



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2011-0050552
 (43) 공개일자 2011년05월13일

- | | |
|---|---|
| <p>(51) Int. Cl.
 <i>C09K 11/77</i> (2006.01) <i>H05B 33/10</i> (2006.01)</p> <p>(21) 출원번호 10-2011-7007616</p> <p>(22) 출원일자(국제출원일자) 2009년08월28일
 심사청구일자 없음</p> <p>(85) 번역문제출일자 2011년04월01일</p> <p>(86) 국제출원번호 PCT/EP2009/006250</p> <p>(87) 국제공개번호 WO 2010/025876
 국제공개일자 2010년03월11일</p> <p>(30) 우선권주장
 08015572.4 2008년09월04일
 유럽특허청(EPO)(EP)</p> | <p>(71) 출원인
 바이엘 머티리얼사이언스 아게
 독일, 51368 레버쿠젠, 카이저-빌헬름 알레</p> <p>(72) 발명자
 마이어-리히터, 안드레아
 독일 40699 에르크라트 호호쇼이어베크 11
 베흐르만, 볼프
 독일 47800 크레펠트 샤이블러스트라쎄 93
 (뒷면에 계속)</p> <p>(74) 대리인
 양영준, 위혜숙</p> |
|---|---|

전체 청구항 수 : 총 13 항

(54) 발광 소자 및 그의 제조 방법

(57) 요약

본 발명은, 특정 농도 범위 내의 특정 무기 변환 안료를 함유하는, 성형 플라스틱 물품, 예를 들면 조성물로써 제조된 성형 플라스틱 물품/단편의 제조에 적합한 플라스틱 조성물, 및 이러한 성형 플라스틱 물품을 함유하는 발광 소자에 관한 것이다.

(72) 발명자

에르켈렌츠, 미하엘

독일 47239 뒤스부르크 링스트라제 23

보우만즈, 안케

독일 47551 베드부르크-하우 하우스 하이데 10

특허청구의 범위

청구항 1

>0 ppm 농도의 Si, Sr, Ba, Ca 및 Eu, 및 ≤50 ppm (0 ppm 포함) 농도의 Al, Co, Fe, Mg, Mo, Na, Ni, Pd, P, Rh, Sb, Ti 및 Zr을 함유하는, 7 내지 20 중량%의 무기 변환 안료를 함유함을 특징으로 하는 플라스틱 물질의 조성물.

청구항 2

제1항에 있어서, >0 ppm 농도의 Si, Sr, Ba, Ca 및 Eu, 및 ≤50 ppm (0 ppm 포함) 농도의 Al, Co, Fe, Mg, Mo, Na, Ni, Pd, P, Rh, Sb, Ti 및 Zr을 함유하는, 10 내지 15 중량%의 무기 변환 안료를 함유함을 특징으로 하는 조성물.

청구항 3

제1항 또는 제2항에 있어서, 플라스틱 물질이 폴리카르보네이트, 폴리에틸렌 테레프탈레이트, 폴리부틸렌 테레프탈레이트, 폴리메틸 메타크릴레이트 및/또는 폴리아미드임을 특징으로 하는 조성물.

청구항 4

제3항에 있어서, 폴리카르보네이트가 비스페놀 A를 기재로 하는 호모폴리카르보네이트 및 단량체 비스페놀 A 및 1,1-비스-(4-히드록시페닐)-3,3,5-트리메틸-시클로hex산을 기재로 하는 코폴리카르보네이트임을 특징으로 하는 조성물.

청구항 5

제1항 또는 제2항에 있어서, 플라스틱 물질이 냉간연신성 플라스틱 물질임을 특징으로 하는 조성물.

청구항 6

제1항 내지 제5항 중 어느 한 항에 있어서, 산란 첨가제 및/또는 착색제를 추가로 함유함을 특징으로 하는 조성물.

청구항 7

제1항 내지 제6항 중 어느 한 항에 따르는 플라스틱 조성물을 함유하는 투명 또는 반투명 플라스틱 성형체 또는 플라스틱 성형물.

청구항 8

제1항 내지 제6항 중 어느 한 항에 따르는 플라스틱 조성물을 함유하는 투명 또는 반투명 플라스틱 시트 또는 필름.

청구항 9

제7항에 따르는 투명 또는 반투명 플라스틱 성형체/플라스틱 성형물의, 발광 소자에서의 용도.

청구항 10

제8항에 따르는 투명 또는 반투명 플라스틱 시트 또는 필름의, 발광 소자에서의 용도.

청구항 11

제1항에 따르는 조성물을 사용하여 제조된 플라스틱 성형체, 시트 또는 필름을 함유하는 발광 소자.

청구항 12

제11항에 있어서, 플라스틱 성형물, 특히 플라스틱 시트 또는 필름이, LED 또는 LED DIE가 장착된 하나 이상의 공동을 그의 표면의 적어도 일부에 갖는 플라스틱 성형체의, 공동을 갖는 성형체의 면 상을 적어도 부분적으로 덮음을 특징으로 하는 발광 소자.

청구항 13

실내 및 실외 분야, 특히 운송 분야에서, 예를 들면 자동차, 항공기, 선박에서 사용하기 위한 램프, 조명 장치, 발광체로서, 생활 공간 및 작업 공간을 위한 실내 조명으로서, LCD 스크린의 백라이트 유니트에서, 전시 스탠드 조립 및 점포 설계 분야에서, 가구 산업에서, 예를 들면 부엌, 침실 등에서의 액센트 조명에서의 제11항 또는 제12항에 따르는 소자의 용도.

명세서

기술분야

- [0001] 본 발명은, 플라스틱 성형물, 및 예를 들면 플라스틱 성형체 내의 공동 내에 위치한 청색 LED(발광 다이오드) 또는 UV-LED와 조합으로 백색광을 생성할 수 있는 플라스틱 성형체를 함유하는 발광 소자에 관한 것이다.
- [0002] 본 발명은 또한 예를 들면 플라스틱 성형체의 제조에 적합한, 특정 농도 범위의 특정 무기 변환 안료를 함유하는 플라스틱 물질의 조성물에 관한 것이다.

