのピークを持つ半導体発光素子と、前記半導体発光素子の発する光により励起され可視光を発光する少なくとも2種以上の蛍光体を備え、

前記蛍光体は、$Sr_xBa_ySi_2O_2N_2:Eu^{2+}$の一般式で表され、前記一般式におけるyに対するxの比の値x／yが100／0～60／40の範囲内にある第一の蛍光体と、前記比の値x／yが45／55～5／95の範囲内にある第二の蛍光体とを備えることを特徴とする白色発光装置。

[2] 前記比の値x／yが100／0～70／30の範囲内にある第一の蛍光体と、前記比の値x／yが40／60～5／95の範囲内にある第二の蛍光体とを備えることを特徴とする請求項1～2のいずれかに記載の白色発光装置。

[3] 前記一般式のxが0．60＜x＜0．97、yが0≦y＜0．35、x＋yがx＋y＜0．97の範囲にある第一の蛍光体と、前記一般式のxが0．03＜x＜0．40、yが0．40＜y＜0．90、x＋yがx＋y＜0．97の範囲にある第二の蛍光体とを備えることを特徴とする請求項1～2のいずれかに記載の白色発光装置。

[4] 前記第一の蛍光体の発光スペクトルのドミナント波長が550～565nmの波長域にあり、前記第二の蛍光体の発光スペクトルのドミナント波長が578～600nmの波長域にあることを特徴とする請求項1～3のいずれかに記載の白色発光装置。

[5] 前記第一の蛍光体の発光スペクトルのピーク波長が535～570nmの波長域にあり、前記第二の蛍光体の発光スペクトルのピーク波長が575～610nmの波長域にあることを特徴とする1～4のいずれかに記載の白色発光装置。

[6] 前記第一の蛍光体及び前記第二の蛍光体の合成スペクトルのドミナント波長が565～580nmの波長域にあり、半値幅が100nm以上であることを特徴とする請求項1～5のいずれかに記載の白色発光装置。

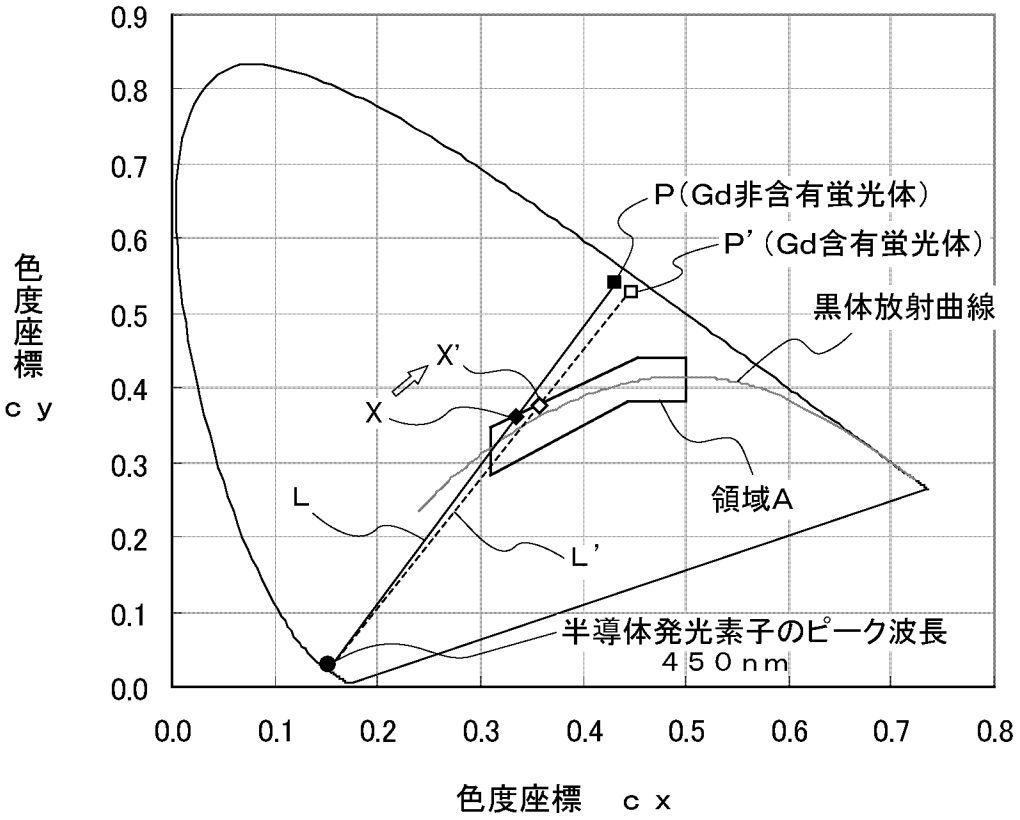
[7] 前記第一の蛍光体及び前記第二の蛍光体は、$SrCO_3$、$BaCO_3$、SiO_2及びEu_2O_3の混合物を還元雰囲気中で1次焼成して作製したユーロピウム付活のオルソ珪酸塩を前駆体とし、この前駆体とSi_3N_4及びNH_4Clの混合物を還元雰囲気中で2次焼成

