



(10) **DE 11 2022 002 865 T5** 2024.03.14

(12) **Veröffentlichung**

der internationalen Anmeldung mit der
(87) Veröffentlichungs-Nr.: **WO 2022/255221**
in der deutschen Übersetzung (Art. III § 8 Abs. 2
IntPatÜbkG)
(21) Deutsches Aktenzeichen: **11 2022 002 865.3**
(86) PCT-Aktenzeichen: **PCT/JP2022/021585**
(86) PCT-Anmeldetag: **26.05.2022**
(87) PCT-Veröffentlichungstag: **08.12.2022**
(43) Veröffentlichungstag der PCT Anmeldung
in deutscher Übersetzung: **14.03.2024**

(51) Int Cl.: **C09K 11/64 (2006.01)**
C09K 11/61 (2006.01)

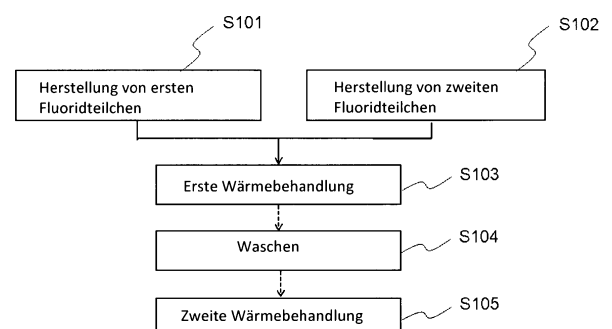
(30) Unionspriorität:
2021-091754 31.05.2021 JP
(71) Anmelder:
NICHIA CORPORATION, Anan-shi, Tokushima, JP
(74) Vertreter:
**VOSSIUS & PARTNER Patentanwälte
Rechtsanwälte mbB, 81675 München, DE**

(72) Erfinder:
**Yoshida, Tomokazu, Anan-shi, Tokushima, JP;
Aoyagi, Kenichi, Anan-shi, Tokushima, JP;
Nishimata, Kazuya, Anan-shi, Tokushima, JP**

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen.

(54) Bezeichnung: **Lichtemittierendes Material und Verfahren zu dessen Herstellung**

(57) Zusammenfassung: Bereitgestellt wird ein lichtemittierendes Material, das einen Phosphor enthält, der rotes Licht mit einer hohen Leuchtdichte emittiert. Das lichtemittierende Material enthält einen Fluoridphosphor mit einer ersten Zusammensetzung, die ein Alkalimetall, enthaltend K, Si, Al, Mn und F enthält. In der ersten Zusammensetzung liegt, wenn eine Gesamtzahl der Mole des Alkalimetalls 2 ist, eine Gesamtzahl der Mole von Si, Al und Mn in einem Bereich von 0,9 bis 1,1, liegt eine Anzahl der Mole von Al in einem Bereich von größer als 0 bis 0,1, liegt eine Anzahl der Mole von Mn in einem Bereich von größer als 0 bis 0,2 und liegt eine Anzahl der Mole von F in einem Bereich von 5,9 bis weniger als 6,0. Der Fluoridphosphor weist eine Kristallstruktur des kubischen Systems auf und weist eine Gitterkonstante von 0,8138 nm oder größer auf.



Beschreibung

Technisches Gebiet

[0001] Die vorliegende Offenbarung betrifft ein lichtemittierendes Material und ein Verfahren zur Herstellung des lichtemittierenden Materials.

Allgemeiner Stand der Technik

[0002] Verschiedene lichtemittierende Vorrichtungen, bei denen ein lichtemittierendes Element und ein Phosphor kombiniert sind, sind entwickelt worden und werden in einem weiten Bereich von Gebieten verwendet, wie bei Beleuchtung, integrierten Leuchten, Anzeigen und Hintergrundleuchten für Flüssigkristalle. Beispielsweise muss ein Phosphor, der in einer lichtemittierenden Vorrichtung in einer Anwendung als Hintergrundleuchte für Flüssigkristalle verwendet wird, eine hohe Farbreinheit aufweisen, das heißt, die Halbwertsbreite des Emissionspeaks muss schmal sein. Beispielsweise offenbart JP 2012-224536 A einen Fluoridphosphor mit einer Zusammensetzung, dargestellt durch $K_2SiF_6:Mn$, als einen roten leuchtenden Phosphor mit einer schmalen Halbwertsbreite des Emissionspeaks.

Zusammenfassung der Erfindung

Technisches Problem

[0003] Außer einer schmalen Halbwertsbreite des Emissionspeaks müssen Phosphore, die in lichtemittierenden Vorrichtungen verwendet werden, auch eine verbesserte Leuchtdichte aufweisen. Beispielsweise gibt es bei der Leuchtdichte des Fluoridphosphors, der in Patentdokument 1 offenbart wird, Spielraum für Verbesserungen. Somit ist eine Aufgabe eines Gesichtspunkts der vorliegenden Offenbarung, ein lichtemittierendes Material bereitzustellen, das einen Phosphor enthält, der rotes Licht mit einer hohen Leuchtdichte emittiert.

Lösung des Problems

[0004] In einem ersten Gesichtspunkt enthält ein lichtemittierendes Material einen Fluoridphosphor mit einer ersten Zusammensetzung, die ein Alkalimetall, enthaltend K; Si; Al; Mn; und F enthält. In der ersten Zusammensetzung liegt, wenn eine Gesamtzahl der Mole des Alkalimetalls 2 ist, eine Gesamtzahl der Mole von Si, Al und Mn in einem Bereich von 0,9 bis 1,1, liegt eine Anzahl der Mole von Al in einem Bereich von größer als 0 bis 0,1, liegt eine Anzahl der Mole von Mn in einem Bereich von größer als 0 bis 0,2 und liegt eine Anzahl der Mole von F in einem Bereich von 5,9 bis weniger als 6,0. Der Fluoridphosphor weist als die Kristallstruktur eine Kristallstruktur des kubischen Systems auf und weist eine Gitterkonstante von 0,8138 nm oder größer auf.

[0005] In einem zweiten Gesichtspunkt enthält ein lichtemittierendes Material einen Fluoridphosphor mit einer ersten Zusammensetzung, die ein Alkalimetall, enthaltend K; Si; Al; Mn; und F enthält. In der ersten Zusammensetzung liegt, wenn eine Gesamtzahl der Mole des Alkalimetalls 2 ist, eine Gesamtzahl der Mole von Si, Al und Mn in einem Bereich von 0,9 bis 1,1, liegt eine Anzahl der Mole von Al in einem Bereich von größer als 0 bis 0,1, liegt eine Anzahl der Mole von Mn in einem Bereich von größer als 0 bis 0,2 und liegt eine Anzahl der Mole von F in einem Bereich von 5,9 bis weniger als 6,0. In einem Infrarot-Absorptionsspektrum weist der Fluoridphosphor einen Absorptionspeak in einem Wellenzahlbereich von 590 cm^{-1} bis 610 cm^{-1} auf.

[0006] In einem dritten Gesichtspunkt schließt ein Verfahren zur Herstellung eines lichtemittierenden Materials ein: Herstellen von ersten Fluoridteilchen mit einer zweiten Zusammensetzung, die ein Alkalimetall, enthaltend K, Si, Mn und F enthält, so dass, wenn eine Gesamtzahl der Mole des Alkalimetalls 2 ist, eine Gesamtzahl der Mole von Si und Mn in einem Bereich von 0,9 bis 1,1 liegt, eine Anzahl der Mole von Mn in einem Bereich von größer als 0 bis 0,2 liegt und eine Anzahl der Mole von F in einem Bereich von 5,5 bis weniger als 6,0 liegt; Herstellen von zweiten Fluoridteilchen mit einer dritten Zusammensetzung, die Alkalimetall, enthaltend K, Al und F enthält, so dass, wenn eine Anzahl der Mole von Al gleich 1 ist, eine Gesamtzahl der Mole des Alkalimetalls in einem Bereich von 2 bis 3 liegt und eine Anzahl der Mole von F in einem Bereich von 5 bis 6 liegt; und Unterziehen eines Gemischs der ersten Fluoridteilchen und der zweiten Fluoridteilchen einer ersten Wärmebehandlung in einer inerten Gasatmosphäre bei einer Temperatur in einem Bereich von 600 °C bis 780 °C , um ein erstes wärmebehandeltes Material herzustellen.

Vorteilhafte Wirkungen der Erfindung

[0007] Gemäß einem Gesichtspunkt der vorliegenden Offenbarung kann ein lichtemittierendes Material, das einen Phosphor enthält, der rotes Licht mit einer hohen Leuchtdichte emittiert, bereitgestellt werden.

Kurze Beschreibung der Zeichnungen

Fig. 1 ist ein Flussdiagramm, das ein Beispiel für den Prozessablauf eines Verfahrens zur Herstellung eines Fluoridphosphors veranschaulicht.

Fig. 2 ist eine schematische Querschnittsansicht, die ein Beispiel für eine lichtemittierende Vorrichtung veranschaulicht, die einen Fluoridphosphor enthält.

Fig. 3 ist ein Diagramm, das Infrarot-Absorptionsspektren von Fluoridphosphoren veranschaulicht.

Fig. 4 ist ein Beispiel für ein rasterelektronenmikroskopisches Bild (SEM-Bild) eines Fluoridphosphors gemäß Vergleichsbeispiel 1.

Fig. 5 ist ein Beispiel für ein SEM-Bild eines Fluoridphosphors gemäß Beispiel 3.

Fig. 6 ist ein Diagramm, das Infrarot-Absorptionsspektren von ersten und zweiten Fluoridteilchen veranschaulicht.

Fig. 7 ist ein Beispiel für ein SEM-Bild des Querschnitts eines Fluoridphosphors gemäß Beispiel 17.

Fig. 8 ist ein Beispiel für ein SEM-Bild des Fluoridphosphors gemäß Beispiel 17.

Beschreibung der Ausführungsformen

[0008] Das Wort „Schritt“ hierin schließt nicht nur einen unabhängigen Schritt ein, sondern auch einen Schritt, der nicht klar von einem anderen Schritt unterschieden werden kann, falls der vorgesehene Zweck des Schritts erreicht wird. Falls eine Mehrzahl von Substanzen, die auf eine einzelne Komponente in einer Zusammensetzung anwendbar sind, vorhanden ist, bedeutet der Gehalt an der einzelnen Komponente in der Zusammensetzung die Gesamtmenge an der Mehrzahl von Substanzen, die in der Zusammensetzung vorhanden sind, sofern nicht anders angegeben. Weiterhin können die numerischen Werte für obere und untere Grenzen von numerischen Bereichen, die hierin beschrieben sind, gegebenenfalls ausgewählt und kombiniert werden. Man beachte, dass hierin Beziehungen, wie die Beziehung zwischen einem Namen für eine Farbe und einer Farbartkoordinate, die Beziehung zwischen einem Wellenlängenbereich von Licht und einem Namen für eine Farbe von monochromatischem Licht, mit JIS Z8110 übereinstimmen. Eine Halbwertsbreite eines lichtemittierenden Materials oder eines lichtemittierenden Elements bedeutet eine Wellenlängenbreite (Halbwertsbreite: HWB) eines Emissionsspektrums, bei dem die Intensität der Lichtemission 50 % der maximalen Intensität der Lichtemission in dem Emissionsspektrum wird. Der Größenmedian des Phosphors oder lichtemittierenden Materials ist der Größenmedian auf der Basis des Volumens und bezieht sich auf die Teilchengröße, die einer Volumenakkumulation von 50 % ausgehend von der Seite der kleinen Größen in einer Teilchengrößenverteilung auf der Basis des Volumens entspricht. Die Teilchengrößenverteilung des Phosphors oder lichtemittierenden Materials wird mit einem Laserbeugungsverfahren unter Verwendung eines Geräts zur Messung der Teilchengrößenverteilung mittels Laserbeugung gemessen. Weiterhin bedeutet in der vorliegenden Beschreibung eine Mehrzahl von Elementen, die in einer Formel beschrieben werden, die eine Zusammensetzung des ersten oder zweiten lichtemittierenden Materials darstellt, und durch Komma (,) getrennt sind, dass mindestens ein Element aus der Mehrzahl von Elementen in der Zusammensetzung enthalten ist. In einer Formel, welche die Zusammensetzung des Phosphors oder lichtemittierenden Materials darstellt, gibt die Beschreibung vor einem Doppelpunkt (:) einen Wirtskristall an und gibt die Beschreibung, die dem Doppelpunkt (:) folgt, ein aktivierendes Element an. Ausführungsformen der vorliegenden Erfindung werden nachstehend ausführlich beschrieben. Die Ausführungsformen, die nachstehend dargestellt werden, veranschaulichen Fluoridphosphore, lichtemittierende Materialien, Verfahren zur Herstellung der Fluoridphosphore und lichtemittierenden Materialien und lichtemittierende Vorrichtungen, welche das technische Konzept der vorliegenden Erfindung verkörpern, aber die vorliegende Erfindung ist nicht auf die Fluoridphosphore, lichtemittierenden Materialien, Verfahren zur Herstellung der Fluoridphosphore und lichtemittierenden Materialien und lichtemittierende Vorrichtungen, die nachstehend dargestellt sind, begrenzt.

[0009] Das lichtemittierende Material enthält einen Fluoridphosphor mit einer ersten Zusammensetzung, die ein Kalium (K)-enthaltendes Alkalimetall, Silizium (Si), Aluminium (Al), Mangan (Mn) und Fluorid (F) enthält. Der Fluoridphosphor weist eine Kristallstruktur des kubischen Systems auf und weist eine Gitterkonstante von 0,8138 nm oder größer auf. Der Fluoridphosphor weist auch einen Absorptionspeak in einem Wellenzahlbereich von 590 cm^{-1} bis 610 cm^{-1} im Infrarot-Absorptionsspektrum auf. In der ersten Zusammensetzung liegt, wenn eine Gesamtzahl der Mole des Alkalimetalls 2 ist, eine Gesamtzahl der Mole von Si, Al und Mn in einem Bereich von 0,9 bis 1,1, liegt eine Anzahl der Mole von Al in einem Bereich von größer als 0 bis 0,1, liegt eine Anzahl der Mole von Mn in einem Bereich von größer als 0 bis 0,2 und liegt eine Anzahl der Mole von F in einem Bereich von 5,5 bis weniger als 6,0. Das Mn, das in dem Fluoridphosphor enthalten ist, kann vierwertige Mn-Ionen einschließen. Beispielsweise kann der Fluoridphosphor mit einem Verfahren zur Herstellung eines Fluoridphosphors hergestellt werden, das später beschrieben wird.

[0010] Der Fluoridphosphor weist eine Zusammensetzung auf, die Si und Al mit einem spezifischen Gehaltsanteil von Al enthält, und weist eine Kristallstruktur des kubischen Systems mit einer Gitterkonstante größer als oder gleich einem vorgegebenen Wert auf und dadurch kann der Fluoridphosphor eine höhere Leuchtdichte zeigen. Als Grund dafür kann beispielsweise folgendes angenommen werden. Das heißt, es ist denkbar, dass das Substituieren einiger Si-Atome, welche die Kristallstruktur des Fluoridphosphors aufbauen, durch Al-Atome das Fehlen von F-Atomen in der Kristallstruktur ausgleicht, was somit die Kristallstruktur stabilisiert. Das Substituieren einiger Si-Atome in der Kristallstruktur des Fluoridphosphors durch Al-Atome bewirkt auch, dass die Gitterkonstante gleich einem oder größer als ein vorgegebener Wert ist. Weiterhin enthält der Fluoridphosphor Al in der Kristallstruktur, was einen Peak, der sich von einer Al-F-Bindung ableitet, beispielsweise im Infrarot-Absorptionsspektrum anzeigt.

[0011] In der ersten Zusammensetzung des Fluoridphosphors kann das Verhältnis der Gesamtzahl der Mole von Si, Al und Mn zu der Gesamtzahl von 2 mol des Alkalimetalls, das in der Zusammensetzung enthalten ist, beispielsweise in einem Bereich von 0,9 bis 1,1 und vorzugsweise in einem Bereich von 0,95 bis 1,05 oder von 0,97 bis 1,03 liegen oder kann 1,0 betragen. Das Verhältnis der Anzahl der Mole von Al zu der Gesamtzahl von 2 mol des Alkalimetalls kann beispielsweise in einem Bereich von größer als 0 bis 0,1 und vorzugsweise in einem Bereich von größer als 0 bis 0,06, größer als 0 bis 0,03, von 0,002 bis 0,02 oder von 0,003 bis 0,015 liegen. Das Verhältnis davon kann auch in einem Bereich von 0,005 bis 0,06 oder von 0,01 bis 0,03 liegen. Das Verhältnis der Anzahl der Mole von Mn zu der Gesamtzahl von 2 mol des Alkalimetalls kann beispielsweise in einem Bereich von größer als 0 bis 0,2 und vorzugsweise in einem Bereich von 0,005 bis 0,15, von 0,01 bis 0,12 oder von 0,015 bis 0,1 liegen. Weiterhin kann in einem Gesichtspunkt das Verhältnis der Anzahl der Mole von F zu der Gesamtzahl von 2 mol des Alkalimetalls beispielsweise in einem Bereich von 5,9 bis 6,1 liegen und liegt vorzugsweise in einem Bereich von 5,9 bis 6,1, von 5,92 bis 6,05 oder von 5,95 bis 6,025. Weiterhin kann in einem Gesichtspunkt das Verhältnis der Anzahl der Mole von F zu der Gesamtzahl von 2 mol des Alkalimetalls beispielsweise in einem Bereich von 5,5 bis weniger als 6,0 liegen und liegt vorzugsweise in einem Bereich von 5,9 bis weniger als 6,0, von 5,96 bis 5,995 oder von 5,97 bis 5,99. In der ersten Zusammensetzung kann das Verhältnis der Anzahl der Mole von Si zu der Gesamtzahl von 2 mol des Alkalimetalls beispielsweise in einem Bereich von 0,7 bis 1,1 und vorzugsweise von 0,8 bis 1,03, von 0,85 bis 1,01 oder von 0,92 bis weniger als 0,95 liegen. In der ersten Zusammensetzung kann das Verhältnis der Anzahl der Mole von Al zu der Anzahl der Mole von Si beispielsweise in einem Bereich von 0,001 bis 0,14 und vorzugsweise von 0,002 bis 0,04 oder von 0,003 bis 0,015 liegen. Die Zusammensetzung des Fluoridphosphors kann beispielsweise mittels Emissionsspektroskopie mit induktiv gekoppeltem Plasma (ICP) gemessen werden.

[0012] Die erste Zusammensetzung des Fluoridphosphors kann den folgenden numerischen Bereich erfüllen. Das Verhältnis der Gesamtzahl der Mole von Si, Al und Mn zu der Gesamtzahl von 2 mol des Alkalimetalls in der Zusammensetzung kann beispielsweise 0,9 oder größer, 0,95 oder größer oder 0,97 oder größer sein und kann 1,1 oder weniger, 1,05 oder weniger, 1,03 oder weniger oder 1,0 oder weniger sein. Das Verhältnis der Anzahl der Mole von Al zu der Gesamtzahl von 2 mol des Alkalimetalls kann beispielsweise größer als 0, 0,002 oder größer, 0,003 oder größer, 0,005 oder größer oder 0,01 oder größer sein und kann 0,06 oder weniger, 0,03 oder weniger, 0,02 oder weniger oder 0,015 oder weniger sein. Das Verhältnis der Anzahl der Mole von Mn zu der Gesamtzahl von 2 mol des Alkalimetalls kann beispielsweise größer als 0, 0,005 oder größer, 0,01 oder größer oder 0,015 oder größer sein und kann 0,2 oder weniger, 0,15 oder weniger, 0,12 oder weniger oder 0,1 oder weniger sein. Außerdem kann das Verhältnis der Anzahl der Mole von F zu der Gesamtzahl von 2 mol des Alkalimetalls beispielsweise 5,5 oder größer, 5,9 oder größer, 5,92 oder größer, 5,95 oder größer oder 5,97 oder größer sein und kann 6,1 oder weniger, 6,05 oder weniger, 6,025

oder weniger, weniger als 6,0, 5,998 oder weniger, 5,995 oder weniger oder 5,99 oder weniger sein. Außerdem kann das Verhältnis der Anzahl der Mole von Si zu der Gesamtzahl von 2 mol des Alkalimetalls beispielsweise 0,7 oder größer, 0,8 oder größer, 0,85 oder größer oder 0,92 oder größer sein und kann 1,1 oder weniger, 1,03 oder weniger, 1,01 oder weniger, weniger als 1 oder weniger als 0,95 sein. Das Verhältnis der Anzahl der Mole von Al zu der Anzahl der Mole von Si kann beispielsweise 0,001 oder größer, 0,002 oder größer oder 0,003 oder größer sein und kann 0,14 oder weniger, 0,04 oder weniger oder 0,015 oder weniger sein.

[0013] Der Fluoridphosphor kann als die erste Zusammensetzung eine Zusammensetzung, dargestellt durch Formel (I), aufweisen.



[0014] In Formel (I) stellt M ein Alkalimetall dar und kann mindestens K einschließen. Mn kann ein vierwertiges Mn-Ion sein. p, q, r und s können $0,9 \leq p + q + r \leq 1,1$, $0 < q \leq 0,1$, $0 < r \leq 0,2$ und $5,9 \leq s \leq 6,1$ oder $5,5 \leq s \leq 6,0$ erfüllen. Vorzugsweise erfüllen p, q, r und s $0,95 \leq (p + q + r) \leq 1,05$, $0,97 \leq p + q + r \leq 1,03$ oder $p + q + r = 1,0$, $0 < q \leq 0,06$, $0 < q \leq 0,03$, $0,002 \leq q \leq 0,02$ oder $0,003 \leq q \leq 0,015$ oder $0,005 \leq q \leq 0,06$ oder $0,01 \leq q \leq 0,03$, $0,005 \leq r \leq 0,15$, $0,01 \leq r \leq 0,12$ oder $0,015 \leq r \leq 0,1$, $5,92 \leq s \leq 6,05$ oder $5,95 \leq s \leq 6,025$ oder $5,9 \leq s < 6,0$, $5,96 \leq s \leq 5,995$ oder $5,97 \leq s \leq 5,99$.

[0015] Außerdem kann der Fluoridphosphor eine erste theoretische Zusammensetzung, dargestellt durch Formel (Ia), aufweisen.



[0016] In Formel (Ia) stellt M ein Alkalimetall dar und kann mindestens K einschließen. Mn kann ein vierwertiges Mn-Ion sein.

[0017] Das Alkalimetall in der Zusammensetzung des Fluoridphosphors und in den Zusammensetzungen der ersten Fluoridteilchen und zweiten Fluoridteilchen, die später beschrieben werden, können mindestens K einschließen und können ein Element, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus Lithium (Li), Natrium (Na), Rubidium (Rb) und Cäsium (Cs) einschließen. Ein Verhältnis der Anzahl der Mole von Kalium (K) zu der Gesamtzahl der Mole des Alkalimetalls in der Zusammensetzung kann beispielsweise 0,90 oder größer und vorzugsweise 0,95 oder größer oder 0,97 oder größer sein. Die obere Grenze für das Verhältnis der Anzahl der Mole von K kann beispielsweise nicht größer als 1 oder 0,995 sein. In der ersten Zusammensetzung können einige der Alkalimetalle durch Ammoniumionen (NH_4^+) substituiert sein. Wenn einige der Alkalimetalle durch Ammoniumionen substituiert sind, kann das Verhältnis der Anzahl der Mole der Ammoniumionen zu der Gesamtzahl der Mole des Alkalimetalls in der Zusammensetzung beispielsweise 0,10 oder weniger und vorzugsweise 0,05 oder weniger oder 0,03 oder weniger sein. Die untere Grenze für das Verhältnis der Anzahl der Mole der Ammoniumionen kann beispielsweise größer als 0 sein und kann vorzugsweise 0,005 oder größer sein.

[0018] Der Fluoridphosphor kann die Kristallstruktur des kubischen Systems einschließen oder kann außer der Kristallstruktur des kubischen Systems eine Kristallstruktur eines anderen Kristallsystems, wie ein hexagonales Kristallsystem, einschließen oder kann im Wesentlichen aus lediglich der Kristallstruktur des kubischen Systems aufgebaut sein. Wie hierin verwendet bedeutet „im Wesentlichen“, dass der Gehaltsanteil der anderen Kristallstrukturen als der Kristallstruktur des kubischen Systems weniger als 0,5 % beträgt. Wenn der Fluoridphosphor die Kristallstruktur des kubischen Systems einschließt, kann die Gitterkonstante beispielsweise 0,8138 nm oder größer und vorzugsweise 0,8140 nm oder größer oder 0,8143 nm oder größer sein. Die obere Grenze für die Gitterkonstante kann beispielsweise 0,8150 nm oder weniger sein. Die Bewertung, ob der Fluoridphosphor die Kristallstruktur des kubischen Systems einschließt, und die Bewertung einer Gitterkonstante der Kristallstruktur des kubischen Systems kann durchgeführt werden, indem ein Röntgenbeugungsmuster des Fluoridphosphors gemessen wird. Das Röntgenbeugungsmuster wird beispielsweise unter Verwendung von CuK α -Strahlung als der Röntgenstrahlungsquelle ($\lambda = 0,15418$ nm, Röhrenspannung 40 kV und Röhrenstrom 40 mA) gemessen.

[0019] Der Fluoridphosphor kann beispielsweise einen Absorptionspeak in einem Wellenzahlbereich von 590 cm^{-1} bis 610 cm^{-1} und vorzugsweise von 593 cm^{-1} bis 607 cm^{-1} oder von 595 cm^{-1} bis 605 cm^{-1} im Infrarot-Absorptionsspektrum aufweisen. Es ist denkbar, dass sich der Absorptionspeak in dem vorgegebenen Wellenzahlbereich von der Al-F-Bindung in beispielsweise einer Kristallstruktur des kubischen Systems ablei-

tet. Das Infrarot-Absorptionsspektrum wird beispielsweise mit dem Verfahren der abgeschwächten Totalreflexion (ATR) gemessen.

[0020] Der Fluoridphosphor kann Unregelmäßigkeiten, Rillen oder dergleichen in der Oberfläche der Teilchen aufweisen. Es wird angenommen, dass sich, indem Al in die Kristallstruktur aufgenommen wird, die Kristallstruktur des Fluoridphosphors ändert, was bewirkt, dass sich Unregelmäßigkeiten, Rillen oder dergleichen auf der Oberfläche der Teilchen bilden. Der Zustand der Teilchenoberfläche kann bewertet werden, indem beispielsweise der Schüttwinkel des Pulvers aus Fluoridphosphor gemessen wird. Der Schüttwinkel des Pulvers, das aus dem Fluoridphosphor gebildet wird, kann beispielsweise 60° oder weniger und vorzugsweise 55° oder weniger oder 50° oder weniger betragen. Die untere Grenze für den Schüttwinkel beträgt beispielsweise 30° oder höher. Der Schüttwinkel des Pulvers kann beispielsweise unter Verwendung eines Instruments zur Messung von Pulvereigenschaften gemessen werden (beispielsweise A. B. D. Powder Tester von Tsutsui Scientific Instruments Co., Ltd.).

[0021] Weiterhin kann der Zustand der Teilchenoberfläche des Fluoridphosphors bewertet werden, indem beispielsweise der Dispersionsgrad, die Schüttdichte oder dergleichen des Pulvers, das aus dem Fluoridphosphor gebildet wird, gemessen wird. Bei einem Fluoridphosphor mit einem vorgegebenen Dispersionsgrad oder einer vorgegebenen Schüttdichte wird die Aggregation des Pulvers, aus dem der Fluoridphosphor gebildet ist, unterdrückt und dadurch wird die Handhabung des Pulvers beim Herstellen einer lichtemittierenden Vorrichtung erleichtert, was die Bearbeitbarkeit beim Prozess des Herstellens der lichtemittierenden Vorrichtung verbessert. Außerdem kann die Packungsdichte des Fluoridphosphors in der lichtemittierenden Vorrichtung erhöht werden und deshalb kann mit einer Verbesserung des Lichtstroms der lichtemittierenden Vorrichtung gerechnet werden. Der Dispersionsgrad des Pulvers, das aus Fluoridphosphor gemacht ist, kann beispielsweise 2,0 % oder größer und vorzugsweise 5,0 % oder größer, 15 % oder größer oder 20 % oder größer sein. Die obere Grenze für den Dispersionsgrad kann beispielsweise 75 % oder weniger, 60 % oder weniger oder 50 % oder weniger sein. Der Dispersionsgrad des Pulvers kann beispielsweise unter Verwendung eines Instruments zur Messung von Pulvereigenschaften gemessen werden (beispielsweise A. B. D. Powder Tester von Tsutsui Scientific Instruments, Co., Ltd.). Genauer gesagt wird der Dispersionsgrad in einem Prozentsatz berechnet, indem eine Probe aus einem Schüttgutbehälter auf eine Schale für einen Dispersionsgrad fallen gelassen wird und das Gewicht der herunter gefallenen Probe abzüglich des Gewichts der Probe, die in der Auffangschale verbleibt, durch das Gewicht der herunter gefallenen Probe dividiert wird.

[0022] Die Schüttdichte des Pulvers, das aus dem Fluoridphosphor gebildet ist, kann beispielsweise 1,00 g·cm⁻³ oder mehr und vorzugsweise 1,05 g·cm⁻³ oder mehr, 1,10 g·cm⁻³ oder mehr oder 1,15 g·cm⁻³ oder mehr betragen. Die obere Grenze für die Schüttdichte kann beispielsweise 1,50 g·cm⁻³ oder weniger, 1,40 g·cm⁻³ oder weniger oder 1,30 g·cm⁻³ oder weniger betragen. Die Schüttdichte wird beispielsweise mit einem normalen Messverfahren unter Verwendung eines Messzylinders gemessen. Die Schüttdichte wird spezifisch beschrieben. Typischerweise wird die Schüttdichte des Pulvers bestimmt, indem das Volumen eines bekannten Gewichts der Pulverprobe, die in dem Messzylinder enthalten ist, gemessen wird oder indem das Gewicht eines bekannten Volumens der Pulverprobe, die durch ein Scott-Volumeter in den Behälter gegeben wurde, gemessen wird oder indem ein dedizierter Messbehälter verwendet wird.

[0023] Ein Verfahren zur Verwendung beispielsweise des Messzylinders wird beschrieben. Zuerst wird eine ausreichende Menge der Probe für die Messung vorbereitet und wird, falls notwendig, durch ein Sieb durchgeseiht. Nachfolgend wird eine erforderliche Menge der Probe in einen Messzylinder mit trockenem und konstantem Volumen gegeben. Die obere Oberfläche der Probe wird gleichmäßig gemacht, falls gewünscht. Diese Arbeitsschritte werden statisch ausgeführt, so dass die physikalischen Eigenschaften der Probe nicht beeinflusst werden. Das Volumen wird dann auf die kleinste Skaleneinheit abgelesen und die Schüttdichte wird bestimmt, indem das Gewicht der Probe pro Volumeneinheit berechnet wird. Die Schüttdichte wird vorzugsweise wiederholt gemessen und wird stärker bevorzugt als ein arithmetischer Mittelwert aus den Messwerten gemessen.

