

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
25. Juni 2009 (25.06.2009)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
**WO 2009/077277 A1**

(51) Internationale Patentklassifikation:  
**C09K 11/77** (2006.01) **H01L 33/00** (2006.01)

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2008/065648

(22) Internationales Anmeldedatum:  
17. November 2008 (17.11.2008)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:  
10 2007 060 198.2  
14. Dezember 2007 (14.12.2007) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von  
US): **OSRAM GESELLSCHAFT MIT BESCHRÄNK-  
TER HAFTUNG** [DE/DE]; Hellabrunner Str. 1, 81543  
München (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): **BERBEN, Dirk**  
[DE/DE]; Schlesierstr. 12, 82024 Taufkirchen (DE).  
**FIEDLER, Tim** [DE/DE]; Siebenbürgener Str. 10, 81377  
München (DE). **HIRRLE, Renate** [DE/DE]; Karwen-  
delstr. 131, 86163 Augsburg (DE). **HUBER, Günter**  
[DE/DE]; Raiffeisenstr. 1, 86529 Schrobenhausen (DE).  
**JERMANN, Frank** [DE/DE]; Dahlienweg 5c, 86343  
Königsbrunn (DE). **ZACHAU, Martin** [DE/DE]; Pfar-  
rer-Unsin-Str. 17, 82269 Geltendorf (DE).

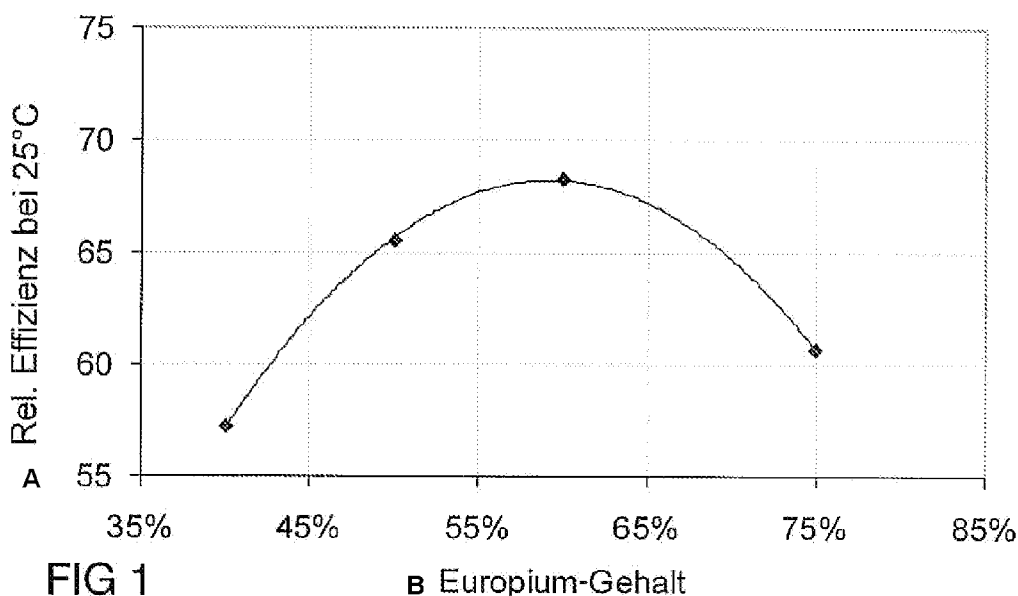
(74) Gemeinsamer Vertreter: **OSRAM GESELLSCHAFT  
MIT BESCHRÄNKTER HAFTUNG**; Postfach 22 16 34,  
80506 München (DE).

(81) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für  
jede verfügbare nationale Schutzrechtsart): 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,

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: CONVERSION LED

(54) Bezeichnung: KONVERSIONS-LED



A relative efficiency at 25°C  
B Europium content

(57) Abstract: The invention relates to a conversion LED having primary emission in the short-wave region below 420 nm uses a lumophore that is applied directly onto the surface of the primary light source, wherein said lumophore is based on known BAM:Eu. An improvement of many properties is achieved by a high Eu content of at least 52% as the activator replacing Ba. The layer thickness of the lumophore layer is a maximum of 50 µm.

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

WO 2009/077277 A1



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.

ZM, ZW), eurasisches (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, 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).

**(84) Bestimmungsstaaten** (*soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare regionale Schutzrechtsart*): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG,

**Veröffentlicht:**

— mit internationalem Recherchenbericht

**(57) Zusammenfassung:** Ein Konversions-LED mit primärer Emission im kurzwelligen Bereich unterhalb 420 nm verwendeten einen direkt auf der Oberfläche der primären Lichtquelle aufgetragenen Leuchtstoff, dieser basiert auf bekanntem BAM:Eu. Eine Verbesserung vieler Eigenschaften wird erzielt durch einen hohen Eu-Gehalt von mindestens 52 % als Aktivator, der Ba ersetzt. Die Schichtdicke der Leuchtstoff Schicht beträgt maximal 50 µm.

## Beschreibung

Titel: Konversions-LED

### Technisches Gebiet

Die Erfindung geht aus von einer Konversions-LED, häufig auch LUKOLED genannt, gemäß dem Oberbegriff des Anspruchs 1. Weiter betrifft die Erfindung eine damit hergestellte Lichtquelle bzw. ein Beleuchtungssystem mit einer derartigen Konversions-LED.

### Stand der Technik

Die US-B 7 077 978 beschreibt einen Leuchtstoff auf der Basis von BAM, der mit Eu und Mn dotiert ist. Dieser Leuchtstoff ist für die Anwendung bei UV-LEDs gedacht. Ein ähnlicher Leuchtstoff ist aus WO 2006/072919 bekannt. Außerdem ist aus WO 2006/027786 ein rein mit Eu dotierter Leuchtstoff auf BAM-Basis bekannt. Die übliche Dotierung bei einem derartigen Leuchtstoff ist ein maximaler Gehalt von Eu<sup>2+</sup> von höchstens 50 mol.-% des Ba.

### Darstellung der Erfindung

Die Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es, eine Konversions-LED mit einer primären Lichtquelle im kurzwelligen Bereich anzugeben, die keine vorzeitige Alterung zeigt. Dabei soll die Peakwellenlänge der Anregung bei höchstens 420 nm liegen.

Diese Aufgabe wird gelöst durch die kennzeichnenden Merkmale des Anspruchs 1.

- 2 -

Besonders vorteilhafte Ausgestaltungen finden sich in den abhängigen Ansprüchen.

Die Konversions-LED umfasst eine primäre Lichtquelle, die UV-Strahlung emittiert. Erfindungsgemäß ist die Licht-  
5 quelle mindestens ein Chip, auf dessen Oberfläche ein neuartiger BAM-Leuchtstoff sitzt, wobei die Schichtdicke höchstens 50  $\mu\text{m}$ , bevorzugt höchstens 30  $\mu\text{m}$ , beträgt. insbesondere ist die Schichtdicke 5 bis 20  $\mu\text{m}$ . Der neuartige Leuchtstoff absorbiert so effektiv, dass keine schädigende UV-Strahlung die Schicht verlässt.  
10

Die bisher bekannten BAM-Leuchtstoffe haben typisch die Stöchiometrie  $\text{BaMgAl}_{10}\text{O}_{17}:\text{Eu}$ . Dabei ist Eu ein zweiwertiger Aktivator, der üblicherweise in einer maximalen Konzentration von allenfalls 50 % des Ba, gerechnet in Mol-  
15 Prozent, zugegeben wird. Gelegentlich wird auch Mn als Ko-Aktivator verwendet, um die Emission langwelliger zu machen. Die Emission liegt somit im Blauen oder Blaugrünen Spektralbereich.

Insbesondere zur Realisierung effizienter weißer LEDs auf  
20 Basis von UV-LEDs sind effiziente, temperaturstabile blaue Leuchtstoffe notwendig. Dies setzt eine gute Absorption der Leuchtstoffe vor allem im Bereich 340-420 nm, insbesondere 380-410 nm bei near-UV-LEDs, sowie eine hohe Quanteneffizienz voraus. Die Leuchtstoffe dürfen bei  
25 hohen Anregungsintensitäten, wie sie insbesondere in Hochleistungs-LEDs vorkommen, nicht sättigen. Außerdem sollten sie aufgrund der hohen auftretenden Temperaturen bis zu 200 °C in Hochleistungs-LEDs eine möglichst geringe thermische Löschung der Lumineszenz aufweisen.

- 3 -

Zur Zeit werden dafür überwiegend SCAP:Eu (Sr,Ca-Chlorapatite) sowie BAM:Eu (BaMg-Aluminat) als blau emittierende Leuchtstoffe eingesetzt. SCAP weist bei den üblicherweise verwendeten Eu-Konzentrationen zwischen 5  
5 und 15% Eu bereits eine sehr hohe Absorption im Spektralbereich zwischen 380 - 410 nm auf. Allerdings sind Quanteneffizienz und thermisches Lösch-Verhalten bei diesen Eu-Konzentrationen nicht mehr optimal und schlechter als bei BAM:Eu. Außerdem ist die kurzwellige,  
10 schmalbandige Emission von SCAP nicht immer von Vorteil, wenn effiziente weiße LED mit hoher Farbwiedergabe hergestellt werden sollen. BAM:Eu wird mit Eu-Konzentration  $< 50\%$  (typisch eher  $< 30\%$ ) eingesetzt, hat aber gegenüber SCAP den Nachteil einer schlechteren  
15 Absorption im Bereich 380-410 nm.

Durch überwiegende Substitution des  $Ba^{2+}$  - Ions durch  $Eu^{2+}$  im BAM-Wirtsgitter  $BaMgAl_{10}O_{17}$  ergibt sich überraschenderweise ein sehr effizienter Leuchtstoff. Dabei ist wichtig, dass der Ba-Gehalt so eingestellt  
20 wird, dass eine zu starke Energiemigration zwischen den  $Eu^{2+}$  - Ionen verhindert wird. Sehr gut geeignete Leuchtstoffe erhält man typischerweise für Ba-Konzentrationen zwischen 35 und 45%, gemäß der Formel  $Ba_xEu_{1-x}MgAl_{10}O_{17}$  mit  $x = 0,35$  bis  $0,45$ .