することで得られることを特徴とする請求項1～6のいずれかに記載の白色発光装置。

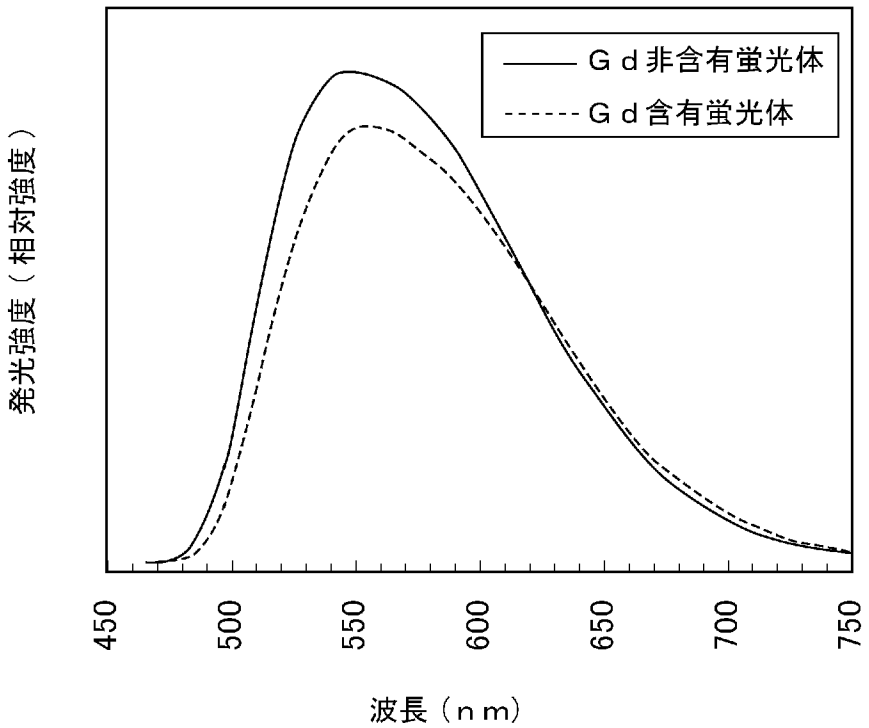
[8] 前記半導体発光素子のピーク波長が430nm～470nmの波長域にあるInGaN系LEDであることを特徴とする請求項1～7のいずれかに記載の白色発光装置。

[9] 請求項1～8のいずれかに記載の白色発光装置を光源とした車両用灯具。

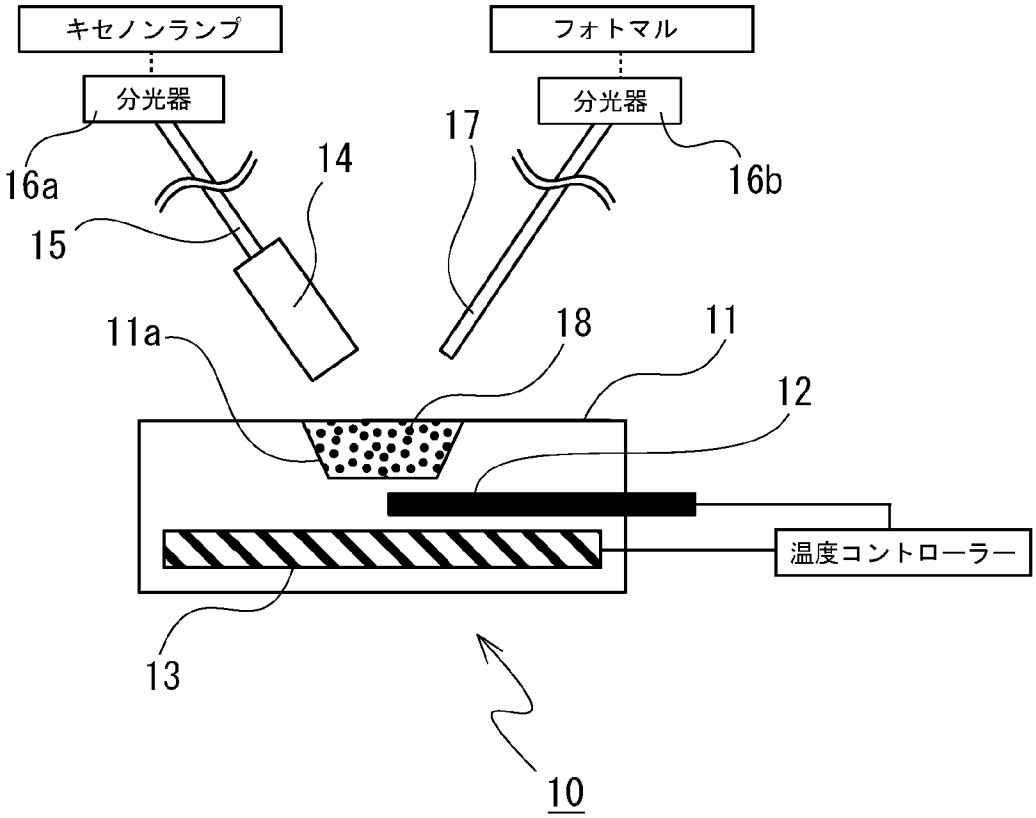
[図1]


色度座標 ｃｙ
0.9
0.8
0.7
0.6
0.5
0.4
0.3
0.2
0.1
0.0
0.0
0.1
0.2
0.3
0.4
0.5
0.6
0.7
0.8
色度座標 ｃｘ
P（Gd非含有蛍光体）
P’（Gd含有蛍光体）
黒体放射曲線
X’
X
L
L’
領域A
半導体発光素子のピーク波長
４５０ｎｍ

