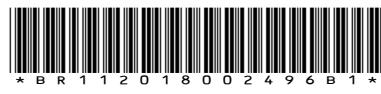




República Federativa do Brasil  
Ministério da Economia  
Instituto Nacional da Propriedade Industrial

**(11) BR 112018002496-1 B1**



**(22) Data do Depósito: 15/12/2016**

**(45) Data de Concessão: 14/06/2022**

**(54) Título:** MÉTODO PARA PRODUZIR UM MATERIAL FLUORESCENTE DE B-SIALON

**(51) Int.Cl.:** C09K 11/08; C09K 11/64.

**(30) Prioridade Unionista:** 09/12/2016 JP 2016-238927; 15/12/2015 JP 2015-244160.

**(73) Titular(es):** NICHIA CORPORATION.

**(72) Inventor(es):** MOTOHARU MORIKAWA; SHOJI HOSOKAWA.

**(86) Pedido PCT:** PCT JP2016005147 de 15/12/2016

**(87) Publicação PCT:** WO 2017/104140 de 22/06/2017

**(85) Data do Início da Fase Nacional:** 06/02/2018

**(57) Resumo:** É provido um método para produzir material fluorescente de  $\beta$ -sialon tendo excelente intensidade de emissão. O método para produzir material fluorescente de  $\beta$ -sialon inclui prover uma composição compreendendo nitreto de silício que contém alumínio, um átomo de oxigênio e európio, tratar termicamente a composição e fazer contato da composição tratada termicamente com uma substância básica.

## “MÉTODO PARA PRODUZIR UM MATERIAL FLUORESCENTE DE B-SIALON”

### REFERÊNCIA CRUZADA A APLICAÇÕES RELACIONADAS

[001] Este pedido reivindica o benefício do Pedido de Patente Japonês Nº. 2015-244160 depositado em 15 de dezembro de 2015 e do Pedido de Patente Japonês Nº. 2016-238927 depositado em 9 de dezembro de 2016, cujas descrições são aqui incorporadas por referência na sua totalidade.

### FUNDAMENTO DO CAMPO TÉCNICO

[002] A presente descrição refere-se a um método para produzir um material fluorescente de  $\beta$ -sialon.

### DESCRIÇÃO DA TÉCNICA RELACIONADA

[003] Alguns tipos de dispositivos de emissão de luz podem emitir luzes de várias matizes com base no princípio da mistura de cor aditiva, utilizando combinações de uma fonte de luz e um material fluorescente que é excitado pela luz a partir da fonte de luz para emitir luz de uma matiz diferente da matiz da fonte de luz. Em particular, dispositivos de emissão de luz que combinam um diodo emissor de luz (a seguir designado por “LED”) e um material fluorescente são usados em luzes traseiras de monitores de cristal líquido, sistemas de iluminação e similares. A faixa de reprodução de cores de um monitor de cristal líquido pode ser ampliada, ou as propriedades de renderização de cores de um sistema de iluminação podem ser melhoradas, ao constituir um dispositivo emissor de luz usando uma pluralidade de materiais fluorescentes, por exemplo, materiais fluorescentes que emitem luzes verdes em combinação com materiais fluorescentes que emitem luzes vermelhas.

[004] Como tal um material fluorescente, por exemplo, um material fluorescente que inclui um sialon, uma solução sólida de nitreto de silício, foi proposto e, como tal um sialon, sialon de forma  $\alpha$  e sialon de forma  $\beta$  que têm estruturas cristalinas diferentes são convencionalmente conhecidos. Um material fluorescente incluindo, dentre estes sialons, o sialon de forma  $\beta$  (a

seguir, também referido como “material fluorescente de  $\beta$ -sialon”) é um material fluorescente verde que é excitado em uma ampla faixa de comprimentos de onda a partir de luz ultravioleta próxima à luz azul e emite luz tendo um comprimento de onda de pico na faixa de 520 nm a 560 nm.