배경기술

- [0003] 인간 환경의 조명(주변 광)에서의 사용을 위해, 조명 산업에서는 특히, 자연광과 가장 유사하기 때문에, 우수한 색 재현성을 갖는 백색광을 생성하는 광원에 대해 관심이 기울여지고 있다.
- [0004] 무기 LED(발광 다이오드) 및 LED DIE(LED 칩)는, 긴 수명, 작은 크기, 진동에 대해 민감하지 않음, 협대역 분광 방출을 특징으로 한다. 그의 낮은 에너지 소모율 덕분에, 특히 LED 뿐만 아니라 전계발광 램프는, 최근에 광원으로 점점 더 많은 관심을 받게 되었다.
- [0005] LED 또는 LED DIE 그 자체에 의해서는 생성될 수 없는 방출색은 외부 색 변환에 의해 생성된다. 소위 변환 물질 또는 변환 안료가 LED 또는 LED DIE 주위에 배열된다. 흡수된 복사선은 변환 안료를 여기시켜 광발광되게 한다. 유기 또는 무기 안료가 원칙적으로 변환 안료로서 사용될 수 있다.
- [0006] 그러나, LED 또는 LED DIE의 형태의 이러한 무기 광원은, 단색광, 즉 단 하나의 분광색을 갖는 광을 방출한다는 단점을 갖는다. LED의 경우에, 이러한 색은 특히 일반적인 분광색인 청색, 녹색, 황색, 주황색, 적색, 자색 또는 단색 UV광(UV-LED)이며, 전계발광 램프의 경우에는, 이것은 특히 분광색인 청색, 녹색 또는 주황색이다. 추가의 보조 수단 없이 백색광을 방출하는 LED는 기술적으로 불가능하다.
- [0007] 이러한 단점을 고치기 위해서, LED를 기재로 하는 백색광원을 다양한 방법을 사용하여 제조한다.
- [0008] 기본적으로는, 단색광-발광 요소와 함께, 유기 및 무기 변환 안료를 사용하여, 백색광을 생성한다. 이를 위해서, 발광 요소를 변환 안료와 적합하게 조합한다.
- [0009] 이로써, 방출된 백색광의 색(광 온도)은 변환 안료, 그의 농도, 및 발광 요소의 파장에 따라 달라진다. 방출된 광의 균질성은 발광 요소 또는 발광 소자 상에서의 변환 안료의 분포의 균일성에 의해 결정된다.
- [0010] 따라서, 예를 들면 변환 안료는 LED의 약간의 청색광을 흡수해서 황색광을 방출할 수 있다. 색 층에 의해 생성된 잔여 청색광과 황색광의 가산적 색 혼합에 의해 백색광이 생성된다.
- [0011] 원칙적으로, 색도 좌표를, CIE 1931 색도 다이어그램에서의, 청색 LED의 색도 좌표와 변환 안료의 색도 좌표를 잇는 선 상에 설정할 수 있다. 사용된 청색 LED는 240 내지 510 nm, 300 내지 500 nm, 특히 400 내지 490 nm, 가장 특히는 450 내지 480 nm, 특히 460 내지 470 nm에서 방출 피크를 갖는다. 가장 특히 바람직한 경우에는, 방출 피크는 460 내지 470 nm, 바람직하게는 464 nm에서 존재한다.
- [0012] 백색광을 생성하는 방법은, 점성 투명 실리콘을 황색 또는 녹색 인광체와 혼합하고, 이 혼합물을 드롭("글롭 톱(glob top)")의 형태로 소위 분배 방법(VDI 문헌 번호 2006, 2007)을 사용하여 청색 LED DIE에 도포하는 "글롭 톱 캐스팅 방법"이다.
- [0013] 또 다른 방법을 상기에서 언급된 방법과 유사한 방식으로 수행하지만, 여러가지의 인광체 또는 상이한 적합한 인광체들의 혼합물을 사용한다.
- [0014] 맨 처음에 언급된 방법의 추가의 변형 방법으로서, "RGB 인광체"(삼색 인광체)를 갖는 UV LED를 사용할 수도 있다. 아직까지는, 이러한 변형 방법은 흔히 사용되지는 않는데, 왜냐하면 UV LED/LED DIE는 여전히 값이 너무

비싸고 광생성율이 매우 높지는 않기 때문이다.

- [0015] 추가의 변형 방법에서, LED의 캐스팅 전에, 분무 코팅을 사용하여 인광체 혼합물을 LED DIE에 도포한다. 이러한 방법은 매우 복잡하고, 청정실 조건에서 값비싼 장치를 사용해서만 수행될 수 있다.
- [0016] 공지된 방법에서, 변환 안료는, 분산액 내에, 따라서 이로부터 제조된 층 내에 불균일하고 불균질하게 분포되어 있고, 그 결과 변환된 광은 불균질하게 방출된다. 인간의 눈은 특히 백색광의 색차에 대해 민감하기 때문에, 특정한 분광색(광 온도)을 갖는 LED를 수득하기 위해서는 발광 요소들의 정렬(비닝(binning))이 중요하다. 이러한 후속적인 정렬 공정은 자원 및 비용의 측면에서 매우 집약적인데, 왜냐하면 각각의 개별적인 발광 요소를 측정하고, 방출된 분광색에 따라 정렬/분류해야 하기 때문이다(www.ledmagazine.com/news/5/2/11).
- [0017] 또 다른 공지된 방법에서, 상이한 색의 발광 다이오드들, 예를 들면 청색 및 황색(두 개의 LED) 또는 적색, 녹색 및 청색(RGB)의 발광 다이오드들을, 조합된 광이 백색으로 보이도록, 조합한다. 그러나 보다 우수한 광의 혼합을 위해서는, 추가의 광학적 성분들이 필요하다.
- [0018] 실질적인 이유 때문에, 상이한 색의 LED 칩들을 종종 하나의 성분으로 일체화한다. 이러한 방법은 널리 사용되지만, 추가의 전자 부품들 때문에 매우 복잡하고 값이 비싸다.

발명의 내용

해결하려는 과제

- [0019] 따라서, 상기에서 언급된 종래 기술의 단점을 극복하고, 발광 소자 및 특히 제조에서의 변환된 광의 불균질한 방출을 피하는 플라스틱 조성물을 제공하는 것이 목적이다. 마찬가지로, 어떤 형태로도 제조되기에 단순하고 비용이 적게 들고, 에너지를 거의 소모하지 않고, 외부 영향에 대해 민감하지 않은 발광 소자를 제공할 것이다.
- [0020] 광의 균질성 뿐만 아니라, 충분히 높은 산란광 세기의 생성도 관심이 가는 일이다. 본 발명의 범주 내에서, 산란광은, 광원/LED의 평면으로부터 나오는 비산란광의 수선에 대해 20° 또는 45°의 각도 내에서 검출될 수 있는 광이라고 이해되는데, 여기서 20°의 각도에서는 0.7 초과, 바람직하게는 0.85 초과, 및 45°의 각도에서는 0.4 초과, 바람직하게는 0.55 초과인 상대 산란광 세기가 달성될 것이다.