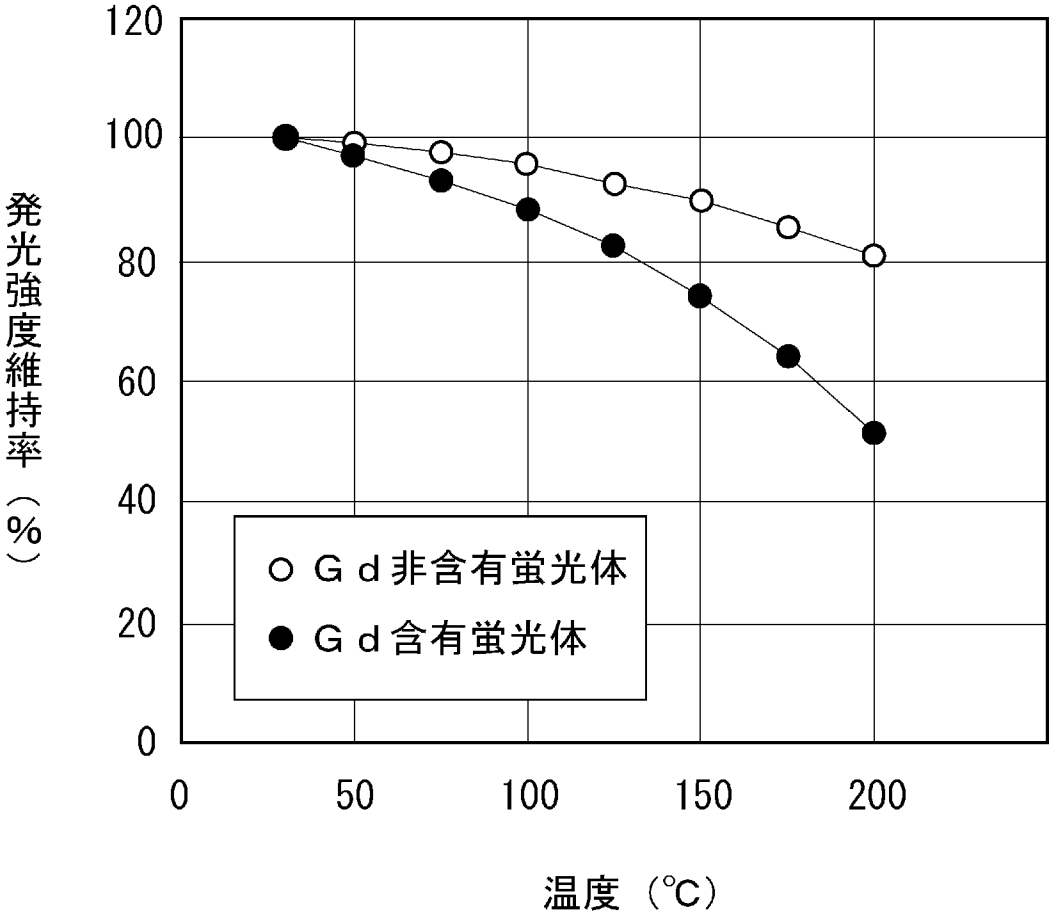
[図2]


発光強度（相対強度）
Ｇｄ非含有蛍光体
Ｇｄ含有蛍光体
450
500
550
600
650
700
750
波長（ｎｍ）

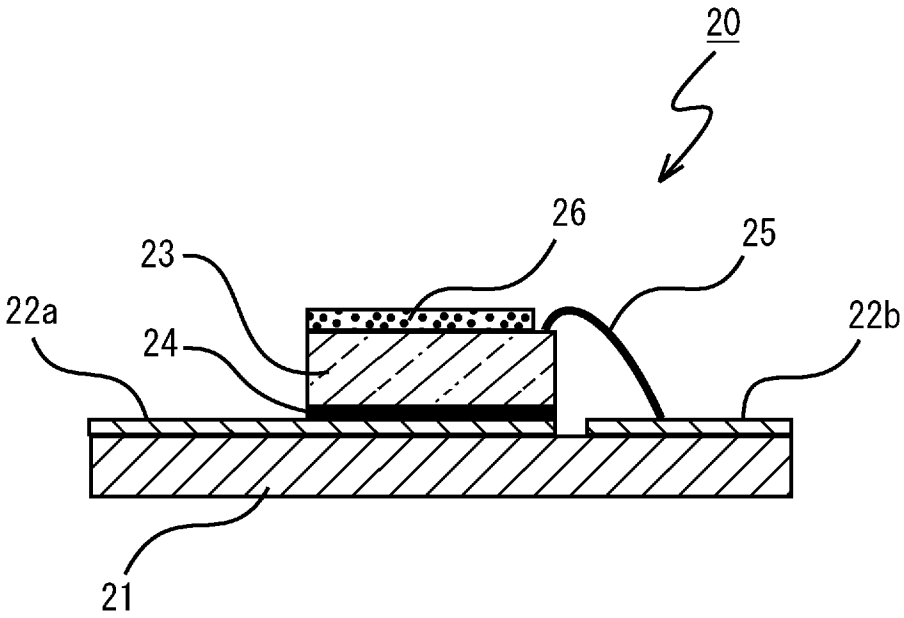
[図3]