25 Ein typisches Beispiel ist  $Eu_{0,6}Ba_{0,4}MgAl_{10}O_{17}$ . Der 40%-Anteil an  $Ba^{2+}$  unterbindet hier wirksam eine zu starke Energiemigration und damit thermische Lumineszenzmischung. Der neue Leuchtstoff ist beispielsweise für "Color on demand"-LEDs oder für weiße  
30 LEDs geeignet. Er lässt sich für unterschiedliche Farb-

- 4 -

temperaturen und Anwendungen mit hoher Effizienz und guter Farbwiedergabe maßschneidern.

- Der erfindungsgemäße Eu-Aluminat-Leuchtstoff weist eine extrem geringe Temperaturlöschung auf. Bei 175 °C liegt die Effizienz noch oberhalb von 80% der Effizienz bei 25°C. Die Pulvertabletten-Absorption der Verbindung  $\text{Eu}_{0,6}\text{Ba}_{0,4}\text{MgAl}_{10}\text{O}_{17}$  liegt bei Anregung mit 400 nm bereits bei mehr als 80% und ist bei 380 nm sogar größer als 90% bei Partikelgrößen des Leuchtstoffs kleiner als 12 µm.
- 5 Eine gut geeignete Partikelgröße ist 0,5 bis 10 µm. Der Begriff Partikelgröße ist hier verstanden als d50-Wert, genauer als median der mittels Laserstreuung, beispielsweise CILAS, gemessenen, volumenbezogenen Partikelgrößenverteilung.
- 10 Die Quanteneffizienz (QE) des neuartigen Leuchtstoffs liegt typischerweise bei 84% +/- 5% bei Anregung mit 400 nm. Bei noch kürzerwelliger Anregung lassen sich QE-Werte von mehr als 90% erreichen.
- Dabei wird bewusst darauf verzichtet, die häufig übliche Co-Dotierung mit Mn zu verwenden. Hier nimmt Mn den Gitterplatz von Mg ein. Ein derartiger Leuchtstoff zeigt jedoch merklich schlechtere Eigenschaften als ein rein mit Eu dotierter Leuchtstoff. Das Ion Mn ist wesentlich empfindlicher gegenüber Sättigung.
- 20 Die hohe Europiumdotierung lässt sich auch auf BAM-Leuchtstoffe mit anderer Stöchiometrie und Zusammensetzung anwenden. In einer weiteren Ausführungsform wird der BAM-Leuchtstoff beschrieben durch die Stöchiometrie  $\text{Ba}_x\text{Eu}_{1-x}\text{Mg}_{1+d}\text{Al}_{10+2f}\text{O}_{17+d+3f}$ .
- 25

- 5 -

Dabei gilt  $0,2 \leq x \leq 0,48$ ; bevorzugt ist  $0,35 \leq x \leq 0,45$ ;

$0 \leq d \leq 0,1$ ;

$-0,1 \leq f \leq 1,0$ .

Es handelt sich dabei um mehr oder weniger  
 5 stöchiometrisch einfach beschreibbare Verbindungen, wie  
 diese Varietäten für BAM bekannt sind. Grundsätzlich sind  
 solche Wirtsgitter beispielsweise aus WO 2006/072919  
 vorbekannt. In seiner allgemeinsten Form umfasst daher  
 das Wirtsgitter BAM auch Stöchiometrien beispielsweise  
 10 des Typs  $\text{BaAl}_{12}\text{O}_{19}$  oder noch allgemeiner formuliert lässt  
 sich die Vielzahl an Stöchiometrien für BAM so  
 darstellen, dass es sich um eine Mischung zweier  
 Aluminate handelt, wobei ein erstes Aluminat Ba-arm ist,  
 entsprechend der Stöchiometrie  $0,82\text{BaO} \cdot 6\text{Al}_2\text{O}_3$ , und ein  
 15 zweites Aluminat Mg-haltig ist und das eigentlich BAM  
 $\text{BaMgAl}_{10}\text{O}_{17}$  repräsentiert. Weil das Ba-arme Aluminat und  
 das eigentliche BAM  $\text{BaMgAl}_{10}\text{O}_{17}$  dieselbe Kristallstruktur  
 wie  $\beta\text{-Al}_2\text{O}_3$  haben, bilden beide Verbindungen feste  
 Lösungen mit  $\beta\text{-Al}_2\text{O}_3$ -Struktur. Eine allgemeine  
 20 Aluminat-Stöchiometrie lässt sich daher beschreiben als  
 $\{(1-a) \cdot (0,82[\text{Ba}_x\text{Eu}_{1-x}\text{O}] \cdot 6[\text{Al}_2\text{O}_3])\} \cdot a(\text{Ba}_x\text{Eu}_{1-x}\text{MgAl}_{10}\text{O}_{17})$ .

Dabei ist  $a$  grundsätzlich gegeben durch  $0 \leq a \leq 1$ .  
 Bevorzugt ist  $a$  mindestens 0,65, besonders bevorzugt  
 mindestens 0,8. Der Wert für  $x$  liegt bei mindestens 0,52,  
 25 bis hin zu 0,8. Bevorzugt ist  $x = 0,55$ , bis 0,65.

Bei weniger belasteten Anwendungen kann auch Mn kodotiert  
 werden als Ersatz für Mg gemäß der Aluminat-Stöchiometrie

$\{(1-a) \cdot (0,82[\text{Ba}_x\text{Eu}_{1-x}\text{O}] \cdot 6[\text{Al}_2\text{O}_3])\} \cdot a(\text{Ba}_x\text{Eu}_{1-x}\text{Mg}_{1-z}\text{Mn}_z\text{Al}_{10}\text{O}_{17})$ .

- 6 -

Dabei sollte  $z$  insbesondere höchstens 0,15 betragen, bevorzugt höchstens 0,04.

Des weiteren lässt sich Ba in dieser Darstellung teilweise oder vollständig durch Sr, oder auch teilweise  
5 durch Ca, substituieren.

In einer weiteren Ausführungsform lässt sich die hohe Europiumkonzentration auf Leuchtstoffe anwenden, bei denen Ba teilweise oder vollständig durch Sr und/oder Ca ersetzt ist, und die vom eigentlichen BAM abgeleitet  
10 sind. Dieser Leuchtstoff wird beschrieben durch die Stöchiometrie  $M_x\text{Eu}_{1-x}\text{Mg}_{1+d}\text{Al}_{10+2f}\text{O}_{17+d+3f}$  mit  $M = (\text{Ba}, \text{Sr}, \text{Ca})$ , wobei M bevorzugt durch  $\text{Ba}_z(\text{Ca}, \text{Sr})_{1-z}$  repräsentiert ist mit  $z \geq 0,7$ .

Dabei gilt  $0,2 \leq x \leq 0,48$ ; bevorzugt ist  $0,35 \leq x \leq 0,45$ ;  
15  $0 \leq d \leq 0,1$ ;  
 $-0,1 \leq f \leq 1,0$ .

In verallgemeinerter Form lassen sich auch Leuchtstoffe dieses Typs ähnlich wie in EP 529 956 beschreiben. Die allgemeine Formel ist  $(\text{M}_{1-r}\text{Mg}_r)\text{O}^*k\text{Al}_2\text{O}_3$ , wobei  $r = 0,4$   
20 bis 0,6. Dabei gilt für das Metall M, dass es mit Europium dotiert ist, wobei  $M = \text{EA}_e\text{Eu}_{1-e}$ , mit EA = Ba, Sr, Ca. für e gilt  $e = 0,52$  bis 0,8, insbesondere  $e = 0,55$  bis 0,65. Für k gilt  $k = 1,5$  bis 4,5.

Ein derartiger Leuchtstoff eignet sich insbesondere für  
25 die Mischung mit anderen Leuchtstoffen, gemäß beispielsweise dem RGB-Prinzip. Insbesondere eignet sich dabei eine Mischung des neuartigen BAM mit  $\text{Zn}_2\text{SiO}_4:\text{Mn}$  oder  $\text{BaAl}_{12}\text{O}_{19}:\text{Mn}$  für die grüne Komponente und mit



- 7 -

(Y,Gd)BO<sub>3</sub>:Eu oder YOE, also Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu für die rote Komponente.

Die Herstellung derartiger Leuchtstoffe gelingt im Prinzip wie bei bekannten BAM-Leuchtstoffen. Als  
5 Schmelzmittel haben sich dabei Halogenverbindungen, bevorzugt Fluoride und Chloride, bewährt. Aber auch Lithium- und Bor-haltige Verbindungen lassen sich einsetzen.

Für die Herstellung werden die Edukte Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, BaCO<sub>3</sub>,  
10 SrCO<sub>3</sub>, MgO, Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, BaF<sub>2</sub> im Taumelmischer o.ä. für mehrere Stunden gemischt. Die Reaktionstemperatur sollte bei 1500 bis 1650 °C liegen. Danach wird Formiergas mit einem Anteil H<sub>2</sub> von 2 bis 20 % eingeleitet. Anshcießend wird der Leuchtstoff in einer Mühle für etwa 5 bis 30 min  
15 gemahlen. Anschließend kann der Leuchtstoff ggf. noch Wasser oder verdünnten Säuren gewaschen werden.

Darüber hinaus lassen sich in dieses allgemeine Wirtsgitter auch in geringem Umfang die Elemente, F, Cl, Li, Na, B, La, Ce, Nd, Sm, Pr, Gd, Yb, Lu einsetzen.  
20 Dabei sollte die über XRD nachweisbare Gitterstruktur im wesentlichen unverändert bleiben. Im einzelnen lassen sich insbesondere folgende Modifikationen durchführen:

-Ersatz von Al in geringem Umfang durch B;

-Substitution von 2M durch M<sub>1</sub>+M<sub>3</sub>, wobei M<sub>1</sub> eines oder  
25 mehrere der einwertigen Metalle Li und/oder Na ist und M<sub>3</sub> eines oder mehrere der dreiwertigen Seltenerdmetalle aus der Gruppe La, Ce, Nd, Sm, PR, Gd. Yb, Lu ist;

- Einbau von M<sub>1</sub>+H in das Wirtsgitter, wobei M<sub>1</sub> ein einwertiges Metall wie oben definiert ist und H eines

- 8 -

oder mehrere Halogene aus der Gruppe F, Cl ist; bevorzugt liegt der Anteil bei maximal 1 %.

- Einbau auf Zwischengitterplätze von dreiwertigen Seltenerdmetallen M3 + ZZ, wobei M3 wie oben definiert  
5 ist und ZZ eines oder mehrere Elemente aus der Gruppe F, Cl, O ist; auch Mischungen daraus; bevorzugt liegt der Anteil für F und Cl bei maximal 1 %, für O bei maximal 5 %.