과제의 해결 수단

- [0021] 본 발명에 따르는 플라스틱 조성물, 및 이러한 플라스틱 조성물로부터 제조된, 투명 또는 반투명 플라스틱 성형물, 특히 투명 또는 반투명 커버 시트 또는 필름, 및 플라스틱 성형물을 사용하는 본 발명에 따르는 소자를 사용하여, 해당 분야의 숙련자가 본 발명의 하기 설명을 읽어보면 명백하게 알게 될 상기 및 기타 목적을 달성할 수 있다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0022] 따라서, 본 발명은 특정 농도 범위의 특정 변환 안료(K)를 함유하는 플라스틱 조성물(Z), 및 특히 발광 소자에서 사용될 수 있는, 플라스틱 조성물(Z)을 함유하는 투명 또는 반투명 플라스틱 성형물, 예를 들면 투명 또는 반투명 플라스틱 시트 또는 필름인 기재 A를 제공한다.
- [0023] 본 발명은 또한 적어도 표면의 일부 상에 LED 또는 LED DIE가 장착된 하나 이상의 공동을 갖는 플라스틱 성형체(이후부터는 기재 B라고 지칭됨), 및 공동(들)을 갖는 성형체 면을 적어도 부분적으로 덮는, 추가의 접착-촉진제 또는 접착제층에 의해 기재 B에 임의로 결합될 수 있는, 본 발명에 따르는 기재 A로 이루어진, 특히 백색광을 방출하는 소자를 제공한다.
- [0024] 기재 A 및 임의로 공동(들)을 갖는 기재 B는 임의로 광-산란 입자를 추가로 함유할 수 있고/있거나 광을 산란하도록 구성될 수 있다.
- [0025] 본 발명은
- [0026] (a) 하나 이상의 공동(들)을 갖는 기재 B를 제조하고,
- [0027] (b) 전기적으로 접속된 하나 이상의 LED, 바람직하게는 LED DIE를 공동(들)에 장착하고,
- [0028] (c) 변환 안료 K를 함유하는 투명 또는 반투명 플라스틱 성형물, 필름 또는 시트로 이루어진 기재 A를, 기재 A

가, LED 또는 LED DIE가 장착된 공동(공동들)을 적어도 부분적으로 덮도록, 덧대는

- [0029] 본 발명에 따르는 소자의 제조 방법을 추가로 제공한다.
- [0030] 본 발명의 범주에서 "덧다"란, 본원에서 사용된 광이 변환 안료를 함유하는 기재 A 또는 성형체를 통해 복사되어, 부분적으로 색 변환됨을 의미한다. 기재 A는 전계발광 요소 또는 하나 이상의 LED, 바람직하게는 LED DIE가 장착된 하나 이상의 공동을 갖는 기재 B의 앞 또는 발광 요소의 바로 앞 또는 앞에서 특정 거리만큼 떨어진 곳에 배치될 수 있고, 이것은 투명 접착제/접착-촉진제에 의해 발광 요소에 직접 결합될 수 있거나, 발광 요소가 예를 들면 접착 결합 또는 기계적 조임에 의해 위치된 성형체 또는 하우징에 부착될 수 있거나, 발광 요소를 갖는 보드 또는 가요성 전도체에 부착될 수 있다.
- [0031] 발광 요소(예를 들면 LED 또는 LED DIE)와 기재 A 사이에는, 하나 이상의 매우 투명한 접착제층, 필름층 또는 공기가 존재할 수 있다.
- [0032] 기재 A는 기재 B 주위에 부분적으로 또는 완전히 배열될 수도 있다. 기재 A의 제조와 기재 B의 제조를 바람직하게는 컴파운딩 및 사출성형 또는 압출 단계에서 수행한다. 제조 공정은 재현가능한 표준화된 생성물을 허용한다.
- [0033] LED 광의 산란 및 광 변환을 균질한 방식으로 동시에 허용하는, 특정 농도(conc. B)의 특정 변환 안료 K를 함유하는, 본 발명에 따르는 플라스틱 물질의 조성물(이후부터는 "Z"라고 지칭됨)이 본 발명에 있어서 근본이 된다.
- [0034] 본 발명에 따르는 조성물 Z는, 예를 들면 LED 또는 LED DIE를 함유하는 성형체와 조합으로 상기 소자에서 사용될 수 있는 기재 A의 제조에 적합하다. 이러한 소자는 본 발명에 따르는 조성물이 유리하게 사용될 수 있는 하나의 예일 뿐이며; 해당 분야의 숙련자라면 공지된 LED-함유 소자로부터 추가의 가능성을 명백하게 알 것이다. 변환 안료 K를 함유하는 본 발명에 따르는 기재 A, 예를 들면 필름 또는 시트가 LED(광원)와 관찰자 사이에 배치된다는 것이 중요하다. 변환 안료 K는 추가로, LED 또는 LED DIE 자체를 함유하는 기재 B 내에 존재할 수도 있다.
- [0035] 본 발명에 따르는 소자는 하나 이상의 공동을 갖는 플라스틱 성형체(기재 B)를 포함한다. 공동에는, 서로 전기적으로 접속된 LED, 바람직하게는 LED DIE가 장착되어 있다. LED 또는 DIE를 갖는 플라스틱 성형체를, 임의로, 접착제층의 형태로서 접착-촉진제로서 임의로 도포되는 실리콘 또는 폴리우레탄-기계의 캐스팅 화합물과 함께 캐스팅할 수 있다. 이어서 균일하게 분포된 변환 안료 K를 함유하는, 산란 성질을 갖는 기재 A를 덧댄다.
- [0036] 유기 안료와 무기 안료 둘 다가 변환 안료 K로서 적합하다. 본 발명의 범주 내에서, 변환 안료는 둘 이상의 상이한 변환 안료들의 혼합물인 것으로도 이해된다.
- [0037] 놀랍게도, 조성물 Z는 변환 안료 K의 함량이 7 내지 20 중량%, 바람직하게는 10 내지 15 중량%의 농도 범위 내일 때 광-변환 및 광-산란 기재의 제조에 가장 적합하다는 것이 밝혀졌다. 이러한 한계에 못 미치거나 이를 넘어서는 경우에는, 조성물 Z의 성질이 본 발명의 근본적인 목적과 관련해서 저하된다.
- [0038] 유기 안료로서는, 예를 들면 소위 주광 안료, 예를 들면 스와다(Swada)의 T 시리즈 또는 FTX 시리즈 또는 신로이히(Sinloihi)의 주광 발광 안료, 예를 들면 FZ-2000 시리즈, FZ-5000 시리즈, FZ-6000 시리즈, FZ-3040 시리즈, FA-40 시리즈, FA-200 시리즈, FA-000 시리즈, FM-100, FX-300 또는 SB-10이 사용될 수 있다.
- [0039] 무기 안료를 위한 물질로서는, 석류석 또는 옥시니트라이드, 예를 들면 Ce로 도핑된 $(Y, Gd, Lu, Tb)_3(Al, Ga)_5O_{12}$, Eu로 도핑된 $(Ca, Sr, Ba)_2SiO_4$, Ce로 도핑된 $YSiO_2N$, Ce로 도핑된 $Y_2Si_3O_3N_4$, Ce로 도핑된 $Gd_2Si_3O_3N_4$, Ce로 도핑된 $(Y, Gd, Tb, Lu)_3Al_5-xSixO_{12-xNx}$, Eu로 도핑된 $BaMgAl_{10}O_{17}$, Eu로 도핑된 $SrAl_2O_4$, Eu로 도핑된 $Sr_4Al_{14}O_{25}$, Eu로 도핑된 $(Ca, Sr, Ba)Si_2N_2O_2$, Eu로 도핑된 $SrSiAl_2O_3N_2$, Eu로 도핑된 $(Ca, Sr, Ba)_2Si_2N_8$, Eu로 도핑된 $CaAlSiN_3$; 각각의 경우에 개별적으로 또는 Ce, Eu, Mn, Cr 및/또는 Bi와 같은 하나 이상의 활성화제 이온과의 혼합물로서의, 붕소, 알루미늄, 갈륨, 인듐 및 탈륨의 몰리브덴산염, 텅스텐산염, 마나듐산염, 질화물 및/또는 산화물이 사용될 수 있다.
- [0040] 본 발명에 따르는 변환 안료 K는 특히 바람직하게는 >0 ppm 농도의 Si, Sr, Ba, Ca 및 Eu 및 ≤50 ppm (0 ppm 포함) 농도의 Al, Co, Fe, Mg, Mo, Na, Ni, Pd, P, Rh, Sb, Ti 및 Zr을 함유하는 무기 안료이다.
- [0041] 플라스틱 조성물 Z와 기재 A 둘 다는, 바람직하게는 투명 중합체성 물질을, 바람직하게는 폴리올레핀, 예를 들면 폴리에틸렌(PE) 및 폴리프로필렌(PP), 폴리에스테르, 예를 들면 폴리알킬렌 테레프탈레이트, 예를 들면 폴리