キセノンランプ
フォトマル
分光器
分光器
16a
16b
14
17
15
11a
18
11
12
温度コントローラー
13
10

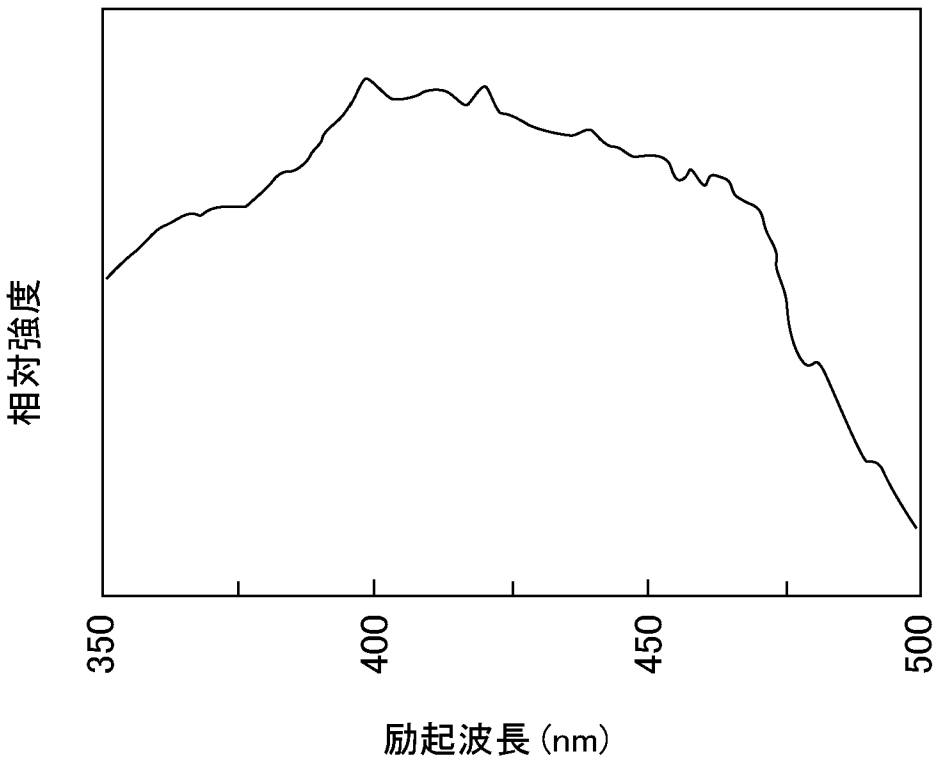
[図4]


120
100
80
60
40
20
0
0
50
100
150
200
発光強度維持率（%）
温度（℃）
○ Ｇｄ非含有蛍光体
● Ｇｄ含有蛍光体

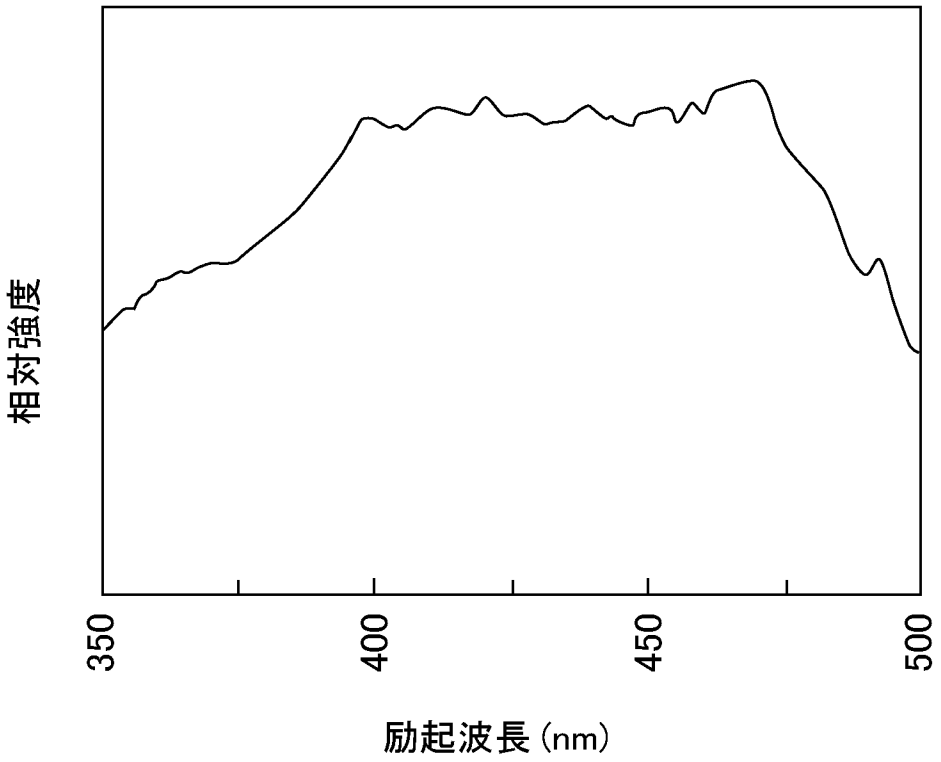
[図5]



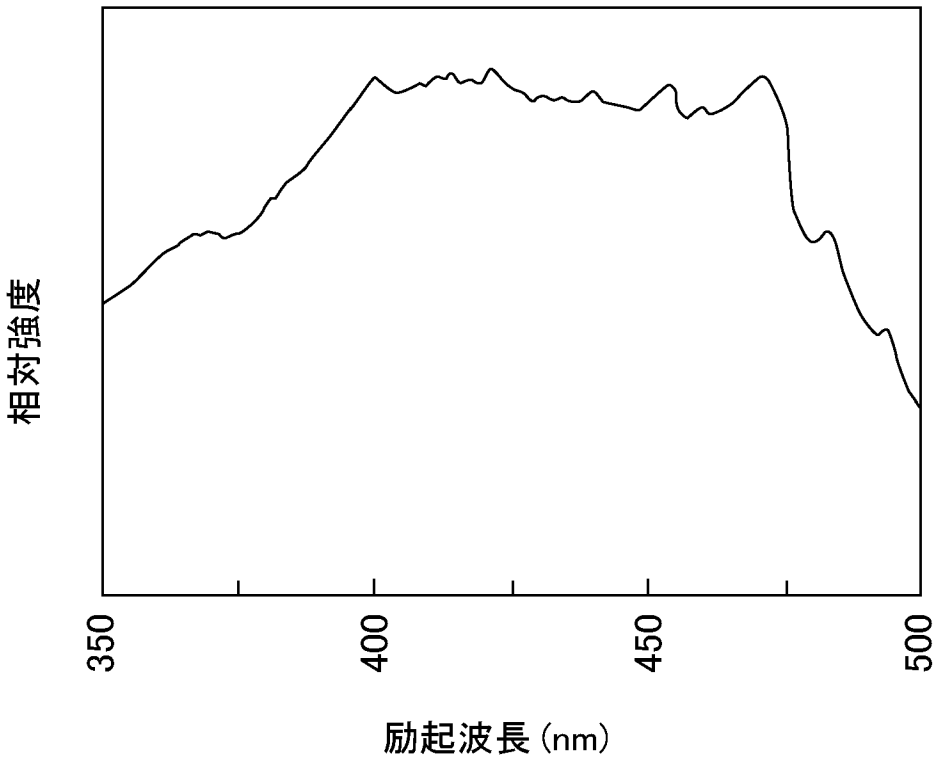
[図6]