[0024] Aus der Perspektive des Verbesserns der Leuchtdichte kann ein Größenmedian auf Volumenbasis des Fluoridphosphors beispielsweise in einem Bereich von 10 µm bis 90 µm liegen und liegt vorzugsweise in einem Bereich von 15 µm bis 70 µm oder von 20 µm bis 50 µm. Aus der Perspektive des Verbesserns der Leuchtdichte kann die Teilchengrößenverteilung des Fluoridphosphors einen einzigen Peak aufweisen und vorzugsweise einen einzigen Peak mit einem schmalen Verteilungsbereich aufweisen. Genauer gesagt kann in der Teilchengrößenverteilung auf Volumenbasis, wenn die Teilchengröße, die 10 % kumulativem Volumen ausgehend von der kleinen Seite entspricht, D10 ist und die Teilchengröße, die 90 % kumulativem Volumen

ausgehend von der kleinen Seite entspricht, D90 ist, das Verhältnis von D90 zu D10 ($D90/D10$) 3,0 oder weniger betragen.

[0025] Der Fluoridphosphor ist beispielsweise ein Phosphor, der durch vierwertiges Mn aktiviert wird und Licht im Bereich von kurzen Wellenlängen des sichtbaren Lichts absorbiert, um rotes Licht zu emittieren. Das Anregungslicht kann in erster Linie Licht im blauen Bereich sein und die Peakwellenlänge des Anregungslichts kann innerhalb eines Wellenlängenbereichs beispielsweise von 380 nm bis 485 nm liegen. Die Emissionspeakwellenlänge im Emissionsspektrum des Fluoridphosphors oder lichtemittierenden Materials kann beispielsweise innerhalb eines Wellenlängenbereichs von 610 nm bis 650 nm liegen. Die Halbwertsbreite im Emissionsspektrum des Fluoridphosphors oder lichtemittierenden Materials kann beispielsweise 10 nm oder weniger betragen.

[0026] Das lichtemittierende Material kann einen Fluoridphosphor und ein Oxid, welches auf mindestens einem Teil einer Oberfläche des Fluoridphosphors aufgebracht ist, enthalten. Das Oxid kann mindestens ein Element, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus Silizium (Si), Aluminium (Al), Titan (Ti), Zirkonium (Zr), Zinn (Sn) und Zink (Zn), enthalten. Der prozentuale Gehalt an dem Oxid in dem lichtemittierenden Material kann in einem Bereich von 2 Massen% bis 30 Massen-%, bezogen auf das lichtemittierende Material, liegen.

[0027] Mindestens ein Teil einer Oberfläche des Fluoridphosphors mit einer spezifischen Zusammensetzung ist mit einer vorgegebenen Menge eines spezifischen Oxids bedeckt und dadurch verbessert sich beispielsweise die Feuchtigkeitsbeständigkeit des lichtemittierenden Materials. Dadurch kann die Zuverlässigkeit einer lichtemittierenden Vorrichtung verbessert werden, die mit einem fluoreszierenden Bauteil, das ein Harz und das lichtemittierende Material enthält, das den Fluoridphosphor enthält, bereitgestellt wird. Beispielsweise wird eine Abnahme der Masse des fluoreszierenden Bauteils in einer Umgebung von hoher Temperatur oder einer Umgebung von hoher Feuchtigkeit unterdrückt. Von der Abnahme der Masse des fluoreszierenden Bauteils wird angenommen, dass sie hauptsächlich eine Abnahme der Masse des Harzes ist. Es ist denkbar, dass, wenn der Fluoridphosphor und das Harz in einer Umgebung von hoher Temperatur oder einer Umgebung von hoher Feuchtigkeit in direkten Kontakt miteinander kommen, eine gewisse Art von Reaktion eintritt und sich ein Zersetzungsprodukt, bei dem einige interatomare Bindungen des Harzes gebrochen sind, verstreut. Es ist auch denkbar, dass, wenn der Fluoridphosphor mit einer vorgegebenen Menge eines Oxids bedeckt ist, von dem erwogen wird, dass es eine höhere chemische Stabilität als der Fluoridphosphor aufweist, der direkte Kontakt zwischen dem Harz und dem Fluoridphosphor unterdrückt wird und dadurch die Reaktion zwischen dem Harz und dem Fluoridphosphor unterdrückt wird und die Menge an dem Harz beibehalten wird. Es ist auch denkbar, dass, da das Harz auch als ein schützendes Bauteil für das lichtemittierende Material fungiert, eine Abnahme der Menge des Harzes das lichtemittierende Material empfindlicher für den Einfluss der äußeren Umgebung, was Feuchtigkeit einschließt, macht und die Verschlechterung des lichtemittierenden Materials beschleunigt. Außerdem verformt sich, wenn die Menge des Harzes abnimmt, beispielsweise die Form der lichtemittierenden Oberfläche des fluoreszierenden Bauteils in der lichtemittierenden Vorrichtung, die in **Fig. 1** veranschaulicht wird, und als ein Ergebnis nimmt die Möglichkeit der Totalreflexion von Licht aus dem Inneren der lichtemittierenden Vorrichtung zu. Deshalb ist es denkbar, dass die Menge an Licht, die an das Äußere der lichtemittierenden Vorrichtung herausgeholt wird, abnimmt und der Lichtstrom der lichtemittierenden Vorrichtung abnimmt.

[0028] Das lichtemittierende Material kann ein Oxid enthalten, das auf mindestens einem Teil der Oberfläche des Fluoridphosphors aufgebracht ist. Das Oxid kann die Oberfläche des Fluoridphosphors als ein Oxidfilm in einer Filmform bedecken oder kann auf der Oberfläche des Fluoridphosphors in Form einer Oxidschicht aufgebracht sein. Weiterhin ist der Oxidfilm, der die Oberfläche des Fluoridphosphors bedeckt, nicht auf einen Zustand begrenzt, bei dem keine Risse vorhanden sind, und Risse können in einem Teil des Oxidfilms, der die Oberfläche des Fluoridphosphors bedeckt, vorhanden sein, so lange die Wirkung der vorliegenden Erfindung erreicht werden kann. Außerdem kann, auch wenn der Oxidfilm, der die Oberfläche des Fluoridphosphors bedeckt, vorzugsweise die gesamte Oberfläche davon vollständig bedeckt, ein Teil des Oxidfilms zum Teil fehlen und kann ein Teil der Oberfläche des Fluoridphosphors offen liegen, so lange die Wirkung der vorliegenden Erfindung erreicht werden kann. Der Prozentsatz des Fluoridphosphors, der mit dem Oxid bedeckt ist, kann in dem lichtemittierenden Material beispielsweise 50 % oder größer, vorzugsweise 80 % oder größer oder 90 % oder größer sein. Der Prozentsatz des Fluoridphosphors, der mit dem Oxid bedeckt ist, wird als das Verhältnis der Oberfläche, die mit dem Oxid bedeckt ist, zu der Oberfläche des Fluoridphosphors berechnet.

[0029] Das Oxid kann mindestens eines, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus Si, Al, Ti, Zr, Sn und Zn, enthalten. Das heißt, das Oxid kann mindestens eines einschließen, ausgewählt aus der Gruppe, beste-

hend aus Siliziumoxiden (beispielsweise SiO_x , wobei x in einem Bereich von 1 bis 2, vorzugsweise von 1,5 bis 2 liegen oder ungefähr 2 sein kann), Aluminiumoxiden (beispielsweise Al_2O_3), Titanoxiden (beispielsweise TiO_2), Zirkoniumoxiden (beispielsweise ZrO_2), Zinnoxiden (beispielsweise SnO und SnO_2) und Zinkoxiden (beispielsweise ZnO), und kann mindestens ein Siliziumoxid einschließen. Lediglich ein einziger Typ von Oxiden kann eingeschlossen sein oder zwei oder mehr Typen können eingeschlossen sein.

[0030] Der prozentuale Gehalt an dem Oxid in dem lichtemittierenden Material kann in einem Bereich von 2 Massen-% bis 30 Massen-% liegen und liegt vorzugsweise in einem Bereich von 5 Massen-% bis 20 Massen-% oder von 8 Massen-% bis 15 Massen-%, bezogen auf das lichtemittierende Material. Im Hinblick auf den prozentualen Gehalt an dem Oxid in dem lichtemittierenden Material werden, wenn das Oxid beispielsweise Siliziumoxid ist, die Mengen der konstituierenden Elemente, die in dem Fluoridphosphor, der von dem Oxid bedeckt ist, und in dem Fluoridphosphor, der kein Oxid enthält, enthalten sind, mittels Emissionsspektroskopie mit induktiv gekoppeltem Plasma (ICP) analysiert und werden die Molverhältnisse der jeweiligen konstituierenden Elemente derart berechnet, dass die Anzahl der Mole des Alkalimetalls 2 beträgt. Die Differenz der Molverhältnisse von Silizium vor und nach dem Bedecken mit dem Oxid wird in die Masse von Siliziumoxid (beispielsweise SiO_2) umgerechnet und der prozentuale Gehalt an dem Siliziumoxid (beispielsweise SiO_2) wird berechnet, wobei die Masse an dem Fluoridphosphor (lichtemittierendes Material), das mit dem Oxid bedeckt ist, 100 Massen-% beträgt. Die Zuverlässigkeit der lichtemittierenden Vorrichtung kann weiter verbessert werden, indem der prozentuale Gehalt an dem Oxid auf innerhalb des vorstehenden Bereichs festgelegt wird.

[0031] Bei dem lichtemittierenden Material, das einen Fluoridphosphor enthält, kann der Fluoridphosphor mit einer Oxidschicht bedeckt sein. Die mittlere Dicke der Oxidschicht, die den Fluoridphosphor bedeckt, kann beispielsweise in einem Bereich von $0,1\text{ }\mu\text{m}$ bis $1,8\text{ }\mu\text{m}$ und vorzugsweise in einem Bereich von $0,15\text{ }\mu\text{m}$ bis $1,0\text{ }\mu\text{m}$ oder von $0,2\text{ }\mu\text{m}$ bis $0,8\text{ }\mu\text{m}$ liegen. Die mittlere Dicke der Oxidschicht in dem lichtemittierenden Material kann beispielsweise eine tatsächlich gemessene mittlere Dicke sein, die bestimmt wird, indem tatsächlich die Dicke einer Schicht, die als eine Oxidschicht identifiziert wurde, an mehreren Positionen in einem Querschnittsbild des lichtemittierenden Materials gemessen wird und das arithmetische Mittel davon berechnet wird. Die mittlere Dicke der Oxidschicht in dem lichtemittierenden Material kann eine theoretische Dicke sein, die aus dem Intensitätsverhältnis der $K\alpha$ -Strahlung des Elements F, was nachstehend beschrieben wird, berechnet wird. Die theoretische Dicke kann aus einem Verhältnis einer Peakintensität der $K\alpha$ -Strahlung des Elements F in dem Fluoridphosphor (lichtemittierendes Material), der mit einem Oxid bedeckt ist, zu einer Peakintensität der $K\alpha$ -Strahlung des Elements F in dem Fluoridphosphor, der mit keiner Oxidschicht bedeckt ist, unter Verwendung einer Datenbank von The Center for X-Ray Optics (CXRO) berechnet werden. Die theoretische Dicke wird als ein Wert berechnet, indem das Vorhandensein von Fehlern, wie Risse und Absplitterungen, in der Oxidschicht gemittelt wird.

[0032] Bei dem lichtemittierenden Material nimmt, da der Fluoridphosphor mit einem Oxid bedeckt ist, die Peakintensität der charakteristischen Röntgenstrahlung, die sich von dem Fluoridphosphor ableitet, gemäß der Menge an dem Oxid, das den Fluoridphosphor bedeckt, ab. Deshalb kann bei dem lichtemittierenden Material, das den Fluoridphosphor enthält, der Zustand der Bedeckung mit dem Oxid bewertet werden, indem die Peakintensität der charakteristischen Röntgenstrahlung bewertet wird, die sich von dem Fluoridphosphor ableitet. Genauer gesagt kann bei der Elementaranalyse mittels Röntgenfluoreszenz (XRF) das Verhältnis der Peakintensität der $K\alpha$ -Strahlung des Elements F in dem lichtemittierenden Material zu der Peakintensität der $K\alpha$ -Strahlung des Elements F in dem Fluoridphosphor beispielsweise 80 % oder weniger betragen und beträgt vorzugsweise 70 % oder weniger oder 60 % oder weniger. Der untere Grenzwert für das Verhältnis der Peakintensitäten kann beispielsweise 20 % oder größer sein. Die Zuverlässigkeit der lichtemittierenden Vorrichtung kann wirksamer verbessert werden, indem das Verhältnis der Peakintensität der $K\alpha$ -Strahlung des Elements F in dem lichtemittierenden Material auf innerhalb des vorstehenden Bereichs festgelegt wird.

[0033] Bei dem lichtemittierenden Material kann ein Seltenerd-Phosphat auf mindestens einem Teil der Oberfläche des Fluoridphosphors aufgebracht sein. Dies verbessert in der Regel die Feuchtigkeits- und Hitzebeständigkeit des lichtemittierenden Materials weiter. Das Seltenerd-Phosphat, das auf der Oberfläche des Fluoridphosphors aufgebracht ist, kann als Teilchen mit mindestens einem Teil der Oberfläche des Fluoridphosphors verklebt sein oder kann mindestens einen Teil der Oberfläche des Fluoridphosphors als ein Film oder eine Schicht bedecken. Das Seltenerd-Phosphat kann vorzugsweise als Teilchen mit der Oberfläche des Fluoridphosphors verklebt sein.

[0034] Bei dem lichtemittierenden Material kann das Seltenerd-Phosphat auf mindestens einem Teil der Oberfläche des Fluoridphosphors aufgebracht sein und kann das Oxid den Fluoridphosphor bedecken, wobei das Seltenerd-Phosphat dazwischen angeordnet ist. Dies verbessert in der Regel die Feuchtigkeits- und Hitzebeständigkeit des lichtemittierenden Materials weiter. Außerdem verbessert sich die Haftfestigkeit des Oxids an dem Fluoridphosphor und verbessert sich in der Regel die Beschichtbarkeit mit dem Oxid weiter.

[0035] Das Seltenerd-Phosphat kann mindestens ein Seltenerd-Element, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus Lanthan (La), Cer (Ce), Dysprosium (Dy) und Gadolinium (Gd), und vorzugsweise mindestens Lanthan enthalten.

[0036] Als einen prozentualen Gehalt an den Seltenerd-Elementen kann der prozentuale Gehalt an dem Seltenerd-Phosphat in dem lichtemittierenden Material beispielsweise in einem Bereich von 0,1 Massen-% bis 20 Massen-% und vorzugsweise in einem Bereich von 0,2 Massen-% bis 15 Massen-% oder von 0,3 Massen-% bis 10 Massen-% liegen.

[0037] Das lichtemittierende Material, das durch Beschichten des Fluoridphosphors mit dem Oxid und/oder dem Seltenerd-Phosphat hergestellt wird, kann Unregelmäßigkeiten, Rillen oder dergleichen in der Oberfläche davon auf Grund des Zustands der Oberfläche des Fluoridphosphors aufweisen, selbst nachdem es mit dem Oxid und/oder dem Seltenerd-Phosphat beschichtet wurde. Als ein Ergebnis verringert sich die Kontaktfläche zwischen den Teilchen aus dem lichtemittierenden Material auf Grund der Unregelmäßigkeiten und Rillen in der Oberfläche des lichtemittierenden Materials und wird dadurch die Aggregation des lichtemittierenden Materials unterdrückt. Deshalb können die Teilchen aus dem lichtemittierenden Material einheitlicher in einer Harzzusammensetzung bei der Herstellung einer lichtemittierenden Vorrichtung dispergiert werden. Außerdem ist es, falls beispielsweise eine Abgabevorrichtung bei der Herstellung einer lichtemittierenden Vorrichtung verwendet wird, weniger wahrscheinlich, dass Probleme auftreten, wie dass die Nadel der Abgabevorrichtung mit dem lichtemittierenden Material verstopft wird. Außerdem kann eine lichtemittierende Vorrichtung, bei der die Aggregation des lichtemittierenden Materials minimal ist und eine Schwankung der Farbart klein ist, hergestellt werden.

[0038] Die Oberfläche des lichtemittierenden Materials kann weiter mit einem Kupplungsmittel behandelt werden. Das heißt, eine Oberflächenbehandlungsschicht, die eine funktionelle Gruppe enthält, die sich von einem Kupplungsmittel ableitet, kann auf der Oberfläche des lichtemittierenden Materials aufgebracht sein. Indem die Oberflächenbehandlungsschicht auf der Oberfläche des lichtemittierenden Materials aufgebracht wird, verbessert sich beispielsweise die Feuchtigkeitsbeständigkeit des lichtemittierenden Materials weiter.

[0039] Beispiele für die funktionelle Gruppe, die sich von dem Kupplungsmittel ableitet, schließen eine Silylgruppe mit einem aliphatischen Rest mit von 1 bis 20 Kohlenstoffen und vorzugsweise eine Silylgruppe mit einem aliphatischen Rest mit von 6 bis 12 Kohlenstoffen ein. Als die funktionelle Gruppe, die sich von dem Kupplungsmittel ableitet, kann lediglich ein einziger Typ verwendet werden oder kann eine Kombination von zwei oder mehr Typen verwendet werden.

[0040] Beispiele für das Kupplungsmittel schließen ein Silan-Kupplungsmittel, ein Titan-Kupplungsmittel und ein Aluminium-Kupplungsmittel ein. Beispiele für das Silan-Kupplungsmittel schließen Alkyltrialkoxysilane, wie Methyltrimethoxysilan, Ethyltrimethoxysilan, Propyltrimethoxysilan, Hexyltrimethoxysilan, Octyltrimethoxysilan, Decyltrimethoxysilan und Decyltriethylsilan; Aryltrialkoxysilane, wie Phenyltrimethoxysilan und Styryltrimethoxysilan; Vinyltrialkoxysilane, wie Vinyltrimethoxysilan; Aminoalkyltrialkoxysilane, wie 3-Aminopropyltriethoxysilan; und Glycidoxyalkyltrialkoxysilane, wie 3-Glycidoxypropyltrimethoxysilan, ein und das Silan-Kupplungsmittel kann mindestens eines, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus diesen, sein. Aus der Perspektive, das Kupplungsmittel verhältnismäßig leicht beschaffen zu können, ist das Kupplungsmittel vorzugsweise ein Silan-Kupplungsmittel.

Verfahren zur Herstellung von lichtemittierendem Material

[0041] Fig. 1 ist ein Flussdiagramm, das ein Beispiel für Schritte eines Verfahrens zur Herstellung eines lichtemittierenden Materials veranschaulicht. Das Verfahren zur Herstellung des lichtemittierenden Materials kann Herstellen von ersten Fluoridteilchen (S101), Herstellen von zweiten Fluoridteilchen (S102) und Durchführen einer ersten Wärmebehandlung, um ein erstes wärmebehandeltes Material (S103) herzustellen, einschließen. Entweder kann das Herstellen der ersten Fluoridteilchen (S101) oder das Herstellen der zweiten Fluoridteilchen (S102) zuerst getan werden oder kann beides gleichzeitig getan werden. Das Verfahren zur

Herstellung des lichtemittierenden Materials kann auch Waschen (S104) nachfolgend auf das Durchführen der ersten Wärmebehandlung (S103) einschließen und kann ferner nachfolgend auf das Waschen (S104) das Durchführen einer zweiten Wärmebehandlung, um ein zweites wärmebehandeltes Material (S105) herzustellen, einschließen. Das Verfahren zur Herstellung eines lichtemittierenden Materials kann auch nachfolgend auf die erste Wärmebehandlung (S103) das Durchführen einer zweiten Wärmebehandlung ohne Waschen, um ein zweites wärmebehandeltes Material (S105) herzustellen, einschließen.

[0042] Das Verfahren zur Herstellung des lichtemittierenden Materials schließt einen ersten Herstellungsschritt des Herstellens von ersten Fluoridteilchen, einen zweiten Herstellungsschritt des Herstellens von zweiten Fluoridteilchen und einen ersten Wärmebehandlungsschritt des Unterziehens eines Gemischs der ersten Fluoridteilchen und der zweiten Fluoridteilchen einer ersten Wärmebehandlung in einer inerten Gasatmosphäre bei einer Temperatur in einem Bereich von 600 °C bis 780 °C ein, um ein erstes wärmebehandeltes Material herzustellen. Die ersten Fluoridteilchen weisen eine zweite Zusammensetzung auf, die ein Alkalimetall, enthaltend K, und Si, Mn und F enthält. In der zweiten Zusammensetzung liegt, wenn die Gesamtzahl der Mole des Alkalimetalls 2 ist, eine Gesamtzahl der Mole von Si und Mn in einem Bereich von 0,9 bis 1,1, liegt die Anzahl der Mole von Mn in einem Bereich von größer als 0 bis 0,2 und liegt die Anzahl der Mole von F in einem Bereich von 5,9 bis 6,1 oder von 5,5 bis weniger als 6,0. Die zweiten Fluoridteilchen weisen eine dritte Zusammensetzung auf, bestehend aus einem Alkalimetall, enthaltend K, und Al und F. In der dritten Zusammensetzung liegt, wenn die Anzahl der Mole von Al 1 ist, die Gesamtzahl der Mole des Alkalimetalls in einem Bereich von 2 bis 3 und liegt die Anzahl der Mole von F in einem Bereich von 5 bis 6.

[0043] Durch die Wärmebehandlung des Gemischs aus den ersten Fluoridteilchen, die Mn als ein aktivierendes Element enthalten, und den zweiten Fluoridteilchen, die Al enthalten, bei einer spezifischen Temperatur wird Al in die Zusammensetzung der ersten Fluoridteilchen eingeführt, was somit den Fluoridphosphor mit der hohen Leuchtdichte bereitstellt. Dies ist beispielsweise wie folgt denkbar. Das heißt, es ist denkbar, dass die Wärmebehandlung des Gemischs aus den ersten und zweiten Fluoridteilchen bei einer verhältnismäßig hohen Temperatur bewirkt, dass die zweiten Fluoridteilchen in die ersten Fluoridteilchen eingearbeitet werden, und einige der Si-Atome in der Kristallstruktur der ersten Fluoridteilchen durch Al-Atome substituiert, was somit das Fehlen von F-Atomen in der Kristallstruktur des Fluoridphosphors ausgleicht, die Kristallstruktur stabilisiert und die Leuchtdichte verbessert.

Erster Herstellungsschritt

[0044] Im ersten Herstellungsschritt werden die ersten Fluoridteilchen mit der zweiten Zusammensetzung hergestellt. In der zweiten Zusammensetzung kann, bezogen auf die Gesamtzahl von 2 mol des Alkalimetalls, das Verhältnis der Gesamtzahl der Mole von Si und Mn in einem Bereich von 0,9 bis 1,1 liegen, kann das Verhältnis der Anzahl der Mole von Mn in einem Bereich von größer als null bis 0,2 liegen und kann das Verhältnis der Anzahl der Mole von F in einem Bereich von 5,9 bis 6,1 oder von 5,5 bis weniger als 6,0 liegen. Das Verhältnis der Gesamtzahl der Mole von Si und Mn kann vorzugsweise in einem Bereich von 0,95 bis 1,05 oder von 0,97 bis 1,03 liegen. Das Verhältnis der Anzahl der Mole von Mn kann vorzugsweise in einem Bereich von 0,005 bis 0,15, von 0,01 bis 0,12 oder von 0,015 bis 0,1 liegen. Weiterhin kann das Verhältnis der Anzahl der Mole von F vorzugsweise in einem Bereich von 5,95 bis 6,05 oder von 5,97 bis 6,03 oder von 5,9 bis weniger als 6,0, von 5,96 bis 5,995 oder von 5,97 bis 5,99 liegen.

[0045] Die ersten Fluoridteilchen können die Zusammensetzung, dargestellt durch die Formel (III), als die zweite Zusammensetzung aufweisen.



[0046] In Formel (III) stellt M ein Alkalimetall dar und kann mindestens K einschließen. Mn kann ein vierwertiges Mn-Ion sein. b, c und d können $0,9 \leq b + c \leq 1,1$, $0 < c \leq 0,2$, $5,9 \leq d \leq 6,1$ oder $5,5 \leq d < 6,0$ erfüllen. Vorzugsweise erfüllen b, c und d $0,95 \leq b + c \leq 1,05$ oder $0,97 \leq b + c \leq 1,03$, $0,005 \leq c \leq 0,15$, $0,01 \leq c \leq 0,12$ oder $0,015 \leq c \leq 0,1$, $5,95 \leq d \leq 6,05$ oder $5,97 \leq d \leq 6,03$ oder $5,9 \leq d < 6,0$, $5,96 \leq d \leq 5,995$ oder $5,97 \leq d \leq 5,99$.

[0047] Die ersten Fluoridteilchen können eine zweite theoretische Zusammensetzung, dargestellt durch Formel (IIIa), aufweisen.



[0048] In Formel (IIIa) stellt M ein Alkalimetall dar und kann mindestens K einschließen. Mn kann ein vierwertiges Mn-Ion sein.

[0049] Aus der Perspektive des Verbesserns der Leuchtdichte kann der Größenmedian auf Volumenbasis der ersten Fluoridteilchen beispielsweise in einem Bereich von 10 µm bis 90 µm und vorzugsweise in einem Bereich von 15 µm bis 70 µm oder von 20 µm bis 50 µm liegen. Aus der Perspektive des Verbesserns der Leuchtdichte kann die Teilchengrößenverteilung der ersten Fluoridteilchen eine Teilchengrößenverteilung mit einem einzigen Peak sein. Vorzugsweise kann die Teilchengrößenverteilung einen einzigen Peak mit einer schmalen Verteilungsbreite aufweisen. Genauer gesagt kann in der Teilchengrößenverteilung auf Volumenbasis, wenn die Teilchengröße, die 10 % kumulativem Volumen ausgehend von der kleinen Seite entspricht, D10 ist und die Teilchengröße, die 90 % kumulativem Volumen ausgehend von der kleinen Seite entspricht, D90 ist, das Verhältnis von D90 zu D10 ($D90/D10$) 3,0 oder weniger betragen.

[0050] Die ersten Fluoridteilchen werden beispielsweise aus dem Phosphor, der durch vierwertige Mn-Ionen aktiviert ist, hergestellt und können Licht aus einem Bereich von kurzen Wellenlängen des sichtbaren Lichts absorbieren, um rotes Licht zu emittieren. Das Anregungslicht kann in erster Linie Licht im blauen Bereich sein und die Peakwellenlänge des Anregungslichts kann beispielsweise innerhalb eines Wellenlängenbereichs von 380 nm bis 485 nm liegen. Die Emissionspeakwellenlänge im Emissionsspektrum der ersten Fluoridteilchen kann beispielsweise innerhalb eines Wellenlängenbereichs von 610 nm bis 650 nm liegen. Die Halbwertsbreite des Emissionsspektrums der ersten Fluoridteilchen kann beispielsweise 10 nm oder weniger betragen.

[0051] Die ersten Fluoridteilchen können durch Einkaufen oder durch Herstellen mit einem nachstehend beschriebenen Herstellungsverfahren hergestellt werden. Das Folgende beschreibt das Herstellungsverfahren, wenn das Alkalimetall Kalium ist, aber das Herstellungsverfahren kann in gleicher Weise verwendet werden, selbst wenn das Alkalimetall ein anderes Alkalimetall als Kalium einschließt.

[0052] Das Verfahren zur Herstellung der ersten Fluoridteilchen schließt beispielsweise Mischen einer ersten Lösung, die mindestens Kaliumionen und Fluorwasserstoff enthält, einer zweiten Lösung, die mindestens erste komplexe Ionen, die vierwertige Mn-Ionen einschließen, und Fluorwasserstoff enthält, und einer dritten Lösung, die mindestens zweite komplexe Ionen, die Silizium einschließen, und Fluor-Ionen enthält, ein. Durch Mischen der ersten, zweiten und dritten Lösungen können erste Fluoridteilchen, welche die gewünschte Zusammensetzung aufweisen und als der Phosphor fungieren, mit einem einfachen und in hohem Maße produktiven Verfahren hergestellt werden.

[0053] Die erste Lösung enthält mindestens Kaliumionen und Fluorwasserstoff und kann andere Komponenten enthalten, wie es notwendig ist. Die erste Lösung kann beispielsweise als eine wässrige Lösung von Fluorwasserstoffsäure hergestellt werden, in der eine Verbindung gelöst ist, die Kaliumionen enthält. Beispiele für die Verbindung, die Kaliumion enthält, welche die erste Lösung aufbaut, schließen wasserlösliche Verbindungen ein, wie Kaliumion enthaltende Halogenide, Fluorwasserstoff-Verbindung, Hydroxide, Acetate, Carbonate oder dergleichen. Genauer gesagt kann ein wasserlösliches Kaliumsalz, wie KF, KHF_2 , KOH, KCl, KBr, KI, CH_3COOK , K_2CO_3 oder dergleichen, verwendet werden. Insbesondere wird KHF_2 bevorzugt, da es gelöst werden kann, ohne die Fluorwasserstoff-Konzentration in der Lösung zu erniedrigen, und eine niedrige Lösungswärme und hohe Sicherheit aufweist. Ein Typ von Verbindung, der Kaliumionen enthält, der die erste Lösung aufbaut, kann allein verwendet werden oder zwei oder mehrere Typen von Verbindungen können in Kombination verwendet werden.

[0054] Die untere Grenze für die Fluorwasserstoff-Konzentration in der ersten Lösung beträgt typischerweise 1 Massen-% oder größer, vorzugsweise 3 Massen-% oder größer und stärker bevorzugt 5 Massen-% oder größer. Die obere Grenze für die Fluorwasserstoff-Konzentration in der ersten Lösung beträgt typischerweise 80 Massen-% oder weniger, vorzugsweise 75 Massen-% oder weniger und stärker bevorzugt 70 Massen-% oder weniger. Die untere Grenze für die Kaliumionen-Konzentration in der ersten Lösung beträgt typischerweise 1 Massen-% oder größer, vorzugsweise 3 Massen-% oder größer und stärker bevorzugt 5 Massen-% oder größer. Die obere Grenze für die Kaliumionen-Konzentration in der ersten Lösung beträgt typischerweise 30 Massen-% oder weniger, vorzugsweise 25 Massen-% oder weniger und stärker bevorzugt 20 Massen-% oder weniger. Liegt die Kaliumionen-Konzentration bei 5 Massen-% oder größer, verbessert sich in der Regel die Ausbeute an dem ersten Fluoridteilchen.