에틸렌 테레프탈레이트(PET) 및 폴리부틸렌 테레프탈레이트(PBT), 시아노아크릴레이트(CA), 셀룰로스 트리아세테이트(CTA), 에틸비닐 아세테이트(EVA), 폴리비닐 아세테이트(PVA), 폴리비닐부티랄(PVB), 폴리비닐 클로라이드(PVC), 폴리카르보네이트(PC), 폴리에틸렌 나프탈레이트(PEN), 폴리우레탄(PU), 열가소성 폴리우레탄(TPU), 폴리아미드(PA), 폴리메틸 메타크릴레이트(PMMA), 폴리스티렌(PS), 셀룰로스 니트레이트 및 상기에서 언급된 중합체들의 둘 이상의 단량체들의 공중합체 뿐만 아니라, 이러한 둘 이상의 중합체들의 혼합물로 이루어진 플라스틱 물질로 이루어진 군에서 선택된 것을 기본 물질로서 함유한다.

- [0042] 본 발명의 범주 내에서 적합한 폴리카르보네이트는 모든 공지된 폴리카르보네이트이다. 이것은 호모폴리카르보네이트, 코폴리카르보네이트 및 열가소성 폴리에스테르 카르보네이트이다.
- [0043] 적합한 폴리카르보네이트는 바람직하게는, 광 산란에 의해 보장된 디클로로메탄 또는 동량(중량 기준)의 페놀/o-디클로로벤젠 혼합물에서 상대 용액 점도의 측정에 의해 결정된, 10,000 내지 50,000, 바람직하게는 14,000 내지 40,000, 특히 14,000 내지 35,000의 평균분자량 M_w 를 갖는다.
- [0044] 폴리카르보네이트는 바람직하게는, 문헌에 다양하게 기술된 계면 공정 또는 용융 에스테르교환 공정에 의해 제조된다. 계면 공정과 관련해서는, 예를 들면 문헌[H.Schnell, "Chemistry and Physics of Polycarbonates", Polymer Reviews, Vol.9, Interscience Publishers, New York 1964 p.33 ff], 문헌[Polymer Reviews, Vol.10, "Condensation Polymers by Interfacial and Solution Methods", Paul W. Morgan, Interscience Publishers, New York 1965, Chap. VIII, p.325], 문헌[Dres.U.Grigo, K.Kircher 및 P.R.-Mueller "Polycarbonate", Becker/Braun, Kunststoff-Handbuch, Volume 3/1, Polycarbonate, Polyacetale, Polyester, Celluloseester, Carl Hanser Verlag Munich, Vienna 1992, p.118 - 145] 및 EP-A 0 517 044를 참고할 수 있다.
- [0045] 용융 에스테르교환 공정은 예를 들면 문헌[the Encyclopedia of Polymer Science, Vol.10 (1969), Chemistry and Physics of Polycarbonates, Polymer Reviews, H.Schnell, Vol.9, John Wiley and Sons, Inc. (1964)] 및 특허 명세서 DE-B 10 31 512 및 US-B 6 228 973에 기술되어 있다.
- [0046] 폴리카르보네이트는 바람직하게는, 비스페놀 화합물과 탄산 화합물, 특히 포스젠, 또는 용융 에스테르교환 공정에서 디페닐 카르보네이트 또는 디메틸 카르보네이트의 반응에 의해 제조된다. 비스페놀 A를 기재로 하는 호모폴리카르보네이트 및 단량체 비스페놀 A 및 1,1-비스-(4-히드록시페닐)-3,3,5-트리메틸시클로hex산을 기재로 하는 코폴리카르보네이트가 특히 바람직하다. 폴리카르보네이트의 합성에 사용될 수 있는 상기 및 추가의 비스페놀 및 디올 화합물은 특허 WO-A 2008037364(p.7, 1.21 내지 p.10, 1.5), EP-A 1 582 549([0018] 내지 [0034]), WO-A 2002026862(p.2, 1.20 내지 p.5, 1.14), WO-A 2005113639(P.2, 1.1 내지 p.7, 1.20)에 개시되어 있다.
- [0047] 폴리카르보네이트는 선형 또는 분지형일 수 있다. 분지형 폴리카르보네이트와 비분지형 폴리카르보네이트의 혼합물이 사용될 수도 있다.
- [0048] 폴리카르보네이트를 위한 적합한 분지화제는 문헌에 공지되어 있고, 예를 들면 특허 명세서 US-B 4 185 009 및 DE-A 25 00 092(발명에 따르는 3,3-비스-4-히드록시아릴-옥신들, 각각의 경우에 문헌 전문을 참고), DE-A 42 40 313(p.3, 1.33 내지 p.3, 1.55를 참고), DE-A 19 943 642(p.5, 1.25 내지 p.5, 1.34를 참고) 및 US-B 5 367 044 뿐만 아니라 여기에서 인용된 문헌에 기술되어 있다. 또한, 사용되는 폴리카르보네이트는 본질적으로 분지화된 것일 수도 있는데, 이러한 경우에는 폴리카르보네이트 제조의 범주 내에서는 분지화제를 첨가하지 않는다. 본질적 분지화의 예는 EP-A 1 506 249에서 용융 폴리카르보네이트에 대해 개시된 바와 같은 소위 프라이스(Fries) 구조이다.
- [0049] 쇠 종결제가 폴리카르보네이트 제조에서 추가로 사용될 수 있다. 페놀, 예를 들면 페놀, 알킬페놀, 예를 들면 크레솔 및 4-tert-부틸페놀, 클로로페놀, 브로모페놀, 큐틸페놀 또는 이것들의 혼합물이 쇠 종결제로서 바람직하게 사용된다.
- [0050] 플라스틱 물질은 첨가제, 예를 들면 UV 흡수제, 기타 통상적인 공정 보조제, 특히 이형제 및 유동개질제, 안정화제, 특히 열안정화제, 대전방지제, 형광증백제 또는 착색제를 추가로 함유할 수 있다. 본 발명의 범주 내의 착색제는 유기 및 무기 안료 뿐만 아니라 플라스틱 물질에 가용성인 염료이다.
- [0051] 특정 실시양태에서, 조성물 Z는 냉간연신성 플라스틱 조성물을 기재로 한다. 이는 특히 3차원적으로 형성된 필름 요소가 플라스틱 물질의 연화점 미만의 공정 온도에서의 등방 고압 형성에 의해 제조되는 경우에 필요하다. 적합한 냉간연신성 플라스틱 물질은 예를 들면 EP-A 0 371 425에 언급되어 있다. 열가소성 및 듀로플라스틱(duroplastic)의 적어도 부분적으로 투명한 냉간연신성 플라스틱 물질이 사용될 수 있다. 실온 및 사용 온도에

서 탄성을 조금 나타내거나 전혀 나타내지 않는 냉간연신성 플라스틱 물질을 사용하는 것이 바람직하다. 특히 바람직한 플라스틱 물질은 폴리카르보네이트, 바람직하게는 비스페놀 A를 기재로 하는 폴리카르보네이트, 폴리에스테르, 특히 방향족 폴리에스테르, 예를 들면 폴리알킬렌 테레프탈레이트, 폴리아미드, 예를 들면 PA 6 또는 PA 6,6 타입, 고강도 "아라미드 필름", 폴리아미드, 예를 들면 폴리-(디페닐 옥사이드 피로멜리트이미드)를 기재로 하는 필름, 폴리아릴레이트, 유기 열가소성 셀룰로스 에스테르, 특히 그의 아세테이트, 프로피오네이트 및 아세토부티레이트로 이루어진 군에서 선택된 하나 이상의 물질 중에서 선택된다. 비스페놀 A를 기재로 하는 폴리카르보네이트가 플라스틱 물질로서 가장 특히 바람직하게 사용된다. 바이엘 머터리얼사이언스 아게(Bayer MaterialScience AG)의, 베이폴(Bayfol)[®] CR(폴리카르보네이트/폴리부틸렌 테레프탈레이트 필름), 마크로폴(Makrofol)[®] TP 또는 마크로폴[®] DE라는 명칭을 갖는 필름이 특히 바람직하다. 이어서 이러한 형성된 필름을 예를 들면 LED/LED-DIE를 갖는 성형체에 접착 결합시키거나, 찢러 넣거나, 돌려 넣을 수 있다.

