

【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26年5月22日(2014.5.22)

【公開番号】特開2012-153905(P2012-153905A)

【公開日】平成24年8月16日(2012.8.16)

【年通号数】公開・登録公報2012-032

【出願番号】特願2012-116646(P2012-116646)

【国際特許分類】

C 09 K 11/80 (2006.01)

H 01 L 33/50 (2010.01)

【F I】

C 09 K 11/80 C P P

H 01 L 33/00 4 1 0

【手続補正書】

【提出日】平成26年4月7日(2014.4.7)

【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】

下記組成式(1)

(A<sub>1-x</sub>B<sub>x</sub>)<sub>3</sub>C<sub>5</sub>O<sub>12</sub> (1)

(式中、AはY, Gd及びLuから選ばれる1種以上の希土類元素、BはCe, Nd及びTbから選ばれる1種以上の希土類元素、CはAl及びGaから選ばれる1種以上の元素であり、xは0.002～0.2である。)

で示されるガーネット相を含有し、複数の一次粒子で構成された球形の多結晶体二次粒子であり、該二次粒子の平均粒子径が5～50μmであり、励起波長450nm、発光波長480～780nmの範囲において、吸収率が90%以上、外部量子効率が85%以上であることを特徴とする蛍光体粒子。

【請求項2】

上記一次粒子の粒子径が0.1～5μmであることを特徴とする請求項1記載の蛍光体粒子。

【請求項3】

多結晶粒子の表面平均隆起高さが0.02～2μmであることを特徴とする請求項1又は2記載の蛍光体粒子。

【請求項4】

Ba含有率が10ppm以下であることを特徴とする請求項1乃至3のいずれか1項記載の蛍光体粒子。

【請求項5】

上記組成式(1)中のBで示される希土類元素が、Ce及びNdから選ばれることを特徴とする請求項1乃至4のいずれか1項記載の蛍光体粒子。

【請求項6】

上記組成式(1)中のA、B及びCで示される元素の1種又は2種以上を含む酸化物を原料とし、該酸化物の粉末を1種で又は2種以上、上記A、B及びCで示される元素が上記組成の比率となるように混合して平均粒子径5～65μmに造粒し、得られた造粒粒子をプラズマ中で溶融してプラズマ外で球状に固化させ、更に、得られた粒子を非酸化性雰

囲気中 900 ~ 1,700 で加熱処理して得られたことを特徴とする請求項 1 乃至 5 のいずれか 1 項記載の蛍光体粒子。

**【請求項 7】**

上記原料酸化物にフランクスを添加することなく製造したことを特徴とする請求項 6 記載の蛍光体粒子。

**【請求項 8】**

上記造粒粒子をプラズマ中で溶融して液滴とし、プラズマ外で球状に固化させたことを特徴とする請求項 6 又は 7 記載の蛍光体粒子。

**【請求項 9】**

上記造粒粒子を、蛍光体組成物のスラリーから造粒したことを特徴とする請求項 6 乃至 8 のいずれか 1 項記載の蛍光体粒子。

**【請求項 10】**

上記蛍光体組成物のスラリーが、平均粒子径が 0.01 ~ 2.0  $\mu\text{m}$  の微粒子のスラリーであることを特徴とする請求項 9 記載の蛍光体粒子。

**【請求項 11】**

上記蛍光体組成物のスラリーに、更に有機添加剤を加えたことを特徴とする請求項 9 又は 10 記載の蛍光体粒子。

**【請求項 12】**

造粒粒子を大気中で熱処理して有機成分を除去した後、プラズマ中で溶融したことを特徴とする請求項 11 記載の蛍光体粒子。

**【請求項 13】**

請求項 1 乃至 12 のいずれか 1 項記載の蛍光体粒子を、発光素子の発光光路上に直接又は樹脂若しくは無機ガラスに分散させて積層してなることを特徴とする発光ダイオード。

**【手続補正 2】**

**【補正対象書類名】**明細書

**【補正対象項目名】**0010

**【補正方法】**変更

**【補正の内容】**

**【0010】**

従って、本発明は、下記の蛍光体粒子及び発光ダイオードを提供する。

**請求項 1 :**

下記組成式 (1)

$(A_{1-x}B_x)_3C_5O_{12}$  (1)