[0055] Die zweite Lösung enthält mindestens die ersten komplexen Ionen, die vierwertige Mn-Ionen einschließen, und Fluorwasserstoff und kann gegebenenfalls andere Komponenten einschließen, wie es not-

wendig ist. Beispielsweise wird die zweite Lösung als eine wässrige Lösung von Fluorwasserstoffsäure, die eine Quelle für vierwertiges Mangan enthält, hergestellt. Die Manganquelle ist eine Verbindung, die das vierwertige Mn-Ion enthält. Spezifische Beispiele für die Manganquelle, welche die zweite Lösung aufbaut, schließen K_2MnF_6 , $KMnO_4$, K_2MnCl_6 oder dergleichen ein. Unter diesen wird K_2MnF_6 bevorzugt, da es kein Chlor enthält, welches in der Regel das Kristallgitter verzerrt und destabilisiert, und da es stabil in Fluorwasserstoffsäure als komplexes MnF_6 -Ion vorliegen kann, während es eine Oxidationszahl (vierwertig) beibehält, die für die Aktivierung erforderlich ist. Die Manganquelle, die Kaliumionen enthält, kann auch als eine Quelle für Kaliumionen fungieren, die in der ersten Lösung enthalten sind. Eine Manganquelle, welche die zweite Lösung aufbaut, kann allein verwendet werden oder zwei oder mehr Manganquellen können in Kombination verwendet werden.

[0056] Die untere Grenze für die Fluorwasserstoff-Konzentration in der zweiten Lösung beträgt typischerweise 1 Massen-% oder größer, vorzugsweise 3 Massen-% oder größer und stärker bevorzugt 5 Massen-% oder größer. Die obere Grenze für die Fluorwasserstoff-Konzentration in der zweiten Lösung beträgt typischerweise 80 Massen-% oder weniger, vorzugsweise 75 Massen-% oder weniger und stärker bevorzugt 70 Massen-% oder weniger. Die untere Grenze für die Konzentration an erstem komplexen Ion in der zweiten Lösung beträgt typischerweise 0,01 Massen-% oder größer, vorzugsweise 0,03 Massen-% oder größer und stärker bevorzugt 0,05 Massen-% oder größer. Die obere Grenze für die Konzentration an erstem komplexen Ion in der zweiten Lösung beträgt typischerweise 5 Massen-% oder weniger, vorzugsweise 3 Massen-% oder weniger und stärker bevorzugt 2 Massen-% oder weniger.

[0057] Die dritte Lösung enthält mindestens die zweiten komplexen Ionen, die Silizium- und Fluorionen enthalten, und kann andere Komponenten einschließen, wie es notwendig ist. Die dritte Lösung wird beispielsweise als eine wässrige Lösung, die eine Quelle für zweite komplexe Ionen einschließt, hergestellt. Vorzugsweise ist die Quelle für zweite komplexe Ionen eine Verbindung, die Silizium und Fluoridionen enthält, und ist in der Löslichkeit in der Lösung ausgezeichnet. Spezifische Beispiele für die Quelle für zweite komplexe Ionen schließen H_2SiF_6 , Na_2SiF_6 , $(NH_4)_2SiF_6$, Rb_2SiF_6 und Cs_2SiF_6 ein. Unter diesen wird H_2SiF_6 auf Grund seiner hohen Löslichkeit in Wasser und dem Fehlen von Alkalimetallelementen als Verunreinigungen bevorzugt. Eine Quelle für zweite komplexe Ionen, welche die dritte Lösung aufbauen, kann allein verwendet werden oder zwei oder mehr Quellen für zweite komplexe Ionen können in Kombination verwendet werden.

[0058] Die untere Grenze für die Konzentration an zweitem komplexen Ion in der dritten Lösung beträgt typischerweise 10 Massen-% oder größer, vorzugsweise 15 Massen-% oder größer und stärker bevorzugt 20 Massen-% oder mehr. Die obere Grenze für die Konzentration an zweitem komplexen Ion in der dritten Lösung beträgt typischerweise 60 Massen-% oder weniger, vorzugsweise 55 Massen-% oder weniger und stärker bevorzugt 50 Massen-% oder weniger.

[0059] Um die ersten, zweiten und dritten Lösungen zu mischen, können beispielsweise die zweiten und dritten Lösungen zu der ersten Lösung gegeben und gemischt werden, während die erste Lösung gerührt wird, oder können die ersten und zweiten Lösungen zu der dritten Lösung gegeben und gemischt werden, während die dritte Lösung gerührt wird. In einer anderen Ausführungsform können die ersten, zweiten bzw. dritten Lösungen in einen Behälter gegeben und gerührt und gemischt werden.

[0060] Indem die ersten, zweiten und dritten Lösungen gemischt werden, reagieren das erste komplexe Ion, das Kaliumion und das zweite komplexe Ion, um die gewünschten Kristalle des ersten Fluoridteilchens auszufällen. Die ausgefällten Kristalle können durch eine Fest-Flüssig-Trennung mittels Filtration oder dergleichen gesammelt werden. In einer anderen Ausführungsform kann ein Reduktionsmittel, wie Wasserstoffperoxid-Wasser zugegeben werden, oder kann ein Lösungsmittel, wie Ethanol, Isopropylalkohol, Wasser, Aceton oder dergleichen zum Waschen verwendet werden. Eine Trocknungsbehandlung kann ferner durchgeführt werden. Die Trocknungsbehandlung kann typischerweise bei 50 °C oder höher, vorzugsweise 55 °C oder höher, stärker bevorzugt 60 °C oder höher und üblicherweise 110 °C oder niedriger, vorzugsweise 105 °C oder niedriger, stärker bevorzugt 100 °C oder niedriger durchgeführt werden. Was die Trocknungsdauer angeht, gibt es keine spezielle Grenze, aber es ist notwendig, Wasser, das an den ersten Fluoridteilchen haftet, in beispielsweise etwa 10 Stunden zu entfernen.

[0061] Wenn die ersten, zweiten und dritten Lösungen gemischt werden, wird es bevorzugt, das Mischungsverhältnis der ersten, zweiten und dritten Lösungen in passender Weise so einzustellen, dass die Zusammensetzung der ersten Fluoridteilchen als einem Produkt die gewünschte Zusammensetzung wird, wobei die Abweichung zwischen der hergestellten Zusammensetzung des Ausgangsmaterials für den Phosphor und der Zusammensetzung der hergestellten, ersten Fluoridteilchen berücksichtigt wird.

[0062] Das Verfahren zur Herstellung der ersten Fluoridteilchen kann einen Schritt des Klassierens einschließen, bei dem Zerstoßen, Vermahlen, Arbeitsschritte der Klassifizierung oder dergleichen in Kombination nachfolgend auf die Trocknungsbehandlung durchgeführt werden. Der Schritt des Klassierens kann Pulver mit einer gewünschten Teilchengröße bereitstellen.

Zweiter Herstellungsschritt

[0063] Im zweiten Herstellungsschritt werden die zweiten Fluoridteilchen mit einer dritten Zusammensetzung hergestellt. In der dritten Zusammensetzung kann, bezogen auf die Anzahl der Mole von Al von 1, das Verhältnis der Gesamtzahl der Mole des Alkalimetalls in einem Bereich von 1 bis 3 liegen und kann das Verhältnis der Anzahl der Mole von F in einem Bereich von 4 bis 6 liegen. In einem Gesichtspunkt der dritten Zusammensetzung kann, bezogen auf die Anzahl der Mole von Al von 1, das Verhältnis der Gesamtzahl der Mole des Alkalimetalls in einem Bereich von 2 bis 3 liegen und kann das Verhältnis der Anzahl der Mole von F in einem Bereich von 5 bis 6 liegen.

[0064] Die zweiten Fluoridteilchen können eine Zusammensetzung, dargestellt durch die Formel (IV), als die dritte Zusammensetzung aufweisen.



[0065] In Formel (IV) stellt M ein Alkalimetall dar und kann mindestens K einschließen. e und f können $2 \leq e \leq 3$ und $5 \leq f \leq 6$ erfüllen.

[0066] Die zweiten Fluoridteilchen können eine Zusammensetzung, dargestellt durch Formel (IVa) oder (IVb), aufweisen oder können beide Zusammensetzungen einschließen.



[0067] Aus der Perspektive der Reaktivität mit den ersten Fluoridteilchen beträgt die spezifische Oberfläche der zweiten Fluoridteilchen beispielsweise $0,3 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$ oder größer und vorzugsweise $1 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$ oder größer oder $3 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$ oder größer. Die obere Grenze für die spezifische Oberfläche der zweiten Fluoridteilchen kann beispielsweise $30 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$ oder weniger betragen. Die spezifische Oberfläche wird beispielsweise mit dem BET-Verfahren gemessen.

[0068] Die zweiten Fluoridteilchen können durch Einkaufen oder durch Herstellen mit einem bekannten Herstellungsverfahren hergestellt werden.

Erster Wärmebehandlungsschritt

[0069] Ein erster Wärmebehandlungsschritt kann Mischen der hergestellten ersten Fluoridteilchen und zweiten Fluoridteilchen, um ein Gemisch herzustellen, und Unterziehen des hergestellten Gemischs einer ersten Wärmebehandlung in einer inerten Gasatmosphäre bei einem Temperaturbereich von 600°C bis 780°C , um ein erstes wärmebehandeltes Material herzustellen, einschließen. Das erste wärmebehandelte Material schließt einen anvisierten Fluoridphosphor ein.

[0070] Die ersten und zweiten Fluoridteilchen können beispielsweise mittels Trockenmischen gemischt werden, wie es üblicherweise getan wird. Das Trockenmischen kann beispielsweise unter Verwendung eines Hochgeschwindigkeits-Fluidmischers oder dergleichen durchgeführt werden. Als der Gehalt der Anzahl von Molen der ersten und zweiten Fluoridteilchen in dem Gemisch kann das Verhältnis der zweiten Fluoridteilchen zu der Gesamtzahl der Mole der ersten und zweiten Fluoridteilchen beispielsweise in einem Bereich von größer als 0 bis weniger als 0,1 liegen. Es beträgt vorzugsweise weniger als 0,05 mol oder weniger als 0,03 mol. Die untere Grenze für das Verhältnis der Anzahl von Molen der zweiten Fluoridteilchen kann vorzugsweise 0,003 oder größer oder 0,005 oder größer sein.

[0071] Die Wärmebehandlungstemperatur (auch als die erste Wärmebehandlungstemperatur bezeichnet) in dem ersten Wärmebehandlungsschritt kann beispielsweise 600°C oder höher sein. Vorzugsweise kann die Wärmebehandlungstemperatur 625°C oder höher, 650°C oder höher oder 675°C oder höher sein. Wenn die Wärmebehandlungstemperatur 600°C oder höher ist, können die ersten Fluoridteilchen wirksam die zweiten Fluoridteilchen einarbeiten, was erlaubt, dass einige der Si-Atome in der Kristallstruktur der ersten

Fluoridteilchen durch Al-Atome substituiert werden, um einen Fluoridphosphor mit einer hohen Leuchtdichte herzustellen. Die Wärmebehandlungstemperatur in dem ersten Wärmebehandlungsschritt kann beispielsweise niedriger als 800 °C sein. Vorzugsweise kann die Wärmebehandlungstemperatur 780 °C oder niedriger, 770 °C oder niedriger, 760 °C oder niedriger oder 750 °C oder niedriger sein. Wenn die Wärmebehandlungstemperatur niedriger als 800 °C ist, kann die thermische Zersetzung des Fluoridphosphors wirksam unterdrückt werden. In einer Form kann die erste Wärmebehandlungstemperatur in der ersten Wärmebehandlung in einem Bereich von 650 °C bis 750 °C liegen.

[0072] Die Wärmebehandlungsdauer im ersten Wärmebehandlungsschritt kann beispielsweise in einem Bereich von 1 Stunde bis 40 Stunden, vorzugsweise von 2 Stunden bis 30 Stunden liegen. Liegt die Wärmebehandlungsdauer in dem vorstehenden Bereich, schreitet die Substitution von Si-Atomen durch Al-Atome in der Kristallstruktur der ersten Fluoridteilchen in der Regel wirksamer fort, was dazu führt, dass der Fluoridphosphor eine höhere Leuchtdichte aufweist. Wie hierin verwendet bedeutet die Wärmebehandlungsdauer im ersten Wärmebehandlungsschritt die Dauer, um das Gemisch aus ersten und zweiten Fluoridteilchen bei der ersten Wärmebehandlungstemperatur zu halten. Im ersten Wärmebehandlungsschritt kann eine Temperaturerhöhungsgeschwindigkeit bis zur ersten Wärmebehandlungstemperatur beispielsweise 1 °C/min oder größer sein.

[0073] Im ersten Wärmebehandlungsschritt kann die Wärmebehandlung des Gemischs in der inerten Gasatmosphäre durchgeführt werden. Die inerte Gasatmosphäre bedeutet die Atmosphäre, die als eine Hauptkomponente ein inertes Gas, wie ein Edelgas, beispielsweise Argon, Helium oder dergleichen, oder Stickstoff oder dergleichen, einschließt. Die Hauptkomponente in der inerten Gasatmosphäre kann mindestens ein Typ von Element, ausgewählt aus Argon, Helium, Stickstoff oder dergleichen, sein und kann mindestens Stickstoff einschließen. Die Konzentration des inerten Gases, beispielsweise Stickstoffgas, in der inerten Gasatmosphäre, beträgt 70 Vol.-% oder größer, vorzugsweise 80 Vol.-% oder größer, 85 Vol.-% oder größer, 90 Vol.-% oder größer oder 95 Vol.-% oder größer. Das inerte Gas kann ein reaktives Gas, wie Sauerstoff, als eine unvermeidbare Verunreinigung einschließen. Die Konzentration des reaktiven Gases, das in der Atmosphäre im ersten Wärmebehandlungsschritt enthalten ist, muss 15 Vol.-% oder weniger, vorzugsweise 5 Vol.-% oder weniger, 1 Vol.-% oder weniger, 0,3 Vol.-% oder weniger, 0,1 Vol.-% oder weniger betragen. Die inerte Gasatmosphäre kann frei von reaktivem Gas, wie Sauerstoff, sein. Liegt die Konzentration des reaktiven Gases in der inerten Gasatmosphäre in dem vorstehenden Bereich, kann die Oxidation des vierwertigen Mn im Gemisch ausreichend unterdrückt werden.

[0074] Der Druck während der Wärmebehandlung im ersten Wärmebehandlungsschritt kann beispielsweise Atmosphärendruck (0,101 MPa) betragen. Der Druck während der Wärmebehandlung kann in einem Bereich von höher als 0,101 MPa bis 1 MPa liegen oder kann auf unterhalb Atmosphärendruck (0,101 MPa) verringert werden.

Waschschritt

[0075] Das Verfahren zur Herstellung des lichtemittierenden Materials kann ferner einen Waschschritt einschließen, bei dem das erste wärmebehandelte Material, das im ersten Wärmebehandlungsschritt hergestellt wurde, mit einem ersten flüssigen Medium in Kontakt gebracht wird. Der Waschschritt kann beispielsweise Inkontaktbringen des ersten wärmebehandelten Materials mit dem ersten flüssigen Medium und Durchführen von Fest-Flüssig-Trennung des ersten wärmebehandelten Materials, das mit dem flüssigen Medium in Kontakt gebracht wurde, einschließen und kann, wie es notwendig ist, ferner Trocknen des ersten wärmebehandelten Materials nach der Fest-Flüssig-Trennung einschließen.

[0076] Beispielsweise können mindestens einige Verunreinigungen (beispielsweise ein Alkalimetallfluorid, wie Kaliumfluorid), die im ersten Wärmebehandlungsschritt erzeugt werden, entfernt werden, indem das erste wärmebehandelte Material mit dem ersten flüssigen Medium in Kontakt gebracht wird. Dies kann die Änderung der Zusammensetzung des hergestellten Fluoridphosphors unterdrücken und kann wirksam die Abnahme der Leuchtdichte auf Grund der Änderung der Zusammensetzung unterdrücken.

[0077] Beispiele für das erste flüssige Medium, das mit dem ersten wärmebehandelten Material in Kontakt gebracht werden soll, schließen Niederalkohole, wie Ethanol und Isopropylalkohol; Ketonlösungsmittel, wie Aceton; und Wasser ein. Aus der Perspektive des Entferns von Verunreinigungen kann das erste flüssige Medium mindestens Wasser enthalten und kann das Wasser deionisiertes Wasser, destilliertes Wasser oder gereinigtes Wasser, das durch eine Mikrofiltrationsmembran, eine Ultrafiltrationsmembran, eine Umkehrosmosemembran oder dergleichen gereinigt wurde, sein.

[0078] Das erste flüssige Medium kann ein Reduktionsmittel, wie Wasserstoffperoxid, einschließen. Wenn das erste flüssige Medium das Reduktionsmittel einschließt, können, selbst wenn die vierwertigen Mn-Ionen, die als der Aktivator in dem Fluoridphosphor fungieren, durch die erste Wärmebehandlung oxidiert werden, die oxidierten vierwertigen Mn-Ionen durch das Reduktionsmittel in dem ersten flüssigen Medium reduziert werden und die Emissionseigenschaften des resultierenden Fluoridphosphors können gesteigert werden. Wenn das erste flüssige Medium ein Reduktionsmittel enthält, kann der prozentuale Gehalt an dem Reduktionsmittel beispielsweise in einem Bereich von 0,01 Massen-% bis 5 Massen% und vorzugsweise von 0,05 Massen-% bis 1 Massen-% liegen. Die Menge an dem ersten flüssigen Medium, das zum Kontaktieren des ersten wärmebehandelten Materials verwendet wird, kann beispielsweise in einem Bereich vom 2-fachen bis 20-fachen der Gesamtmasse des ersten wärmebehandelten Materials liegen.

[0079] Das erste wärmebehandelte Material kann mit dem ersten flüssigen Medium in Kontakt gebracht werden, indem das erste wärmebehandelte Material und das erste flüssige Medium gemischt werden und dann das erste flüssige Medium entfernt wird oder indem bewirkt wird, dass das erste flüssige Medium durch das erste wärmebehandelte Material, das in einem Trichter oder dergleichen gehalten wird, durchläuft. Die Kontaktdauer des ersten wärmebehandelten Materials und des ersten flüssigen Mediums kann beispielsweise in einem Bereich von 1 Stunde bis 20 Stunden liegen. Die Kontakttemperatur des ersten wärmebehandelten Materials und des ersten flüssigen Mediums kann beispielsweise in einem Bereich von 10 °C bis 50 °C liegen.

[0080] Das erste wärmebehandelte Material, das in Kontakt mit dem ersten flüssigen Medium ist, kann einer Trocknungsbehandlung unterzogen werden. Eine Trocknungstemperatur während der Trocknung kann beispielsweise 50 °C oder höher, vorzugsweise 55 °C oder höher oder 60 °C oder höher sein und kann auch beispielsweise 110 °C oder niedriger und vorzugsweise 105 °C oder niedriger oder 100 °C oder niedriger sein. Die Trocknungsdauer ist die Dauer, während der mindestens einiges des ersten flüssigen Mediums (beispielsweise Feuchtigkeit), das an dem ersten wärmebehandelten Material haftet, indem es mit dem ersten flüssigen Medium in Kontakt ist, verdampft werden kann und beträgt beispielsweise etwa 10 Stunden.

Zweiter Wärmebehandlungsschritt

[0081] Das Verfahren zur Herstellung des lichtemittierenden Materials kann ferner einen zweiten Wärmebehandlungsschritt einschließen, bei dem das erste wärmebehandelte Material nachfolgend auf den Kontakt mit dem ersten flüssigen Medium einer zweiten Wärmebehandlung bei einer zweiten Wärmebehandlungstemperatur von 400 °C oder höher unterzogen wird, um ein zweites wärmebehandeltes Material herzustellen. Das zweite wärmebehandelte Material enthält einen anvisierten Fluoridphosphor. Das Verfahren zur Herstellung des lichtemittierenden Materials kann ferner einen zweiten Wärmebehandlungsschritt einschließen, bei dem das erste wärmebehandelte Material, das nicht in Kontakt mit dem flüssigen Medium ist, einer zweiten Wärmebehandlung bei einer zweiten Wärmebehandlungstemperatur von 400 °C oder höher unterzogen wird, um ein zweites wärmebehandeltes Material herzustellen.

[0082] Von der Funktion und Wirkung des zweiten Wärmebehandlungsschritts kann angenommen werden, dass sie beispielsweise wie folgt ist. Der Fluoridphosphor, der die erste Zusammensetzung aufweist und mit einem Festphasenreaktionsverfahren durch die erste Wärmebehandlung synthetisiert wurde, enthält ein Gemisch aus Siliziumionen (beispielsweise Si^{4+}), Aluminiumionen (beispielsweise Al^{3+}) und Manganionen (beispielsweise Mn^{4+}) an denselben Atomkoordinaten im Kristall und von den Atomkoordinaten wird angenommen, dass sie in einem Zustand des Aufweisens einer gemischten Valenz vorliegen. Von Leerstellen wird vermutet, dass sie an den Atomkoordinaten der Fluorionen im Kristall gemäß dem Verhältnis der Häufigkeit jedes Ions vorliegen, damit die fehlende Ladung der Kationen mit gemischten Valenzen ausgeglichen wird. Unterdessen liegen bei den Fluoridteilchen, welche die dritte Zusammensetzung aufweisen und durch das Flüssigphasenreaktionsverfahren synthetisiert wurden, eine große Anzahl von Hydroxidionen, die durch die Hydroxidionen, die in der Reaktionslösung vorliegen, in den Kristall eingeführt wurden, auf eine gemischte Art und Weise an den Atomkoordinaten der Fluoridionen im Kristall vor, und es ist denkbar, dass die Hydroxidionen einen Verlust der Stabilität des Phosphors bewirken. Auf der anderen Seite ist es denkbar, dass Hydroxidionen, die einen Verlust der Stabilität des Phosphors bewirken, nicht auf eine gemischte Art und Weise im Fluoridphosphor vorliegen, der die erste Zusammensetzung aufweist und mit dem Festphasenreaktionsverfahren durch die erste Wärmebehandlung synthetisiert wird. Es ist auch denkbar, dass in dem Fluoridphosphor, der die erste Zusammensetzung aufweist und mit dem Festphasenreaktionsverfahren synthetisiert wurde, Manganionen mit unterschiedlichen Valenzen auf eine gemischte Art und Weise in den Kristallen oder auf der Kristalloberfläche des Phosphors vorliegen. Selbst in einem Fall, in dem Manganionen mit unterschiedlichen Valenzen auf eine gemischte Art und Weise in dem Phosphor vorliegen, wie vorstehend

beschrieben, können die Valenzen der Manganionen einheitlich auf einen vierwertigen Zustand eingestellt werden, indem die zweite Wärmebehandlung durchgeführt wird, und es ist denkbar, dass dadurch der Extraktionswirkungsgrad von Fluoreszenzlicht, das von dem Fluoridphosphor emittiert wird, erhöht werden kann.

[0083] Die zweite Wärmebehandlung kann durchgeführt werden, indem das erste wärmebehandelte Material eine vorgegebene Zeitdauer lang bei der zweiten Wärmebehandlungstemperatur gehalten wird. Die zweite Wärmebehandlungstemperatur kann beispielsweise 400 °C oder höher, vorzugsweise höher als 400 °C, wie 425 °C oder höher, 450 °C oder höher oder 480 °C oder höher betragen. Die obere Grenze für die zweite Wärmebehandlungstemperatur kann beispielsweise weniger als 600 °C, vorzugsweise weniger als 580 °C, wie 550 °C oder niedriger oder 520 °C oder niedriger betragen. Die zweite Wärmebehandlungstemperatur kann eine niedrigere Temperatur als die erste Wärmebehandlungstemperatur sein.

[0084] Wenn die zweite Wärmebehandlungstemperatur gleich der oder höher als die vorstehend beschriebene untere Grenze ist, können die Manganionen, die in dem ersten wärmebehandelten Material enthalten sind, in ausreichender Weise in einen einheitlichen vierwertigen Zustand eingestellt werden und verbessert sich in der Regel die Leuchtdichte des resultierenden lichtemittierenden Materials, das den Fluoridphosphor enthält, weiter. Wenn die zweite Wärmebehandlungstemperatur niedriger als oder gleich der vorstehend beschriebenen oberen Grenze ist, wird die Zersetzung des resultierenden lichtemittierenden Materials, das den Fluoridphosphor enthält, wirksamer unterdrückt und verbessert sich in der Regel die Leuchtdichte des resultierenden lichtemittierenden Materials, das den Fluoridphosphor enthält, weiter.

[0085] Die Wärmebehandlungsdauer bei der zweiten Wärmebehandlung, das heißt, die Dauer zum Halten der zweiten Wärmebehandlungstemperatur, kann beispielsweise in einem Bereich von 1 Stunde bis 40 Stunden, vorzugsweise 2 Stunden oder länger oder 3 Stunden oder länger und vorzugsweise 30 Stunden oder weniger, 10 Stunden oder weniger oder 8 Stunden oder weniger betragen. Wenn die Wärmebehandlungsdauer bei der zweiten Wärmebehandlungstemperatur innerhalb des vorstehenden Bereichs liegt, können die Manganionen, die in dem ersten wärmebehandelten Material enthalten sind, in ausreichender Weise in einen einheitlichen vierwertigen Zustand eingestellt werden. Dadurch wird die Kristallstruktur des lichtemittierenden Materials, das den Fluoridphosphor enthält, stabiler und wird in der Regel ein lichtemittierendes Material, das den Fluoridphosphor enthält, mit einer höheren Leuchtdichte hergestellt.

[0086] Die Wärmebehandlungsdauer bei der zweiten Wärmebehandlungstemperatur kann dieselbe wie die Wärmebehandlungsdauer bei der ersten Wärmebehandlungstemperatur sein oder kann länger als die Wärmebehandlungsdauer bei der ersten Wärmebehandlungstemperatur sein. Das heißt, die Wärmebehandlungsdauer bei der zweiten Wärmebehandlungstemperatur kann gleich der oder länger als die Wärmebehandlungsdauer bei der ersten Wärmebehandlungstemperatur sein. Dadurch können die Manganionen, die in dem ersten wärmebehandelten Material enthalten sind, in ausreichender Weise in einen einheitlichen vierwertigen Zustand eingestellt werden und verbessert sich in der Regel die Leuchtdichte des resultierenden lichtemittierenden Materials, das den Fluoridphosphor enthält, weiter.

[0087] Der Druck bei dem zweiten Wärmebehandlungsschritt kann Atmosphärendruck (0,101 MPa) sein oder kann in einem Bereich von größer als Atmosphärendruck bis 5 MPa oder niedriger liegen oder kann in einem Bereich von größer als Atmosphärendruck bis 1 MPa oder niedriger liegen.

[0088] Im zweiten Wärmebehandlungsschritt kann die zweite Wärmebehandlung durchgeführt werden, während das erste wärmebehandelte Material und die Fluor enthaltende Substanz in Kontakt sind. Die Fluor enthaltende Substanz, die im zweiten Wärmebehandlungsschritt verwendet wird, kann bei Zimmertemperatur in einem festen Zustand, einem flüssigen Zustand oder einem gasförmigen Zustand sein. Ein Beispiel für eine Fluor enthaltende Substanz, die in einem festen oder flüssigen Zustand ist, ist NH_4F . Ebenso schließen Beispiele für Fluor enthaltende Substanzen, die in einem gasförmigen Zustand sind, F_2 , CHF_3 , CF_4 , NH_4HF_2 , HF , SiF_4 , KrF_4 , XeF_2 , XeF_4 und NF_3 ein. Die Fluor enthaltende Substanz, die in einem gasförmigen Zustand ist, kann mindestens eine, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus diesen, sein und ist vorzugsweise mindestens eine, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus F_2 und HF .

[0089] Die Fluor enthaltende Substanz, die bei Zimmertemperatur in dem festen oder flüssigen Zustand ist, kann mit dem ersten wärmebehandelten Material nachfolgend auf den Kontakt mit dem flüssigen Medium gemischt werden, womit sie in Kontakt gebracht werden. Beispielsweise kann das erste wärmebehandelte Material mit der Fluor enthaltenden Substanz in einem Bereich von 1 Massen-% bis 20 Massen-% und vorzugsweise von 2 Massen-% bis 10 Massen-%, ausgedrückt als Massenumrechnung auf Fluoratome, bezo-

gen auf die Gesamtmenge des ersten wärmebehandelten Materials und der Fluor enthaltenden Substanz, die 100 Massen-% beträgt, gemischt werden.

[0090] Die Temperatur, bei der das erste wärmebehandelte Material und die Fluor enthaltende Substanz gemischt werden, kann beispielsweise in einem Bereich von Zimmertemperatur ($20\text{ °C} \pm 5\text{ °C}$) bis zu einer niedrigeren Temperatur als die zweite Wärmebehandlungstemperatur liegen oder kann bei der zweiten Wärmebehandlungstemperatur liegen. Genauer gesagt kann die Temperatur, bei der das erste wärmebehandelte Material und die Fluor enthaltende Substanz gemischt werden, eine Temperatur in einem Bereich von 20 °C bis niedriger als 400 °C sein oder kann eine Temperatur von 400 °C oder höher sein. In einem Fall, in dem die Temperatur, bei der das erste wärmebehandelte Material mit der Fluor enthaltenden Substanz in dem bei Zimmertemperatur festen oder flüssigen Zustand in Kontakt gebracht wird, in einem Bereich von 20 °C bis weniger als 400 °C liegt, wird die zweite Wärmebehandlung bei einer Temperatur von 400 °C oder höher durchgeführt, nachdem das erste wärmebehandelte Material und die Fluor enthaltende Substanz in Kontakt gebracht werden.

[0091] Wenn die Fluor enthaltende Substanz ein Gas ist, kann das erste wärmebehandelte Material mit der Fluor enthaltenden Substanz in Kontakt gebracht werden, während es in eine Atmosphäre, welche die Fluor enthaltende Substanz enthält, platziert wird. Die Atmosphäre, welche die Fluor enthaltende Substanz enthält, kann ein inertes Gas, wie ein Edelgas oder Stickstoff, außer der Fluor enthaltenden Substanz enthalten. In diesem Fall kann die Konzentration der Fluor enthaltenden Substanz in der Atmosphäre beispielsweise in einem Bereich von 3 Vol.-% bis 35 Vol.-%, vorzugsweise 5 Vol.-% oder größer oder 10 Vol.-% oder größer und vorzugsweise 30 Vol.-% oder weniger oder 25 Vol.-% oder weniger liegen.

[0092] Das Verfahren zur Herstellung des lichtemittierenden Materials kann einen Schritt des Klassierens einschließen, bei dem das zweite wärmebehandelte Material, das nach dem zweiten Wärmebehandlungsschritt hergestellt wird, einer Kombination aus Zerstoßen, Vermahlen, Arbeitsschritten der Klassifizierung und dergleichen unterzogen wird. Der Schritt des Klassierens kann ein Pulver mit einer gewünschten Teilchengröße erzeugen.

[0093] In einem Gesichtspunkt kann das Verfahren zur Herstellung eines lichtemittierenden Materials ferner einen Druckbeaufschlagungs- und Erwärmungsschritt des Beaufschlagens mit Druck und Erwärms eines Gemischs, welches das erste wärmebehandelte Material und ein zweites flüssiges Medium enthält, einschließen, um ein drittes wärmebehandeltes Material herzustellen. Wenn das erste wärmebehandelte Material der Druckbeaufschlagungs- und Erwärmungsbehandlung zusammen mit dem zweiten flüssigen Medium unterzogen wird, verbessert sich in der Regel die Leuchtdichte des resultierenden lichtemittierenden Materials, das einen Fluoridphosphor enthält, weiter. Hier kann das erste wärmebehandelte Material, das dem Druckbeaufschlagungs- und Erwärmungsschritt unterzogen werden soll, ein Produkt sein, das nach dem Waschschrift mit dem vorstehend beschriebenen ersten flüssigen Medium hergestellt wurde.