- [0052] 따라서, 특정 실시양태에서, 기재 A는 하나 이상의 냉간연신성 플라스틱 조성물로 이루어진 플라스틱 성형물, 특히 필름 또는 시트이다. 변환 안료 K가 조성물 Z 내에 본 발명에 따르는 농도로 존재하기 때문에, 기재 A는 이미 우수한 산란 성질을 갖는다. 또한 임의로 추가의 산란 첨가제를 첨가함으로써 산란 성질을 추가로 변경시킬 수 있다.
- [0053] 성형체 또는 성형물 및/또는 필름/시트 내로 혼입되는, 광-산란 입자, 예를 들면 유리구, 유리섬유, 금속 산화물, SiO₂ 또는 광물질 또는 유기 산란 첨가제, 예를 들면 코어-셸 아크릴레이트 또는 비혼화성 중합체의 블렌드의 형태로 조성물 Z를 내부 구조화시킴으로써, 산란 성질을 달성할 수 있다. 입자는 입사광을 위한 산란 중심으로서 작용하며, 광이 플라스틱 성형물, 특히 필름/시트의 표면과 가파른 각도에서 만나고 전반사되지는 않지만 탈커플링되도록 광을 편향시킨다. 입사광이 산란되는 계면을 형성하는 기체 봉입을 사용해서도 동일한 효과를 달성할 수 있다. 입자는 또한 형광 물질을 함유할 수도 있다.
- [0054] 조성물 Z는 예를 들면 WO 99/55772, p. 15 - 25, EP-A 1 308 804 및 문헌["Plastics Additives Handbook", ed. Hans Zweifel, 5th Edition 2000, Hanser Publishers, Munich]의 상응하는 챕터를 통해 해당 분야의 숙련자들에게 공지된 추가의 통상적인 플라스틱 첨가제를 함유할 수 있다.
- [0055] 기재 B는 마찬가지로 바람직하게는, 임의로 상기 첨가제를 추가로 함유하는, 플라스틱 물질, 특히 하나 이상의 상기 중합체로 이루어진다.
- [0056] 기재 A와 기재 B 둘 다에서 추가의 산란 성질을 달성하기 위한 또 다른 가능성은, 기재의 표면 내로 혼입된 광-산란 입자를 통해 기재의 표면을 구조화시키는 것이다. 입자는 표면 상의 산란 중심으로서 작용하고 입사광을 탈커플링시킨다.
- [0057] 기재, 특히 기재 A의 표면을, 홈(groove), 골(flute), 관(channel) 및/또는 구멍을 사용하여 구조화시킬 수도 있다. 이러한 유형의 표면 구조화에서, 산란 중심은 표면 상에 형성된다. 표면에 하나 이상의 렌즈 형상의 요소를 제공하는 렌즈상 구조화도 가능하다.
- [0058] 무기 또는 유기 발광 요소(LED 또는 LED DIE)는 기재 A에 의해 완전히 또는 부분적으로 덮인다. 이로써 기재 A는 두께 d를 갖는다. 하기 관계식이 성립될 때, 기재 A에 의한 광의 효율적인 변환 및 균질한 분포가 달성된다는 것이 이제 밝혀졌다:
- [0059] 변환 안료의 농도(중량%) * 두께 d(mm) = 12 - 30, 바람직하게는 15 내지 25(중량% * mm).
- [0060] 여기서 중량%는 항상 총 조성에 관한 것이며, 이러한 경우에는 기재 A의 총 조성에 관한 것이다.
- [0061] 상기에서 이미 기술된 바와 같이, 본 발명의 범주 내에서 "덮다" 또는 "덮인"이란 본원에서 사용된 광이 변환 안료를 함유하는 기재 A 또는 성형체를 통해 복사되어, 부분적으로 색 변환됨을 의미한다. 기재 A는 전계발광 요소 또는 하나 이상의 LED, 바람직하게는 LED DIE가 장착된 하나 이상의 공동을 갖는 기재 B의 앞 또는 발광 요소의 바로 앞 또는 앞에서 특정 거리만큼 떨어진 곳에 배치될 수 있고, 이것은 투명 접착제/접착-촉진제에 의해 발광 요소에 직접 결합될 수 있거나, 발광 요소를 갖는 성형체 또는 하우징에, 예를 들면 접착 결합 또는 기계적 조임에 의해 부착될 수 있거나, 발광 요소를 갖는 판 또는 가요성 전도체에 부착될 수 있다.
- [0062] 발광 요소(예를 들면 LED 또는 LED DIE)와 기재 A 사이에는, 하나 이상의 매우 투명한 접착제층, 필름층 또는 공기가 존재할 수 있다.
- [0063] 기재 A는 기재 B 주위에 부분적으로 또는 완전히 배열될 수도 있다.