(式中、A は Y, Gd 及び Lu から選ばれる 1 種以上の希土類元素、B は Ce, Nd 及び Tb から選ばれる 1 種以上の希土類元素、C は Al 及び Ga から選ばれる 1 種以上の元素であり、x は 0.002 ~ 0.2 である。)

で示されるガーネット相を含有し、複数の一次粒子で構成された球形の多結晶体二次粒子であり、該二次粒子の平均粒子径が 5 ~ 50  $\mu\text{m}$  であり、励起波長 450 nm、発光波長 480 ~ 780 nm の範囲において、吸収率が 90 % 以上、外部量子効率が 85 % 以上であることを特徴とする蛍光体粒子。

**請求項 2 :**

上記一次粒子の粒子径が 0.1 ~ 5  $\mu\text{m}$  であることを特徴とする請求項 1 記載の蛍光体粒子。

**請求項 3 :**

多結晶体の表面平均隆起高さが 0.02 ~ 2  $\mu\text{m}$  であることを特徴とする請求項 1 又は 2 記載の蛍光体粒子。

**請求項 4 :**

Ba 含有率が 10 ppm 以下であることを特徴とする請求項 1 乃至 3 のいずれか 1 項記載の蛍光体粒子。

**請求項 5 :**

上記組成式(1)中のBで示される希土類元素が、Ce及びNdから選ばれることを特徴とする請求項1乃至4のいずれか1項記載の蛍光体粒子。

請求項6：

上記組成式(1)中のA、B及びCで示される元素の1種又は2種以上を含む酸化物を原料とし、該酸化物の粉末を1種で又は2種以上、上記A、B及びCで示される元素が上記組成の比率となるように混合して平均粒子径5~6.5μmに造粒し、得られた造粒粒子をプラズマ中で溶融してプラズマ外で球状に固化させ、更に、得られた粒子を非酸化性雰囲気中900~1,700で加熱処理して得られたことを特徴とする請求項1乃至5のいずれか1項記載の蛍光体粒子。

請求項7：

上記原料酸化物にフランクスを添加することなく製造したことを特徴とする請求項6記載の蛍光体粒子。

請求項8：

上記造粒粒子をプラズマ中で溶融して液滴とし、プラズマ外で球状に固化させたことを特徴とする請求項6又は7記載の蛍光体粒子。

請求項9：

上記造粒粒子を、蛍光体組成物のスラリーから造粒したことを特徴とする請求項6乃至8のいずれか1項記載の蛍光体粒子。

請求項10：

上記蛍光体組成物のスラリーが、平均粒子径が0.01~2.0μmの微粒子のスラリーであることを特徴とする請求項9記載の蛍光体粒子。

請求項11：

上記蛍光体組成物のスラリーに、更に有機添加剤を加えたことを特徴とする請求項9又は10記載の蛍光体粒子。

請求項12：

造粒粒子を大気中で熱処理して有機成分を除去した後、プラズマ中で溶融したことを特徴とする請求項11記載の蛍光体粒子。

請求項13：

請求項1乃至12のいずれか1項記載の蛍光体粒子を、発光素子の発光光路上に直接又は樹脂若しくは無機ガラスに分散させて積層してなることを特徴とする発光ダイオード。

また、本発明は、上記蛍光体粒子の製造方法として、以下の製造方法が関連する。

【1】 上記組成式(1)中のA、B及びCで示される元素の1種又は2種以上を含む酸化物を原料とし、該酸化物の粉末を1種で又は2種以上、上記A、B及びCで示される元素が上記組成の比率となるように混合して平均粒子径5~6.5μmに造粒し、得られた造粒粒子をプラズマ中で溶融してプラズマ外で球状に固化させ、更に、得られた粒子を非酸化性雰囲気中900~1,700で加熱処理することを特徴とする蛍光体粒子の製造方法。

【2】 上記原料酸化物にフランクスを添加することなく製造することを特徴とする【1】記載の製造方法。

【手続補正3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0044

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0044】

【表1】

	平均 粒子径 ( $\mu$ m)	一次 粒子径 ( $\mu$ m)	表面平均 隆起高さ ( $\mu$ m)	XRD 不純物相	<u>吸收率</u>	<u>内部量子 効率</u>	<u>外部量子 効率</u>
実施例 1	18.4	1.3	0.23	なし	0.93	0.96	0.89
比較例 1	19.3	—	—	Ba, Al 複合酸化物	0.85	0.90	0.77