[0094] Beispiele für das zweite flüssige Medium schließen Niederalkohole, wie Ethanol und Isopropylalkohol; Ketonlösungsmittel, wie Aceton; und Wasser ein. Aus der Perspektive des Entferns von Verunreinigungen kann das zweite flüssige Medium mindestens Wasser enthalten und kann das Wasser deionisiertes Wasser, destilliertes Wasser oder gereinigtes Wasser, das durch eine Mikrofiltrationsmembran, eine Ultrafiltrationsmembran, eine Umkehrosmosemembran oder dergleichen gereinigt wurde, sein. Das zweite flüssige Medium kann eine Substanz sein, die bei Normaldruck ein Gas ist, sich aber durch Druckbeaufschlagung verflüssigt, oder eine Substanz, die bei Normaltemperatur ein Feststoff ist, sich aber durch Erwärmen verflüssigt. Als das zweite flüssige Medium kann lediglich ein einziger Typ verwendet werden oder können zwei oder mehr Typen kombiniert und verwendet werden und als ein Massenverhältnis, bezogen auf die Gesamtmasse des ersten wärmebehandelten Materials, kann die Menge an dem zweiten flüssigen Medium, das bei der Druckbeaufschlagungs- und Erwärmungsbehandlung verwendet wird, beispielsweise in einem Bereich von 0,5 bis 2 und vorzugsweise in einem Bereich von 0,7 bis 1,6 liegen.

[0095] Das zweite flüssige Medium kann ferner eine Komponente enthalten, die in dem zweiten flüssigen Medium löslich ist. Beispiele für die Komponente, die in dem zweiten flüssigen Medium löslich ist, schließen anorganische Säuren, wie Fluorwasserstoff (HF), Hexafluoridokieselsäure (H_2SiF_6) und Salpetersäure (HNO_3); Peroxide, wie Wasserstoffperoxid; und Salze von anorganischen Säuren, die Kaliumionen enthalten, wie Kaliumhydrogendifluorid (KHF_2), Kaliumnitrat (KNO_3) und Kaliumfluorid (KF), ein. Unter diesen kann das zweite flüssige Medium mindestens Kaliumionen enthalten und kann mindestens ein Salz einer anorganischen Säure, das Kaliumionen enthält, enthalten. Wenn das zweite flüssige Medium Kaliumionen enthält, kann die Konzentration der Kaliumionen beispielsweise in einem Bereich von 5 Massen-% bis 10 Massen-%

liegen. Lediglich ein einzelner Typ von Komponente, die in dem zweiten flüssigen Mediums löslich ist, kann verwendet werden oder zwei oder mehr Typen können in Kombination verwendet werden.

[0096] Unter dem Gesichtspunkt des Verbesserns der Haltbarkeit des lichtemittierenden Materials kann der Druck während der Druckbeaufschlagungsbehandlung beispielsweise 1,5 MPa oder höher, vorzugsweise 2,5 MPa oder höher oder 5,0 MPa oder höher gemäß den Berechnungen sein. Unter den Gesichtspunkten von Haltbarkeit und Produktionseffizienz kann die obere Grenze für den Druck beispielsweise 30 MPa oder niedriger und vorzugsweise 15 MPa oder niedriger sein.

[0097] Die Dauer für die Druckbeaufschlagungsbehandlung kann in passender Weise gemäß den Behandlungsbedingungen, wie der Druck, ausgewählt werden. Unter dem Gesichtspunkt des Verbesserns der Haltbarkeit kann die Behandlungsdauer beispielsweise 4 Stunden oder länger, vorzugsweise 6 Stunden oder länger oder 8 Stunden oder länger sein. Unter den Gesichtspunkten von Haltbarkeit und Produktionseffizienz kann die obere Grenze für die Behandlungsdauer beispielsweise 48 Stunden oder weniger, vorzugsweise 24 Stunden oder weniger oder 20 Stunden oder weniger sein.

[0098] Bei der Druckbeaufschlagungsbehandlung kann das Gemisch beispielsweise in einen druckfesten, luftdichten Behälter, wie ein Autoklav, eingeführt und unter Druck gesetzt werden. Das Druckbeaufschlagungsverfahren kann in passender Weise aus üblicherweise verwendeten Druckbeaufschlagungsverfahren ausgewählt werden. Genauer gesagt kann die Druckbeaufschlagungsbehandlung beispielsweise durchgeführt werden, indem das Volumen eines druckfesten luftdichten Behälters verringert wird, indem ein Gas, wie Luft oder ein inertes Gas, eingespritzt wird oder indem Druck, der aus dem Dampfdruck des flüssigen Mediums resultiert, verwendet wird oder dergleichen, wenn die Erwärmungsbehandlung durchgeführt wird, während ein luftdichter Zustand beibehalten wird. Die Atmosphäre bei der Druckbeaufschlagungsbehandlung kann eine Luftatmosphäre oder eine inerte Gasatmosphäre sein.

[0099] Unter dem Gesichtspunkt des Verbesserns der Haltbarkeit kann die Temperatur der Erwärmungsbehandlung beispielsweise 100 °C oder höher, vorzugsweise 120 °C oder höher oder 150 °C oder höher sein. Unter den Gesichtspunkten von Haltbarkeit und Produktionseffizienz kann die obere Grenze für die Temperatur der Erwärmungsbehandlung beispielsweise 300 °C oder niedriger und vorzugsweise 200 °C oder niedriger sein.

[0100] Die Dauer für die Erwärmungsbehandlung kann in passender Weise in Übereinstimmung mit den Behandlungsbedingungen, wie die Temperatur, ausgewählt werden. Unter dem Gesichtspunkt der Haltbarkeit kann die Dauer für die Erwärmungsbehandlung beispielsweise 4 Stunden oder länger und vorzugsweise 8 Stunden oder länger sein. Unter den Gesichtspunkten von Haltbarkeit und Produktionseffizienz kann die obere Grenze für die Dauer der Erwärmungsbehandlung beispielsweise 24 Stunden oder weniger und vorzugsweise 20 Stunden oder weniger sein. Die Atmosphäre bei der Erwärmungsbehandlung kann eine Luftatmosphäre oder eine inerte Gasatmosphäre sein.

[0101] Bei dem Verfahren zur Herstellung eines lichtemittierenden Materials können, wenn die Druckbeaufschlagungs- und Erwärmungsbehandlungen durchgeführt werden sollen, die Druckbeaufschlagungsbehandlung und die Erwärmungsbehandlung aufeinander folgend ausgeführt werden oder kann jede Behandlung auf eine zeitlich überlappende Art und Weise durchgeführt werden. Wenn die Druckbeaufschlagungsbehandlung und die Erwärmungsbehandlung auf eine zeitlich überlappende Art und Weise ausgeführt werden, kann beispielsweise die Druckbeaufschlagungsbehandlung unter Verwendung des Dampfdrucks des flüssigen Mediums durchgeführt werden, indem das Gemisch in einen druckfesten luftdichten Behälter eingeführt und dann die Erwärmungsbehandlung ausgeführt wird.

[0102] In dem Verfahren zur Herstellung eines lichtemittierenden Materials kann das erste wärmebehandelte Material den Druckbeaufschlagungs- und Erwärmungsbehandlungen zusammen mit einem zweiten flüssigen Medium unter Bedingungen unterzogen werden, die beispielsweise eine Temperatur in einem Bereich von 120 °C bis 300 °C und einen Druck in einem Bereich von 2,5 MPa bis 30 MPa für eine Dauer in einem Bereich von 8 Stunden bis 48 Stunden einschließen, und vorzugsweise können die Druckbeaufschlagungs- und Erwärmungsbehandlungen bei einer Temperatur in einem Bereich von 150 °C bis 200 °C und einem Druck in einem Bereich von 5,0 MPa bis 12 MPa für eine Dauer in einem Bereich von 6 Stunden bis 24 Stunden durchgeführt werden.

[0103] Außer der Druckbeaufschlagungsbehandlung und der Erwärmungsbehandlung kann das Verfahren zur Herstellung eines lichtemittierenden Materials ferner einen Nachbehandlungsschritt, wie das Unterziehen

eines dritten Wärmebehandlungsmaterials einer Trennungsbehandlung, einer Reinigungsbehandlung oder einer Trocknungsbehandlung, einschließen oder kann einen Schritt des Klassierens einschließen, bei dem Behandlungen, wie Zerstoßen, Vermahlen und Klassifizierung in Kombination durchgeführt werden. Ein Pulver mit einer gewünschten Teilchengröße kann durch den Schritt des Klassierens hergestellt werden.

[0104] Die Einzelheiten des Fluoridphosphors, der in dem lichtemittierenden Material enthalten ist, das mit dem Verfahren zur Herstellung eines lichtemittierenden Materials hergestellt wurde, sind dieselben wie diejenigen des vorstehend beschriebenen Fluoridphosphors. Das heißt, der Fluoridphosphor, der in dem resultierenden lichtemittierenden Material enthalten ist, kann eine Zusammensetzung, dargestellt durch Formel (I), aufweisen.



[0105] In Formel (I) stellt M ein Alkalimetall dar und kann mindestens K einschließen. Ferner erfüllen p, q, rund s $0,9 \leq p + q + r \leq 1,1$, $0 < q < 0,1$, $0 < r \leq 0,2$ und $5,9 \leq s \leq 6,1$ oder $5,5 \leq s \leq 6,0$.

[0106] Das Verfahren zur Herstellung eines lichtemittierenden Materials kann ferner einen Synthetisierschritt des Inkontaktbringens des ersten wärmebehandelten Materials, des zweiten wärmebehandelten Materials oder des dritten wärmebehandelten Materials, das mit dem vorstehend beschriebenen Herstellungsverfahren hergestellt wurde, in einem flüssigen Medium mit einem Metallalkoxid, das mindestens ein Element, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus Si, Al, Ti, Zr, Sn und Zn, enthält, um dadurch ein Oxid, das sich von dem Metallalkoxid ableitet, auf mindestens einem Teil der Oberfläche des Fluoridphosphors, der in dem ersten wärmebehandelten Material, dem zweiten wärmebehandelten Material oder dem dritten wärmebehandelten Material enthalten ist, aufzubringen. In dem Synthetisierschritt kann die Menge an dem Oxid, das aufgebracht werden soll, in einem Bereich von 2 Massen-% bis 30 Massen-%, bezogen auf das lichtemittierende Material, liegen.

[0107] Indem bewirkt wird, dass der Fluoridphosphor, der in dem ersten wärmebehandelten Material, dem zweiten wärmebehandelten Material oder dem dritten wärmebehandelten Material enthalten ist, und das Metallalkoxid in einem flüssigen Medium in Kontakt kommen, kann ein lichtemittierendes Material, bei dem ein Oxid, das sich von dem Metallalkoxid ableitet, auf mindestens einem Teil der Oberfläche des Fluoridphosphors aufgebracht ist, wirksam hergestellt werden. In einer lichtemittierenden Vorrichtung, die mit einem fluoreszierenden Bauteil bereitgestellt wird, welches das hergestellte lichtemittierende Material und ein Harz enthält, verbessert sich beispielsweise die Zuverlässigkeit in einer Umgebung mit hoher Temperatur.

[0108] Im Synthetisierschritt kann ein Oxid, das sich von dem Metallalkoxid ableitet, durch Solvolyse des Metallalkoxids hergestellt werden und wird ein lichtemittierendes Material hergestellt, bei dem das hergestellte Oxid auf mindestens einem Teil der Oberfläche des Fluoridphosphors aufgebracht ist, der in dem zweiten wärmebehandelten Material enthalten ist.

[0109] Eine aliphatische Gruppe des Alkoxids, welches das Metallalkoxid aufbaut, kann beispielsweise eine Anzahl von Kohlenstoffen in einem Bereich von 1 bis 6, vorzugsweise von 1 bis 4 oder von 1 bis 3 aufweisen. Das Oxid kann mindestens ein Element, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus Si, Al, Ti, Zr, Sn und Zn, einschließen. Für jedes aus dem Metall und der aliphatischen Gruppe, die in dem Metallalkoxid enthalten sind, kann lediglich ein einziger Typ allein verwendet werden oder können zwei oder mehr Typen in Kombination verwendet werden.

[0110] Spezifische Beispiele für das Metallalkoxid schließen Tetramethoxysilan, Tetraethoxysilan, Tetraisopropoxysilan, Trimethoxyaluminium, Triethoxyaluminium, Triisopropoxyaluminium, Tetramethoxytitan, Tetraethoxytitan, Tetraisopropoxytitan, Tetramethoxyzirkonium, Tetraethoxyzirkonium, Tetraisopropoxyzirkonium, Tetraethoxyzinn, Dimethoxyzink und Diethoxyzink ein. Das Metallalkoxid ist vorzugsweise mindestens eines, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus diesen, und ist stärker bevorzugt mindestens eines, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus Tetramethoxysilan, Tetraethoxysilan und Tetraisopropoxysilan. Als Metallalkoxid im Synthetisierschritt kann lediglich ein einziger Typ allein verwendet werden oder können zwei oder mehr Typen in Kombination verwendet werden.

[0111] Als eine Zugabemenge, bezogen auf das Oxid, kann die Zugabemenge an dem Metallalkoxid, die im Synthetisierschritt verwendet wird, beispielsweise in einem Bereich von 2 Massen-% bis 30 Massen-% und vorzugsweise 5 Massen-% oder größer oder 8 Massen-% oder größer und vorzugsweise 25 Massen-% oder weniger oder 20 Massen-% oder weniger, bezogen auf die Gesamtmasse des ersten wärmebehandelten

Materials, des zweiten wärmebehandelten Materials oder des dritten wärmebehandelten Materials, betragen. Als eine Zugabemenge an Metallalkoxid kann die Zugabemenge an dem Metallalkoxid, die im Synthetisierschritt verwendet wird, beispielsweise in einem Bereich von 5 Massen-% bis 110 Massen-% und vorzugsweise 15 Massen-% oder größer oder 25 Massen-% oder größer und vorzugsweise 90 Massen-% oder weniger oder 75 Massen-% oder weniger, bezogen auf die Gesamtmasse des ersten wärmebehandelten Materials, des zweiten wärmebehandelten Materials oder des dritten wärmebehandelten Materials, betragen.

[0112] Der Kontakt zwischen dem ersten wärmebehandelten Material, dem zweiten wärmebehandelten Material oder dem dritten wärmebehandelten Material und dem Metallalkoxid wird in einem flüssigen Medium durchgeführt. Beispiele für das flüssige Medium schließen Wasser; Lösungsmittel auf Alkoholbasis, wie Methanol, Ethanol und Isopropylalkohol; Lösungsmittel auf Nitrilbasis, wie Acetonitril; und Lösungsmittel auf Kohlenwasserstoffbasis, wie Hexan, ein. Das flüssige Medium kann mindestens Wasser und ein Lösungsmittel auf Alkoholbasis enthalten. Wenn das flüssige Medium ein Lösungsmittel auf Alkoholbasis enthält, kann der Gehalt an dem Lösungsmittel auf Alkoholbasis in dem flüssigen Medium beispielsweise 60 Massen-% oder größer und vorzugsweise 70 Massen-% oder größer betragen. Weiterhin kann der Gehalt an Wasser in dem flüssigen Medium beispielsweise in einem Bereich von 4 Massen-% bis 40 Massen-% liegen.

[0113] Das flüssige Medium kann ferner ein Mittel zur Einstellung des pH-Werts enthalten. Beispiele für das Mittel zur Einstellung des pH-Werts schließen eine alkalische Substanz, wie Ammoniak, Natriumhydroxid und Kaliumhydroxid, und eine saure Substanz, wie Salzsäure, Salpetersäure, Schwefelsäure und Essigsäure, ein. Wenn das flüssige Medium ein Mittel zur Einstellung des pH-Werts enthält, kann in sauren Bedingungen der pH-Wert des flüssigen Mediums beispielsweise in einem Bereich von 1 bis 6 und vorzugsweise von 2 bis 5 liegen. In alkalischen Bedingungen kann der pH-Wert des flüssigen Mediums in einem Bereich von 8 bis 12 und vorzugsweise von 8 bis 11 liegen.

[0114] Das Massenverhältnis des flüssigen Mediums zu dem ersten wärmebehandelten Material, dem zweiten wärmebehandelten Material oder dem dritten wärmebehandelten Material kann beispielsweise in einem Bereich von 100 Massen-% bis 1000 Massen-%, vorzugsweise 150 Massen-% oder höher oder 180 Massen-% oder höher und vorzugsweise 600 Massen-% oder niedriger oder 300 Massen-% oder niedriger liegen. Wenn das Massenverhältnis des flüssigen Mediums innerhalb des vorstehend beschriebenen Bereichs liegt, ist der Fluoridphosphor in der Regel einheitlicher mit dem Oxid bedeckt.

[0115] Der Kontakt zwischen dem ersten wärmebehandelten Material, dem zweiten wärmebehandelten Material oder dem dritten wärmebehandelten Material und dem Metallalkoxid kann bewirkt werden, indem beispielsweise das Metallalkoxid zu einer Suspension gegeben wird, die das erste wärmebehandelte Material, das zweite wärmebehandelte Material oder das dritte wärmebehandelte Material enthält. Wie es notwendig ist, kann zu diesem Zeitpunkt Rühren oder dergleichen durchgeführt werden. Weiterhin kann die Kontakttemperatur für den Kontakt zwischen dem ersten wärmebehandelten Material, dem zweiten wärmebehandelten Material oder dem dritten wärmebehandelten Material und dem Metallalkoxid beispielsweise in einem Bereich von 0 °C bis 70 °C und vorzugsweise von 10 °C bis 40 °C liegen. Die Kontaktdauer kann beispielsweise in einem Bereich von 1 Stunde bis 12 Stunden liegen. Man beachte, dass die Zeit, die für die Zugabe des Metallalkoxids erforderlich ist, auch in der Kontaktdauer eingeschlossen ist.

[0116] Das Verfahren zur Herstellung des lichtemittierenden Materials kann ferner nach dem Synthetisierschritt zusätzliche Schritte einschließen, wie einen Schritt des Gewinnens des lichtemittierenden Materials, das im Synthetisierschritt hergestellt wurde, durch Fest-Flüssig-Trennung und einen Schritt des Trocknens des lichtemittierenden Materials nach der Fest-Flüssig-Trennung.

[0117] Das Verfahren zur Herstellung eines lichtemittierenden Materials kann ferner einen Adhäsionsschritt einschließen, in dem das erste wärmebehandelte Material, das zweite wärmebehandelte Material oder das dritte wärmebehandelte Material, die mit dem vorstehend beschriebenen Herstellungsverfahren hergestellt wurden, Seltenerd-Ionen, die mindestens ein Lanthanoid einschließen, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus La, Ce, Dy und Gd, und Phosphat-Ionen in einem flüssigen Medium in Kontakt gebracht werden, um dadurch einen Fluoridphosphor herzustellen, der ein Seltenerd-Phosphat aufweist, das mit mindestens einem Teil der Oberfläche des Fluoridphosphors verklebt ist, der in dem ersten wärmebehandelten Material, dem zweiten wärmebehandelten Material oder dem dritten wärmebehandelten Material enthalten ist.

[0118] Indem bewirkt wird, dass der Fluoridphosphor, der in dem ersten wärmebehandelten Material, dem zweiten wärmebehandelten Material oder dem dritten wärmebehandelten Material enthalten ist, mit Seltenerd-Ionen und Phosphat-Ionen in einem flüssigen Medium in Kontakt kommt, kann wirksam ein lichtemittie-

rendes Material mit einem Seltenerd-Phosphat, das mit mindestens einem Teil der Oberfläche des Fluoridphosphors verklebt ist, hergestellt werden. Weiterhin verbessert sich in der Regel die Feuchtigkeitsbeständigkeit des lichtemittierenden Materials, welches das Seltenerd-Phosphat aufweist, das mit der Oberfläche des Fluoridphosphors verklebt ist.

[0119] In dem Adhäsionsschritt werden der Fluoridphosphor, der in dem ersten wärmebehandelten Material, dem zweiten wärmebehandelten Material oder dem dritten wärmebehandelten Material enthalten ist, die Seltenerd-Ionen und die Phosphat-Ionen miteinander in einem flüssigen Medium in Kontakt gebracht. Dadurch wird das Seltenerd-Phosphat mit der Oberfläche des Fluoridphosphors verklebt und wird ein Fluoridphosphor, auf dem das Seltenerd-Phosphat verklebt ist, hergestellt. Es ist denkbar, dass, indem das Seltenerd-Phosphat mit dem Fluoridphosphor in dem flüssigen Medium verklebt wird, das Seltenerd-Phosphat beispielsweise einheitlicher mit der Oberfläche des Fluoridphosphors verklebt ist.

[0120] Das flüssige Medium muss lediglich eines sein, das die Phosphat-Ionen und die Seltenerd-Ionen lösen kann und enthält unter dem Gesichtspunkt des einfachen Lösen dieser Ionen vorzugsweise mindestens Wasser. Wie es notwendig ist, kann das flüssige Medium ferner ein Reduktionsmittel, wie Wasserstoffperoxid, ein organisches Lösungsmittel, ein Mittel zur Einstellung des pH-Werts und dergleichen einschließen. Beispiele für das organische Lösungsmittel, das in dem flüssigen Medium enthalten sein kann, schließen Alkohole, wie Ethanol und Isopropanol, ein. Beispiele für das Mittel zur Einstellung des pH-Werts schließen basische Verbindungen, wie Ammoniak, Natriumhydroxid und Kaliumhydroxid, und saure Verbindungen, wie Salzsäure, Salpetersäure, Schwefelsäure und Essigsäure, ein. Wenn das flüssige Medium ein Mittel zur Einstellung des pH-Werts enthält, liegt der pH-Wert des flüssigen Mediums beispielsweise in einem Bereich von 1 bis 6 und vorzugsweise von 1,5 bis 4. Wenn der pH-Wert gleich dem oder höher als der vorstehend beschriebene untere Grenzwert ist, wird in der Regel ein ausreichendes Maß an Haftung des Seltenerd-Phosphats erzeugt, und wenn der pH-Wert gleich dem oder weniger als der vorstehend beschriebene obere Grenzwert ist, wird in der Regel eine Abnahme der Emissionseigenschaften des Fluoridphosphors unterdrückt. Wenn das flüssige Medium Wasser enthält, kann der prozentuale Gehalt an dem Wasser in dem flüssigen Medium beispielsweise 70 Massen-% oder größer, 80 Massen-% oder größer und vorzugsweise 90 Massen-% oder größer betragen.

[0121] Das Massenverhältnis des flüssigen Mediums zu dem ersten wärmebehandelten Material, dem zweiten wärmebehandelten Material oder dem dritten wärmebehandelten Material beträgt beispielsweise 100 Massen-% oder größer oder 200 Massen-% oder größer und beträgt beispielsweise 1000 Massen-% oder weniger oder 800 Massen-% oder weniger. Wenn das Massenverhältnis des flüssigen Mediums gleich dem oder größer als der vorstehend beschriebene untere Grenzwert ist, wird ein einheitlicheres Haftvermögen des Seltenerd-Phosphats an der Oberfläche des Fluoridphosphors erleichtert, und wenn das Massenverhältnis des flüssigen Mediums gleich dem oder weniger als der vorstehend beschriebene obere Grenzwert ist, verbessert sich in der Regel die Haftvermögensrate des Seltenerd-Phosphats an dem Fluoridphosphor weiter.

[0122] Das flüssige Medium enthält vorzugsweise Phosphat-Ionen und enthält stärker bevorzugt Wasser und Phosphat-Ionen. In einem Fall, bei dem das flüssige Medium Phosphat-Ionen enthält, wird das erste wärmebehandelte Material, das zweite wärmebehandelte Material oder das dritte wärmebehandelte Material mit dem flüssigen Medium gemischt, wird das resultierende Gemisch dann weiter mit einer Lösung, welche die Seltenerd-Ionen enthält, gemischt und können dadurch die Phosphat-Ionen und die Seltenerd-Ionen miteinander in dem flüssigen Medium, welches das erste wärmebehandelte Material, das zweite wärmebehandelte Material oder das dritte wärmebehandelte Material enthält, in Kontakt gebracht werden. In einem Fall, bei dem das flüssige Medium Phosphat-Ionen enthält, ist die Konzentration der Phosphat-Ionen in dem flüssigen Medium beispielsweise 0,05 Massen-% oder höher, vorzugsweise 0,1 Massen-% oder höher und beispielsweise 5 Massen-% oder niedriger und vorzugsweise 3 Massen-% oder niedriger. Wenn die Konzentration der Phosphat-Ionen in dem flüssigen Medium größer als oder gleich dem vorstehend beschriebenen unteren Grenzwert ist, wird die Menge an dem flüssigen Medium nicht übermäßig, wird die Elution der Komponenten der Zusammensetzung aus dem zweiten wärmebehandelten Material oder dem dritten wärmebehandelten Material unterdrückt und bleiben die Eigenschaften des Fluoridphosphors, der in dem ersten wärmebehandelten Material, dem zweiten wärmebehandelten Material oder dem dritten wärmebehandelten Material enthalten ist, in der Regel auf vorteilhafte Weise erhalten. Wenn die Konzentration der Phosphat-Ionen in dem flüssigen Medium weniger als oder gleich dem vorstehend beschriebenen oberen Grenzwert ist, ist in der Regel die Einheitlichkeit von Materie, die mit dem ersten wärmebehandelten Material, dem zweiten wärmebehandelten Material oder dem dritten wärmebehandelten Material verklebt ist, vorteilhaft.

[0123] Phosphat-Ionen schließen ortho-Phosphat-Ionen, Polyphosphat- (meta-Phosphat) Ionen, Phosphit-Ionen und Hypophosphit-Ionen ein. Polyphosphat-Ionen schließen Polyphosphat-Ionen mit einer linearen Struktur, wie Pyrophosphat-Ionen und Triphosphat-Ionen, und cyclische Polyphosphat-Ionen, wie Hexameta-Phosphat-Ionen, ein.

[0124] In einem Fall, bei dem das flüssige Medium Phosphat-Ionen enthält, kann eine Verbindung, die als eine Quelle für Phosphat-Ionen dient, in dem flüssigen Medium gelöst werden, um das flüssige Medium, das Phosphat-Ionen enthält, herzustellen, oder kann eine Lösung, die eine Quelle für Phosphat-Ionen enthält, mit dem flüssigen Medium gemischt werden, um das flüssige Medium, das Phosphat-Ionen enthält, herzustellen. Beispiele für die Quelle von Phosphat-Ionen schließen ein: Phosphorsäure; meta-Phosphorsäure; Alkalimetallphosphate, wie Natriumphosphat und Kaliumphosphat; Alkalimetallhydrogenphosphate, wie Natriumhydrogenphosphat und Kaliumhydrogenphosphat; Alkalimetalldihydrogenphosphate, wie Natriumdihydrogenphosphat und Kaliumdihydrogenphosphat; Alkalimetallhexa-metaphosphate, wie Natriumhexa-metaphosphat und Kaliumhexa-metaphosphat; Alkalimetallpyrophosphate, wie Natriumpyrophosphat und Kaliumpyrophosphat; und Ammoniumphosphate, wie Ammoniumphosphat.

[0125] Das flüssige Medium enthält vorzugsweise ein Reduktionsmittel, enthält stärker bevorzugt Wasser und ein Reduktionsmittel und enthält noch stärker bevorzugt Wasser, Phosphat-Ionen und ein Reduktionsmittel. Wenn das flüssige Medium ein Reduktionsmittel enthält, kann die Ausfällung von Mangandioxid oder dergleichen, das sich von Mangan ableitet, das in dem ersten wärmebehandelten Material, dem zweiten wärmebehandelten Material oder dem dritten wärmebehandelten Material enthalten ist, wirksam unterdrückt werden. Das Reduktionsmittel, das in dem flüssigen Medium enthalten ist, ist vorzugsweise eines, das beispielsweise vierwertige Mangan-Ionen, die aus dem ersten wärmebehandelten Produkt, dem zweiten wärmebehandelten Produkt oder dem dritten wärmebehandelten Produkt eluiert wurden, reduzieren kann und Beispiele dafür schließen Wasserstoffperoxid, Oxalsäure und Hydroxylamin-Hydrochlorid ein. Von diesen zersetzt sich Wasserstoffperoxid in Wasser und beeinträchtigt somit nicht nachteilig den Fluoridphosphor, der in dem ersten wärmebehandelten Material, dem zweiten wärmebehandelten Material oder dem dritten wärmebehandelten Material enthalten ist, und deshalb wird Wasserstoffperoxid bevorzugt.

[0126] In einem Fall, bei dem das flüssige Medium ein Reduktionsmittel enthält, kann eine Verbindung, die als ein Reduktionsmittel dient, in dem flüssigen Medium gelöst werden, um das flüssige Medium, das ein Reduktionsmittel enthält, herzustellen, oder kann eine Lösung, die ein Reduktionsmittel enthält, mit dem flüssigen Medium gemischt werden, um das flüssige Medium, das ein Reduktionsmittel enthält, herzustellen. Der Gehalt an dem Reduktionsmittel in dem flüssigen Medium ist nicht besonders begrenzt, aber beispielsweise kann der Gehalt 0,1 Massen-% oder höher und vorzugsweise 0,3 Massen-% oder höher sein.

[0127] Beispiele für die Seltenerd-Elemente, die zu Seltenerd-Ionen werden, welche die Phosphat-Ionen kontaktieren, schließen außer Sc und Y die Lanthanoide ein, die La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb und Lu einschließen, und das Seltenerd-Element ist vorzugsweise mindestens eines, ausgewählt aus den Lanthanoiden, und stärker bevorzugt mindestens eines, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus La, Ce, Dy und Gd.

[0128] Der Kontakt zwischen den Phosphat-Ionen und den Seltenerd-Ionen in dem flüssigen Medium kann beispielsweise bewirkt werden, indem eine Verbindung, die als eine Quelle für Seltenerd-Ionen dient, in einem flüssigen Medium, das Phosphat-Ionen enthält, gelöst wird oder indem ein flüssiges Medium, das Phosphat-Ionen enthält, mit einer Lösung, die Seltenerd-Ionen enthält, gemischt wird. Die Lösung, die Seltenerd-Ionen enthält, kann beispielsweise hergestellt werden, indem eine Verbindung, die als eine Quelle für Seltenerd-Ionen dient, in einem Lösungsmittel, wie Wasser, gelöst wird. Die Verbindung, die als eine Quelle für Seltenerd-Ionen dient, ist beispielsweise ein Metallsalz, das ein Seltenerd-Element enthält, und Beispiele für das Anion, welches das Metallsalz aufbaut, schließen Nitrat-Ionen, Sulfat-Ionen, Acetat-Ionen und Chlorid-Ionen ein.