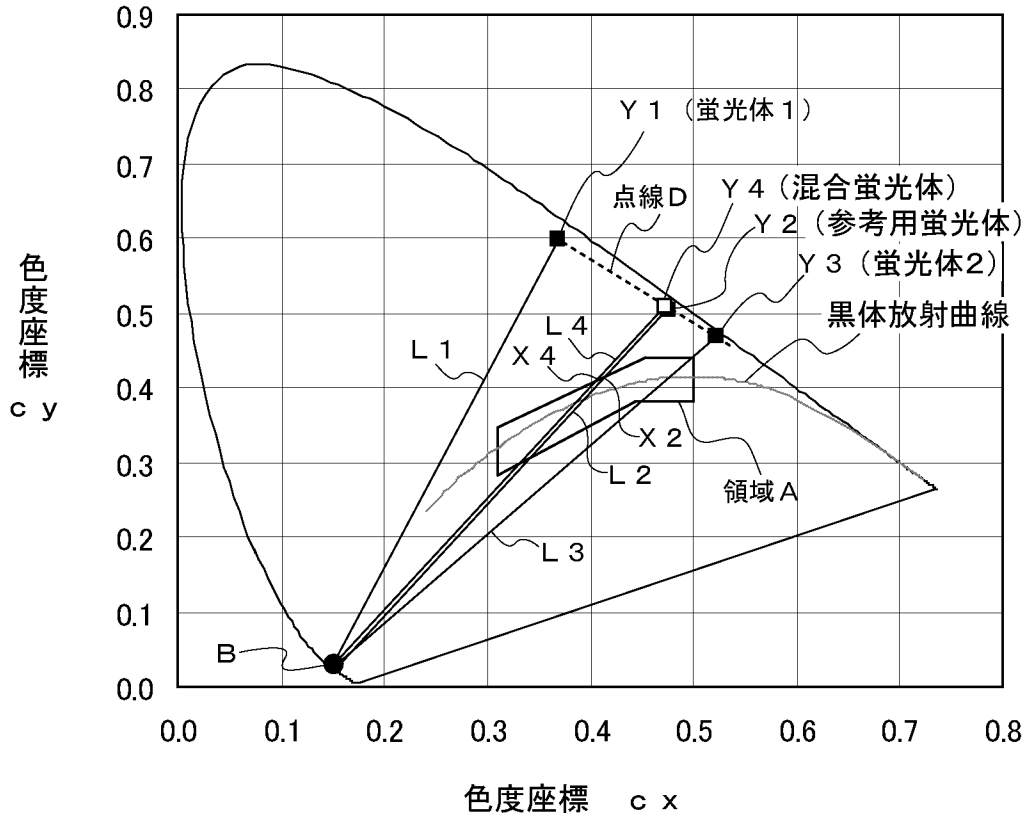
[図7]



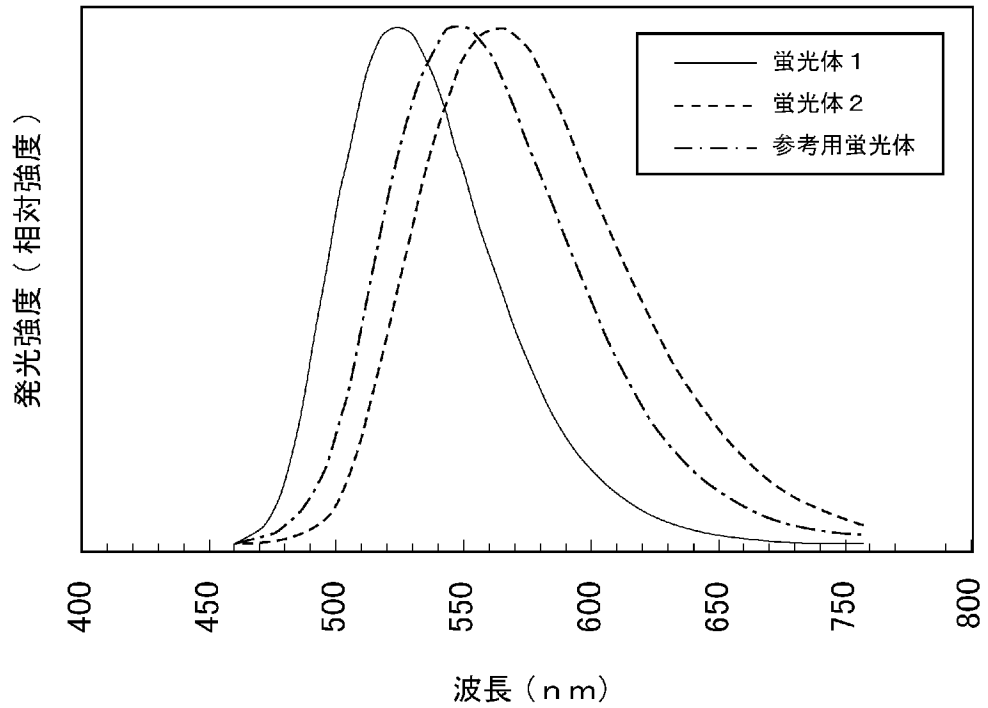
[図8]