- Einbau von verschiedenen metallischen Ionen wie Si, die  
10 in großen Konzentrationen die Lumineszenz quenchen würden, in einem Umfang, der die Lumineszenz noch nicht merklich verringert. Damit sind Anteile in Spuren gemeint, die deutlich unter 1 Gew.% liegen.

Der erfindungsgemäße Leuchtstoff lässt sich bevorzugt für  
15 LEDs, die im UV emittieren anwenden, um eine Konversion in den sichtbaren Spektralbereich zu erzielen. Die Anregung gelingt am besten bei einer Peakwellenlänge von 300 bis 420 nm, bevorzugt 340 bis 410 nm, besonders bevorzugt bei 380 bis 410 nm. Als Lichtquellen eignen  
20 sich alle LEDs nach dem Prinzip einer Konversions-LED. Dabei lassen sich zum einen farbig emittierende LEDs realisieren, wobei insbesondere nur ein einziger Leuchtstoff des oben beschriebenen Aluminat-Typs, insbesondere BAM, verwendet wird. Dabei kann insbesondere  
25 eine blau emittierende LED mit großer FWHM realisiert werden, die die Basis für LEDs oder LED-Module mit hoher Farbwiedergabe bildet.

Es lassen sich aber auch andere LEDs realisieren, wobei dafür im allgemeinen auch zusätzlich mindestens ein  
30 weiterer Leuchtstoff, der entweder gelb emittiert (für

- 9 -

eine "BY"-Lösung), oder grün und rot emittierende Leuchtstoffe (für eine "RGB"-Lösung), wie an sich bekannt verwendet werden. Damit lassen sich weiß emittierende LEDs mit besonders hoher Farbwiedergabe realisieren. Der  
5 Ra ist mindestens 80, insbesondere mindestens 90.

Für eine BY-Lösung eignet sich insbesondere ein Granat wie YAG:Ce oder ein Sion als zusätzlicher Leuchtstoff. Für eine RGB-Lösung eignen sich insbesondere grüne Leuchtstoffe wie Nitridosilikate und rote Leuchtstoff wie  
10 Nitride als zusätzliche Leuchtstoffe.

Insbesondere lassen sich auch Mischungen aus verschiedenen Ausführungsformen des neuartigen Leuchtstoffs verwenden, beispielsweise blau und blaugrün emittierende Varietäten.

#### Kurze Beschreibung der Zeichnungen

15 Im Folgenden soll die Erfindung anhand eines Ausführungsbeispiels näher erläutert werden. Die Figuren zeigen:

Fig. 1 die Effizienz eines BAM-Leuchtstoffs bei Raumtemperatur als Funktion des Eu-Gehalts;

20 Fig. 2 die Effizienz des gleichen BAM-Leuchtstoff bei 175 °C als Funktion des Eu-Gehalts;

Fig. 3 die Emissionsintensität des gleichen BAM-Leuchtstoffs bei 400 nm Anregung als Funktion des Eu-Gehalts;

25 Fig. 4 die Quanteneffizienz des gleichen BAM-Leuchtstoffs als Funktion des Eu-Gehalts bei 400 nm Anregung;

- 10 -

Fig. 5 die Absorption des gleichen BAM-Leuchtstoffs bei 400 nm Anregung als Funktion des Eu-Gehalts;

Fig. 6 die Remission eines speziellen BAM-Leuchtstoffs als Funktion der Wellenlänge;

5 Fig. 7 die Emission des gleichen Leuchtstoffs als Funktion der Wellenlänge;

Fig. 8 das Löschungs-Verhalten (Quenching) des gleichen Leuchtstoffs als Funktion der Temperatur;

10 Fig. 9 das Emissionsverhalten eines modifizierten BAM-Leuchtstoffs beim Einbau von Mn;

Figur 10 das Emissionsverhalten verschiedener Leuchtstoffe mit unterschiedlicher Stöchiometrie;

Figur 11 den prinzipiellen Aufbau einer Lichtquelle für blaues Licht;

15 Figur 12 den prinzipiellen Aufbau einer Lichtquelle für weißes Licht;

Figur 13 Vergleich des Emissionsspektrums zweier LEDs.

#### Bevorzugte Ausführung der Erfindung

Figur 1 zeigt die relative Effizienz eines BAM-Leuchtstoffs  $\text{Ba}_x\text{Eu}_{1-x}\text{MgAl}_{10}\text{O}_{17}$  als Funktion des Eu-Gehalts in Mol.-%, bezogen auf  $M = (\text{Ba}, \text{Eu})$ . Es zeigt sich, dass 20 die optimale Eu-Konzentration bei Raumtemperatur (25 °C) bei etwa 60 % Eu liegt, entsprechend einem Wert  $x = 0,4$ .

Die gleiche Messung, bezogen auf eine Temperatur von 175 °C ist in Figur 2 dargestellt. Sie liefert das Ergebnis, 25 dass hier die optimale Eu-Konzentration bei etwa 54% liegt, entsprechend einem Wert  $x = 0,46$ .

In Figur 3 ist die Emissionsintensität dieses Leuchtstoffs als Funktion der Eu-Konzentration bei Anregung mit 400 nm gezeigt. Überraschenderweise erreicht die Intensität ihr Maximum erst bei einer Eu-Konzentration von etwa 60 %, was wieder einem Wert  $x = 0,4$  entspricht.

In Figur 4 ist die Quanteneffizienz als Funktion der Eu-Konzentration gezeigt. Überraschenderweise steigt die Quanteneffizienz bei relativ langwelliger Anregung, hier beispielhaft bei 400 nm, mit zunehmendem Eu-Gehalt zunächst an. Ein Optimum zeigt sich bei Werten für Eu im Bereich 50 bis 60 %, also einem  $x = 0,4$  bis  $0,5$ .

Figur 5 zeigt die Absorption dieses BAM-Leuchtstoffs, bezogen auf eine Pulvertablette. Es zeigt sich, dass der neuartige Leuchtstoff eine gegenüber bisher üblichen BAM:Eu-Leuchtstoffen erheblich bessere Absorption aufweist.

Wesentlich für gute Eigenschaften einer Konversions-LED ist das Produkt aus QE und A.

Figur 6 zeigt die Remission des Leuchtstoffs  $\text{Eu}_0{,}6\text{Ba}_{0{,}4}\text{MgAl}_{10}\text{O}_{17}$ , in einer Pulvertablette vorliegend. Es zeigt sich, dass dieser Leuchtstoff eine gegenüber bisherigen Leuchtstoffen erheblich verbesserte Reflektanz aufweist. Dies gilt insbesondere für die Absorption.

Figur 7 zeigt die Emission dieses konkreten Leuchtstoffs als Funktion der Wellenlänge. Es zeigt sich, dass das Emissionsverhalten sehr gut für LEDs mit hoher Farbwiedergabe geeignet ist. Die Emission ist relativ langwellig

und hat einen hohen Blau-Grün-Anteil. Die Anregung ist auch hier mit 400 nm erfolgt.

Figur 8 zeigt das Lösungsverhalten dieses konkreten Leuchtstoffs als Funktion der Temperatur. Er ist sehr  
5 stabil, so dass bei 175°C die Effizienz immer noch mehr als 80 % der Effizienz bei 25 °C beträgt. Dies macht den neuen Leuchtstoff besonders für temperaturbelastete Umgebungen, beispielsweise in einer LED für Fahrzeugscheinwerfer, attraktiv.

10 Figur 9 zeigt das Emissionsverhalten eines Leuchtstoffs mit der Stöchiometrie  $\text{Ba}_{0,4}\text{Eu}_{0,6}\text{Mg}_{1-y}\text{Mn}_y\text{Al}_{10}\text{O}_{17}$ . Der Einbau von Mn auf Mg-Gitterplätze ermöglicht die Realisierung eines hocheffizienten, schmalbandigen Grünleuchtstoffs, der sich für wenig temperaturbelastete Umgebungen  
15 eignet, ideal beispielsweise für die LCD-Hinterleuchtung.

Figur 10 zeigt einen Vergleich der Emission verschiedener Mischungen aus einer Ba-armen Aluminatphase und der eigentlichen BAM-Phase. Der Mischungsparameter ist a, wie oben beschrieben. Bei geringer Aluminat-Konzentration, a  
20 = 0,08, wird keine signifikante Änderungen gegenüber der reinen BAM-Phase, also a = 0, beobachtet. Beide Kurven liegen praktisch übereinander. Bei hoher Aluminat-Konzentration a ergibt sich eine kurzwellige Verschiebung der Emission. Im gezeigten Ausführungsbeispiel ist a =  
25 0,88. Dabei ist jeweils die Eu-Konzentration x, als Anteil am Metall M =  $(\text{Ba}_{1-x}, \text{Eu}_x)$  verstanden, 60 %. Dabei wird kein Mn als Co-Dotierung verwendet (z = 0). Dieser Mischungseffekt kann zur optimalen Einstellung der Emissionswellenlänge bzw. ihres Peaks in einer LED genutzt  
30 werden.

Figur 11 zeigt den prinzipiellen Aufbau einer Konversions-LED, auch LUKOLED, genannt, mit dem erfindungsgemäßen Leuchtstoff. Der Aufbau einer Lichtquelle für blaugrünes Licht ist in Figur 11 explizit gezeigt. Die Lichtquelle ist ein Halbleiterbauelement mit einem Chip 1 des Typs InGaN mit einer Peakemissionswellenlänge im UV von beispielsweise 405 nm, das in ein lichtundurchlässiges Grundgehäuse 8 im Bereich einer Ausnehmung 9 eingebettet ist. Der Chip 1 ist über einen Bonddraht 4 mit einem ersten Anschluss 3 und direkt mit einem zweiten elektrischen Anschluss 2 verbunden. Auf dem Chip ist direkt eine dünne Schicht 50 des neuartigen BAM aufgebracht. Bevorzugt wird dazu Elektrophorese verwendet, um die optimale geringe Schichtdicke zwischen 5 und 30 µm zu erreichen. Auch andere Techniken, wie sie im Stand der Technik beschrieben sind, kommen dafür in Frage. Wichtig ist, dass der Anteil anderer Stoffe möglichst gering ist, beispielsweise Binder.