- [0064] 발광 요소는 하나 이상의 LED 또는 LED DIE 또는 전계발광 요소일 수 있다.
- [0065] 발광 소자의 최종 색 온도는 변환 안료 또는 변환 안료들의 혼합물의 본질, 변환 안료의 충전도, 기재 A 또는 성형체의 기하학적 형상, 및 발광 요소의 원래의 방출 파장에 의해 결정된다. 이러한 색 온도는 동일한 공정 조건에서 결정 및 재현가능하다.
- [0066] 변환 안료를 함유하는 기재 A 및/또는 성형체(기재 B)를 제조하기 위해서, 우선 변환 안료 K를 투명 또는 반투명 플라스틱 물질 내로 혼입시킨다. 혼입을 컴파운딩과 같은 공지된 방식을 통해 수행하거나, 변환 안료를 중합체 물질과 함께 용해시킨 후에 농축시킴으로써 수행한다.
- [0067] 변환 안료 K를 함유하는 기재 A 및 그의 플라스틱 성형물 및 기재 B 및 그의 플라스틱 성형체를, 공지된 방법, 예를 들면 사출성형, 압출, 공압출, 블로우 성형 또는 딥 드로잉을 사용하여, 변환 안료를 함유하는 플라스틱 물질로부터 제조할 수 있다. 필름을 캐스팅 또는 기타 공지된 코팅 방법을 사용하여 용매로부터 제조할 수도 있다. 변환 안료를 함유하는 필름과 캐리어의 라미네이트를 사용할 수도 있다.
- [0068] 변환 안료와 플라스틱 물질의 용액을 캐스팅, 인쇄, 분무와 같은 방법을 사용하여 적합한 기재에 도포할 수도 있다.
- [0069] 입자, 예를 들면 유리구 또는 유리섬유, 금속 산화물, SiO₂ 또는 광물질, 또는 유기 산란 첨가제의 혼입을 통한 내부 구조화의 경우, 첨가제를 플라스틱 물질에 첨가하는 통상적인 방법, 예를 들면 컴파운딩을 사용한다. 기체 봉입을 통한 내부 구조화의 경우, 예를 들면 발포제 제조에서 사용되는 통상적인 방법을 사용할 수 있다.
- [0070] 기재 A 및/또는 기재 B의 표면의 구조화의 경우, 첫번째 단계에서는 입자를 용매에 현탁시키고, 기계적인 수단 또는 장치, 예를 들면 스탬프 또는 인쇄기를 사용하여 기재(들)의 표면에 도포한다. 이로써 입자 및 용매가 표면에 닿은 영역은 부풀어오른다. 이어서 용매가 증발되도록 둔다. 이를 위해서는, 용매가 완전히 증발될 때까지, 기재 B 또는 기재 A를 템퍼링할 수 있다.
- [0071] 기재 A 및/또는 기재 B의 표면의 구조화를, 연삭, 스크래칭, 박리, 절단, 보어링, 그레이닝, 스탬핑, 레이저 삭마, 도트 매트릭스 인쇄, 또는 표면의 국소적 변형 또는 변화를 초래하는 기타 기계적 공정을 사용하여 수행할 수도 있다. 표면을 용매로써 식각함으로써 화학적으로 구조화시킬 수도 있다.
- [0072] 필름 또는 일체화된 렌즈를 갖는 필름으로서의 기재 A는 바람직하게는, 10 내지 3000 μm, 바람직하게는 70 내지 1500 μm, 특히 바람직하게는 100 내지 1000 μm, 가장 특히 바람직하게는 125 내지 750 μm의 두께를 갖는다.
- [0073] 압출 시트 또는 일체화된 렌즈를 갖는 압출 시트로서의 기재 A는 바람직하게는, 1000 내지 30,000 μm, 바람직하게는 1200 내지 15000 μm, 특히 바람직하게는 1500 내지 10000 μm의 두께를 갖는다.
- [0074] 본 발명에 따르는 플라스틱 조성물 Z는, 실내 및 실외 분야, 특히 운송 분야에서, 예를 들면 자동차, 항공기, 선박에서의 램프, 조명 장치, LED가 장착된 발광체에서, 생활 공간 및 작업 공간을 위한 실내 조명으로서, LCD 스크린의 백라이트 유니트에서, 전시 스탠드 조립 및 점포 설계 분야에서, 가구 산업에서, 예를 들면 부엌, 침실 등에서의 액센트 조명에서 사용되는 성형체, 시트 또는 필름을 위해 사용될 수 있다.