[0129] Der Kontakt zwischen den Phosphat-Ionen und den Seltenerd-Ionen in dem flüssigen Medium kann beispielsweise das Herstellen einer Aufschlämmung einschließen, indem das erste wärmebehandelte Material, das zweite wärmebehandelte Material oder das dritte wärmebehandelte Material mit einem flüssigen Medium, das Phosphat-Ionen enthält und vorzugsweise ferner ein Reduktionsmittel enthält, gemischt wird und dann die Aufschlämmung mit einer Lösung, die Seltenerd-Ionen enthält, gemischt wird.

[0130] In dem flüssigen Medium, in dem die Phosphat-Ionen und die Seltenerd-Ionen in Kontakt sind, beträgt der Gehalt an den Seltenerd-Ionen beispielsweise 0,05 Massen-% oder größer oder 0,1 Massen-% oder größer.

ßer und auch beispielsweise 3 Massen-% oder weniger oder 2 Massen-% oder weniger. Weiterhin beträgt der prozentuale Gehalt an den Seltenerd-Ionen, bezogen auf die Menge an dem ersten wärmebehandelten Material, dem zweiten wärmebehandelten Material oder dem dritten wärmebehandelten Material in dem flüssigen Medium, beispielsweise 0,2 Massen-% oder größer oder 0,5 Massen-% oder größer und auch beispielsweise 30 Massen-% oder weniger oder 20 Massen-% oder weniger. Wenn die Konzentration an den Seltenerd-Ionen größer als oder gleich der vorstehend beschriebenen unteren Grenze ist, verbessert sich in der Regel das Haftvermögensverhältnis des Seltenerd-Phosphats zu dem Fluoridphosphor weiter und wenn die Konzentration an den Seltenerd-Ionen weniger als oder gleich der vorstehend beschriebenen oberen Grenze ist, wird das Seltenerd-Phosphat in der Regel einfach und einheitlicher mit der Oberfläche des Fluoridphosphors verklebt.

[0131] Die Kontakttemperatur zwischen den Seltenerd-Ionen und den Phosphat-Ionen, die das Seltenerd-Phosphat bilden, liegt beispielsweise in einem Bereich von 10 °C bis 50 °C und vorzugsweise von 20 °C bis 35 °C. Außerdem liegt die Kontaktdauer beispielsweise in einem Bereich von 1 Minute bis 1 Stunde und vorzugsweise von 3 Minuten bis 30 Minuten. Der Kontakt kann bewirkt werden, während Rühren des flüssigen Mediums durchgeführt wird.

[0132] Nach dem Adhäsionsschritt kann ein Trennungsschritt bereitgestellt werden, in dem das lichtemittierende Material, das den Fluoridphosphor, mit dem das Seltenerd-Phosphat verklebt ist, enthält, von dem flüssigen Medium getrennt wird. Die Trennung kann beispielsweise durch ein Mittel der Fest-Flüssig-Trennung, wie Filtration oder zentrifugale Trennung, bewirkt werden. Wie es notwendig ist, kann das lichtemittierende Material, das sich durch die Fest-Flüssig-Trennung ergibt, auch einer Waschbehandlung, einer Trocknungsbehandlung oder dergleichen unterzogen werden.

[0133] Das Verfahren zur Herstellung eines lichtemittierenden Materials kann ferner nach dem Adhäsionsschritt einen Synthetisierschritt einschließen, bei dem das erste wärmebehandelte Material, das zweite wärmebehandelte Material oder das dritte wärmebehandelte Material, das den Fluoridphosphor enthält, mit dem das Seltenerd-Phosphat verklebt ist, in einem flüssigen Medium mit einem Metallalkoxid, das mindestens ein Element, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus Si, Al, Ti, Zr, Sn und Zn, enthält, in Kontakt gebracht wird, um dadurch ein Oxid, das sich von dem Metallalkoxid ableitet, auf mindestens einem Teil der Oberfläche des Fluoridphosphors aufzubringen, der in dem ersten wärmebehandelten Material, dem zweiten wärmebehandelten Material oder dem dritten wärmebehandelten Material enthalten ist, wobei das Seltenerd-Phosphat mit dem Fluoridphosphor verklebt wird. In dem Synthetisierschritt kann die Menge an dem Oxid, das aufgebracht werden soll, in einem Bereich von 2 Massen-% bis 30 Massen-%, bezogen auf das lichtemittierende Material, liegen. Die Einzelheiten des Synthetisierschritts sind wie vorstehend beschrieben.

[0134] In dem Verfahren zur Herstellung des lichtemittierenden Materials ist, nachdem das Seltenerd-Phosphat mit der Oberfläche des Fluoridphosphors verklebt ist, das Oxid, das sich von dem Metallalkoxid ableitet, mindestens zum Teil auf der Oberfläche des Fluoridphosphors, mit dem das Seltenerd-Phosphat verklebt ist, aufgebracht und dadurch verbessert sich in der Regel die Feuchtigkeits- und Hitzebeständigkeit des resultierenden lichtemittierenden Materials weiter.

[0135] Das Verfahren zur Herstellung eines lichtemittierenden Materials kann einen Oberflächenbehandlungsschritt einschließen, bei dem der Fluoridphosphor, der durch den ersten Wärmebehandlungsschritt, den zweiten Wärmebehandlungsschritt, den Druckbeaufschlagungs- und Erwärmungsbehandlungsschritt und den Synthetisierschritt oder Adhäsionsschritt hergestellt wird, mit einem Kupplungsmittel behandelt wird. Das heißt, das Verfahren zur Herstellung eines lichtemittierenden Materials kann das Unterziehen des Fluoridphosphors, der in dem ersten wärmebehandelten Material, dem zweiten wärmebehandelten Material oder dem dritten wärmebehandelten Material enthalten ist, einer Silankupplungsbehandlung einschließen. Das Verfahren zur Herstellung eines lichtemittierenden Materials kann ferner das Durchführen einer Silankupplungsbehandlung einschließen, nachdem das Oxid, das sich von dem Metallalkoxid ableitet, auf mindestens einem Teil der Oberfläche des Fluoridphosphors aufgebracht wurde. Das Verfahren zur Herstellung eines lichtemittierenden Materials kann ferner das Durchführen einer Silankupplungsbehandlung einschließen, nachdem das Seltenerd-Phosphat auf mindestens einem Teil der Oberfläche des Fluoridphosphors aufgebracht wurde. Das Verfahren zur Herstellung eines lichtemittierenden Materials kann ferner das Durchführen einer Silankupplungsbehandlung einschließen, nachdem das Seltenerd-Phosphat auf mindestens einem Teil der Oberfläche des Fluoridphosphors aufgebracht wurde und das Oxid, das sich von dem Metallalkoxid ableitet, auf mindestens einem Teil der Oberfläche des Fluoridphosphors aufgebracht wurde. In dem Oberflächenbehandlungsschritt werden der Fluoridphosphor und ein Kupplungsmittel in Kontakt gebracht und dadurch kann eine Oberflächenbehandlungsschicht, die eine funktionelle Gruppe, die sich von dem Kupplungsmittel

ableitet, einschließt, auf der Oberfläche des Fluoridphosphors bereitgestellt werden. Dadurch verbessert sich beispielsweise die Feuchtigkeitsbeständigkeit des Fluoridphosphors.

[0136] Spezifische Beispiele für das Kupplungsmittel, das im Oberflächenbehandlungsschritt verwendet wird, sind wie vorstehend beschrieben. Darüber hinaus kann die Menge an dem Kupplungsmittel, die im Oberflächenbehandlungsschritt verwendet wird, beispielsweise in einem Bereich von 0,5 Massen-% bis 10 Massen-% und vorzugsweise von 1 Massen-% bis 5 Massen-%, bezogen auf die Masse des lichtemittierenden Materials, liegen. Die Kontakttemperatur zwischen dem Fluoridphosphor und dem Kupplungsmittel kann beispielsweise in einem Bereich von 0 °C bis 70 °C und vorzugsweise von 10 °C bis 40 °C liegen. Weiterhin kann die Kontaktdauer zwischen dem Fluoridphosphor und dem Kupplungsmittel beispielsweise in einem Bereich von 1 Minute bis 10 Stunden und vorzugsweise von 10 Minuten bis 1 Stunde liegen.

Lichtemittierende Vorrichtung

[0137] Die lichtemittierende Vorrichtung schließt ein lichtemittierendes Material (hierin nachstehend auch als ein erstes lichtemittierendes Material bezeichnet), das den Fluoridphosphor enthält, und ein lichtemittierendes Element mit einer Peakemissionswellenlänge in einem Wellenlängenbereich von 380 nm bis 485 nm ein. Die lichtemittierende Vorrichtung kann ferner andere aufbauende Bauteile einschließen, wie es notwendig ist.

[0138] Ein Beispiel für die lichtemittierende Vorrichtung wird auf der Basis der Zeichnungen beschrieben. **Fig. 2** ist eine schematische Querschnittsansicht, die ein Beispiel für eine lichtemittierende Vorrichtung gemäß der vorliegenden Ausführungsform zeigt. Diese lichtemittierende Vorrichtung ist ein Beispiel für eine oberflächenmontierte lichtemittierende Vorrichtung. Die lichtemittierende Vorrichtung 100 schließt ein lichtemittierendes Element 10, das Licht mit einer Peakemissionswellenlänge auf der Seite kurzer Wellenlängen des sichtbaren Lichts (beispielsweise in einem Bereich von 380 nm bis 485 nm) emittiert, und einen Formkörper 40 ein, auf dem das lichtemittierende Element 10 montiert ist. Der Formkörper 40 weist eine erste Zuleitung 20 und eine zweite Zuleitung 30 auf und wird unter Verwendung eines thermoplastischen Harzes oder eines duroplastischen Harzes eine Einheit bildend geformt. Ein zurück gesetzter Teil mit einer Bodenfläche und Seitenflächen wird in dem Formkörper 40 gebildet und das lichtemittierende Element 10 wird auf die Bodenfläche des zurück gesetzten Teils platziert. Das lichtemittierende Element 10 schließt ein Paar aus positiven und negativen Elektroden ein und das Paar aus positiven und negativen Elektroden ist mit der ersten Zuleitung 20 und der zweiten Zuleitung 30 über Drähte 60 elektrisch verbunden. Das lichtemittierende Element 10 wird von einem fluoreszierenden Bauteil 50 bedeckt. Das fluoreszierende Bauteil 50 schließt ein Material zur Wellenlängenumwandlung 70 ein, das die Wellenlänge von Licht aus dem lichtemittierenden Element 10 umwandelt, und das Material zur Wellenlängenumwandlung schließt mindestens ein erstes lichtemittierendes Material ein. Das fluoreszierende Bauteil 50 kann als Materialien zur Wellenlängenumwandlung das erste lichtemittierende Material und ein zweites lichtemittierendes Material enthalten, das als Reaktion auf Anregungslicht aus dem lichtemittierenden Element 10 Licht mit einer Emissionspeakwellenlänge in einem anderen Wellenlängenbereich als demjenigen des ersten lichtemittierenden Materials emittiert.

[0139] Das fluoreszierende Bauteil kann ein Harz und ein Material zur Wellenlängenumwandlung enthalten. Beispiele für das Harz, welches das fluoreszierende Bauteil aufbaut, schließen ein Silikonharz und Epoxidharz ein. Das fluoreszierende Bauteil kann ferner ein Licht streuendes Material zusätzlich zu dem Harz und Material zur Wellenlängenumwandlung enthalten. Die Richtcharakteristik von dem lichtemittierenden Element kann abgemildert werden und ein Sichtwinkel kann erhöht werden, indem ein Licht streuendes Material eingeschlossen wird. Beispiele für das Licht streuende Material schließen Siliziumoxid, Titanoxid, Zinkoxid, Zirkoniumoxid und Aluminiumoxid ein.

[0140] Das lichtemittierende Element emittiert Licht mit einer Emissionspeakwellenlänge in einem Wellenlängenbereich von 380 nm bis 485 nm, was ein Bereich von kurzer Wellenlänge des sichtbaren Lichts ist. Das lichtemittierende Element kann eine Quelle für Anregungslicht sein, das einen Fluoridphosphor anregt. Das lichtemittierende Element weist vorzugsweise eine Emissionspeakwellenlänge innerhalb eines Bereichs von 380 nm bis 480 nm auf und weist stärker bevorzugt eine Emissionspeakwellenlänge innerhalb eines Bereichs von 410 nm bis 480 nm auf. Ein lichtemittierendes Halbleiterelement wird vorzugsweise als das lichtemittierende Element der Quelle für Anregungslicht verwendet. Ein lichtemittierendes Halbleiterelement, das als eine Quelle für Anregungslicht verwendet wird, ermöglicht eine stabile lichtemittierende Vorrichtung, die einen hohen Wirkungsgrad und eine hohe Linearität der Leistungsabgabe im Hinblick auf eine Leistungsaufnahme zeigt und die gegen mechanischen Einfluss stabil ist. Als das lichtemittierende Halbleiterelement kann beispielsweise ein lichtemittierendes Halbleiterelement verwendet werden, das einen Halbleiter auf Nit-

ridbasis verwendet. Die Halbwertsbreite des Emissionspeaks im Emissionsspektrum des lichtemittierenden Elements beträgt beispielsweise vorzugsweise 30 nm oder weniger.

[0141] In der lichtemittierenden Vorrichtung, in der die Quelle für Anregungslicht mit dem fluoreszierenden Bauteil, welches das erste lichtemittierende Material enthält, bedeckt ist, wird einiges von dem Licht, das von der Quelle für Anregungslicht emittiert wird, von dem ersten lichtemittierenden Material, das den Fluoridphosphor enthält, absorbiert und wird als rotes Licht emittiert. Indem eine Quelle für Anregungslicht, die Licht mit einer Emissionspeakwellenlänge in dem Bereich von 380 nm bis 485 nm emittiert, verwendet wird, kann das emittierte Licht wirksamer genutzt werden, kann der Verlust von Licht, das von der lichtemittierenden Vorrichtung emittiert wird, verringert werden und kann eine hochgradig effiziente lichtemittierende Vorrichtung bereitgestellt werden.

[0142] Die lichtemittierende Vorrichtung schließt ferner vorzugsweise außer dem ersten lichtemittierenden Material, das den Fluoridphosphor enthält, ein zweites lichtemittierendes Material ein, das einen anderen Phosphor als den Fluoridphosphor enthält. Der andere Phosphor als der Fluoridphosphor kann jeder beliebige Phosphor sein, der Licht von der Lichtquelle absorbiert und die Wellenlänge des Lichts zu Licht mit einer Wellenlänge umwandelt, die sich von derjenigen des Fluoridphosphors unterscheidet. Ähnlich wie das erste lichtemittierende Material kann das zweite lichtemittierende Material in dem fluoreszierenden Bauteil enthalten sein.

[0143] Das zweite lichtemittierende Material kann eine Emissionspeakwellenlänge in einem Bereich von 495 nm bis 590 nm aufweisen und kann vorzugsweise mindestens ein Material einschließen, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus β -Sialonphosphoren, Halogensilikatphosphoren, Silikatphosphoren, Seltenerdaluminatphosphoren, lichtemittierenden Perovskitmaterialien und Nitridphosphoren. Der β -Sialonphosphor kann eine Zusammensetzung, dargestellt durch beispielsweise Formel (IIa), aufweisen. Der Halogensilikatphosphor kann eine Zusammensetzung, dargestellt durch beispielsweise Formel (IIb), aufweisen. Der Silikatphosphor kann eine Zusammensetzung, dargestellt durch beispielsweise Formel (IIc), aufweisen. Der Seltenerdaluminatphosphor kann eine Zusammensetzung, dargestellt durch Formel (IId), aufweisen. Der Perovskitphosphor kann eine Zusammensetzung, dargestellt durch beispielsweise Formel (IIe), aufweisen. Der Nitridphosphor kann eine Zusammensetzung, dargestellt durch beispielsweise Formel (IIf), (IIg) oder (IIh), aufweisen.



(Wobei $t \ 0 < t \leq 4,2$ erfüllt.)



[0144] In einem anderen Gesichtspunkt schließt die vorliegende Erfindung die Verwendung eines Fluoridphosphors mit der ersten Zusammensetzung, der als eine Kristallstruktur eine Kristallstruktur des kubischen Systems aufweist und eine Gitterkonstante von 0,8138 nm oder größer aufweist, bei der Herstellung des lichtemittierenden Materials oder der lichtemittierenden Vorrichtung ein. Die vorliegende Erfindung schließt auch die Verwendung eines Fluoridphosphors mit der ersten Zusammensetzung und mit einem Absorptionspeak in einem Wellenzahlbereich von 590 cm^{-1} bis 610 cm^{-1} in einem Infrarot-Absorptionsspektrum bei der Herstellung des lichtemittierenden Materials oder der lichtemittierenden Vorrichtung ein. Die vorliegende Erfindung schließt ferner die Verwendung des lichtemittierenden Materials bei der Herstellung der lichtemittierenden Vorrichtung ein.

Beispiele

[0145] Die vorliegende Erfindung wird nachstehend ausführlich durch Beispiele beschrieben, aber die vorliegende Erfindung ist nicht auf diese Beispiele begrenzt.

Herstellungsbeispiel 1: Herstellung von ersten Fluoridteilchen

[0146] 7029 g KHF_2 wurden abgewogen, und dieses KHF_2 wurde in 68,5 L einer wässrigen HF-Lösung (55 Massen-%) gelöst, um eine erste Lösung herzustellen. Ferner wurden 1049,7 g K_2MnF_6 abgewogen, und dieses K_2MnF_6 wurde in 12,0 L einer wässrigen HF-Lösung (55 Massen-%) gelöst, um eine zweite Lösung herzustellen. Nachfolgend wurden 15,5 L einer wässrigen Lösung, die 40 Massen-% H_2SiF_6 enthielt, hergestellt und als eine dritte Lösung verwendet. Die erste Lösung wurde dann bei Zimmertemperatur gerührt, während die zweiten und dritten Lösungen innerhalb eines Zeitraums von etwa 20 Stunden tropfenweise zugegeben wurden. Nach dem Ende der tropfenweisen Zugabe wurden 400 mL einer 35 %igen Wasserstoffperoxidlösung zugegeben, wurde Waschen mit reinem Wasser ausgeführt und wurden die resultierenden Niederschläge einer Fest-Flüssig-Trennung unterzogen und dann mit Ethanol gewaschen und 10 Stunden lang bei 90 °C getrocknet und wurden dadurch erste Fluoridteilchen eines Herstellungsbeispiels 1 hergestellt. Die resultierenden ersten Fluoridteilchen wiesen eine Zusammensetzung, dargestellt durch $\text{K}_2[\text{Si}_{0,949}\text{Mn}_{0,051}\text{F}_6]$, auf.

Beispiel 1

[0147] 2200 g der ersten Fluoridteilchen mit einer Zusammensetzung, dargestellt durch $\text{K}_2[\text{Si}_{0,949}\text{Mn}_{0,051}\text{F}_6]$, die in Herstellungsbeispiel 1 hergestellt worden waren, und 7,76 g der zweiten Fluoridteilchen mit einer Zusammensetzung, dargestellt durch $\text{K}_3[\text{AlF}_6]$, wurden abgewogen und derart gemischt, dass ein Verhältnis der Anzahl der Mole der zweiten Fluoridteilchen zu der Gesamtzahl der Mole der ersten Fluoridteilchen und der zweiten Fluoridteilchen 0,003 betrug, und dadurch wurde ein Gemisch aus den ersten Fluoridteilchen und den zweiten Fluoridteilchen hergestellt. Das Gemisch aus den ersten Fluoridteilchen und den zweiten Fluoridteilchen wurde eine Wärmebehandlungsdauer von 5 Stunden lang einer ersten Wärmebehandlung in einer inerten Gasatmosphäre mit einer Konzentration von Stickstoffgas von 100 Vol.-% bei einer Temperatur von 700 °C unterzogen und dadurch wurde ein erstes wärmebehandeltes Material hergestellt. Das resultierende erste wärmebehandelte Material wurde ausreichend mit einem Waschwasser, das 1 Massen-% Wasserstoffperoxid enthielt, gewaschen. Das erste wärmebehandelte Material nach dem Waschen wurde eine Wärmebehandlungsdauer von 5 Stunden lang einer zweiten Wärmebehandlung bei einer Temperatur von 500 °C in einer Atmosphäre mit einer Konzentration von Fluorgas (F_2) von 20 Vol.-% und einer Konzentration von Stickstoffgas von 80 Vol.-% unterzogen, während das erste wärmebehandelte Material in Kontakt mit dem Fluorgas war, und dadurch wurde ein lichtemittierendes Material aus Beispiel 1 hergestellt. Man beachte, dass die Wärmebehandlungsdauer in der ersten Wärmebehandlung und in der zweiten Wärmebehandlung die Zeitspanne ist, die von dem Zeitpunkt, an dem die vorgegebene Wärmebehandlungstemperatur erreicht ist, bis zu dem Zeitpunkt, an dem das Erwärmen beendet wird, vergeht. Das lichtemittierende Material aus Beispiel 1 wies eine Zusammensetzung, dargestellt durch $\text{K}_2[\text{Si}_{0,948}\text{Al}_{0,002}\text{Mn}_{0,050}\text{F}_{5,998}]$, auf.

Vergleichsbeispiel 1

[0148] Ein lichtemittierendes Material wurde unter denselben Bedingungen wie in Beispiel 1 hergestellt, angenommen, dass die zweiten Fluoridteilchen nicht mit den ersten Fluoridteilchen mit der Zusammensetzung, dargestellt durch $\text{K}_2[\text{Si}_{0,949}\text{Mn}_{0,051}\text{F}_6]$, die in Herstellungsbeispiel 1 hergestellt worden waren, gemischt wurden und lediglich die ersten Fluoridteilchen verwendet wurden. Das lichtemittierende Material aus Vergleichsbeispiel 1 wies eine Zusammensetzung, dargestellt durch $\text{K}_2[\text{Si}_{0,950}\text{Mn}_{0,050}\text{F}_6]$, auf.

Beispiel 2

[0149] Ein lichtemittierendes Material wurde unter denselben Bedingungen wie in Beispiel 1 hergestellt, angenommen, dass die Masse der zweiten Fluoridteilchen auf 15,57 g geändert wurde, so dass das Verhältnis der Anzahl der Mole der zweiten Fluoridteilchen zu der Gesamtzahl der Mole der ersten Fluoridteilchen und der zweiten Fluoridteilchen 0,006 betrug. Das lichtemittierende Material aus Beispiel 2 wies eine Zusammensetzung, dargestellt durch $\text{K}_2[\text{Si}_{0,946}\text{Al}_{0,005}\text{Mn}_{0,049}\text{F}_{5,995}]$, auf.

Beispiel 3

[0150] Ein lichtemittierendes Material wurde unter denselben Bedingungen wie in Beispiel 1 hergestellt, ausgenommen, dass die Masse der zweiten Fluoridteilchen auf 23,43 g geändert wurde, so dass das Verhältnis der Anzahl der Mole der zweiten Fluoridteilchen zu der Gesamtzahl der Mole der ersten Fluoridteilchen und der zweiten Fluoridteilchen 0,009 betrug. Das lichtemittierende Material aus Beispiel 3 wies eine Zusammensetzung, dargestellt durch $K_2[Si_{0,942}Al_{0,008}Mn_{0,050}F_{5,992}]$, auf.

Beispiel 4

[0151] Ein lichtemittierendes Material wurde unter denselben Bedingungen wie in Beispiel 1 hergestellt, ausgenommen, dass die Masse der zweiten Fluoridteilchen auf 39,28 g geändert wurde, so dass das Verhältnis der Anzahl der Mole der zweiten Fluoridteilchen zu der Gesamtzahl der Mole der ersten Fluoridteilchen und der zweiten Fluoridteilchen 0,015 betrug. Das lichtemittierende Material aus Beispiel 4 wies eine Zusammensetzung, dargestellt durch $K_2[Si_{0,939}Al_{0,014}Mn_{0,047}F_{5,986}]$, auf.

Beispiel 5

[0152] Ein lichtemittierendes Material wurde unter denselben Bedingungen wie in Beispiel 1 hergestellt, ausgenommen, dass die Masse der zweiten Fluoridteilchen auf 55,33 g geändert wurde, so dass das Verhältnis der Anzahl der Mole der zweiten Fluoridteilchen zu der Gesamtzahl der Mole der ersten Fluoridteilchen und der zweiten Fluoridteilchen 0,021 betrug. Das lichtemittierende Material aus Beispiel 5 wies eine Zusammensetzung, dargestellt durch $K_2[Si_{0,933}Al_{0,018}Mn_{0,049}F_{5,982}]$, auf.

Bewertung

Farbartkoordinaten

[0153] Unter Verwendung eines Spektrofluorometers (Produktname: QE-2000, erhältlich von Otsuka Electronics Co., Ltd.) wurde jedes der lichtemittierenden Materialien, die in den Beispielen und Vergleichsbeispielen hergestellt worden waren, mit Anregungslicht mit einer Peakwellenlänge von 450 nm bestrahlt und wurde das Emissionsspektrum von jedem der lichtemittierenden Materialien bei Raumtemperatur gemessen. Unter Verwendung der Daten aus dem Emissionsspektrum von jedem lichtemittierenden Material aus den Beispielen und Vergleichsbeispielen wurden die xy-Farbartkoordinaten im Farbsystem der Commission international de l'éclairage (CIE) 1931 bestimmt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 1 aufgeführt.

Relative Leuchtdichte

[0154] Unter Verwendung der Daten aus den Emissionsspektren, die für die lichtemittierenden Materialien, die in jedem der Beispiele und Vergleichsbeispiele hergestellt worden waren, gemessen wurden, wurden die Emissionsleuchtdichtewerte der lichtemittierenden Materialien aus den Beispielen 1 bis 5 als relative Leuchtdichtewerte bestimmt, wobei die Leuchtdichte des lichtemittierenden Materials aus Vergleichsbeispiel 1 100 % betrug. Die Ergebnisse sind in Tabelle 1 aufgeführt.

Zusammensetzung

[0155] Die Zusammensetzung von jedem lichtemittierenden Material, das in den Beispielen und Vergleichsbeispielen hergestellt worden war, wurde durch Atomemissionsspektroskopie mit induktiv gekoppeltem Plasma (ICP-AES) analysiert und das Verhältnis des molaren Gehalts von jedem Element wurde berechnet, wobei das Kalium, das in der Zusammensetzung enthalten war, 2 mol betrug. Die Ergebnisse sind in Tabelle 1 aufgeführt.

Schüttwinkel

[0156] Der Schüttwinkel von jedem der lichtemittierenden Materialien, die in den Beispielen und Vergleichsbeispielen hergestellt worden waren, wurde unter Verwendung eines A.B.D Messinstruments für Pulvereigenschaften (Produktname: ABD-100, erhältlich von Tsutsui Scientific Instruments Co., Ltd.) gemessen und der Schüttwinkel wurde aus dem Mittelwert von zwei Messungen bestimmt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 1 aufgeführt.

Dispersionsgrad

[0157] Der Dispersionsgrad von jedem der lichtemittierenden Materialien, die in den Beispielen und Vergleichsbeispielen hergestellt worden waren, wurde dreimal unter Verwendung eines A.B.D Messinstruments für Pulvereigenschaften (Produktname: ABD-100, erhältlich von Tsutsui Scientific Instruments Co., Ltd.) gemessen und der arithmetische Mittelwert aus den gemessenen Werten wurde als der Dispersionsgrad definiert. Die Ergebnisse sind in Tabelle 1 aufgeführt.

Schüttdichte

[0158] Ähnlich wie der Dispersionsgrad wurde die Schüttdichte von jedem der lichtemittierenden Materialien, die in den Beispielen und Vergleichsbeispielen hergestellt worden waren, dreimal unter Verwendung des A.B.D Messinstruments für Pulvereigenschaften (Produktname: ABD-100, erhältlich von Tsutsui Scientific Instruments Co., Ltd.) gemessen und der arithmetische Mittelwert aus den gemessenen Werten wurde als die Schüttdichte definiert. Die Ergebnisse sind in Tabelle 1 aufgeführt.

Gitterkonstante

[0159] Jedes der lichtemittierenden Materialien, die in den Beispielen und Vergleichsbeispielen hergestellt worden waren, wurde mit einer Si-Standardprobe in einem Verhältnis von 1:1 gemischt und das Röntgenbeugungsmuster wurde unter Verwendung eines Vielzweck-Röntgendiffraktometers für horizontale Proben (Produktname: Ultima IV, erhältlich von Rigaku Corporation) und einer Röntgenquelle für CuK α -Strahlung ($\lambda = 0,15418$ nm, Röhrenspannung 40 kV, Röhrenstrom 40 mA) unter Messbedingungen gemessen, die einen Winkel in einem Bereich von 10° bis 70°, eine Scanbreite von 0,02° und eine Scangeschwindigkeit von 20°/min einschlossen. Aus den Röntgenbeugungsmustern der Fluoridphosphore, die in den Beispielen 1 bis 5 und Vergleichsbeispiel 1 hergestellt worden waren, wurden Gitterkonstanten unter Verwendung einer integrierten Software für Röntgenpulveranalyse (PDXL2) und Kartendaten (K₂SiF₆: 01-081-2264, Si: 00-027-1402) aus dem International Center for Diffraction Data (ICDD) berechnet. Die Ergebnisse sind in Tabelle 1 aufgeführt.

Tabelle 1

	Farbartkoordinaten		Relative Leuchtdichte (%)	Mn-Menge (r)	Al-Menge (q)	Schüttwinkel (°)	Dispersionsgrad (%)	Schüttdichte (g·cm ⁻³)	Gitterkonstante (nm)
	x	y							
Vergleichsbeispiel 1	0,694	0,306	100,0	0,050	0,000	61	1,1	0,99	0,8137
Beispiel 1	0,695	0,305	102,0	0,050	0,002	58	2,4	1,06	0,8139
Beispiel 2	0,694	0,306	103,7	0,049	0,005	55	4,2	1,08	0,8142
Beispiel 3	0,694	0,306	104,0	0,050	0,008	42	27,6	1,20	0,8143
Beispiel 4	0,694	0,306	102,6	0,047	0,014	43	32,0	1,21	0,8150
Beispiel 5	0,694	0,305	101,8	0,049	0,018	41	32,6	1,23	0,8149

[0160] Wie in Tabelle 1 aufgeführt, zeigten die lichtemittierenden Materialien aus den Beispielen eine höhere Leuchtdichte als die lichtemittierenden Materialien aus den Vergleichsbeispielen. Davon wird angenommen, dass es die Wirkung des Verringerens des Fehlens von F-Atomen durch Substitution von einigen der Si-Atome in der Kristallstruktur durch Al-Atome in den lichtemittierenden Materialien aus den Beispielen ist. Ferner nahm in den lichtemittierenden Materialien aus den Beispielen die Gitterkonstante in dem Maße zu, wie sich die Menge an Al erhöhte. Es wird angenommen, dass dies nahelegt, dass Si-Atome in der Kristallstruktur durch Al-Atome substituiert sind.