Die Ausnehmung 9 ist mit einer Vergussmasse 5 gefüllt, die als Hauptbestandteile ein Silikonharz (80 bis 90 Gew.-%) und andere Leuchtstoffpigmente 6 (typisch weniger als 20 Gew.-%) enthält. Dabei handelt es sich um einen gelb emittierenden Leuchtstoff wie insbesondere YAG:Ce. Die Ausnehmung hat eine Wand 7, die als Reflektor für die Primär- und Sekundärstrahlung vom Chip 1 bzw. den Pigmenten 6 dient. Die Primärstrahlung der UV-LED wird vollständig vom Leuchtstoff in blaue Strahlung konvertiert. Der verwendete blau emittierende, dünn aufgetragene Leuchtstoff ist das oben beschriebene BAM:Eu (60 %).

Analog lässt sich mit einem derartigen Leuchtstoff auch eine Lichtquelle für weißes Licht realisieren, indem

beispielsweise drei Leuchtstoffe verwendet werden, die von der UV-Strahlungsquelle angeregt werden, rot, grün und blau zu emittieren. Der grüne Leuchtstoff ist beispielsweise ein Ba-Sion, der rote ist beispielsweise  
5 Ca<sub>5</sub>Al<sub>4</sub>Si<sub>8</sub>N<sub>18</sub>:Eu oder ein Nitridosilikat (Ca,Sr)<sub>2</sub>Si<sub>5</sub>N<sub>8</sub>:Eu und der blaue, der direkt auf den Chip aufgetragen ist, ist ein Aluminat-Leuchtstoff wie BAM:Eu mit  $x = 0,4$ .

Der Aufbau einer anderen Lichtquelle für weißes Licht ist in Figur 12 explizit gezeigt. Die Lichtquelle, ist ein  
10 Halbleiterbauelement 16 vom Typ LED mit einem UV emittierenden Chip 11 des Typs InGaN mit einer Peakemissionswellenlänge von 380 nm. Auf dem Chip 11 ist eine dünne 20 µm dicke Schicht aus hoch Europium-haltigen BAM, insbesondere BAM:Eu(60%), aufgebracht (nicht darge-  
15 stellt). Das Halbleiterbauelement 16 hat ein lichtundurchlässiges Grundgehäuse 18 mit Seitenwand 15 und Fenster 19 eingebettet. Die Konversions-LED 16 ist die Lichtquelle für weitere Leuchtstoffe, die in einer Schicht 14 auf dem Fenster 19 aufgetragen sind. Der weitere Leucht-  
20 stoff, der die Strahlung des Chips 13 teilweise konvertiert, ist ein gelber Leuchtstoff wie beispielsweise YAG:Ce, der die primäre Strahlung des Chips 13 teilweise konvertiert und in gelbe Strahlung der Peakemission 560 nm umwandelt.

25 In einem anderen Ausführungsbeispiel wird als primäre Lichtquelle eine UV-LED (etwa 380 nm) für eine weiße RGB-Lumineszenzkonversions-LED verwendet, wobei hier Probleme mit Alterung und Degradation von Gehäuse und Harz bzw. weiterer Leuchtstoffe nicht auftreten, weil der hochstabile BAM-Leuchtstoff direkt auf der Oberfläche des Chips  
30 aufgetragen ist. Damit ist die Einhaltung sonst üblicher



Maßnahmen nicht mehr nötig, wie sorgfältige Wahl des Gehäusematerials, Zugabe UV-resistenter Harzkomponenten. Der große Vorteil dieser Lösung ist außerdem die geringe Blickwinkelabhängigkeit der Emissionsfarbe und die hohe  
5 Farbstabilität.

Als Lichtquelle für ein Beleuchtungssystem eignet sich bevorzugt eine Konversions-LED, insbesondere auf Basis von InGaN, oder ein Beleuchtungsmodul, insbesondere auf Basis einer LED.

10 Der Clou der vorliegenden Erfindung ist, dass der UV-LED-Chip mit einer hochkompakten Schicht stark UV-absorbierenden Leuchtstoffs beschichtet wird, der erstmals mit dem erfindungsgemäßen BAM:Eu zu Verfügung steht. Dabei ist die Schicht kleiner als 30 µm bevorzugt gewählt,  
15 wählt, und mindestens so dick, dass sie im wesentlichen die UV-Strahlung des Chips absorbiert, so dass keine Schädigung des Gehäuses und Harzes etc. mehr zu befürchten ist. der Volumenanteil des Leuchtstoffs in der kompakten Schicht wird dabei zu mindestens 50 % gewählt,  
20 bevorzugt mindestens 70%. Insbesondere eignet sich dafür eine elektrophoretisch abgeschiedene Schicht. Diese hochkompakte Schicht enthält somit nur wenig alterungsanfälliges Material. Die Alterung des BAM-Leuchtstoffs, oder auch BAL-Leuchtstoffs, ist in diesem  
25 Zusammenhang vernachlässigbar. Die Schicht ist also weitgehend alterungsbeständig.

Konventionelle Beschichtungsverfahren, wie beispielsweise Siebdruck sind bei derart hohen Volumenanteilen des Leuchtstoffs nicht mehr verarbeitbar. Die hohe Viskosität  
30 einer Leuchtstoff-Paste mit derart hohem Feststoff-

- 16 -

Anteil, bedingt durch den Leuchtstoff, verhindert die konventionelle Verarbeitung. Durch diese Anordnung wird eine vorzeitige Alterung der Vergussmasse oder des Package-Materials vermieden. Es wird die volle  
5 Lichtleistung über die Lebensdauer erzielt.

Voll-Konversions-LED benötigen in der Regel sehr hohe Leuchtstoff-Konzentrationen, welche beträchtliche Lichtverluste bedingen. Diese Verluste können durch stark absorbierende und damit wenig streuende Leuchtstoffe  
10 jetzt erstmals gemindert werden. Nur der neuartige BAM:Eu- Leuchtstoff erlaubt durch seine drastisch erhöhte near-UV-Absorption, vor allem im Bereich 360 bis 400 nm aufgrund des hohen Aktivatorsgehalts an Eu, in Verbindung mit einer blauen Emission, den Bau einer Vollkonversions-  
15 LED zu beleuchtungszwecken. Der große Vorteil liegt in der hohen Effizienz der Konversion sowie dem Schutz des Packages vor schädigender UV-Strahlung. Durch den geringen Anteil an Vergussmasse in der konvertierenden Leuchtstoff-Schicht und der geringen UV-Intensität  
20 außerhalb der konvertierenden Schicht ist die gesamte LED wesentlich weniger anfällig für UV-Bedingte Materialalterung. Konkret ist in Figur 13 eine 380 nm LED (Primäremission Peak) dargestellt (relative Energie, spektral aufgetragen), die mit dem erfindungsgemäßen  
25 Leuchtstoff BAM:Eu(60 %) beschichtet ist, die Schichtdicke ist 10 µm. Die beiden Emissionsspektren einer unbeschichteten, klar vergossenen LED (1) und einer beschichteten, klar vergossenen LED (2) sind in Figur 13 dargestellt. Numerisch ergibt sich eine energetische  
30 Konversionseffizienz von summarisch 100 % für die

- 17 -

ungecoatete LED (per Definitionem) gegenüber 78% bei der gecoateten Version.

Die so erzeugte LED lässt sich wie eine konventionelle blaue LED mit deutlich verbesserten Eigenschaften betrachten. Die Emission verfügt über einen starken blau-grün-Anteil, der in einer konventionellen LED praktisch vollständig fehlt. Hierin profitiert besonders die Farbwiedergabe der neuartigen LED. Neben der reinen Konversion in blau sind, wie oben dargestellt selbstverständlich auch alle anderen Konversions-LEDs realisierbar, insbesondere weiße LED auf Basis einer derartigen neuartigen blauen LED. Eine Möglichkeit ist die Beschichtung mit YAG:Ce oder mit YAG:Ce. Diese Leuchtstoffe weisen eine ausgeprägte Absorptionslücke um 395 nm (bei YAG:Ce) bzw. 380 nm (Bei YAG:Ce) auf. Ähnliches gilt für andere bekannte Granat-Leuchtstoffe, die mit Ce dotiert sind. Daher wird es möglich, auf die erfindungsgemäße BAM:Eu-Schicht auf der LED eine gelbe Granat-Schicht aufzubringen, die das restliche transmittierte UV-Strahlung in die BAM:Eu-Schicht zurückreflektiert. Damit kann diese BAM:Eu oder auch BAL:Eu-Schicht dünner sein. Dieser Leuchtstoff erhält also eine zusätzliche Möglichkeit, das UV-Strahlung zu absorbieren. Andere Leuchtstoffe zur Erzeugung gelben bzw. roten Lichts können oft direkt mit UV-Strahlung gepumpt werden, auch hier kann aber die BAM:Eu-Schicht dünner sein, ohne das Package dadurch zu belasten. Mischungen aus BAM:Eu mit anderen Leuchtstoffen sind ebenfalls möglich. Dabei muss gewährleistet sein, dass die Schicht die nötige Kompaktheit beibehält.

- 18 -

Eine besonders wertvolle Eigenschaft des neuartigen Leuchtstoffs ist sein breite fWHM, die jetzt etwa 55 bis 65 nm beträgt. Bei Verwendung einer blauen LED (InGaN) ist diese FWHM typisch nur 10 bis 20 nm, was die  
5 Farbwiedergabe einer darauf basierenden weißen LED deutlich schlechter macht als wenn eine weiße LED auf der neuartigen blauen LED mit direkter Konversion der UV-Primäremission durch die BAM:Eu-Schicht basiert. Hinzu  
10 kommt, dass die Stromfestigkeit und Temperatur-Festigkeit sowie die Wellenlängenshift bei der neuartigen LED erheblich besser sind als bei direkt emittierend blauen LEDs.