- [0075] 특정 실시양태에서, Z로부터 기재 A가 제조되는데, 이것은 특히 백색광을 방출하는, 본 발명에 따르는 기재 A가 공동(7)을 갖는 기재 B의 면을 적어도 부분적으로 덮고 임의로 접착제층에 의해 기재 B 또는 그 안에 위치하는 LED 또는 LED DIE에 결합될 수 있도록, LED 또는 LED DIE가 장착된 하나 이상의 공동(7)을 적어도 표면의 일부 상에 갖는 기재 B를 함유하는 소자에서 사용된다.
- [0076] 도 1 및 도 3은 예를 들면 백색 LED 광을 생성하는 장치를 보여준다. 기재 B(1)는 예를 들면 청색 LED 또는 LED-DIE(5)를 함유하는 공동(7)을 갖는다. 투명 캐스팅 화합물 또는 접착제층(2)은, (1)과 변환 안료(6)를 함유하는 기재 A(3)의 사이에서 접착-촉진제로서의 역할을 하며, LED/LED DIE(5)를 보호한다. 기재 A(3)는 필름의 형태이거나(도 1), 초점 조절(focussing) 성질을 갖는 필름, 예를 들면 마이크로렌즈(8)의 형태이다(도 3).
- [0077] 또 다르게는, 층(2)은 공기로 이루어지며, 기재 A는 고정 수단에 의해 기재 B 및 LED 앞에서 특정 거리만큼 떨어진 곳에 배치된다.
- [0078] 도 2 및 도 4에서, 예를 들면 백색 LED 광을 생성하는 장치는 공동(7)을 갖는 성형체(1) 및 예를 들면 청색 LED 또는 LED DIE(5) 뿐만 아니라 캐스팅 화합물, 플라스틱, 세라믹 또는 금속판(4)을 보호 및 열관리를 위해 갖는다. 투명 캐스팅 화합물 또는 접착제층(2)은 변환 안료(6)를 함유하는 기재 A(3)를 위한 접착-촉진제로서의 역할

할을 한다. 기재 A(3)는 필름의 형태이거나(도 2), 초점 조절 성질을 갖는 필름(예를 들면 마이크로렌즈(8))의 형태이다(도 4).

[0079] 도 5는, 성형체(1)가, LED를 갖는 공동(7)을 함유하는 또 다른 실시양태를 보여준다. 이러한 경우에, 성형체(1)는 조성물 Z로 만들어지며 기재 A에 상응한다. 캐스팅 화합물, 플라스틱, 세라믹 또는 금속판(4)은 보호 및 열관리 역할을 한다.

[0080] 본 발명의 추가의 실시양태는, 예를 들면, LED 또는 LED DIE가 장착된 공동을 그의 표면의 적어도 일부에 갖는 플라스틱 성형체, 및 공동을 갖는 성형체의 면을 적어도 부분적으로 덮고 임의로 접착제층을 통해 플라스틱 성형체에 결합된 투명 또는 반투명 플라스틱 필름 또는 시트를 포함하고, 투명 또는 반투명 플라스틱 필름 또는 시트 및/또는 플라스틱 성형체가 여기에 균일하게 분포된 변환 안료를 함유함을 특징으로 하는 소자이다. 이러한 소자는 실내 및 실외 분야, 특히 운송 분야에서, 예를 들면 자동차, 항공기, 선박에서 사용하기 위한 램프, 조명 장치, 발광체로서, 생활 공간 및 작업 공간을 위한 실내 조명으로서, LCD 스크린의 백라이트 유니트에서, 전시 스탠드 조립 및 점포 설계 분야에서, 가구 산업에서, 예를 들면 부엌, 침실 등에서의 액센트 조명에서 사용될 수 있다.

[0081] 이러한 소자의 제조 방법은

[0082] (a) 공동을 갖는 플라스틱 성형체를 제조하는 단계,

[0083] (b) 서로 전기적으로 접속된 LED 또는 LED DIE를 공동에 장착시키는 단계,

[0084] (c) 접착-촉진제를 임의로 도포하는 단계, 및

[0085] (d) 투명 또는 반투명 플라스틱 필름 또는 시트를 덧대는 단계

[0086] 를 포함할 수 있고, 여기서 투명 또는 반투명 플라스틱 필름 또는 시트 및/또는 플라스틱 성형체는 균일하게 분포된 변환 안료를 함유한다.

[0087] 본 발명에 따르는 조성물 Z 및 이것과 관련된 본 발명에 따르는 효과는 하기 실시예를 통해 기술되어 있다. 그러나 실시예는 어떤 식으로든 본 발명을 제한하려는 것은 아니다.