Infrarot-Spektroskopie: FT-IR-Bewertung

[0161] Das Infrarot-Absorptionsspektrum von jedem der lichtemittierenden Fluoridphosphor-Materialien, die in den Beispielen und Vergleichsbeispielen hergestellt worden waren, wurde mit dem Verfahren der abgeschwächten Totalreflexion (ATR) unter Verwendung eines Fouriertransformations-Infrarotspektrometers

(FT-IR-6200, erhältlich von JASCO Corporation) gemessen. **Fig. 3** zeigt eine vergrößerte Ansicht eines Teils der Infrarot-Absorptionsspektren der lichtemittierenden Materialien aus den Beispielen 1 bis 5 und Vergleichsbeispiel 1. Als Referenz zeigt **Fig. 6** die Infrarot-Absorptionsspektren der ersten Fluoridteilchen und der zweiten Fluoridteilchen.

[0162] Wie in **Fig. 3** veranschaulicht, zeigten die lichtemittierenden Materialien aus den Beispielen einen charakteristischen Absorptionspeak in einem Wellenzahlbereich von 590 cm^{-1} bis 610 cm^{-1} . Auf der anderen Seite wurde kein solcher Absorptionspeak bei dem lichtemittierenden Material aus dem Vergleichsbeispiel beobachtet. Dies scheint nahezuzeigen, dass einige der Si-Atome in der Kristallstruktur in den lichtemittierenden Materialien aus den Beispielen durch Al-Atome substituiert wurden.

SEM-Bild

[0163] SEM-Bilder der lichtemittierenden Materialien wurden unter Verwendung eines Rasterelektronenmikroskops (SEM) aufgenommen. **Fig. 4** veranschaulicht ein SEM-Bild des lichtemittierenden Materials aus Vergleichsbeispiel 1 und **Fig. 5** veranschaulicht ein SEM-Bild des lichtemittierenden Materials aus Beispiel 3.

[0164] Im Vergleich zu dem lichtemittierenden Material aus Vergleichsbeispiel 1, das in **Fig. 4** gezeigt wird, weist das lichtemittierende Material aus Beispiel 3, das in **Fig. 5** gezeigt wird, feine Stufen auf der Teilchenoberfläche auf. Es wird angenommen, dass es wegen dieser feinen Stufen weniger wahrscheinlich ist, dass sich die Teilchen aggregieren und deshalb der Schüttwinkel kleiner ist. Auf Grund eines solchen Zustands der Teilchenoberfläche des lichtemittierenden Materials, wie in Tabelle 1 aufgeführt, waren der Dispersionsgrad und die Schüttdichte der lichtemittierenden Materialien aus den Beispielen größer als diejenigen des lichtemittierenden Materials aus dem Vergleichsbeispiel und erhöhten sich in den Fluoridphosphoren aus den Beispielen 1 bis 5 der Dispersionsgrad und die Schüttdichte in dem Maße, wie die Menge an Al zunahm.

Herstellungsbeispiel 1 für lichtemittierende Vorrichtung

[0165] Jedes lichtemittierende Material, das in Beispiel 3 oder Vergleichsbeispiel 1 hergestellt worden war, wurde als ein erstes lichtemittierendes Material verwendet. Außerdem wurde ein β -Sialonphosphor mit einer Zusammensetzung, dargestellt durch $\text{Si}_{5,81}\text{Al}_{0,19}\text{O}_{0,19}\text{N}_{7,81}\text{:Eu}$ und mit einer Emissionspeakwellenlänge nahe 540 nm als ein zweites lichtemittierendes Material verwendet. Eine Harzzusammensetzung wurde hergestellt, indem ein Silikonharz mit einem Phosphor 70 gemischt wurde, der durch Vermischen des ersten lichtemittierenden Materials und des zweiten lichtemittierenden Materials hergestellt wurde, so dass als die Farbartkoordinaten im Farbsystem CIE1931 x um $0,280$ herum lag und y um $0,270$ herum lag. Nachfolgend wurde ein Formkörper 40 mit einem zurück gesetzten Teil, wie in **Fig. 2** veranschaulicht, hergestellt, wurde eine lichtemittierende Vorrichtung 10, die aus einem Halbleiter auf der Basis einer Galliumnitrid-Verbindung gemacht war und eine Emissionspeakwellenlänge von 451 nm aufwies, an der ersten Zuleitung 20 am Boden des zurück gesetzten Teils aufgebracht und dann wurden Elektroden der lichtemittierenden Vorrichtung 10 mit der ersten Zuleitung 20 und der zweiten Zuleitung 30 durch entsprechende Drähte 60 verbunden. Ferner wurde unter Verwendung einer Spritze die Harzzusammensetzung in den zurück gesetzten Teil des Formkörpers 40 eingespritzt, um so das lichtemittierende Element 10 zu bedecken, und wurde die Harzzusammensetzung gehärtet, um ein fluoreszierendes Bauteil zu bilden und wurde dadurch eine lichtemittierende Vorrichtung 1 hergestellt.

Relativer Lichtstrom

[0166] Der Lichtstrom der lichtemittierenden Vorrichtung 1, in der das lichtemittierende Material aus Beispiel 3 verwendet wurde, und der Lichtstrom der lichtemittierenden Vorrichtung 1, in der das lichtemittierende Material aus Vergleichsbeispiel 1 verwendet wurde, wurde unter Verwendung eines Messgeräts für den Gesamtlichtstrom, bei dem eine integrierende Kugel verwendet wurde, gemessen. Der Lichtstrom der lichtemittierenden Vorrichtung 1, die das lichtemittierende Material aus Beispiel 3 verwendete, wurde als ein relativer Lichtstrom bestimmt, wobei der Lichtstrom der lichtemittierenden Vorrichtung 1, die den Fluoridphosphor gemäß Vergleichsbeispiel 1 verwendete, 100% betrug. Die Ergebnisse sind in Tabelle 2 aufgeführt.

Tabelle 2

Lichtemittierendes Material		Masse (%) von lichtemittierendem Material pro 100 Massenteilen Harz	Massenanteil von lichtemittierendem Material (%)		Farbartkoordinaten		Relativer Lichtstrom (%)
Zweites lichtemittierendes Material	Erstes lichtemittierendes Material		Zweites lichtemittierendes Material	Erstes lichtemittierendes Material	x	y	
β -Sialon	Vergleichsbeispiel 1	34,0	38,1	61,9	0,280	0,270	100,0
β -Sialon	Beispiel 3	34,6	38,3	61,7	0,280	0,270	100,5

[0167] Wie in Tabelle 2 aufgeführt, wurde im Vergleich zu der lichtemittierenden Vorrichtung, die das lichtemittierende Material aus Vergleichsbeispiel 1 verwendete, der relative Lichtstrom der lichtemittierenden Vorrichtung, die das lichtemittierende Material aus Beispiel 3 verwendete, verbessert, indem ein lichtemittierendes Material mit einer hohen Emissionsleuchtdichte verwendet wurde.

Vergleichsbeispiel 2

[0168] Ein lichtemittierendes Material aus Vergleichsbeispiel 2 mit einer zweiten theoretischen Zusammensetzung, dargestellt durch $\text{K}_2\text{SiF}_6\text{:Mn}$ (kann hierin nachstehend als „KSF“ abgekürzt werden), mit einem prozentualen Gehalt an Mn von 1,5 Massen-% wurde mit demselben Verfahren wie Herstellungsbeispiel 1 hergestellt.

Vergleichsbeispiel 3

[0169] Der Fluoridphosphor, der in Vergleichsbeispiel 2 hergestellt worden war, wurde 8 Stunden lang einer zweiten Wärmebehandlung bei einer Temperatur von 500 °C unterzogen, während er mit Fluorgas in einer Atmosphäre mit einer Konzentration von Fluorgas (F_2) von 20 Vol.-% und einer Konzentration von Stickstoffgas von 80 Vol.-% in Kontakt war, und dadurch wurde ein lichtemittierendes Material aus Vergleichsbeispiel 3 mit einer zweiten theoretischen Zusammensetzung, dargestellt durch $\text{K}_2\text{SiF}_6\text{:Mn}$, mit einem prozentualen Gehalt an Mn von 1,5 Massen-% hergestellt.

Beispiel 6

[0170] Durch dasselbe Verfahren wie in Herstellungsbeispiel 1 wurden erste Fluoridteilchen als ein Phosphor mit einer zweiten theoretischen Zusammensetzung, dargestellt durch $\text{K}_2\text{SiF}_6\text{:Mn}$, mit einem prozentualen Gehalt an Mn von 1,1 Massen-% hergestellt. Ein Gemisch wurde durch Abwiegen und Mischen der hergestellten ersten Fluoridteilchen und zweiten Fluoridteilchen mit einer Zusammensetzung, dargestellt durch $\text{K}_3[\text{AlF}_6]$, hergestellt, so dass das Verhältnis der Anzahl der Mole der zweiten Fluoridteilchen zu der Gesamtzahl der Mole der ersten Fluoridteilchen und der zweiten Fluoridteilchen 0,01 betrug. Das Gemisch wurde einer ersten Wärmebehandlung in einer inerten Gasatmosphäre mit einer Konzentration von Stickstoffgas von 100 Vol.-% bei einer Temperatur von 700 °C eine Wärmebehandlungsdauer von 5 Stunden lang unterzogen, und ein erstes wärmebehandeltes Material wurde hergestellt. Das resultierende erste wärmebehandelte Material wurde gründlich mit Waschwasser, das 1 Massen-% Wasserstoffperoxid enthielt, gewaschen und dadurch wurde ein lichtemittierendes Material aus Beispiel 6 als ein Fluoridphosphor mit einer ersten theoretischen Zusammensetzung, dargestellt durch $\text{K}_2\text{Si}_{0,99}\text{Al}_{0,01}\text{F}_{5,99}\text{:Mn}$, mit einem prozentualen Gehalt an Mn von 1,1 Massen-% hergestellt.

Beispiel 7

[0171] 6,7 g KHF_2 wurden in 33,3 g wässriger 55%iger Fluorwasserstoffsäurelösung gelöst, um flüssiges Medium 1 herzustellen. Das flüssige Medium 1 und 50 g Fluoridphosphor, hergestellt in Beispiel 6, wurden in einen mit Fluorharz ausgekleideten Autoklaven gegeben und 8 Stunden lang bei 170 °C und ungefähr 7,5 MPa erhitzt und unter Druck gesetzt. Das resultierende erhitzte und unter Druck gesetzte Produkt wurde ausreichend mit Waschwasser, das 1 Massen-% Wasserstoffperoxid enthielt, gewaschen, einer Fest-Flüssig-

Trennung unterzogen und dann mit Ethanol gewaschen und 10 Stunden lang bei 90 °C getrocknet, und dadurch wurde ein lichtemittierendes Material aus Beispiel 7 hergestellt.

Beispiel 8

[0172] Durch dasselbe Verfahren, wie vorstehend beschrieben, wurden erste Fluoridteilchen mit einer zweiten theoretischen Zusammensetzung, dargestellt durch $K_2SiF_6:Mn$, mit einem prozentualen Gehalt an Mn von 1,1 Massen-% hergestellt. Die erste Wärmebehandlung und das Waschen wurden mit denselben Verfahren wie diejenigen aus Beispiel 6, mit der Ausnahme der Verwendung der resultierenden ersten Fluoridteilchen, durchgeführt und dadurch wurden Fluoridteilchen als ein Phosphor mit der ersten theoretischen Zusammensetzung hergestellt.

[0173] Nachfolgend wurden die resultierenden Fluoridteilchen, die der Phosphor mit der ersten theoretischen Zusammensetzung waren, 8 Stunden lang einer zweiten Wärmebehandlung bei einer Temperatur von 500 °C in einer Atmosphäre mit einer Konzentration von Fluorgas (F_2) von 20 Vol.-% und einer Konzentration von Stickstoffgas von 80 Vol.-% unterzogen, während sie mit Fluorgas in Kontakt waren, und dadurch wurde ein lichtemittierendes Material aus Beispiel 8 als ein Fluoridphosphor mit der ersten theoretischen Zusammensetzung, dargestellt durch $K_2Si_{0,99}Al_{0,01}F_{5,99}:Mn$, mit einem prozentualen Gehalt an Mn von 1,0 Massen-% hergestellt.

Beispiel 9

[0174] Durch dasselbe Verfahren, wie vorstehend beschrieben, wurden erste Fluoridteilchen mit einer zweiten theoretischen Zusammensetzung, dargestellt durch $K_2SiF_6:Mn$, mit einem prozentualen Gehalt an Mn von 1,6 Massen-% hergestellt. Die erste Wärmebehandlung, das Waschen und die zweite Wärmebehandlung wurden auf dieselbe Art und Weise wie in Beispiel 8 durchgeführt, ausgenommen, dass die resultierenden ersten Fluoridteilchen verwendet wurden, und dadurch wurde ein lichtemittierendes Material aus Beispiel 9 als ein Fluoridphosphor mit der ersten theoretischen Zusammensetzung, dargestellt durch $K_2Si_{0,99}Al_{0,01}F_{5,99}:Mn$, mit einem prozentualen Gehalt an Mn von 1,5 Massen-% hergestellt.

Beispiel 10

[0175] 15,0 g 35 Massen-% Wasserstoffperoxid und 735,0 g reines Wasser wurden zu 150,0 g einer wässrigen Natriumsalzlösung von Phosphorsäure (Konzentration von Phosphorsäure: 2,4 Massen-%) gegeben, und während das Gemisch (mit Rührflügeln bei einer Umdrehungsgeschwindigkeit von 400 Upm) bei Zimmertemperatur gerührt wurde, wurden 300 g Fluoridphosphor, hergestellt in Beispiel 9, dazu gegeben und dadurch wurde ein Phosphor hergestellt.

[0176] Nachfolgend wurde eine wässrige Lösung von Lanthannitrat (Konzentration von Lanthan: 5,0 Massen-%), die hergestellt worden war, indem 23,4 g Lanthannitrat-Dihydrat in 156,6 g reinem Wasser gelöst worden waren, tropfenweise im Verlauf von ungefähr 1 Minute zu der Phosphoraufschlämmung gegeben. Das Rühren wurde ungefähr 30 Minuten, nachdem die tropfenweise Zugabe beendet war, gestoppt und das Gemisch wurde stehen gelassen. Nachfolgend wurde die überstehende Lösung entfernt, wonach der Niederschlag ausreichend mit Waschwasser, das 1 Massen-% Wasserstoffperoxid enthielt, gewaschen wurde. Der resultierende Niederschlag wurde einer Fest-Flüssig-Trennung unterzogen und dann mit Ethanol gewaschen und 10 Stunden lang bei 90 °C getrocknet und dadurch wurde ein lichtemittierendes Material, das Lanthanphosphat, aufgebracht auf der Oberfläche, aufwies, als Beispiel 10 hergestellt.

Beispiel 11

[0177] Ein lichtemittierendes Material aus Beispiel 11, in dem Lanthanphosphat auf der Oberfläche aufgebracht war, wurde mit demselben Verfahren wie in Beispiel 10 hergestellt, ausgenommen, dass der Fluoridphosphor verwendet wurde, der in Beispiel 8 hergestellt worden war.

Beispiel 12

[0178] Durch dasselbe Verfahren, wie vorstehend beschrieben, wurden erste Fluoridteilchen mit einer zweiten theoretischen Zusammensetzung, dargestellt durch $K_2SiF_6:Mn$, mit einem prozentualen Gehalt an Mn von 1,3 Massen-% hergestellt. Die erste Wärmebehandlung, das Waschen und die zweite Wärmebehandlung wurden auf dieselbe Art und Weise wie in Beispiel 8 durchgeführt, ausgenommen, dass die resultieren-

den ersten Fluoridteilchen verwendet wurden, und dadurch wurde ein Fluoridphosphor hergestellt, der ein Phosphor mit der ersten theoretischen Zusammensetzung, dargestellt durch $K_2Si_{0,99}Al_{0,01}F_{5,99}Mn$, mit einem Mn-Gehalt von 1,2 Massen-% ist. Ein lichtemittierendes Material aus Beispiel 12, in dem Lanthanphosphat auf der Oberfläche aufgebracht war, wurde mit demselben Verfahren wie in Beispiel 10 hergestellt, ausgenommen, dass der resultierende Fluoridphosphor mit der ersten theoretischen Zusammensetzung verwendet wurde.

Vergleichsbeispiel 4

[0179] Ein lichtemittierendes Material aus Vergleichsbeispiel 4, in dem Lanthanphosphat auf der Oberfläche aufgebracht war, wurde mit demselben Verfahren wie in Beispiel 10 hergestellt, ausgenommen, dass der Fluoridphosphor verwendet wurde, der in Vergleichsbeispiel 3 hergestellt worden war.

Beispiel 13

[0180] 100 g Fluoridphosphor, der in Beispiel 6 hergestellt worden war, wurden abgewogen und zu einer gemischten Lösung aus 180 mL Ethanol, 43,4 mL Ammoniakwasser, das 16,5 Massen-% Ammoniak enthielt, und 20 mL reinem Wasser gegeben, und die Flüssigkeitstemperatur wurde bei Zimmertemperatur gehalten, während die Lösung mit einem Rührflügel bei 300 Upm gerührt wurde, und dadurch wurde eine Reaktionsmutterlauge hergestellt. 35,7 g Tetraethoxysilan (TEOS: $Si(OC_2H_5)_4$) wurden abgewogen und tropfenweise über einen Zeitraum von ungefähr 3 Stunden unter Rühren zu der Reaktionsmutterlauge gegeben. Nachfolgend wurde das Rühren 1 Stunde lang fortgesetzt und wurden weiter 10 g 35 Massen-% Wasserstoffperoxid (H_2O_2) zugegeben, wonach das Rühren gestoppt wurde. Der resultierende Niederschlag wurde einer Fest-Flüssig-Trennung unterzogen und dann mit Ethanol gewaschen und 10 Stunden lang bei 105 °C getrocknet und dadurch wurde ein lichtemittierendes Material, das mit Siliziumdioxid (SiO_2) bedeckt war, als Beispiel 13 hergestellt. Die Menge an Tetraethoxysilan, die tropfenweise zugegeben worden war, betrug ungefähr 10 Massen-%, ausgedrückt als das Siliziumdioxid, bezogen auf die Fluoridteilchen.

Beispiel 14

[0181] Ein lichtemittierendes Material aus Beispiel 14 wurde mit demselben Verfahren wie in Beispiel 13 hergestellt, ausgenommen, dass der Fluoridphosphor verwendet wurde, der in Beispiel 7 hergestellt worden war.

Beispiel 15

[0182] Ein lichtemittierendes Material aus Beispiel 15 wurde mit demselben Verfahren wie Beispiel 13 hergestellt, ausgenommen, dass 300 g Fluoridphosphor, der in Beispiel 8 hergestellt worden war, abgewogen und zu einer gemischten Lösung aus 540 mL Ethanol, 130,2 mL Ammoniakwasser, das 16,5 Massen-% Ammoniak enthielt, und 60 mL reinem Wasser gegeben wurden und die Flüssigkeitstemperatur bei Zimmertemperatur gehalten wurde, während die Lösung mit einem Rührflügel bei 350 Upm gerührt wurde, und dadurch eine Reaktionsmutterlauge hergestellt wurde, die Menge der tropfenweisen Zugabe von Tetraethoxysilan (TEOS: $Si(OC_2H_5)_4$) 107,1 g betrug und die Zeitdauer für die tropfenweise Zugabe des Tetraethoxysilans 6 Stunden betrug. Die Menge an Tetraethoxysilan, die tropfenweise zugegeben worden war, betrug ungefähr 10 Massen-%, ausgedrückt als das Siliziumdioxid, bezogen auf die Fluoridteilchen.

Beispiel 16

[0183] Ein lichtemittierendes Material aus Beispiel 16 wurde mit demselben Verfahren wie in Beispiel 15 hergestellt, ausgenommen, dass der Fluoridphosphor verwendet wurde, der in Beispiel 9 hergestellt worden war, und die Rührgeschwindigkeit 500 Upm betrug.

Beispiel 17

[0184] Ein lichtemittierendes Material aus Beispiel 17 wurde mit demselben Verfahren wie in Beispiel 16 hergestellt, ausgenommen, dass der Fluoridphosphor verwendet wurde, der in Beispiel 10 hergestellt worden war.

Beispiel 18

[0185] 50 g lichtemittierendes Material, das in Beispiel 17 hergestellt worden war, wurden abgewogen. Nachfolgend wurden 84,9 mL Ethanol, 5,8 mL reines Wasser und Decyltrimethoxysilan ($(\text{CH}_3\text{O})_3\text{Si}(\text{CH}_2)_9\text{CH}_3$) als ein Silan-Kupplungsmittel gemischt und 30 Minuten lang gerührt, wonach die Lösung 20 Stunden lang oder länger stehen gelassen wurde. Der Fluoridphosphor E10, der in Beispiel 10 hergestellt worden war, wurde zu der Lösung gegeben und das Gemisch wurde 1 Stunde lang bei 200 Upm gerührt, wonach das Rühren gestoppt wurde. Der resultierende Niederschlag wurde einer Fest-Flüssig-Trennung unterzogen und dann 10 Stunden lang bei 105 °C getrocknet, um eine Silankupplungsbehandlung durchzuführen, und dadurch wurde ein lichtemittierendes Material aus Beispiel 18 hergestellt.

Beispiel 19

[0186] Ein lichtemittierendes Material aus Beispiel 19 wurde mit demselben Verfahren wie in Beispiel 15 hergestellt, ausgenommen, dass die Menge der tropfenweisen Zugabe von Tetraethoxysilan 64,3 g betrug.

Beispiel 20

[0187] Ein lichtemittierendes Material aus Beispiel 20 wurde mit demselben Verfahren wie in Beispiel 15 hergestellt, ausgenommen, dass die Menge der tropfenweisen Zugabe von Tetraethoxysilan 32,2 g betrug.

Beispiel 21

[0188] Ein Fluoridphosphor E16 aus Beispiel 21 wurde mit demselben Verfahren wie in Beispiel 15 hergestellt, ausgenommen, dass das lichtemittierende Material verwendet wurde, das in Beispiel 11 hergestellt worden war.

Beispiel 22

[0189] Ein lichtemittierendes Material aus Beispiel 22 wurde mit demselben Verfahren wie in Beispiel 18 hergestellt, ausgenommen, dass das lichtemittierende Material verwendet wurde, das in Beispiel 21 hergestellt worden war.

Beispiel 23

[0190] Ein lichtemittierendes Material wurde mit demselben Verfahren wie in Beispiel 19 hergestellt, ausgenommen, dass das lichtemittierende Material verwendet wurde, das in Beispiel 12 hergestellt worden war. Das resultierende lichtemittierende Material wurde einer Silankupplungsbehandlung mit demselben Verfahren wie in Beispiel 18 unterzogen, ausgenommen, dass Hexyltrimethoxysilan als das Silan-Kupplungsmittel verwendet wurde, und dadurch wurde ein lichtemittierendes Material aus Beispiel 23 hergestellt.

Beispiel 24

[0191] Ein lichtemittierendes Material aus Beispiel 24 wurde mit demselben Verfahren wie in Beispiel 23 hergestellt, ausgenommen, dass Vinyltrimethoxysilan als das Silan-Kupplungsmittel verwendet wurde.

Beispiel 25

[0192] Ein lichtemittierendes Material aus Beispiel 25 wurde mit demselben Verfahren wie in Beispiel 23 hergestellt, ausgenommen, dass 3-Aminopropyltriethoxysilan als das Silan-Kupplungsmittel verwendet wurde.

Beispiel 26

[0193] Ein lichtemittierendes Material aus Beispiel 26 wurde mit demselben Verfahren wie in Beispiel 23 hergestellt, ausgenommen, dass 3-Glycidoxypropyltrimethoxysilan als das Silan-Kupplungsmittel verwendet wurde.

Bewertung

(1) Infrarot-Spektroskopie: FT-IR-Bewertung

[0194] Infrarot-Absorptionsspektren der lichtemittierenden Materialien, die in Beispiel 6 und den Vergleichsbeispielen 2 und 3 hergestellt worden waren, wurden mit einem Verfahren der diffusen Reflexion unter Verwendung des Fouriertransformations-Infrarotspektrometers iS (erhältlich von Thermo Fisher Scientific Inc.) mit einem KBr-Hintergrund gemessen. Korrekturen wurden unter Verwendung des Werts bei 4000 cm^{-1} als einer Grundlinie eingeführt, eine Kubelka-Munk-Transformation wurde umgesetzt und der maximale Peak wurde normalisiert, um das Absorptionsspektrum zu messen.

[0195] Die Aufmerksamkeit wurde auf Peakkomponenten in Wellenzahlbereichen von 1050 cm^{-1} bis 1350 cm^{-1} und von 3500 cm^{-1} bis 3800 cm^{-1} des gemessenen Absorptionsspektrums gerichtet und die Integralflächen (IR-Peakflächen) der Peaks wurden jeweils bestimmt. Ferner wurde ein IR-Peakflächenverhältnis Z1 als ein Flächenverhältnis, dargestellt durch Gleichung (P), bestimmt. Man beachte, dass die Peakfläche des Bereichs von 3500 cm^{-1} bis 3800 cm^{-1} unter Verwendung einer geraden Linie, welche die Intensität bei 3000 cm^{-1} und die Intensität bei 3800 cm^{-1} verbindet, als einem Hintergrund bestimmt wurde und die Peakfläche des Bereichs von 1050 cm^{-1} bis 1350 cm^{-1} unter Verwendung einer geraden Linie, welche die Intensität bei 1050 cm^{-1} verbindet, als einem Hintergrund bestimmt wurde. Hier ist es denkbar, dass sich der Bereich von 1050 cm^{-1} bis 1350 cm^{-1} vom Fluoridphosphor ableitet, sich die Intensitäten bei 3000 cm^{-1} und 3800 cm^{-1} oder weniger von H_2O ableiten und sich der Bereich von 3500 cm^{-1} bis 3800 cm^{-1} von Si-OH ableitet.

$$Z1 = \left(\text{Peakfläche des Bereichs von } 3500\text{ cm}^{-1} \text{ bis } 3800\text{ cm}^{-1} \right) / \left(\text{Peakfläche des Bereichs von } 1050\text{ cm}^{-1} \text{ bis } 1350\text{ cm}^{-1} \text{ oder weniger} \right) \quad (\text{P})$$

[0196] Die Ergebnisse sind in Tabelle 3 aufgeführt.

(2) Menge an Siliziumdioxid

[0197] Die Zusammensetzung von jedem der hergestellten lichtemittierenden Materialien wurde mittels ICP-Emissionsspektrometrie analysiert, die Menge an Siliziumdioxid, die den Fluoridphosphor bedeckt, wurde aus der Differenz in der analysierten Si-Konzentration des lichtemittierenden Materials, das mit Siliziumdioxid bedeckt ist und in jedem der Beispiele 13 bis 26 hergestellt wurde, und der analysierten Si-Konzentration von jedem Fluoridphosphor, bevor er mit Siliziumdioxid bedeckt wurde, in jedem der Beispiele 6 bis 12 berechnet und dadurch wurde der prozentuale Gehalt (SiO_2 -Analysewert) von Siliziumdioxid in Bezug zu dem lichtemittierenden Material bestimmt. Die Ergebnisse sind in den Tabellen 3 bis 7 aufgeführt.

(3) Elementaranalyse durch Röntgenfluoreszenz: XRF-Bewertung

[0198] Die Peakintensität der $\text{K}\alpha$ -Strahlung des Elements F von jedem der lichtemittierenden Materialien, die in den Beispielen 9 und 16 hergestellt worden waren, wurde mit Röntgenfluoreszenzspektrometrie (XRF) unter Verwendung eines XRF-Geräts (Produktname: ZSX Primus II, erhältlich von Rigaku Corporation) gemessen. Das Peakintensitätsverhältnis des lichtemittierenden Materials aus Beispiel 16 wurde als ein relativer Wert berechnet, wobei die Peakintensität des Fluoridphosphors aus Beispiel 9 100 betrug. Aus dem berechneten Peakintensitätsverhältnis wurde die mittlere Dicke des Siliziumdioxidfilms in dem lichtemittierenden Material aus Beispiel 16 unter Verwendung einer Datenbank von The Center for X-Ray Optics (CXRO) berechnet. Die Ergebnisse werden in Tabelle 3 aufgeführt.

(4) Betrachtung mit Rasterelektronenmikroskop

[0199] Das hergestellte lichtemittierende Material aus Beispiel 17 wurde einer Bildbetrachtung unter Verwendung eines Rasterelektronenmikroskops (SEM) unterzogen. Das SEM-Bild wird in **Fig. 8** dargestellt. Weiterhin wurde ein Querschnitt des lichtemittierenden Materials aus Beispiel 17 unter Verwendung eines Rasterelektronenmikroskops (SEM) betrachtet und wurde die mittlere Dicke des Siliziumdioxidfilms durch Bildanalyse gemessen. Genauer gesagt wurde eine Vielzahl von Teilchen aus lichtemittierendem Material in ein Harz eingebettet und eine Probe aus einem Querschnitt wurde durch Ionenätzen hergestellt, so dass der Querschnitt der Teilchen aus lichtemittierendem Material mit einem Rasterelektronenmikroskop betrachtet werden konnte. Das SEM-Bild des Querschnitts ist in **Fig. 7** aufgeführt.

[0200] Die Dicke des Siliziumdioxidfilms wurde für jedes Teilchen aus lichtemittierendem Material an fünf Stellen in dem aufgenommenen SEM-Bild des Querschnitts gemessen und die tatsächlich gemessene mittlere Dicke wurde als ein arithmetisches Mittel der Dicken an insgesamt 25 Stellen von fünf Teilchen berechnet. Hier wurde die Dicke des Siliziumdioxidfilms als die Dicke des Films definiert, die auf dem SEM-Bild sichtbar ist, was einen Teil einschließt, wo der Film schiefwinklig in Bezug zur Dickenrichtung geschnitten wurde. Die Ergebnisse sind in Tabelle 4 aufgeführt.

(5) Gesamtkohlenstoff (TC)

[0201] Der Gesamtkohlenstoff (TC) von jedem der hergestellten lichtemittierenden Materialien aus den Beispielen 10, 18 und 22 bis 26 und Vergleichsbeispiel 4 wurde unter Verwendung eines Messgeräts für den Gesamtgehalt an organischem Kohlenstoff (Produktname: TOC-L, erhältlich von Shimadzu Corporation) analysiert. Die Ergebnisse sind in den Tabellen 4, 6 und 7 aufgeführt.

(6) Prozentualer Gehalt an Lanthan

[0202] Der prozentuale Gehalt an Lanthan von jedem der hergestellten lichtemittierenden Materialien aus den Beispielen 10 bis 12, 17, 18 und 21 bis 26 und Vergleichsbeispiel 4 wurde durch Atomemissionsspektroskopie mit induktiv gekoppeltem Plasma (ICP-AES) analysiert, um den prozentualen Gehalt (La-Analysewert), bezogen auf das lichtemittierende Material, zu bestimmen. Die Ergebnisse sind in den Tabellen 4 bis 7 aufgeführt.

(7) Mangangehalt

[0203] Der prozentuale Gehalt an Mangan von jedem der hergestellten lichtemittierenden Materialien aus den Beispielen 11, 12, 15 und 19 bis 26 und den Vergleichsbeispielen 3 und 4 wurde durch Atomemissionsspektroskopie mit induktiv gekoppeltem Plasma (ICP-AES) analysiert, um den prozentualen Gehalt (Mn-Analysewert), bezogen auf das lichtemittierende Material, zu bestimmen. Die Ergebnisse sind in den Tabellen 5 bis 7 aufgeführt.