**Ansprüche**

1. Konversions-LED mit einer primären Lichtquelle, die im kurzwelligen Strahlungsbereich unterhalb 420 nm emittiert und einem davor geschalteten Leuchtstoff aus dem BAM-System als Wirtsgitter zur mindestens teilweisen Konversion der Strahlung der Lichtquelle in längerwellige Strahlung dadurch gekennzeichnet, dass direkt auf der Oberfläche der Lichtquelle der BAM-Leuchtstoff als dünne Schicht mit einer Schichtdicke von höchstens 50 µm aufgetragen ist, wobei der BAM-Leuchtstoff die allgemeine Stöchiometrie  $(M_{1-r}Mg_r)O^*k(Al_2O_3)$  besitzt, wobei  $r = 0,4$  bis  $0,6$ , und wobei  $M = EA_eEu_{1-e}$ , mit  $EA = Ba, Sr, Ca$ , wobei für  $e$  gilt  $e = 0,52$  bis  $0,8$ , insbesondere  $e = 0,55$  bis  $0,65$ , und wobei für  $k$  gilt  $k = 1,5$  bis  $4,5$ .
2. Konversions-LED nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der BAM-Leuchtstoff die Stöchiometrie  $M_xEu_{1-x}Mg_{1+d}Al_{10+2f}O_{17+d+3f}$ , besitzt, mit  $0,2 \leq x \leq 0,48$ ; bevorzugt ist  $0,35 \leq x \leq 0,45$ ;  $0 \leq d \leq 0,1$ ;  $-0,1 \leq f \leq 1,0$ .
3. Konversions-LED nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Stöchiometrie  $Ba_xEu_{1-x}MgAl_{10}O_{17}$ , ist wobei für  $x$  gilt:  $0,35 \leq x \leq 0,45$ .
4. Konversions-LED nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Stöchiometrie  $Ba_xEu_{1-x}MgAl_{10}O_{17}$ ,

- 20 -

ist, wobei  $x$  im Bereich  $x = 0,35$  bis  $0,48$  angesetzt ist und dass für  $z = 0,65$  bis  $0,995$  angesetzt ist.

5. Konversions-LED nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Stöchiometrie  
 5  $Ba_xEu_{1-x}Mg_{1+d}Al_{10+2f}O_{17+d+3f}$ , ist, wobei gilt:  
 $0,2 \leq x \leq 0,48$ ; bevorzugt ist  $0,35 \leq x \leq 0,45$ ;  
 $0 \leq d \leq 0,1$ ;  
 $-0,1 \leq f \leq 1,0$ .

6. Konversions-LED gemäß einem der vorhergehenden Ansprüche zur Konversion von Primärstrahlung, wobei  
 10 die Peakwellenlänge der Primärstrahlung im Bereich 300 bis 420 nm, bevorzugt 340 bis 410 nm liegt.

7. Konversions-LED nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der Leuchtstoff die folgende Stöchiometrie  
 15 aufweist:  
 $\{(1-a) * (0,82[Ba_xEu_{1-x}O] * 6[Al_2O_3])\} * a(Ba_xEu_{1-x}MgAl_{10}O_{17})$ ,  
 wobei  $a$  grundsätzlich gegeben ist durch  $0 \leq a \leq 1$ , insbesondere ist  $a$  mindestens 0,2, besonders bevorzugt mindestens 0,8, wobei der Wert für  $x$  bei  
 20 mindestens 0,52, bis hin zu 0,8 liegt, und insbesondere ist  $x = 0,55$ , bis 0,65.

8. Konversions-LED nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei Mn als Ko-Dotierung verwendet wird.

9. Beleuchtungssystem mit einer Konversions-LED gemäß  
 25 einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Lichtquelle primäre Strahlung mit

- 21 -

einer Peakwellenlänge im Bereich 300 bis 420 nm emittiert und dass ein zur Konversion eingesetzter Leuchtstoff ein Aluminat des Wirtsgitter-Typs BAM ist, das mit Eu und evtl. zusätzlich mit Mn dotiert ist, wobei das Aluminat die Stöchiometrie aufweist:

5  $M_xEu_{1-x}Mg_{1-y+d}Mn_yAl_{10+2f}O_{17+d+3f}$ , wobei gilt

$0,2 \leq x \leq 0,48$ ; bevorzugt ist  $0,35 \leq x \leq 0,45$ ;

$0 \leq y \leq 0,3$ , bevorzugt  $0 \leq y \leq 0,2$ ;

$0 \leq d \leq 0,1$ ;

10  $-0,1 \leq f \leq 1,0$ .

10. Beleuchtungssystem nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, dass die Lichtquelle eine LED ist, insbesondere auf Basis von InGaN.

11. Beleuchtungssystem nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, dass die Lichtquelle ein Beleuchtungs-

15 modul mit einer LED ist, insbesondere auf Basis von InGaN.