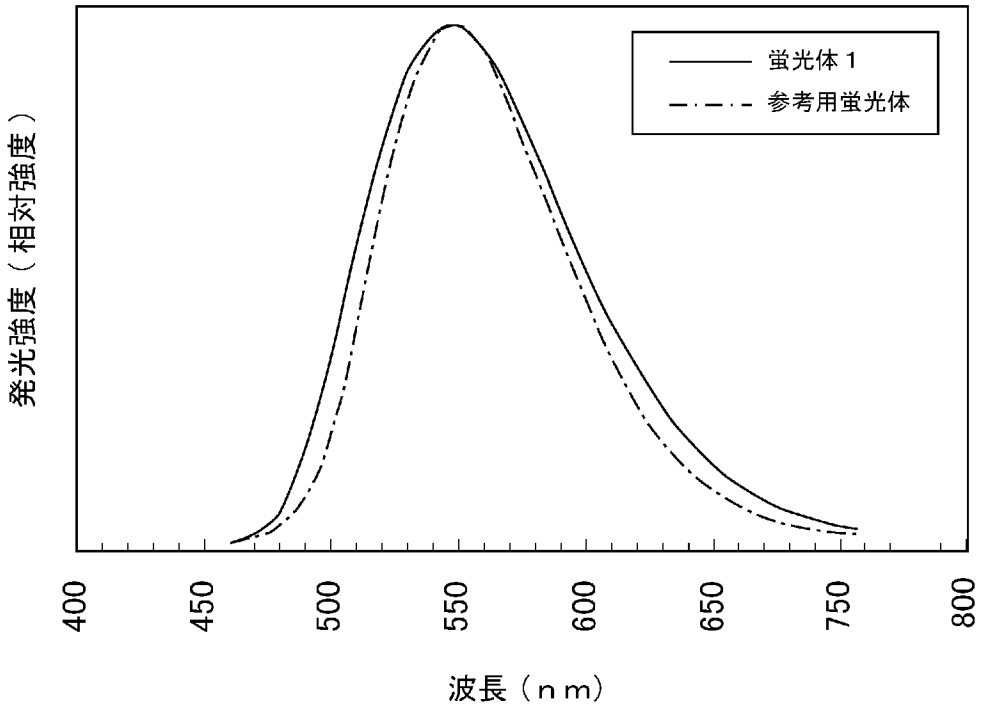
[図9]


Y１（蛍光体１）
点線D
Y４（混合蛍光体）
Y２（参考用蛍光体）
Y３（蛍光体2）
黒体放射曲線
L１
L４
X４
X２
L２
領域A
L３
B
色度座標 ｃｙ
色度座標 ｃｘ
0.0
0.1
0.2
0.3
0.4
0.5
0.6
0.7
0.8
0.9

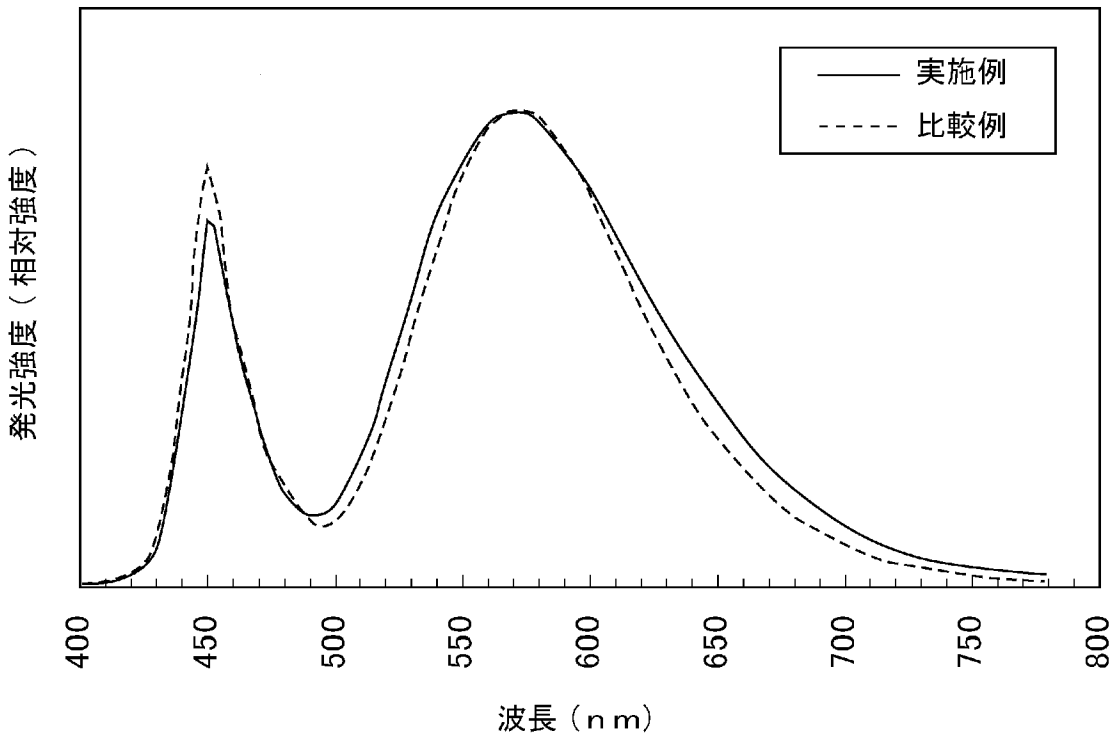
[図10]