[0088] <실시예>

[0089] <본 발명에 따르는 조성물 Z의 제조에 사용되는 성분>

[0090] <폴리카르보네이트 성분 A>

[0091] 마크롤론(Makrolon) 3108(300 °C 및 1.2 kg 하중에서 ISO 1133에 따르는 6.0 cm³/10 min의 용융부피유속(MVR), 50 N의 하중 및 시간당 50 °C의 가열 속도에서 ISO 306에 따르는 149 °C의 비카(Vicat) 연화점 뿐만 아니라, 23 °C 및 3 mm의 시편 두께에서 ISO 179/1eA에 따르는 80 kJ/m²의 샤르피(Charpy) 노치 충격강도를 갖는, 독일 레버쿠젠 소재의 바이엘 아게(Bayer AG)의 선형 비스페놀 A 폴리카르보네이트).

[0092] <변환 안료 B>

[0093] (a) 독일 98597 브라이통엔 소재의 로이히슈토프베르크 브라이통엔 게엠베하(Leuchtstoffwerk Breitung GmbH)에서 입수될 수 있는, 13.4 μm의 평균입자크기 d₅₀을 갖는 황색빛의 형광 분말 형태의 यू로퓴-활성화된 알칼리토류 오르토구산염인 변환 안료 F560. यू로퓴의 존재 외에도, 변환 안료 (a)는 하기와 같은 추가의 화학 원소를 가짐을 특징으로 한다:

원소	양
Al, Co, Fe, Mg, Mo, Na, Ni, Ti	각각의 경우에 1 ppm - 10 ppm
Pd, Rh	각각의 경우에 10 ppm - 50 ppm
Ca	각각의 경우에 500 ppm - 1000 ppm
Ba, Si, Sr	각각의 경우에 100,000 ppm 초과

[0094]

[0095] (b) 독일 98597 브라이통엔 소재의 로이히슈토프베르크 브라이통엔 게엠베하에서 입수될 수 있는, 12.1 μm의 평균입자크기 d₅₀을 갖는 황색빛의 형광 분말 형태의 यू로퓴-활성화된 알칼리토류 오르토구산염인 변환 안료 F565. यू로퓴의 존재 외에도, 변환 안료 (b)는 하기와 같은 추가의 화학 원소를 가짐을 특징으로 한다:

원소	양
Fe, Mg, Mo, Ni, P, Ti	각각의 경우에 1 ppm - 10 ppm
Al, Na, Pd, Rh	각각의 경우에 10 ppm - 50 ppm
Ca	각각의 경우에 500 ppm - 1000 ppm
Ba	10,000 ppm - 100,000 ppm
Si, Sr	각각의 경우에 100,000 ppm 초과

[0096]

[0097]

(c) 독일 98597 브라이통엔 소재의 로이히슈토프베르크 브라이통엔 게엠베하에서 입수될 수 있는, 12.1 μm의 평균입자크기 d₅₀을 갖는 황색빛의 형광 분말 형태의 유로퓸-활성화된 알칼리토류 오르토규산염인 변환 안료 LP-7912. 유로퓸의 존재 외에도, 변환 안료 (c)는 하기와 같은 추가의 화학 원소를 가짐을 특징으로 한다:

원소	양
Co, Mo, Na, Ni, P, Ti	각각의 경우에 1 ppm - 10 ppm
Mg, Pd, Rh	각각의 경우에 10 ppm - 50 ppm
Ca	100 ppm - 500 ppm
Ba, Si, Sr	각각의 경우에 100,000 ppm 초과

[0098]

[0099]

<성분들로부터 조성물의 제조>

[0100]

폴리카르보네이트 성분 A와 변환 안료 B를 분말 형태로서 표 1에 명시된 상대 농도로서 서로 혼합하고; 혼합물을 용융시키고, 용융된 상태에서 60 초 동안 균질화를 수행하였다. 이를 위해서, DSM XPLORE 15 cm³ 트윈-스크류 마이크로 컴파운더 미니-압출기(DSM)를 310 °C의 용융 온도에서 사용하였다. 이어서 80 °C의 기기 온도에서, 압출기와 결합된 타입 TS/I-01의 사출성형기(DSM)를 사용하여 사출성형을 통해 용융물을 배출시켜, 두께 d가 1.5 mm인 시트 형태의 플라스틱 성형물을 제공하고, 시트를 실온으로 냉각시켰다.

[0101]

<성형물의 시험>

[0102]

<각도-의존성 산란광 측정>

[0103]

산란광의 각도-의존성 측정을, DSM 사출성형기를 사용하여 제조된 두께 1.5 mm의 시트 상에서 수행하였다. 인스트루먼트 시스템즈(Instrument Systems)의 CAS140B 분광기와 GON360 각도계를 상기 목적에 사용하였다. 측정에 있어서, 광원의 램프 전류는 8.5 A였다. 복사되는 광이 통과하는 관은 광원에 대해 수직으로 배열되었다. 우선 광원으로부터 선형으로 나오는 광의 세기를 시트 평면에 대해 수직으로 측정하고(0° 위치), 이어서 산란된 광을 0° 내지 180°의 반원형 아크 스페닝 측정 각도에서 검출하였다. 상대 산란광 세기를 결정하기 위해서, 각각의 측정 각도에서 검출된 광 세기를 0 °C에서 측정된 광(산란되지 않음)의 세기와 상관지었다. 시험 결과가 표 1에 명시되어 있다.

표 1

시험 번호	1	2	3	4 *	5 *	6 *
변환 안료 B	a)	b)	c)	a)	b)	c)
변환 안료 B의 농도 Conc. B [중량%]	14.66	13.88	10.00	3.47	3.20	20.00
변환 안료 A의 농도 Conc. A [중량%]	85.34	86.12	90	96.53	96.80	80.00
변환 시트가 없을 때의 LED 색감	청색	청색	청색	청색	청색	청색
변환 시트가 있을 때의 LED 색감	백색	백색	백색	청색	청색	황색
시트(7)계 A의 플라스틱 성형물)의 두께 d[mm]	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
20°에서의 상대 산란광 세기	0.92	0.92	0.888	0.04	0.06	0.94
45°에서의 상대 산란광 세기	0.67	0.67	0.60	0.01	0.02	0.71
Conc. (B)×d [중량%×mm]	21.99	20.82	15.00	5.21	4.80	30.00

* 비교 시험