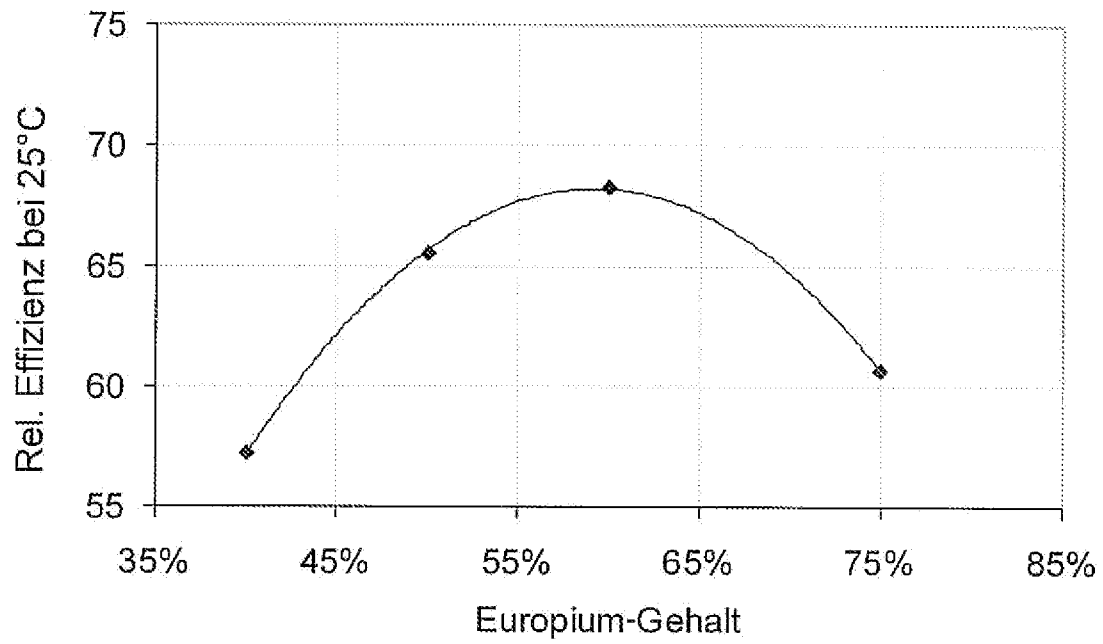


FIG 1

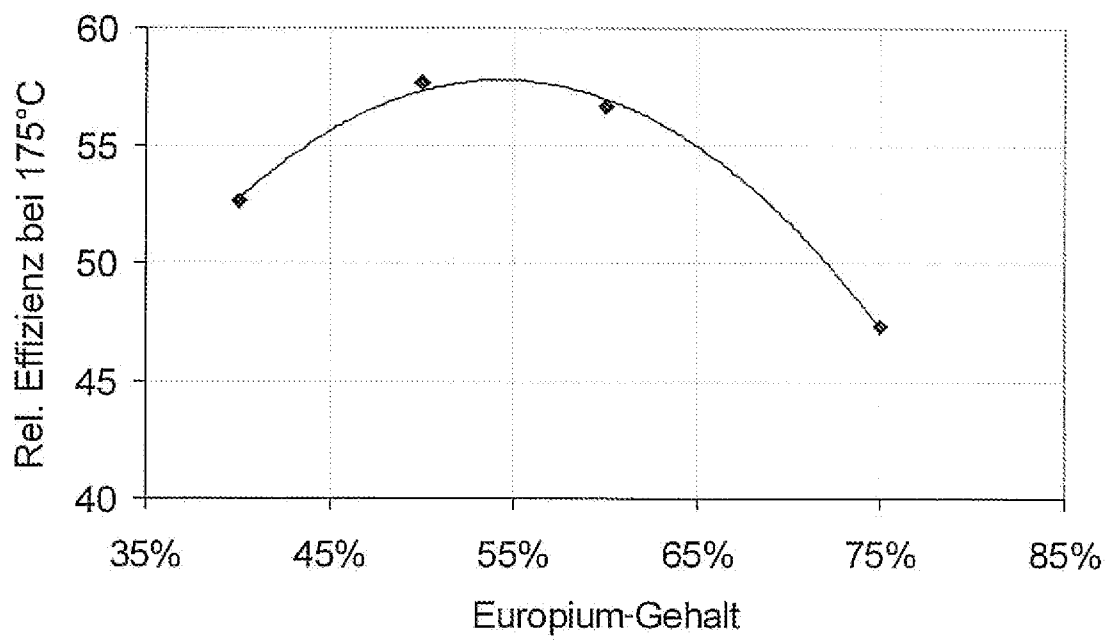


FIG 2



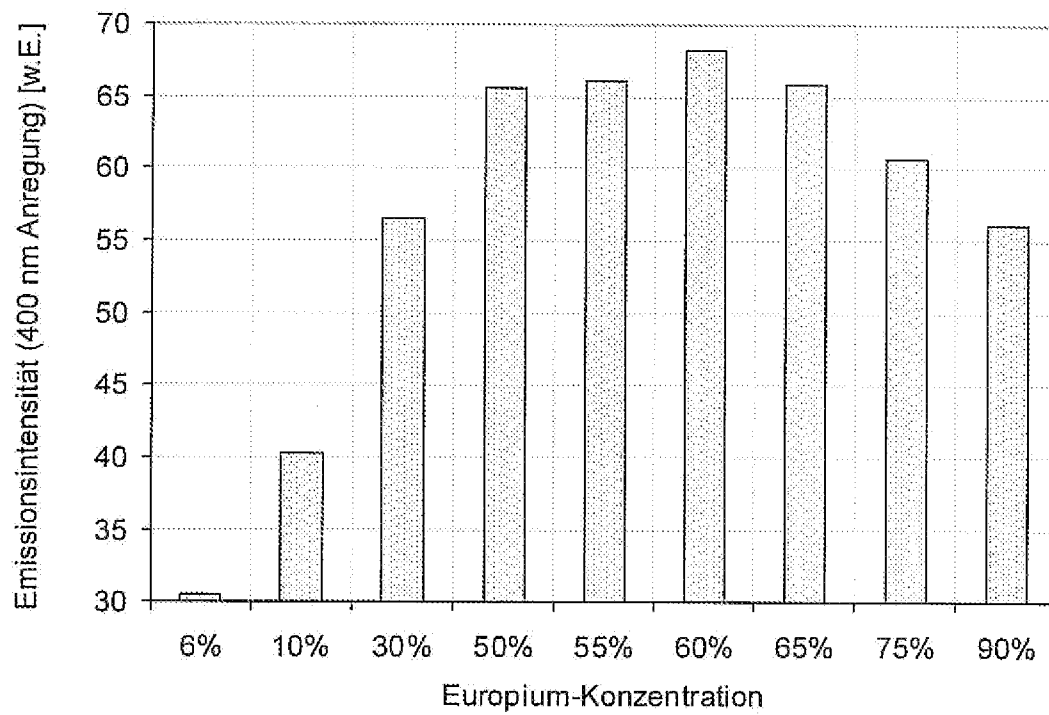


FIG 3

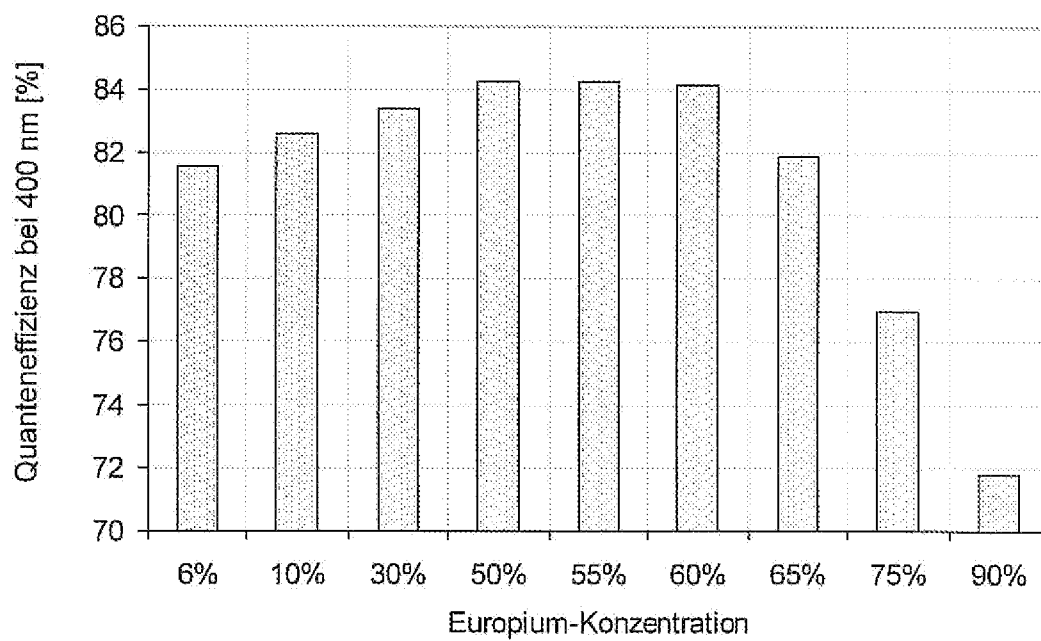


FIG 4

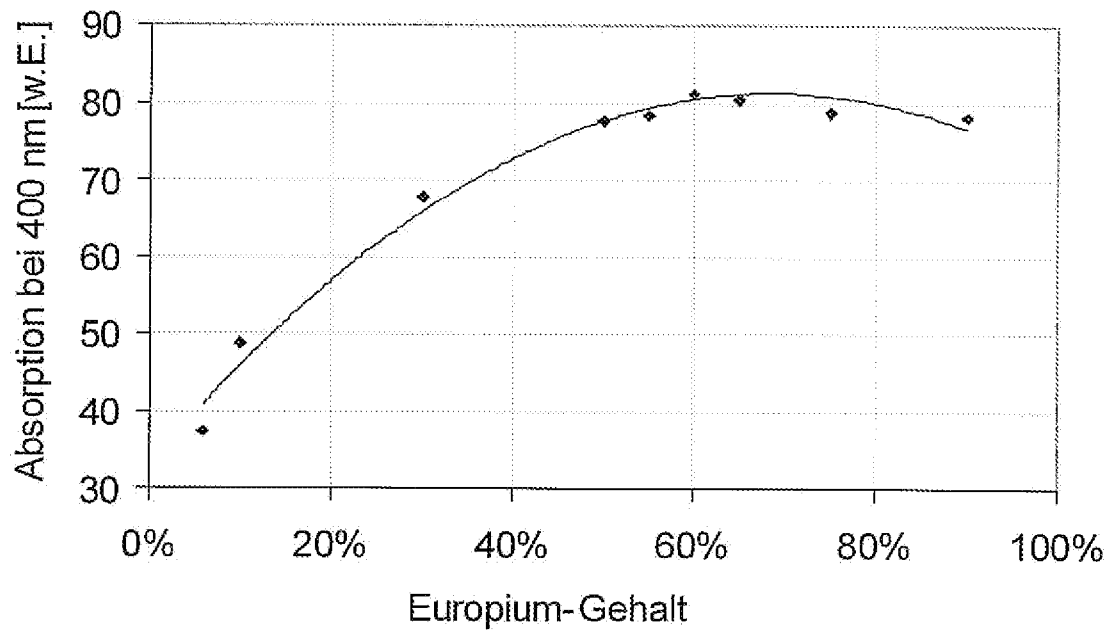


FIG 5

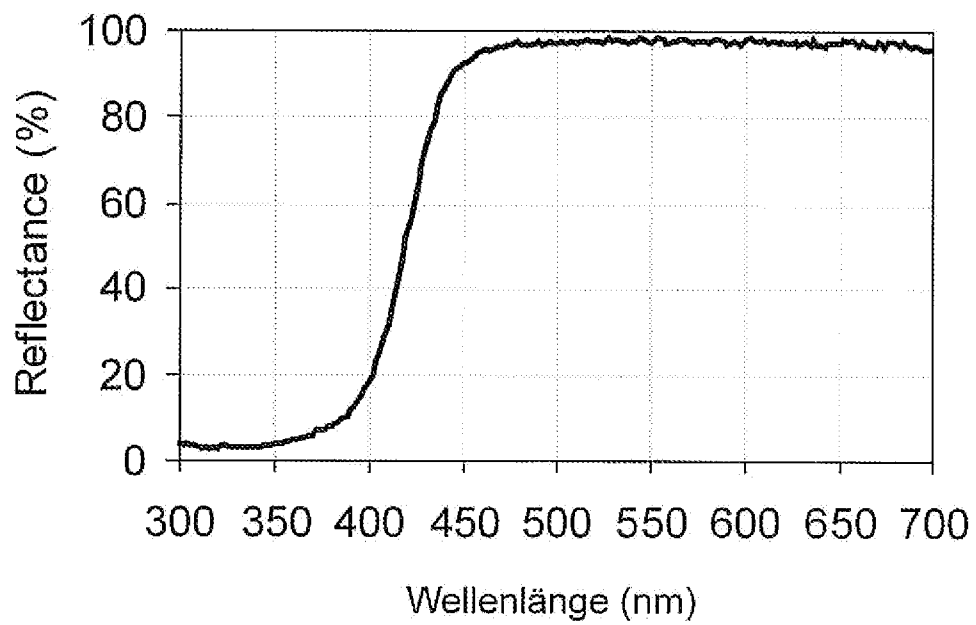


FIG 6

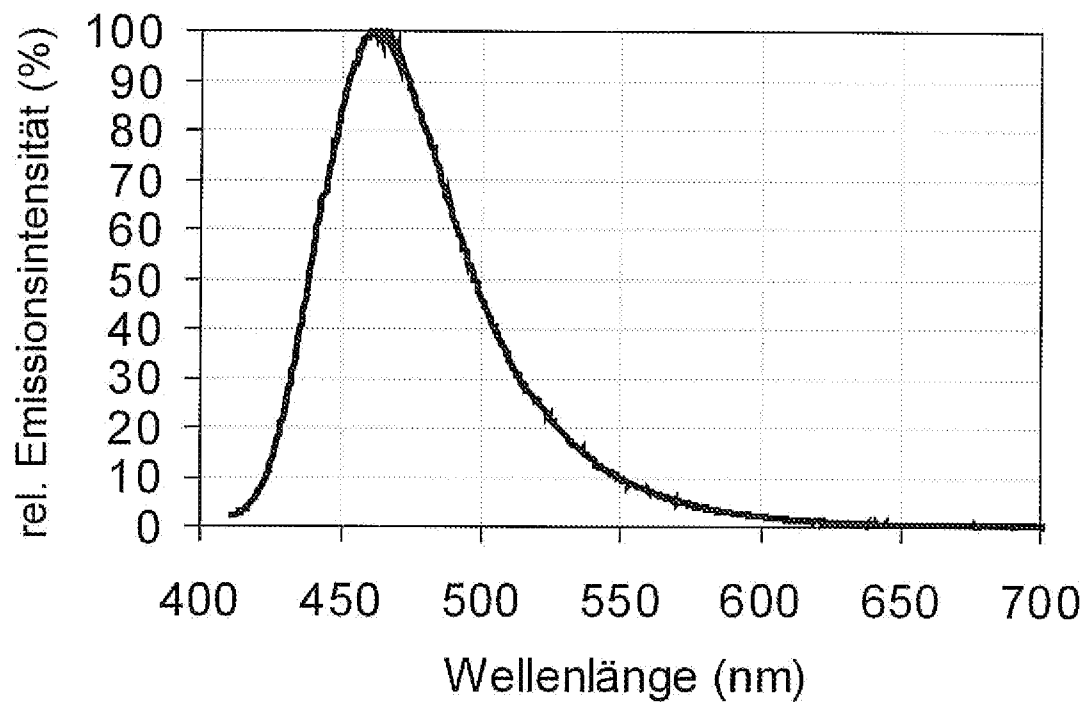


FIG 7

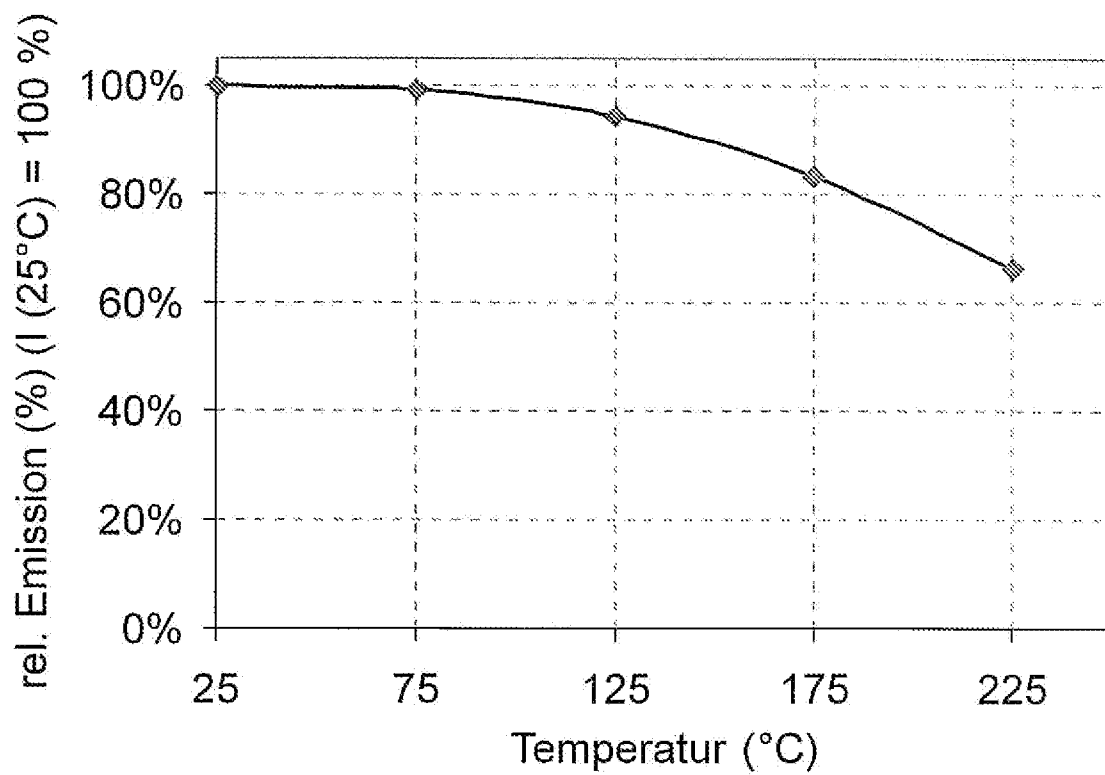


FIG 8

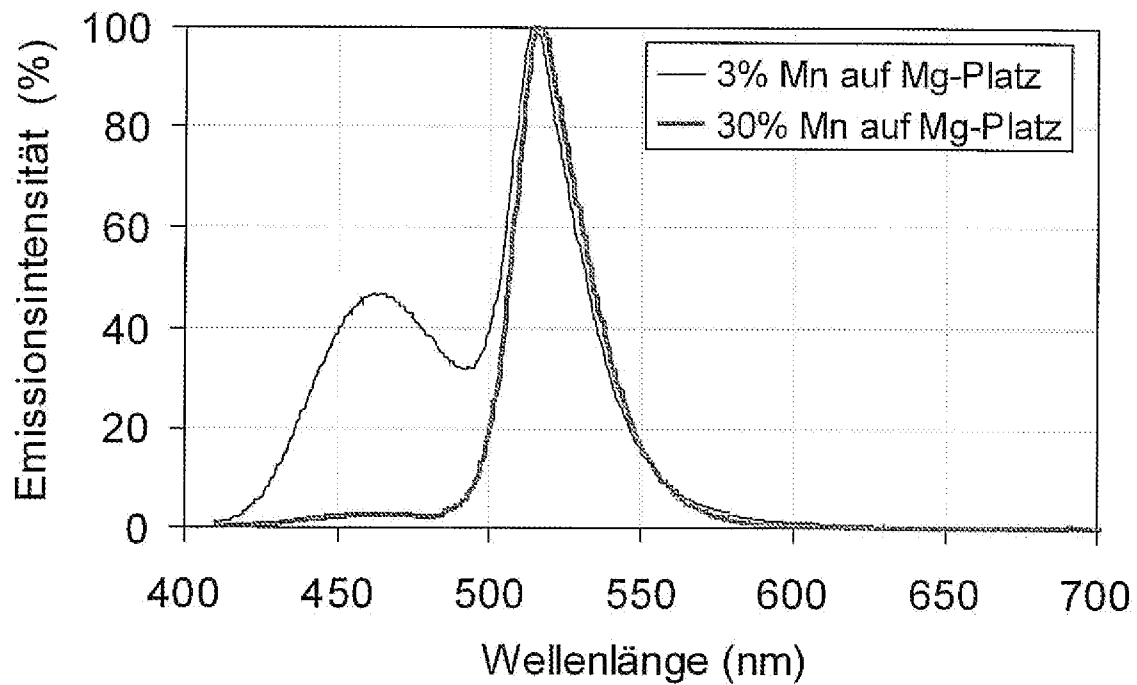


FIG 9

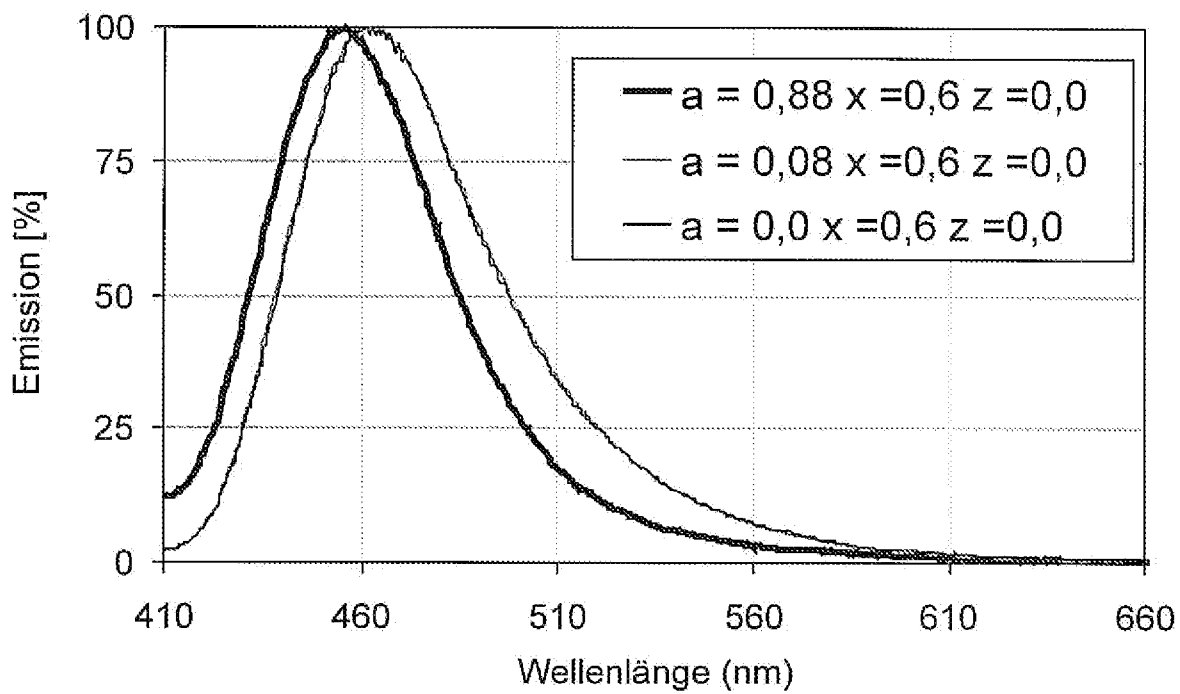


FIG 10

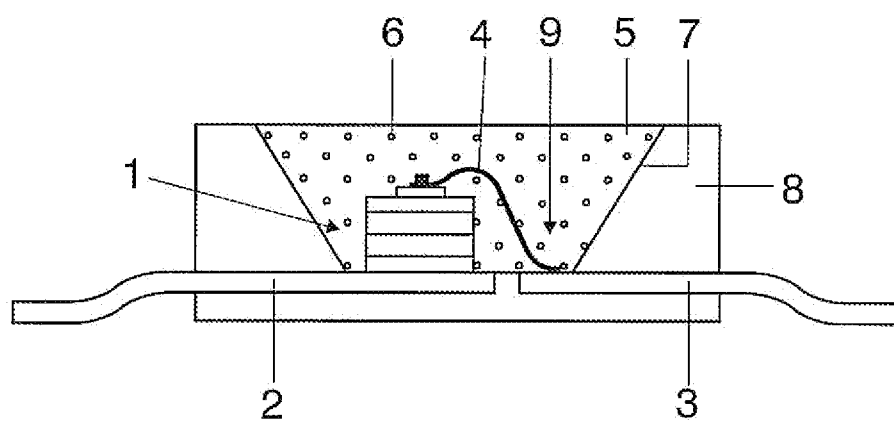


FIG 11

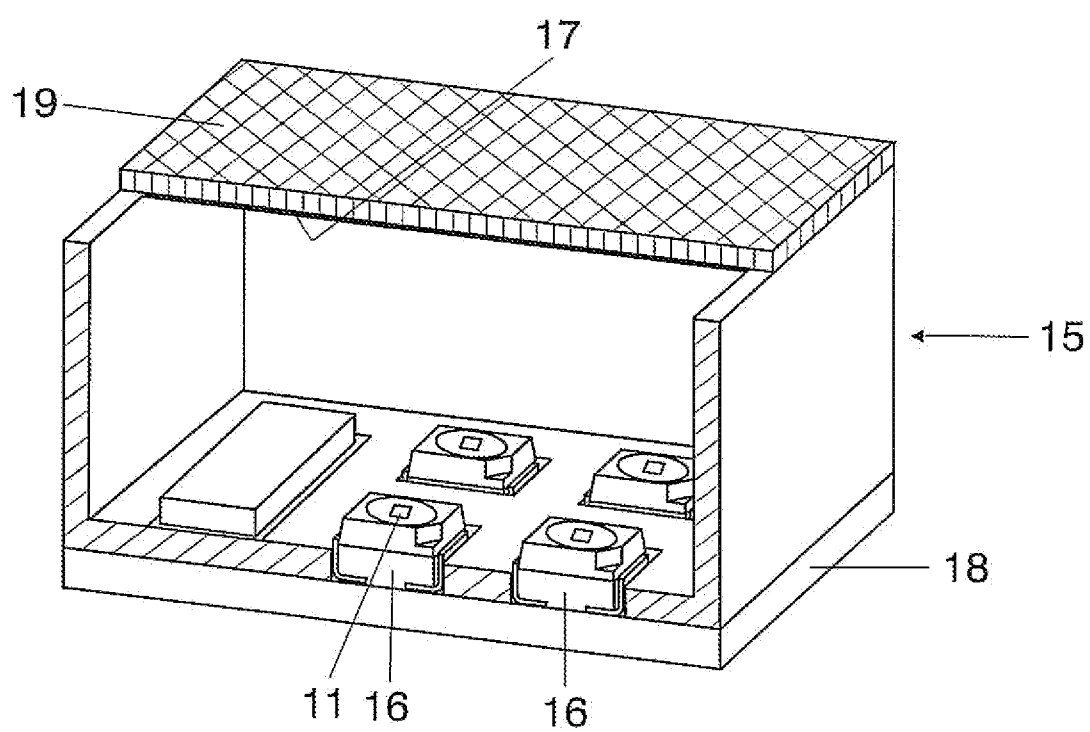
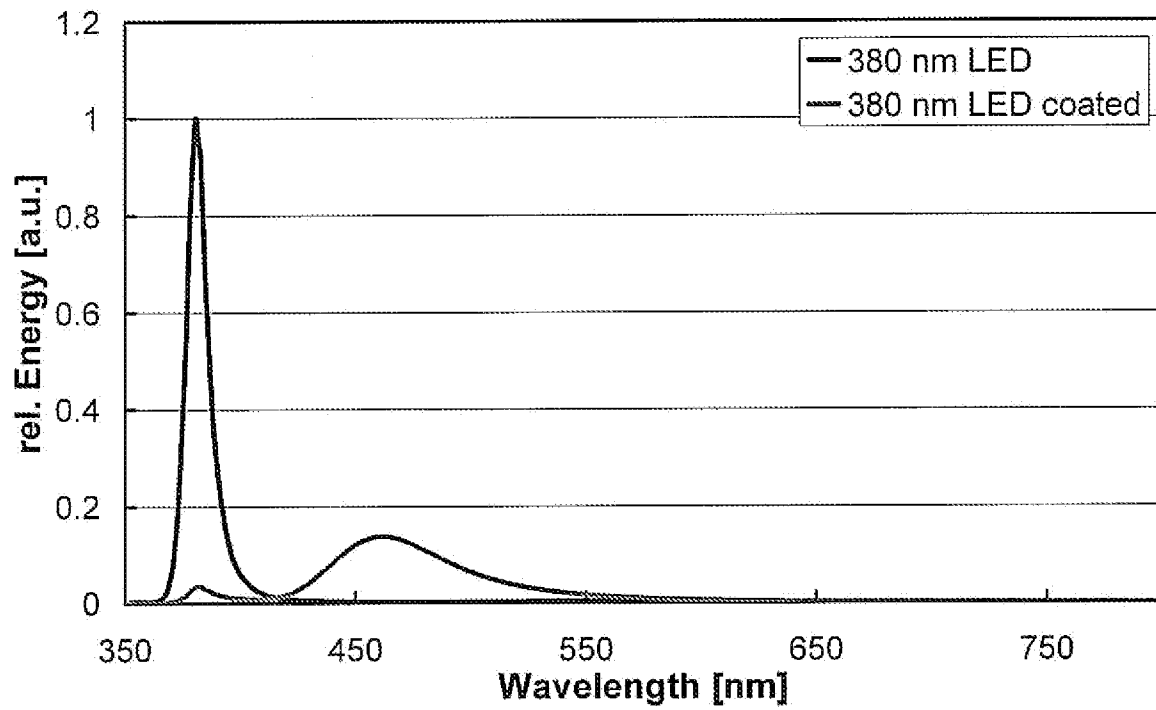


FIG 12



Figur 13

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No

PCT/EP2008/065648

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
 INV. C09K11/77 H01L33/00

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)

C09K H01L

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

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

EPO-Internal, WPI Data

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	US 2006/027781 A1 (DONG YI [US] ET AL) 9 February 2006 (2006-02-09) abstract paragraph [0066]; figure 14	1-11
Y	WO 2007/005486 A (INTEMATIX CORP [US]; DONG YI [US]; WANG NING [US]; CHENG SHIFAN [US];) 11 January 2007 (2007-01-11) page 4, lines 1-24	1-11
Y	WO 2007/020556 A (PHILIPS INTELLECTUAL PROPERTY [DE]; KONINKL PHILIPS ELECTRONICS NV [NL]) 22 February 2007 (2007-02-22) page 7, lines 20-25 page 9, lines 10-15; figure 1	1,2,5-7, 9-11
	-/--	

☒ 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 document 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

13 Februar 2009

Date of mailing of the international search report

04/03/2009

Name and mailing address of the ISA/

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
 NL - 2280 HV Rijswijk  
 Tel. (+31-70) 340-2040,  
 Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Meacher, David

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No

PCT/EP2008/065648

## C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	US 6 255 670 B1 (SRIVASTAVA ALOK MANI [US] ET AL) 3 July 2001 (2001-07-03) column 3, lines 12-17 column 8, lines 45-52; figure 5	1,2,5-7, 9-11
Y	US 2005/253114 A1 (SETLUR ANANT A [US] ET AL SETLUR ANANT ACHYUT [US] ET AL) 17 November 2005 (2005-11-17) cited in the application abstract	3,4