蛍光体１
蛍光体２
参考用蛍光体
発光強度（相対強度）
波長（ｎｍ）
400
450
500
550
600
650
750
800

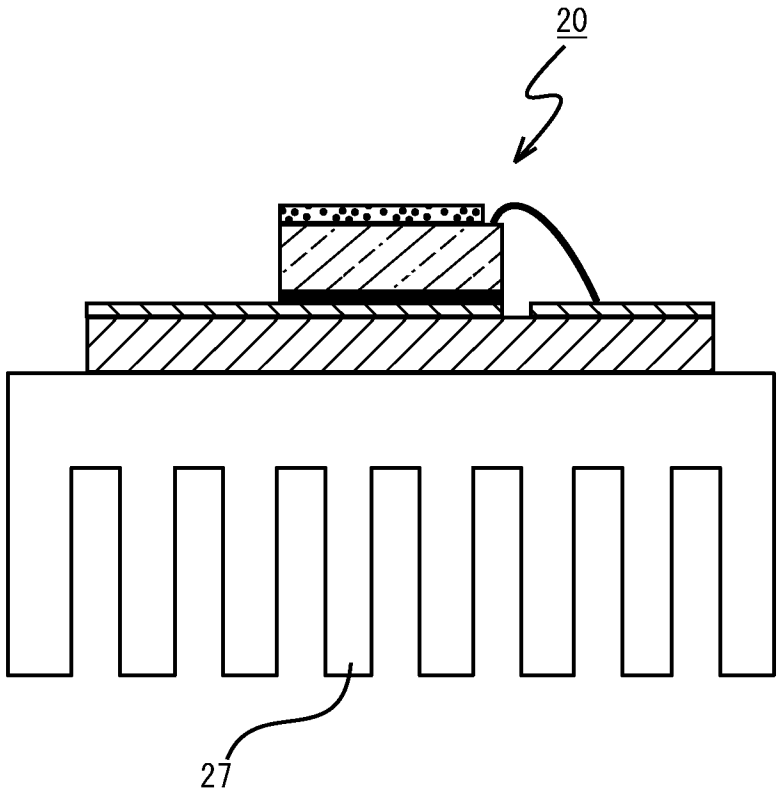
[図11]


蛍光体１
参考用蛍光体
発光強度（相対強度）
400
450
500
550
600
650
750
800
波長（ｎｍ）

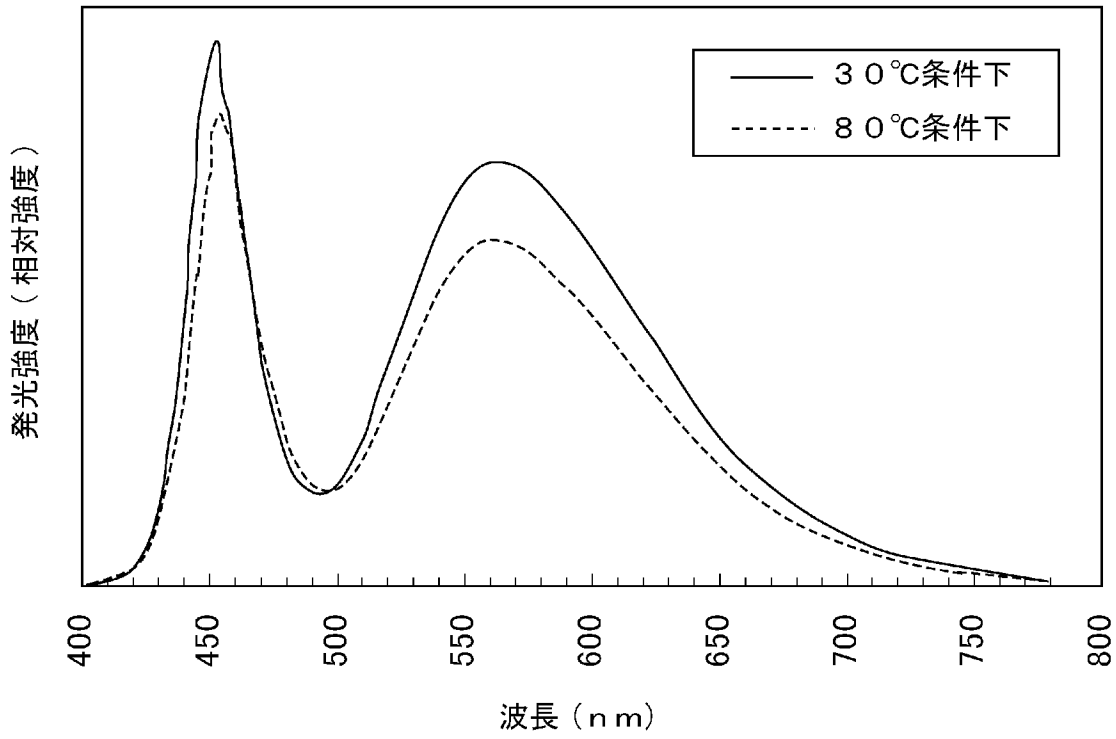
[図12]