(8) Bewertung der Massenänderung von Harzzusammensetzung

[0204] Der Einfluss des lichtemittierenden Materials auf die Änderung der Masse einer Harzzusammensetzung, die ein Harz und das lichtemittierende Material enthält, wurde wie folgt bewertet. Eine Harzzusammensetzung wurde hergestellt, indem in ein Silikonharz 33 Massen-% lichtemittierendes Material, bezogen auf das Silikonharz, gemischt wurden. Ungefähr 1 g der resultierenden Harzzusammensetzung wurden auf eine Aluminiumfolie abgewogen und gehärtet, wonach die Differenz zwischen der Masse der gehärteten Harzzusammensetzung und der Masse der Aluminiumfolie als ein anfänglicher Wert berechnet wurde. Die Harzzusammensetzung, die auf der Aluminiumfolie gehärtet worden war, wurde in einem kleinen Ofen (Produktname: LH-114 Constant Climate Cabinet, erhältlich von Espec Corp.), der bei 200 °C gehalten wurde, stehen gelassen und die Masse nach 100 Stunden, nach 300 Stunden, nach 500 Stunden und nach 1000 Stunden wurde gemessen. Die Massenerhaltungsrate (%) der Harzzusammensetzung nach dem Ablauf jeder Zeitdauer wurde berechnet, wobei der anfängliche Wert 100 % betrug. Eine höhere Massenerhaltungsrate zeigt eine größere Unterdrückung einer Reaktion zwischen dem lichtemittierenden Material und dem Harz an, was bedeutet, dass die Haltbarkeit der Harzzusammensetzung ausgezeichnet ist. Ein Silikonharz, ausgewählt aus im Handel erhältlichen Silikonharzen, wurde für die Bewertung verwendet. Genauer gesagt wurden die lichtemittierenden Materialien aus den Beispielen 6 bis 26 und den Vergleichsbeispielen 2, 3 und 4 unter Verwendung eines Dimethylsilikonharzes (Produktname: KER-2936; Brechungsindex 1,41, hierin nachstehend als „Dimethylsilikonharz 1“ bezeichnet), erhältlich von Shin-Etsu Chemical Co., Ltd., bewertet. Die lichtemittierenden Materialien aus den Beispielen 15 und 21 und Vergleichsbeispiel 3 wurden auch unter Verwendung eines Dimethylsilikonharzes (Handelsname: OE-6351; Brechungsindex 1,41, hierin nachstehend als „Dimethylsilikonharz 2“ bezeichnet), erhältlich von Dow Corning Toray Co., Ltd., eines Phenylsilikonharzes (Handelsname: OE-6630; Brechungsindex 1,53, hierin nachstehend als „Phenylsilikonharz 1“ bezeichnet), erhältlich von Dow Corning Toray Co., Ltd., und eines Phenylsilikonharzes (Brechungsindex 1,50, hierin nachstehend als „Phenylsilikonharz 2“ bezeichnet) mit einem anderen Brechungsindex als derjenige des Phenylsilikonharzes 1 bewertet.

(9) Bewertung der Haltbarkeit

[0205] Die Haltbarkeit von jedem vorstehend hergestellten lichtemittierenden Material wurde wie folgt bewertet. Die innere Quantenausbeute von jedem lichtemittierenden Material im Hinblick auf Anregungslicht mit 450 nm wurde unter Verwendung eines Messgeräts für die Quantenausbeute (Produktname: QE-2000, erhältlich von Otsuka Electronics Co., Ltd.) gemessen und die gemessene innere Quantenausbeute wurde als das anfängliche Merkmal verwendet. Nachfolgend wurde das lichtemittierende Material in eine Petrischale aus Glas platziert und 100 Stunden lang in einem kleinen Wannenofen mit hoher Temperatur und hoher Feuchtigkeit (erhältlich von Espec Corp.) stehen gelassen, der bei einer Temperatur von 85 °C und einer relativen Feuchtigkeit von 85 % gehalten wurde. Nachfolgend wurde die innere Quantenausbeute von jedem lichtemittierenden Material mit demselben Verfahren gemessen und die Erhaltungsrate der Quantenausbeute (%), auf der Grundlage, dass das anfängliche Merkmal 100 % beträgt, wurde berechnet. Eine höhere Erhaltungsrate der Quantenausbeute bedeutet bessere Haltbarkeit. Die Ergebnisse sind in den Tabellen 3 bis 7 aufgeführt.

Herstellungsbeispiel 2 für lichtemittierende Vorrichtung

[0206] Die lichtemittierenden Materialien aus den Beispielen 6 bis 10 und 16 bis 18 und den Vergleichsbeispielen 2 bis 4 wurden als das erste lichtemittierende Material verwendet. Ein β -Sialonphosphor mit einer Zusammensetzung, dargestellt durch $\text{Si}_{5,81}\text{Al}_{0,19}\text{O}_{0,19}\text{N}_{7,81}:\text{Eu}$, und mit einem Emissionspeak in der Nähe von 540 nm wurde als das zweite lichtemittierende Material verwendet. Eine Harzzusammensetzung wurde hergestellt, indem ein Silikonharz mit einem Phosphor 70 gemischt wurde, der durch Vermischen des ersten lichtemittierenden Materials 71 und des zweiten lichtemittierenden Materials 72 hergestellt wurde, so dass als die Farbartkoordinaten im Farbsystem CIE1931 x um 0,280 herum lag und y um 0,270 herum lag. Nachfolgend wurde ein Formkörper 40 mit einem zurück gesetzten Teil hergestellt, wurde eine lichtemittierende Vorrichtung 10, die aus einem Halbleiter auf der Basis einer Galliumnitrid-Verbindung gemacht war und eine Emissionspeakwellenlänge von 451 nm aufwies, an der ersten Zuleitung 20 am Boden des zurück gesetzten Teils aufgebracht und dann wurden Elektroden der lichtemittierenden Vorrichtung 10 mit der ersten Zuleitung 20 und der zweiten Zuleitung 30 durch entsprechende Drähte 60 verbunden. Ferner wurde unter Verwendung einer Spritze die Harzzusammensetzung in den zurück gesetzten Teil des Formkörpers 40 eingespritzt, um so das lichtemittierende Element 10 zu bedecken, und wurde die Harzzusammensetzung gehärtet, um ein fluoreszierendes Bauteil zu bilden und wurde dadurch eine lichtemittierende Vorrichtung 2 hergestellt.

Herstellungsbeispiel 3 für lichtemittierende Vorrichtung

[0207] Die lichtemittierenden Materialien aus den Beispielen 11, 12, 15 und 19 bis 26 und Vergleichsbeispiel 4 wurden als das erste lichtemittierende Material verwendet. Ein Seltenerdaluminatphosphor mit einer theoretischen Zusammensetzung, dargestellt durch $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{11}:\text{Ce}$, und mit einem Emissionspeak in der Nähe von 530 nm, ein Seltenerdaluminatphosphor mit einer theoretischen Zusammensetzung, dargestellt durch $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{11}:\text{Ce}$, und mit einem Emissionspeak in der Nähe von 535 nm und ein Nitridphosphor mit einer theoretischen Zusammensetzung, dargestellt durch $(\text{Ca}, \text{Sr})\text{AlSiN}_3:\text{Eu}$, und mit einem Emissionspeak in der Nähe von 630 nm wurden in Kombination als das zweite lichtemittierende Material verwendet. Eine lichtemittierende Vorrichtung 3 wurde auf dieselbe Art und Weise wie in Herstellungsbeispiel 1 für die lichtemittierende Vorrichtung hergestellt, ausgenommen, dass eine Harzzusammensetzung hergestellt wurde, indem Silikonharz mit dem Phosphor 70 gemischt wurde, der durch Vermischen des ersten lichtemittierenden Materials 71 und des zweiten lichtemittierenden Materials 72 hergestellt wurde, so dass als die Farbartkoordinaten im Farbsystem CIE1931 x um 0,459 herum lag und y um 0,411 herum lag.

Bewertung der Haltbarkeit 1

[0208] Die lichtemittierenden Vorrichtungen 2, die unter Verwendung von jedem der lichtemittierenden Materialien hergestellt wurden, die in den Beispielen 9, 10 und 16 bis 18 und den Vergleichsbeispielen 3 und 4 hergestellt worden waren, und die lichtemittierenden Vorrichtungen 3, die unter Verwendung von jedem der lichtemittierenden Materialien hergestellt wurden, die in den Beispielen 12 und 23 bis 26 hergestellt worden waren, wurden einem Haltbarkeitstest 1 unterzogen, indem sie 500 Stunden lang in einer Klimakammer bei 85 °C und 85 % rel. F. gelagert wurden. Eine Erhaltungsrate des Lichtstroms 1 (%) von jeder lichtemittierenden Vorrichtung nach dem Haltbarkeitstest 1 wurde auf der Grundlage bestimmt, dass der Lichtstrom der lichtemittierenden Vorrichtung vor dem Haltbarkeitstest 1 100 % betrug. Eine höhere Erhaltungsrate des Lichtstroms 1 zeigt eine ausgezeichnetere Haltbarkeit gegen Bedingungen von hoher Temperatur und hoher Feuchtigkeit an. Die Ergebnisse sind in den Tabellen 3, 4 und 7 aufgeführt.

Bewertung der Haltbarkeit 2

[0209] Die lichtemittierenden Vorrichtungen 3, die unter Verwendung von jedem der lichtemittierenden Materialien hergestellt wurden, die in den Beispielen 11, 12, 15 und 19 bis 26 und Vergleichsbeispiel 4 hergestellt worden waren, wurden einem Haltbarkeitstest 2 unterzogen, indem sie 1000 Stunden lang bei einem Stromwert von 150 mA in einer nicht befeuchteten Klimakammer bei einer Temperatur von 85 °C betrieben wurden. Eine Erhaltungsrate des Lichtstroms 2 (%) von jeder lichtemittierenden Vorrichtung nach dem Haltbarkeitstest 2 wurde auf der Grundlage bestimmt, dass der Lichtstrom der lichtemittierenden Vorrichtung vor dem Haltbarkeitstest 2 100% betrug. Eine höhere Erhaltungsrate des Lichtstroms 2 zeigt eine ausgezeichnetere Haltbarkeit gegen Bedingungen von hoher Wärme an. Die Ergebnisse sind in den Tabellen 6 und 7 aufgeführt.

Haltbarkeitstest 3

[0210] Jede der lichtemittierenden Vorrichtungen 2, die unter Verwendung von jedem der lichtemittierenden Materialien hergestellt wurden, die in den Beispielen 6 bis 8 und den Vergleichsbeispielen 2 und 3 hergestellt worden waren, wurde in eine nicht befeuchtete Klimakammer bei einer Temperatur von 85 °C platziert, und der x-Wert der Farbkoordinaten wurde gemessen, wenn die Vorrichtung 100 Stunden lang und 500 Stunden lang bei einem Stromwert von 150 mA betrieben wurde. Die Farbkoordinate x bei 100 Stunden wurde als ein anfänglicher Wert definiert und das Ausmaß der Änderung in x bei 500 Stunden wurde als Δx definiert. Ein kleineres Δx zeigt eine ausgezeichnetere Farbstabilität gegen hohe Wärme an. Die Ergebnisse sind in Tabelle 3 aufgeführt.

Tabelle 3

Lichtemittierendes Material															Lichtemittierende Vorrichtung 2	
Phosphor-Zusammensetzung	IR-Peakflächenverhältnis Z1	SiO ₂ zugegebene Menge (Massen-%)	SiO ₂ Analysewert (Massen-%)	Peakintensitätsverhältnis	Mittlere Dicke (µm)	Erhaltungsrateder Quantenausbeute (%)	Massenerhaltungsrate (%)				Erhaltungsratedes Lichtstroms 1 (%)	Farbarkordinate x Ausmaß der Änderung Δx				
							100 h	300 h	500 h	1000 h						
Vergleichsbeispiel 2	KSF	0,0048	0	-	-	-	84	35	32	-	-	-0,0041				
Vergleichsbeispiel 3		0,0006	0	-	-	-	79,2	92	36	32	31	85	-0,0023			
Beispiel 6	KSAF	0,0003	0	-	-	-	84	38	34	-	-	-0,0010				
Beispiel 7		-	0	-	-	-	-	95	50	43	-	-	-0,0020			
Beispiel 8		-	0	-	-	-	-	84	36	33	31	-	-0,0012			
Beispiel 9		-	0	-	100	0	68,9	79	37	34	31	88	-			
Beispiel 13		-	10	9,0	-	-	-	99	97	96	-	-	-			
Beispiel 14		-	10	8,8	-	-	-	99	97	96	-	-	-			
Beispiel 15		-	10	9,0	-	-	-	100	97	96	92	-	-			
Beispiel 16		-	10	9,1	42	0,45	84,9	100	97	95	91	91	-			

Tabelle 4

	Lichtemittierendes Material											Lichtemittie- rende Vor- richtung 2
	Phosphor- Zusam- menset- zung	SiO ₂ Ana- lysewert (Massen- %)	La-Analy- sewert (Massen- %)	TC-Analy- sewert (ppm)	Gemes- sene mitt- lere Dicke (µm)	Erhaltungs- rate der Quanten- ausbeute (%)	Massenerhaltungsrate (%)				Erhaltungs- rate des Lichtstroms 1(%)	
							100 h	300 h	500 h	1000 h		
Vergleichs- beispiel 4	KSF	0	-	1,36	50	-	91,7	99	69	49	41	87
Beispiel 10	KSAF	0	-	1,02	20	-	90,3	99	64	45	38	87
Beispiel 17		10	9,1	0,93	-	0,44	92,6	100	97	95	92	91
Beispiel 18		10	8,7	0,91	170	-	93,7	99	97	94	90	91

Tabelle 5

	Phosphor									
	Phosphor- Zusammen- setzung	SiO ₂ zuge- gebene Menge (Massen-%)	SiO ₂ Analy- sewert (Massen-%)	Mn-Analy- sewert (Massen-%)	La-Analyse- wert (Mas- sen-%)	Erhaltungsrate der Quanten- ausbeute (%)	Harz	Massenerhaltungsrate (%)		
								100 h	300 h	500 h
Vergleichs- beispiel 3	KSF	0	-	1,50	0	79,2	Dimethylsili- konharz 1	92	36	32
							Dimethylsili- konharz 2	41	38	37
							Phenylsiliikon- harz 1	88	79	76
							Phenylsiliikon- harz 2	92	88	86
Beispiel 15			9,0	0,92	0	93,5	Dimethylsili- konharz 1	100	96	95
							Dimethylsili- konharz 2	97	86	74
							Phenylsiliikon- harz 1	98	95	93
							Phenylsiliikon- harz 2	100	96	94
Beispiel 21	KSAF	10	8,6	0,91	1,03	95,9	Dimethylsili- konharz 1	100	97	96
							Dimethylsili- konharz 2	98	92	85
							Phenylsiliikon- harz 1	98	96	95
							Phenylsiliikon- harz 2	97	96	95

Tabelle 6

Lichtemittierendes Material													Lichtemittie- rende Vor- richtung 3
	Phosphor- Zusammen- setzung	SiO ₂ zuge- gebene Menge (Massen- %)	SiO ₂ Ana- lysewert (Massen- %)	Mn-Analy- sewert (Massen- %)	La-Analy- sewert (Massen- %)	TC-Ana- lysewert (ppm)	Erhaltungs- rate der Quanten- ausbeute (%)	Harz	Massenerhaltungsrate (%)			Erhaltungs- rate des Lichtstroms 2 (%)	
									100 h	300 h	1000 h		
Vergleichs- beispiel 4	KSF	0	-	1,50	1,36	50	91,7	Dimethyl- silikon- harz 1	99	69	41	97,5	
Beispiel 11	KSAF	0	-	1,00	1,14	-	93,9		98	78	45	96,3	
Beispiel 15		10	9,0	0,92	-	-	93,5		100	97	92	96,4	
Beispiel 19		6	5,9	0,94	-	-	94,9		100	97	90	99,0	
Beispiel 20		3	3,0	0,95	-	-	96,8		100	97	80	98,7	
Beispiel 21		10	8,6	0,91	1,03	-	95,9		100	97	93	97,7	
Beispiel 22		10	8,7	0,92	1,02	260	98,2		100	97	92	98,4	

Tabelle 7

Lichtemittierendes Material										Lichtemittierende Vorrichtung 3	
	Phosphor-Zusammensetzung	SiO ₂ zugegebene Menge (Massen-%)	SiO ₂ Analysewert (Massen-%)	Mn-Analysewert (Massen-%)	La-Analysewert (Massen-%)	TC-Analysewert (ppm)	Erhaltungsrateder Quantenausbeute (%)	Harz	Massenerhaltungsratedes Lichtstroms	Erhaltungsratedes Lichtstroms 1 (%)	Erhaltungsratedes Lichtstroms 2 (%)
									1000 h		
Beispiel 12	KSAF	0	-	1,20	1,05	-	93,3	Dimethylsilikonharz 1	42	98,9	95,8
Beispiel 23		6	5,8	1,13	0,94	560	97,1		92	99,5	96,3
Beispiel 24			5,8	1,13	0,96	400	97,0		92	99,9	96,7
Beispiel 25			6,0	1,13	0,97	1600	96,2		91	97,3	97,3
Beispiel 26			5,8	1,13	0,96	430	97,9		92	100,3	96,8

[0211] Die analytischen Werte für SiO_2 der lichtemittierenden Materialien aus den Beispielen 15, 19 und 20 nahmen zu, als die Befüllungsmenge von SiO_2 erhöht wurde. Beim lichtemittierenden Material aus Beispiel 16 verringerte sich das Peakintensitätsverhältnis der $\text{K}\alpha$ -Strahlung des Elements F, das mit XRF gemessen wurde, auf 42 in Bezug zur Peakintensität von 100 des lichtemittierenden Materials aus Beispiel 9. Davon ausgehend ist es denkbar, dass die $\text{K}\alpha$ -Strahlung des Elements F durch den SiO_2 -Film absorbiert wird, und es ist denkbar, dass SiO_2 die Oberfläche jedes Fluoridteilchens als ein Film bedeckt. Ferner wurde die Filmdicke des SiO_2 -Films aus der Absorptionsrate berechnet und zu $0,45\ \mu\text{m}$ gefunden.

[0212] Im Vergleich zu dem lichtemittierenden Material mit der zweiten theoretischen Zusammensetzung (KSF) aus Vergleichsbeispiel 2 wies das lichtemittierende Material (KSAF) mit der ersten theoretischen Zusammensetzung aus Beispiel 6 ein kleineres FT-IR-Peakflächenverhältnis (Z1) auf. Im Vergleich zu den lichtemittierenden Vorrichtungen 2, welche die lichtemittierenden Materialien (KSF) aus den Vergleichsbeispielen 2 und 3 verwendeten, wiesen die lichtemittierenden Vorrichtungen 2, welche die lichtemittierenden Materialien (KSAF) aus den Beispielen 6 bis 8 verwendeten, ein kleineres Δx auf. Ausgehend von dieser Tatsache ist es klar, dass KSAF selbst ohne die zweite Wärmebehandlung weniger -OH-Gruppen an der Teilchenoberfläche aufweist und dem KSF hinsichtlich der Farbstabilität der lichtemittierenden Vorrichtung überlegen ist. Das heißt, KSAF zeigt eine ausgezeichnete Farbstabilität bei dem ersten wärmebehandelten Material, dem zweiten wärmebehandelten Material und dem dritten wärmebehandelten Material. Im Vergleich zu den Harzzusammensetzungen, welche die lichtemittierenden Materialien aus den Vergleichsbeispielen 2 und 3 und den Beispielen 6 bis 9 enthalten, zeigten die Harzzusammensetzungen, welche die lichtemittierenden Materialien mit dem SiO_2 -Film aus den Beispielen 13 bis 16 enthalten, höhere Massenerhaltungsraten und bessere Haltbarkeit der Harzzusammensetzungen. Im Hinblick auf die Haltbarkeit der Harzzusammensetzung ist es klar, dass im Vergleich zu Beispiel 20, bei dem die mittlere Dicke des SiO_2 -Films dünn war, in den Beispielen 19 und 15, bei denen die mittlere Dicke des SiO_2 -Films dick war, sich die Massenerhaltungsrate der Harzzusammensetzung nach 1000 Stunden verbesserte und die Haltbarkeit der Harzzusammensetzung weiter erhöht war.

[0213] Die Erhaltungsrate des Lichtstroms 1 der lichtemittierenden Vorrichtung 2, bei der das lichtemittierende Material aus Beispiel 16 verwendet wurde, war höher als diejenige der lichtemittierenden Vorrichtung 2, bei der das lichtemittierende Material aus Vergleichsbeispiel 3 verwendet wurde, und die lichtemittierende Vorrichtung 2 war ausgezeichneter in der Haltbarkeit. Ausgehend davon ist es klar, dass eine lichtemittierende Vorrichtung, die einen Fluoridphosphor verwendet, der mit einem SiO_2 -Film bedeckt ist, höhere Haltbarkeit zeigt.

[0214] Fig. 7 zeigt ein SEM-Bild, das aufgenommen wurde, als das lichtemittierende Material, das in Beispiel 17 hergestellt wurde, unter Verwendung eines Rasterelektronenmikroskops betrachtet wurde. Aus Fig. 7 ist es klar, dass das Siliziumdioxid, das die Fluoridteilchen mit der theoretischen Zusammensetzung von KSAF bedeckt, in der Form eines zusammenhängenden Films und nicht in der Form von Teilchen vorliegt.

[0215] Fig. 8 zeigt ein Bild, das aufgenommen wurde, als ein Querschnitt des lichtemittierenden Materials, das in Beispiel 17 hergestellt worden war, unter Verwendung eines Rasterelektronenmikroskops betrachtet wurde. In Fig. 8 entspricht der graue Anteil den Fluoridteilchen 2, entspricht der weiße Anteil dem Lanthanphosphat 4 und entspricht der dunkelgraue Anteil dem Siliziumdioxid 6. Davon ausgehend ist es klar, dass das Lanthanphosphat 4 mit den Fluoridteilchen 2 verklebt ist und ferner mit dem Siliziumdioxid 6 bedeckt ist.

[0216] Die TC-Analysewerte der lichtemittierenden Materialien aus den Beispielen 18 und 22 bis 26 waren höher als diejenigen des lichtemittierenden Materials aus Vergleichsbeispiel 4, und das Vorliegen von Kohlenstoff wurde bestätigt. Da von diesem Kohlenstoff angenommen wird, dass er sich von dem Silan-Kupplungsmittel ableitet, ist es denkbar, dass eine Komponente, die sich von dem Silan-Kupplungsmittel ableitet, mit der Oberfläche des Fluoridphosphors verklebt wird, indem der Fluoridphosphor, der mit SiO_2 bedeckt ist, der Silankupplungsbehandlung unterzogen wird.

[0217] Im Vergleich zu dem lichtemittierenden Material aus Beispiel 10, bei dem Lanthanphosphat mit dem Fluoridphosphor verklebt war, wies das lichtemittierende Material aus Beispiel 17, das mit dem SiO_2 -Film bedeckt war, eine höhere Erhaltungsrate der Quantenausbeute bei der Bewertung der Haltbarkeit und eine höhere Massenerhaltungsrate der Harzzusammensetzung auf und war in der Haltbarkeit des lichtemittierenden Materials und der Harzzusammensetzung ausgezeichnet. Im Hinblick auf die Haltbarkeit ist es klar, dass sich im Vergleich zu Beispiel 17 in Beispiel 18, das der Silankupplungsbehandlung unterzogen worden war, eine höhere Erhaltungsrate der Quantenausbeute und weiter verbesserte Haltbarkeit zeigten. Die Erhaltungsrate der Quantenausbeute von Beispiel 17, an das Lanthanphosphat verklebt war, war höher als dieje-

nige von Beispiel 16, an das Lanthanphosphat nicht verklebt war, und eine höhere Wirkung wurde erreicht, indem die Oberfläche des Phosphors, an den Lanthanphosphat verklebt war, mit SiO_2 bedeckt wurde. Das heißt, selbst bei dem Fluoridphosphor, an den Lanthanphosphat verklebt war, wurde eine Wirkung der Verbesserung der Haltbarkeit erreicht, indem der Fluoridphosphor mit einem SiO_2 -Film bedeckt wurde.

[0218] Im Vergleich zu der lichtemittierenden Vorrichtung 2, bei der das lichtemittierende Material aus Beispiel 10 verwendet wurde, wurden weitere Verbesserungen bei den lichtemittierenden Vorrichtungen 2 beobachtet, welche die lichtemittierenden Materialien aus den Beispielen 17 und 18 verwendeten, und eine Wirkung der Verbesserung der Haltbarkeit wurde erreicht, indem die Fluoridteilchen mit einem SiO_2 -Film bedeckt wurden, selbst bei den Fluoridteilchen, an denen Lanthanphosphat angebracht war.

[0219] Wenn der Absetzungszustand des Phosphors bestätigt wurde, indem der Querschnitt der lichtemittierenden Vorrichtung betrachtet wurde, war das lichtemittierende Material am meisten in der lichtemittierenden Vorrichtung 2 abgesetzt, in der das lichtemittierende Material aus Beispiel 18, das der Silankupplungsbehandlung unterzogen worden war. In diesem Fall ist es denkbar, dass sich die Affinität zu dem Harz durch die Silankupplungsbehandlung verbesserte, und als ein Ergebnis war das lichtemittierende Material leichter abgesetzt.

[0220] Die lichtemittierenden Materialien aus den Beispielen 15 und 21 wiesen höhere Erhaltungsraten der Quantenausbeute auf als das lichtemittierende Material aus Vergleichsbeispiel 3. Außerdem zeigten im Vergleich zu dem lichtemittierenden Material aus Vergleichsbeispiel 3 die lichtemittierenden Materialien aus den Beispielen 15 und 21 höhere Massenerhaltungsraten der Harzzusammensetzung und bessere Haltbarkeit der Harzzusammensetzung. Bei den Phenylsilikonharzen 1 und 2 war die Massenerhaltungsrate selbst bei den Fluoridteilchen aus Vergleichsbeispiel 3 hoch, aber bei den Beispielen 15 und 21 war die Massenerhaltungsrate noch höher. In den Fällen, in denen die Dimethylsilikonharze 1 und 2 verwendet wurden, verringerte sich die Massenerhaltungsrate des lichtemittierenden Materials aus Vergleichsbeispiel 3 deutlich, waren aber die Massenerhaltungsraten der Beispiele 15 und 21 hoch. Insbesondere war die Massenerhaltungsrate des Beispiels 21 höher und wurde eine höhere Wirkung erreicht, indem die Oberfläche des Phosphors, an den Lanthanphosphat verklebt war, mit dem SiO_2 -Film bedeckt wurde. Bei jedem der Harze war im Vergleich zu den Fluoridteilchen aus Beispiel 3 mit KSF als der Zusammensetzung die Haltbarkeit der Harzzusammensetzung ausgezeichnet in Beispiel 15, bei dem die Fluoridteilchen mit KSAF als der Zusammensetzung mit dem SiO_2 -Film bedeckt worden waren, und in Beispiel 21, bei dem die Oberfläche des Phosphors mit daran verklebtem Lanthanphosphat mit dem SiO_2 -Film bedeckt worden war.

[0221] Die lichtemittierenden Materialien aus den Beispielen 15 und 19 bis 22 wiesen höhere Erhaltungsraten der Quantenausbeute auf als das lichtemittierende Material aus Vergleichsbeispiel 4. Die Massenerhaltungsraten der Harzzusammensetzungen waren auch höher und die Haltbarkeit der Harzzusammensetzungen war ausgezeichnet. Die lichtemittierenden Vorrichtungen 3, bei denen die lichtemittierenden Materialien aus den Beispielen 15 und 19 bis 22 verwendet wurden, zeigten höhere Erhaltungsraten des Lichtstroms 2 und ausgezeichneter Haltbarkeit als die lichtemittierende Vorrichtung 3, bei der das lichtemittierende Material aus Beispiel 11 verwendet wurde. Bei den lichtemittierenden Vorrichtungen 3, bei denen die lichtemittierenden Materialien aus den Beispielen 21 und 22 verwendet wurden, wurde ein lichtemittierendes Material verwendet, bei dem die Oberfläche des Phosphors, an die Lanthanphosphat verklebt war, mit SiO_2 bedeckt war, und diese lichtemittierenden Vorrichtungen 3 zeigten eine ausgezeichneter Haltbarkeit als die lichtemittierende Vorrichtung, bei der das lichtemittierende Material aus Beispiel 15 verwendet wurde. Dieses Ergebnis scheint daran zu liegen, dass das Lanthanphosphat die Haftfestigkeit der Siliziumoxidbeschichtung verbessert, was zu einer Unterdrückung des Abblätterns der Beschichtung und dergleichen führt. Weiterhin ist es bei der lichtemittierenden Vorrichtung 3, bei der das lichtemittierende Material aus Beispiel 22 verwendet wird, denkbar, dass die Affinität zu dem Harz durch die Silankupplungsbehandlung verbessert wurde und sich dadurch der Phosphor einfach absetzte und sich auch das Haftvermögen an das Harz verbesserte und als ein Ergebnis wurde eine noch höhere Wirkung erreicht. Die lichtemittierenden Vorrichtungen, welche die lichtemittierenden Materialien aus den Beispielen 19 und 20 verwendeten, bei denen die SiO_2 -Konzentration verringert war, zeigten eine ausgezeichneter Haltbarkeit als die lichtemittierende Vorrichtung, die den Fluoridphosphor aus Beispiel 15 verwendete. Es ist denkbar, dass der Grund dafür ist, dass die Verringerung der SiO_2 -Konzentration zu einer Unterdrückung der Rissbildung des SiO_2 -Films führte, was auch zu einer Unterdrückung des Kontakts mit der äußeren Umgebung an den Stellen der Rissbildung führte. Die lichtemittierenden Vorrichtungen 3, welche die lichtemittierenden Materialien aus den Beispielen 19 und 20 verwendeten, bei denen die Fluoridteilchen mit der KSAF-Zusammensetzung mit dem SiO_2 -Film bedeckt waren, und die lichtemittierenden Vorrichtungen 3, welche die lichtemittierenden Materialien aus den Beispielen 21 und 22 verwendeten, bei denen die Fluoridteilchen mit der KSAF-Zusammensetzung und mit daran verklebtem Lan-

thanphosphat mit dem SiO_2 -Film bedeckt waren, zeigten ausgezeichneter Haltbarkeit als die lichtemittierende Vorrichtung, welche die Fluoridteilchen aus Vergleichsbeispiel 4 mit der KSF-Zusammensetzung und mit daran verklebtem Lanthanphosphat verwendete.