Y	US 6 466 135 B1 (SRIVASTAVA ALOK MANI [US] ET AL) 15 October 2002 (2002-10-15) column 6, lines 36-41	8
Y	WO 2007/125493 A (KONINKL PHILIPS ELECTRONICS NV [NL]; HILDENBRAND VOLKER D [NL]; MERCIE) 8 November 2007 (2007-11-08) page 14, lines 7,8; figure 1	1



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/EP2008/065648

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 2006027781	A1	09-02-2006	AU 2004322660 A1	02-03-2006
			BR PI0418983 A	11-12-2007
			CA 2575615 A1	02-03-2006
			CN 101019241 A	15-08-2007
			CN 101292009 A	22-10-2008
			EP 1784872 A2	16-05-2007
			JP 2008509552 T	27-03-2008
			KR 20070041737 A	19-04-2007
			US 2006027785 A1	09-02-2006
			US 2008073616 A1	27-03-2008
			WO 2006022793 A2	02-03-2006
WO 2007005486	A	11-01-2007	CN 101243158 A	13-08-2008
			EP 1904602 A2	02-04-2008
			JP 2008545048 T	11-12-2008
			KR 20080019269 A	03-03-2008
			US 2006027786 A1	09-02-2006
WO 2007020556	A	22-02-2007	CN 101243557 A	13-08-2008
			KR 20080046191 A	26-05-2008
US 6255670	B1	03-07-2001	NONE	
US 2005253114	A1	17-11-2005	NONE	
US 6466135	B1	15-10-2002	NONE	
WO 2007125493	A	08-11-2007	EP 2016630 A2	21-01-2009

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2008/065648

**A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES**  
INV. C09K11/77 H01L33/00

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPC) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPC

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)  
C09K H01L

Recherchierte, aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	US 2006/027781 A1 (DONG YI [US] ET AL) 9. Februar 2006 (2006-02-09) Zusammenfassung Absatz [0066]; Abbildung 14 -----	1-11
Y	WO 2007/005486 A (INTEMATIX CORP [US]; DONG YI [US]; WANG NING [US]; CHENG SHIFAN [US];) 11. Januar 2007 (2007-01-11) Seite 4, Zeilen 1-24 -----	1-11
Y	WO 2007/020556 A (PHILIPS INTELLECTUAL PROPERTY [DE]; KONINKL PHILIPS ELECTRONICS NV [NL] 22. Februar 2007 (2007-02-22) Seite 7, Zeilen 20-25 Seite 9, Zeilen 10-15; Abbildung 1 ----- -/--	1,2,5-7, 9-11

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen ☒ Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