実施例
比較例
発光強度（相対強度）
400
450
500
550
600
650
700
750
800
波長（ｎｍ）

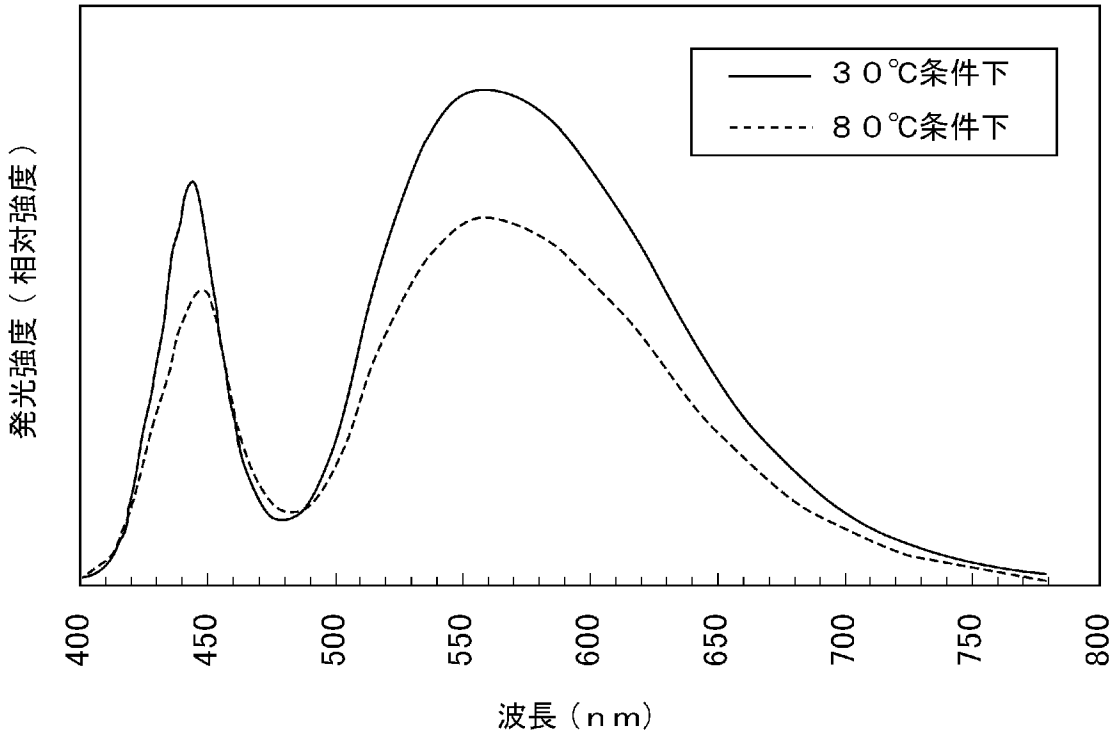
[図13]


20
27

[図14]


３０℃条件下
８０℃条件下
発光強度（相対強度）
400
450
500
550
600
650
700
750
800
波長（ｎｍ）

[図15]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2009/052819

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
H01L33/00(2006.01)i, *C09K11/08*(2006.01)i, *C09K11/59*(2006.01)i, *F21S8/10*(2006.01)i, *F21Y101/02*(2006.01)n

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)
H01L33/00, C09K11/08, C09K11/59, F21S8/10, F21Y101/02

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 1996-2009
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2009 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2009

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2007-242717 A (Koito Manufacturing Co., Ltd.), 20 September, 2007 (20.09.07), Full text; all drawings (Family: none)	1-9
Y	Bong-Goo Yun et al., Luminescence Properties of $(Sr_{1-u}Ba_u)Si_2O_2N_2:Eu^{2+}$, Yellow or Orange Phosphors for White LEDs, Synthesized with $(Sr_{1-u}Ba_u)_2SiO_4:Eu^{2+}$ as a Precursor, Journal of The Electrochemical Society, 2007.08.15, Volume 154, Issue 10, J320-J325	1-9

☒ 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	Date of mailing of the international search report
05 March, 2009 (05.03.09)	17 March, 2009 (17.03.09)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (April 2007)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2009/052819

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	Kaicho MIYAMOTO et al., Sanchikkabutsu Aoiro Keikotai (Sr, Ba)$Si_2O_2N_2:Eu^{2+}$ no Hakko Tokusei", Extended Abstracts, 67th Autumn Meeting, The Japan Society of Applied Physics, 2006, NO.3, 1305	1-9
A	JP 2005-281700 A (Nichia Chemical Industries, Ltd.), 13 October, 2005 (13.10.05), Full text; all drawings & US 2006/0076883 A1 & EP 1571194 A1 & WO 2004/039915 A1	1-9

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２００９／０５２８１９

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　H01L33/00(2006.01)i, C09K11/08(2006.01)i, C09K11/59(2006.01)i, F21S8/10(2006.01)i, F21Y101/02(2006.01)n

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.　H01L33/00, C09K11/08, C09K11/59, F21S8/10, F21Y101/02

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

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２００９年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２００９年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２００９年

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(JDreamII)

Ｃ．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求の範囲の番号
Y	JP 2007-242717 A (株式会社小糸製作所) 2007.09.20, 全文、全図（ファミリーなし）	1-9
Y	Bong-Goo Yun 他, Luminescence Properties of $(Sr_{1-u}Ba_u)Si_2O_2N_2:Eu^{2+}$, Yellow or Orange Phosphors for White LEDs, Synthesized with $(Sr_{1-u}Ba_u)_2SiO_4:Eu^{2+}$ as a Precursor, Journal of The Electrochemical Society, 2007.08.15, Volume 154, Issue 10, J320-J325	1-9

☑　Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。　　☐　パテントファミリーに関する別紙を参照。

＊　引用文献のカテゴリー
「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
「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
「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）
「Ｏ」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「Ｐ」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
「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
「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
「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
「＆」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日 ０５．０３．２００９	国際調査報告の発送日 １７．０３．２００９
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ） 郵便番号１００－８９１５ 東京都千代田区霞が関三丁目４番３号	特許庁審査官（権限のある職員）　２Ｋ　３４９８ 松崎　義邦 電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３２５５

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	関連する請求の範囲の番号
A	宮本快暢　他，酸窒化物青色蛍光体 $(Sr,Ba)Si_2O_2N_2:Eu^{2+}$ の発光特性，第６７回応用物理学会学術講演会　講演予稿集，2006，No. 3，1305	1-9
A	JP 2005-281700 A（日亜化学工業株式会社） 2005.10.13，全文、全図 & US 2006/0076883 A1 & EP 1571194 A1 & WO 2004/039915 A1	1-9