[0222] Die lichtemittierenden Materialien aus den Beispielen 23 bis 26 zeigten höhere Erhaltungsraten der Quantenausbeute als diejenige des lichtemittierenden Materials aus Beispiel 12. Die Massenerhaltungsraten dieser Harzzusammensetzungen waren auch weiter erhöht und die Haltbarkeit als ein Pulver war ausgezeichnet und es ist denkbar, dass sich die Affinität zu dem Harz durch die Silankupplungsbehandlung verbesserte. Bei der Bewertung der Haltbarkeit 1 zeigten die lichtemittierenden Vorrichtungen, welche die lichtemittierenden Materialien aus den Beispielen 23, 24 und 26 verwendeten, höhere Erhaltungsraten des Lichtstroms 1 als die lichtemittierende Vorrichtung, welche das lichtemittierende Material aus Beispiel 12 verwendete. Ferner zeigten bei der Bewertung der Haltbarkeit 2 die lichtemittierenden Vorrichtungen, welche die lichtemittierenden Materialien aus den Beispielen 23 bis 26 verwendeten, höhere Erhaltungsraten des Lichtstroms 2 als die lichtemittierende Vorrichtung, welche das lichtemittierende Material aus Beispiel 12 verwendete. Von der Grundursache dafür kann angenommen werden, dass sie beispielsweise wie folgt ist. In dem Silan-Kupplungsmittel wird eine Methoxygruppe oder eine Ethoxygruppe hydrolysiert, um eine Wasserstoffbrückenbindung mit einer -OH-Gruppe an der Oberfläche des Phosphors zu bilden, und wird durch das Erhitzen chemisch gebunden. Deshalb ist es für das Silan-Kupplungsmittel schwierig, an ein Fluoridteilchen mit der KSAF-Zusammensetzung mit weniger -OH-Gruppen an der Oberfläche zu binden. Auf der anderen Seite ist es denkbar, dass eine große Anzahl von -OH-Gruppen an der Oberfläche des Fluoridphosphors vorliegt, bei dem die Fluoridteilchen mit SiO_2 bedeckt sind, und somit wird das Silan-Kupplungsmittel leicht gebunden und verbessert sich die Affinität zu dem Harz weiter und wird somit die Wirkung, wie vorstehend beschrieben, erreicht. Insbesondere war bei den lichtemittierenden Materialien aus den Beispielen 23 bis 26 die Oberfläche des Phosphors, an die Lanthanphosphat verklebt war, mit SiO_2 bedeckt. Es ist denkbar, dass das Lanthanphosphat weiter die Haftfestigkeit des SiO_2 -Films verbesserte und ferner Rissbildung, Abblättern und dergleichen der Beschichtung unterdrückte, und dadurch wurde einheitliches Binden des Silan-Kupplungsmittels erleichtert und verbesserte sich die Affinität zu dem Harz.

[0223] Der Fluoridphosphor und das lichtemittierende Material, welche mit dem Herstellungsverfahren der vorliegenden Offenbarung hergestellt werden, können in einer lichtemittierenden Vorrichtung verwendet werden, bei der eine Leuchtdiode als eine Anregungslichtquelle verwendet wird und können beispielsweise in geeigneter Weise in einer Lichtquelle zur Beleuchtung, einer Lichtquelle zur Anwendung in einem LED-Display oder Flüssigkristall-Hintergrundbeleuchtung, einem Verkehrssignal, einem beleuchteten Schalter, verschiedenen Sensoren, verschiedenen Anzeigevorrichtungen und einem kompakten Stroboskop verwendet werden.

[0224] Die Offenbarungen von JP 2021-091754 (eingereicht am 31. Mai 2021), JP 2021-130074 (eingereicht am 6. August 2021), JP 2021-141629 (eingereicht am 31. August 2021) und JP 2022-083514 (eingereicht am 23. Mai 2022) werden hierin durch die Bezugnahme in ihrer Gänze eingeschlossen. Alle Veröffentlichungen, Patentanmeldungen und technischen Normen, die in der vorliegenden Beschreibung beschrieben werden, sind hierin durch die Bezugnahme in demselben Ausmaß eingeschlossen, wie ein Fall, in dem der Einschluss durch die Bezugnahme von jeder einzelnen Veröffentlichung, Patentanmeldung und technischer Norm spezifisch und einzeln angegeben wird, um durch die Bezugnahme eingeschlossen zu werden.

ZITATE ENTHALTEN IN DER BESCHREIBUNG

Diese Liste der vom Anmelder aufgeführten Dokumente wurde automatisiert erzeugt und ist ausschließlich zur besseren Information des Lesers aufgenommen. Die Liste ist nicht Bestandteil der deutschen Patent- bzw. Gebrauchsmusteranmeldung. Das DPMA übernimmt keinerlei Haftung für etwaige Fehler oder Auslassungen.

Zitierte Patentliteratur

- JP 2012 [0002]
- JP 224536 A [0002]
- JP 2021091754 [0224]
- JP 2021130074 [0224]
- JP 2021141629 [0224]
- JP 2022083514 [0224]

Patentansprüche

1. Ein lichtemittierendes Material, umfassend einen Fluoridphosphor mit einer ersten Zusammensetzung, welche umfasst: ein Alkalimetall enthaltend K; Si; Al; Mn und F, so dass, wenn eine Gesamtzahl der Mole des Alkalimetalls 2 ist, eine Gesamtzahl der Mole von Si, Al und Mn in einem Bereich von 0,9 bis 1,1 liegt, eine Anzahl der Mole von Al in einem Bereich von größer als 0 bis 0,1 liegt, eine Anzahl der Mole von Mn in einem Bereich von größer als 0 bis 0,2 liegt und eine Anzahl der Mole von F in einem Bereich von 5,5 bis weniger als 6,0 liegt, und der Fluoridphosphor als eine Kristallstruktur eine Kristallstruktur des kubischen Systems aufweist und eine Gitterkonstante von 0,8138 nm oder größer aufweist.

2. Ein lichtemittierendes Material, umfassend einen Fluoridphosphor mit einer ersten Zusammensetzung, welche umfasst: ein Alkalimetall enthaltend K; Si; Al; Mn und F, so dass, wenn eine Gesamtzahl der Mole des Alkalimetalls 2 ist, eine Gesamtzahl der Mole von Si, Al und Mn in einem Bereich von 0,9 bis 1,1 liegt, eine Anzahl der Mole von Al in einem Bereich von größer als 0 bis 0,1 liegt, eine Anzahl der Mole von Mn in einem Bereich von größer als 0 bis 0,2 liegt und eine Anzahl der Mole von F in einem Bereich von 5,5 bis weniger als 6,0 liegt, und der Fluoridphosphor einen Absorptionspeak in einem Wellenzahlbereich von 590 cm^{-1} bis 610 cm^{-1} in einem Infrarot-Absorptionsspektrum aufweist.

3. Das lichtemittierende Material gemäß Anspruch 1 oder 2, wobei der Fluoridphosphor eine Zusammensetzung, dargestellt durch die Formel (I), aufweist:



wobei M ein Alkalimetall darstellt und mindestens K enthält, und p, q, r und s $0,9 \leq p + q + r \leq 1,1$, $0 < q \leq 0,1$, $0 < r \leq 0,2$ und $5,5 \leq s \leq 6,0$ erfüllen.

4. Das lichtemittierende Material gemäß einem der Ansprüche 1 bis 3, wobei in der ersten Zusammensetzung die Gesamtzahl der Mole von Si, Al und Mn gleich 1 ist, wenn die Gesamtzahl der Mole des Alkalimetalls 2 beträgt.

5. Das lichtemittierende Material gemäß einem der Ansprüche 1 bis 4, wobei die Anzahl der Mole von Al in der ersten Zusammensetzung in einem Bereich von größer als 0 bis 0,06 liegt.

6. Das lichtemittierende Material gemäß einem der Ansprüche 1 bis 5, ferner umfassend ein Oxid, welches auf mindestens einem Teil einer Oberfläche des Fluoridphosphors aufgebracht ist, wobei das Oxid mindestens ein Element, ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus Si, Al, Ti, Zr, Sn und Zn, enthält und ein prozentualer Gehalt des Oxids in einem Bereich von 2 Massen-% bis 30 Massen-%, bezogen auf das lichtemittierende Material, liegt.

7. Das lichtemittierende Material gemäß Anspruch 6, wobei ein Seltenerd-Phosphat, enthaltend mindestens ein Seltenerd-Element, ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus La, Ce, Dy und Gd, auf einer Oberfläche des Fluoridphosphors aufgebracht ist und das Oxid auf mindestens einem Teil der Oberfläche des Fluoridphosphors aufgebracht ist, wobei das Seltenerd-Phosphat dazwischen angeordnet ist.

8. Das lichtemittierende Material gemäß einem der Ansprüche 1 bis 5, ferner umfassend ein Seltenerd-Phosphat, welches auf mindestens einem Teil der Oberfläche des Fluoridphosphors aufgebracht ist, wobei das Seltenerd-Phosphat mindestens ein Seltenerd-Element, ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus La, Ce, Dy und Gd, enthält.

9. Ein Verfahren zur Herstellung eines lichtemittierenden Materials, wobei das Verfahren umfasst:
Herstellen von ersten Fluoridteilchen mit einer zweiten Zusammensetzung, umfassend ein Alkalimetall enthaltend K; Si; Mn und F, so dass, wenn eine Gesamtzahl der Mole des Alkalimetalls 2 ist, eine Gesamtzahl der Mole von Si und Mn in einem Bereich von 0,9 bis 1,1 liegt, eine Anzahl der Mole von Mn in einem Bereich von größer als 0 bis 0,2 liegt und eine Anzahl der Mole von F in einem Bereich von 5,5 bis weniger als 6,0 liegt;

Herstellen von zweiten Fluoridteilchen mit einer dritten Zusammensetzung, umfassend ein Alkalimetall enthaltend K, Al und F, so dass, wenn eine Anzahl der Mole von Al gleich 1 ist, eine Gesamtzahl der Mole des Alkalimetalls in einem Bereich von 2 bis 3 liegt und eine Anzahl der Mole von F in einem Bereich von 5 bis 6 liegt; und

Unterziehen eines Gemischs der ersten Fluoridteilchen und der zweiten Fluoridteilchen einer ersten Wär-

mebehandlung in einer inerten Gasatmosphäre bei einer Temperatur in einem Bereich von 600°C bis 780°C, um ein erstes wärmebehandeltes Material herzustellen.

10. Das Verfahren zur Herstellung eines lichtemittierenden Materials gemäß Anspruch 9, wobei bei der Herstellung der ersten Fluoridteilchen die Gesamtzahl der Mole von Si und Mn in der zweiten Zusammensetzung gleich 1 ist, wenn die Gesamtzahl der Mole des Alkalimetalls gleich 2 ist.

11. Das Verfahren zur Herstellung eines lichtemittierenden Materials gemäß Anspruch 9 oder 10, ferner umfassend das Inkontaktbringen des ersten wärmebehandelten Materials mit einem ersten flüssigen Medium.

12. Das Verfahren zur Herstellung eines lichtemittierenden Materials gemäß einem der Ansprüche 9 bis 11, ferner umfassend das Unterziehen des ersten wärmebehandelten Materials einer zweiten Wärmebehandlung bei einer Temperatur in einem Bereich von 400°C bis 600°C, um ein zweites wärmebehandeltes Material herzustellen.

13. Das Verfahren zur Herstellung eines lichtemittierenden Materials gemäß Anspruch 12, ferner umfassend das Inkontaktbringen des zweiten wärmebehandelten Materials und eines Metallalkoxids, enthaltend mindestens ein Element, ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus Si, Al, Ti, Zr, Sn und Zn, in einem flüssigen Medium, um dadurch ein von dem Metallalkoxid abgeleitetes Oxid auf mindestens einen Teil einer Oberfläche des Fluoridphosphors in einer Menge in einem Bereich von 2 Massen-% bis 30 Massen-%, bezogen auf das lichtemittierende Material, aufzubringen.

14. Das Verfahren zur Herstellung eines lichtemittierenden Materials gemäß Anspruch 12, ferner umfassend das Inkontaktbringen des zweiten wärmebehandelten Materials, Seltenerd-Ionen, enthaltend mindestens eine Art, ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus La, Ce, Dy und Gd, und Phosphationen in einem flüssigen Medium, um ein zweites wärmebehandeltes Material, das Seltenerd-Phosphat, welches auf mindestens einem Teil einer Oberfläche des zweiten wärmebehandelten Materials aufgebracht ist, aufweist, herzustellen.

15. Das Verfahren zur Herstellung eines lichtemittierenden Materials gemäß Anspruch 14, ferner umfassend das Inkontaktbringen des zweiten wärmebehandelten Materials, auf welchem das Seltenerd-Phosphat aufgebracht ist, und eines Metallalkoxids, enthaltend mindestens ein Element, ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus Si, Al, Ti, Zr, Sn und Zn, in einem flüssigen Medium, um dadurch ein von dem Metallalkoxid abgeleitetes Oxid auf mindestens einen Teil einer Oberfläche des zweiten wärmebehandelten Materials, auf dem das Seltenerd-Phosphat angebracht ist, in einer Menge in einem Bereich von 2 Massen-% bis 30 Massen-%, bezogen auf das lichtemittierende Material, aufzubringen.

16. Das Verfahren zur Herstellung eines lichtemittierenden Materials gemäß einem der Ansprüche 9 bis 11, ferner umfassend das Unterziehen des ersten wärmebehandelten Materials einer Druckbehandlung und einer Wärmebehandlung zusammen mit einem zweiten flüssigen Medium, um ein drittes wärmebehandeltes Material herzustellen.

17. Das Verfahren zur Herstellung eines lichtemittierenden Materials gemäß Anspruch 16, wobei die Wärmebehandlung bei einer Temperatur von 100°C oder höher durchgeführt wird.

18. Das Verfahren zur Herstellung eines lichtemittierenden Materials gemäß Anspruch 16 oder 17, wobei die Druckbehandlung bei 1,6 MPa oder höher durchgeführt wird.

19. Das Verfahren zur Herstellung eines lichtemittierenden Materials gemäß einem der Ansprüche 16 bis 18, wobei das zweite flüssige Medium Wasser enthält.

20. Das Verfahren zur Herstellung eines lichtemittierenden Materials gemäß einem der Ansprüche 16 bis 19, wobei das zweite flüssige Medium Kalium enthält.

21. Das Verfahren zur Herstellung eines lichtemittierenden Materials gemäß einem der Ansprüche 16 bis 20, ferner umfassend das Inkontaktbringen des dritten wärmebehandelten Materials und eines Metallalkoxids, enthaltend mindestens ein Element, ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus Si, Al, Ti, Zr, Sn und Zn in einem flüssigen Medium, um dadurch ein von dem Metallalkoxid abgeleitetes Oxid auf mindes-

tens einen Teil einer Oberfläche des Fluoridphosphors in einer Menge in einem Bereich von 2 Massen-% bis 30 Massen-%, bezogen auf das lichtemittierende Material, aufzubringen.

22. Das Verfahren zur Herstellung eines lichtemittierenden Materials gemäß einem der Ansprüche 16 bis 20, ferner umfassend das Inkontaktbringen des dritten wärmebehandelten Materials, Seltenerd-Ionen, enthaltend mindestens eine Art, ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus La, Ce, Dy und Gd, und Phosphationen in einem flüssigen Medium, um ein zweites wärmebehandeltes Material, das Seltenerd-Phosphat, welches auf mindestens einem Teil einer Oberfläche des zweiten wärmebehandelten Materials aufgebracht ist, aufweist, herzustellen.

23. Das Verfahren zur Herstellung eines lichtemittierenden Materials gemäß Anspruch 22, ferner umfassend das Inkontaktbringen des dritten wärmebehandelten Materials, auf welchem das Seltenerd-Phosphat aufgebracht ist, und eines Metallalkoxids, enthaltend mindestens ein Element, ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus Si, Al, Ti, Zr, Sn und Zn, in einem flüssigen Medium, um dadurch ein von dem Metallalkoxid abgeleitetes Oxid auf mindestens einen Teil einer Oberfläche des zweiten wärmebehandelten Materials, auf dem das Seltenerd-Phosphat angebracht ist, in einer Menge in einem Bereich von 2 Massen-% bis 30 Massen-%, bezogen auf das lichtemittierende Material, aufzubringen.

Es folgen 4 Seiten Zeichnungen

Anhängende Zeichnungen

Fig. 1

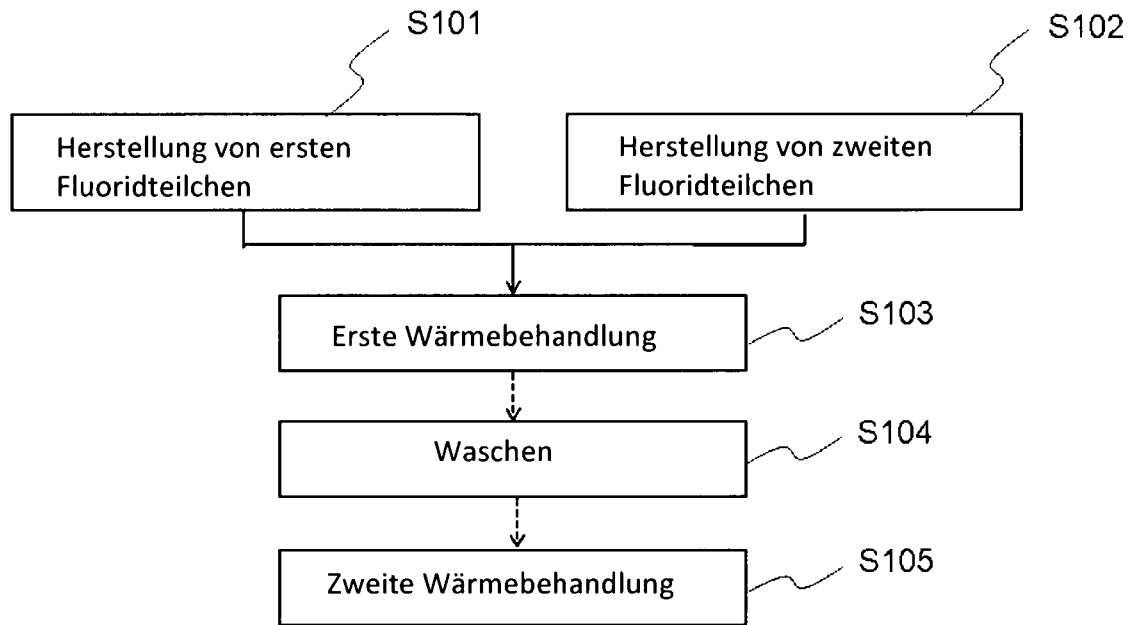


Fig. 2

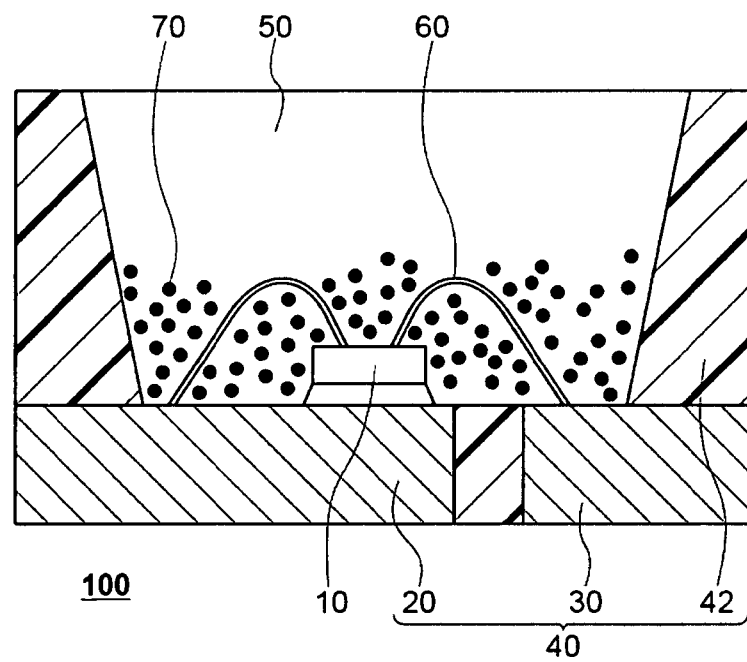


Fig. 3

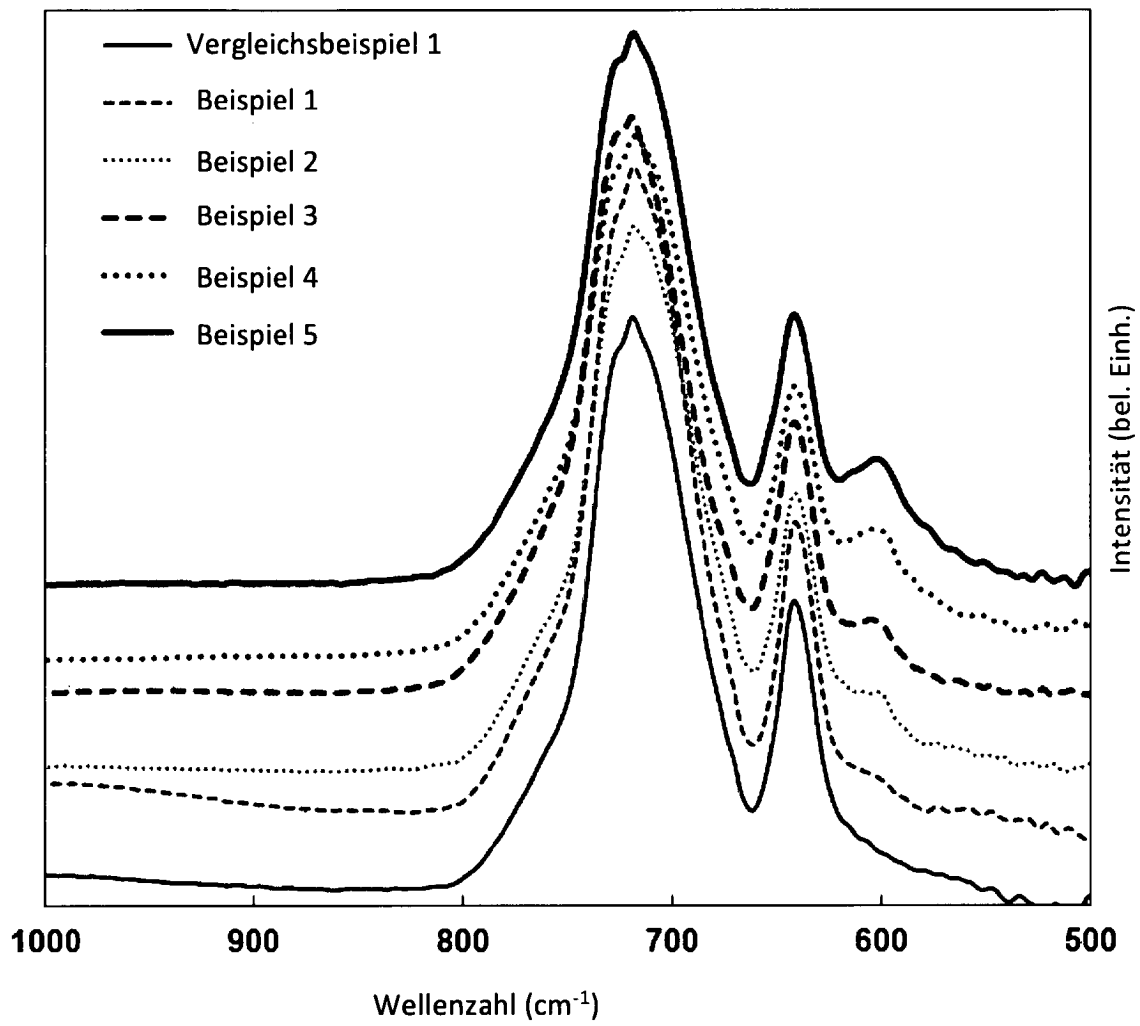


Fig. 4



Fig. 5

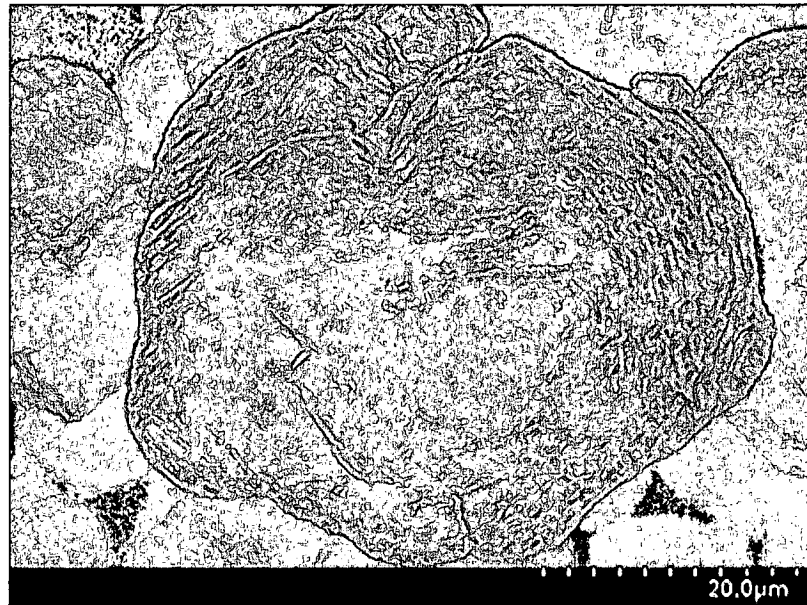


Fig. 6

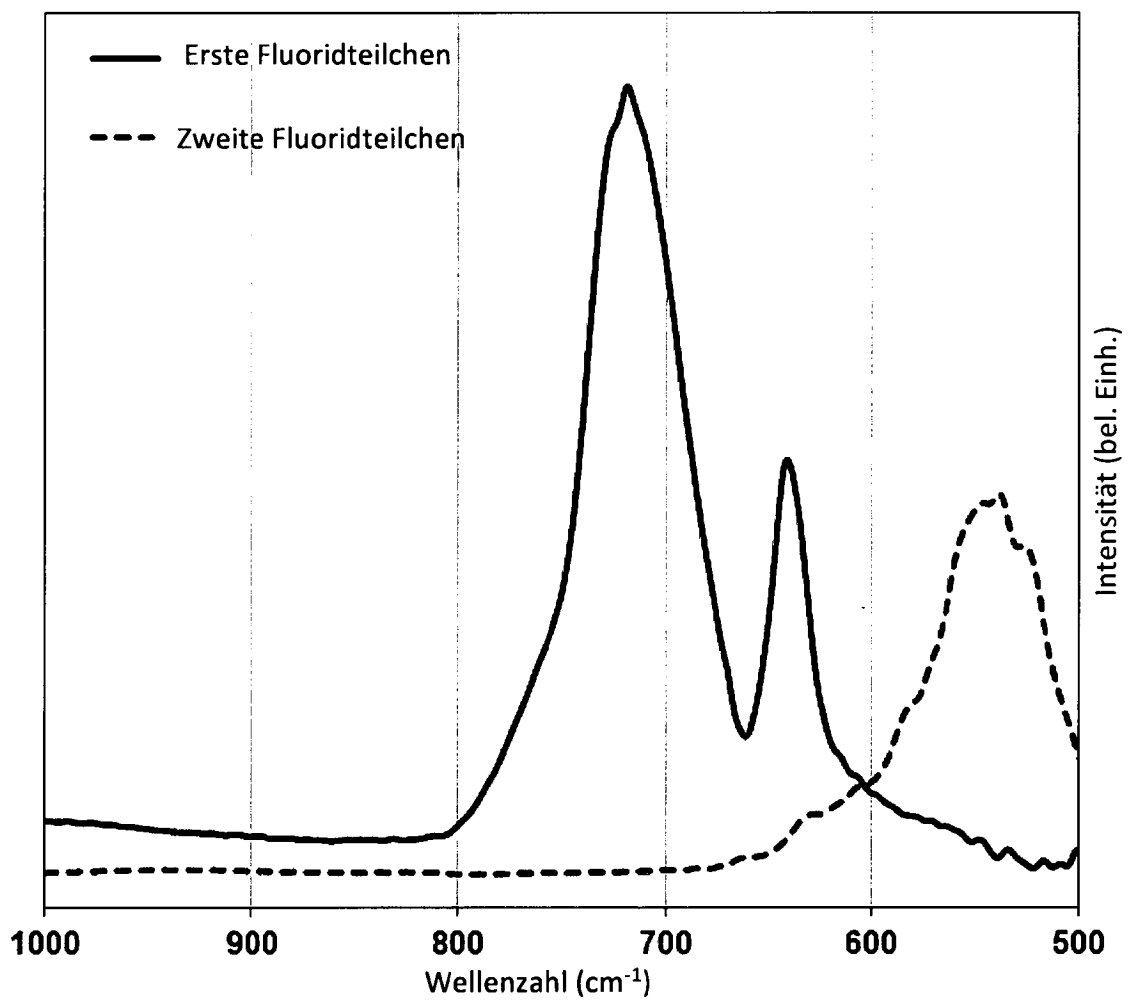


Fig. 7

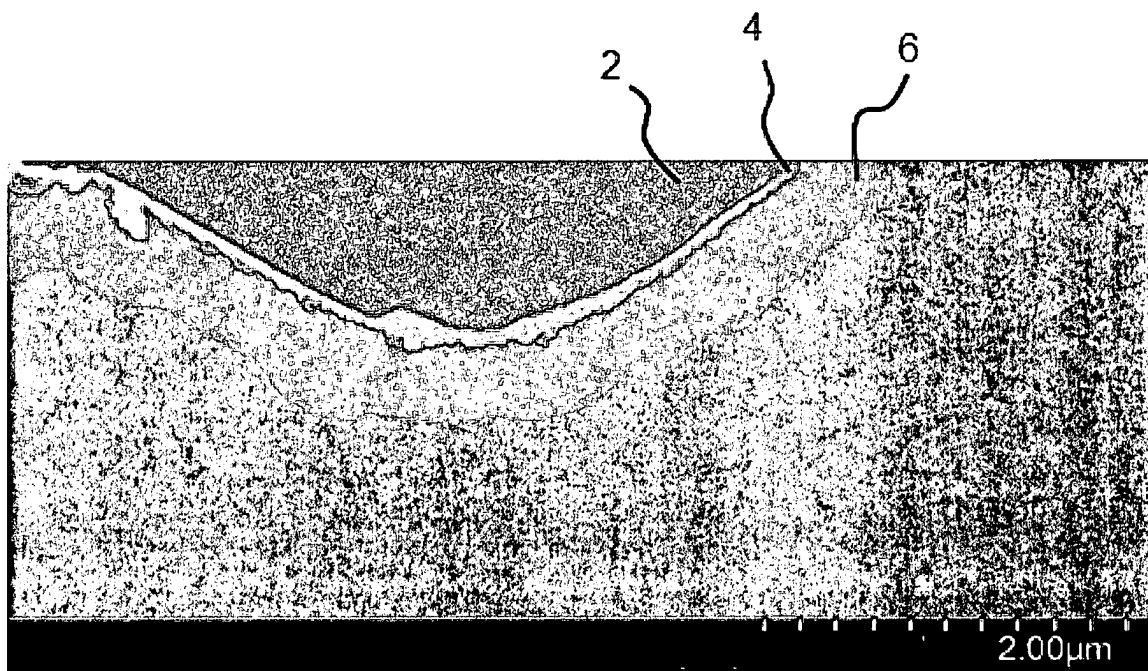


Fig. 8