\*A\* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

\*E\* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

\*L\* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

\*O\* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

\*P\* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

\*T\* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

\*X\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

\*Y\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

\*Z\* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

13. Februar 2009

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

04/03/2009

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde  
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Meacher, David

## C. (Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	US 6 255 670 B1 (SRIVASTAVA ALOK MANI [US] ET AL) 3. Juli 2001 (2001-07-03) Spalte 3, Zeilen 12-17 Spalte 8, Zeilen 45-52; Abbildung 5	1, 2, 5-7, 9-11
Y	US 2005/253114 A1 (SETLUR ANANT A [US] ET AL SETLUR ANANT ACHYUT [US] ET AL) 17. November 2005 (2005-11-17) in der Anmeldung erwähnt Zusammenfassung	3, 4
Y	US 6 466 135 B1 (SRIVASTAVA ALOK MANI [US] ET AL) 15. Oktober 2002 (2002-10-15) Spalte 6, Zeilen 36-41	8
Y	WO 2007/125493 A (KONINKL PHILIPS ELECTRONICS NV [NL]; HILDENBRAND VOLKER D [NL]; MERCIÉ) 8. November 2007 (2007-11-08) Seite 14, Zeilen 7, 8; Abbildung 1	1

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2008/065648

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 2006027781 A1	09-02-2006	AU 2004322660 A1	02-03-2006
		BR PI0418983 A	11-12-2007
		CA 2575615 A1	02-03-2006
		CN 101019241 A	15-08-2007
		CN 101292009 A	22-10-2008
		EP 1784872 A2	16-05-2007
		JP 2008509552 T	27-03-2008
		KR 20070041737 A	19-04-2007
		US 2006027785 A1	09-02-2006
		US 2008073616 A1	27-03-2008
		WO 2006022793 A2	02-03-2006
WO 2007005486 A	11-01-2007	CN 101243158 A	13-08-2008
		EP 1904602 A2	02-04-2008
		JP 2008545048 T	11-12-2008
		KR 20080019269 A	03-03-2008
		US 2006027786 A1	09-02-2006
WO 2007020556 A	22-02-2007	CN 101243557 A	13-08-2008
		KR 20080046191 A	26-05-2008
US 6255670 B1	03-07-2001	KEINE	
US 2005253114 A1	17-11-2005	KEINE	
US 6466135 B1	15-10-2002	KEINE	
WO 2007125493 A	08-11-2007	EP 2016630 A2	21-01-2009