[005] O material fluorescente de  $\beta$ -sialon é representado por, por exemplo, a fórmula de composição  $\text{Si}_{6-z}\text{Al}_z\text{O}_z\text{N}_{8-z}:\text{Eu}$  ( $0 < z \leq 4.2$ ). O material fluorescente de  $\beta$ -sialon é obtido como um produto calcinado misturando nitreto de silício ( $\text{Si}_3\text{N}_4$ ), nitreto de alumínio (AIN) e óxido de alumínio ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) juntamente com o óxido de európio ( $\text{Eu}_2\text{O}_3$ ) como um ativador em uma razão molar prescrita e calcinando a mistura a cerca de 2000 °C. Foi descrito que o material fluorescente de  $\beta$ -sialon com alta intensidade de emissão pode ser obtido por tratamento térmico de um tal produto calcinado em um gás inerte seguido por tratamento com ácido (ver, por exemplo, JP 2005-255895 A e JP 2011-174015 A). Outras abordagens que são conhecidas por prover intensidade de emissão mais alta são para realizar tratamento térmico a alta temperatura em duas etapas, e para usar um material fluorescente de  $\beta$ -sialon obtido por calcinação como parte das matérias-primas (ver, por exemplo, JP 2007-326981 A e JP 2013-173868 A).

## SUMÁRIO

[006] Um método para produzir material fluorescente de  $\beta$ -sialon inclui prover uma composição incluindo nitreto de silício que contém alumínio, um átomo de oxigênio, e európio, tratar termicamente a composição, e colocar em contato a composição tratada termicamente com uma substância básica.

[007] De acordo com uma forma de realização da presente descrição, o método pode produzir um material fluorescente de  $\beta$ -sialon tendo excelente intensidade de emissão.

## BREVE DESCRIÇÃO DOS DESENHOS

[008] A FIG. 1 mostra espectros de emissão que ilustram as

intensidades de emissão relativas de material fluorescente de β-sialon de acordo com algumas formas de realização da presente descrição, traçadas contra comprimentos de onda.

[009] A FIG. 2 é uma imagem de SEM exemplificativa de um material fluorescente de β-sialon de um exemplo comparativo.

[0010] A FIG. 3 é uma imagem de SEM exemplificativa de um material fluorescente de β-sialon de acordo com uma forma de realização da presente descrição.

### DESCRIÇÃO DETALHADA

[0011] A partir de um ponto de vista prático, houve uma demanda por intensidade de emissão mais alta de material fluorescente de β-sialon. Em uma forma de realização da presente descrição, um objeto é para prover um método para produzir material fluorescente de β-sialon tendo excelente intensidade de emissão.

[0012] Os presentes inventores realizaram estudos extensivos à luz das circunstâncias descritas acima. Como um resultado, os presentes inventores verificaram que a alta intensidade de emissão é alcançada por tratar termicamente um material fluorescente de β-sialon e colocar o material fluorescente tratado termicamente em contato com uma substância básica.

[0013] A seguir, as formas de realização da presente descrição serão descritas. No entanto, essas formas de realização abaixo são apenas ilustrativas de alguns aspectos específicos, tais como métodos de produção para dar uma forma concreta às ideias técnicas da invenção e não pretendem limitar o escopo da invenção a tais formas de realização.

[0014] As relações tais como aquelas entre os nomes das cores e as coordenadas de cromaticidade, e aquelas entre os comprimentos de onda das luzes e os nomes das cores das luzes monocromáticas estão de acordo com JIS Z8110.

[0015] No relatório descriptivo, o termo “etapa” compreende não só

uma etapa independente, mas também uma combinação de etapas que não são distintas uma da outra, desde que essas etapas combinadas atinjam o propósito desejado. Além disso, quando uma pluralidade de substâncias pertence a qualquer componente em uma composição específica, o teor de tal componente na composição significa o teor total da pluralidade de substâncias presentes na composição, a menos que seja mencionado de outra forma.

[0016] O tamanho de partícula médio é um diâmetro médio de volume ( $D_m$ ) e é medido por um método de resistência elétrica de poros baseado no princípio de Coulter. Especificamente, uma distribuição de tamanho de partícula é medida com um analisador de distribuição de tamanho de partícula (por exemplo, Multisizer fabricado por BECKMAN COULTER) e o diâmetro médio de volume ( $D_m$ ) é determinado como um tamanho de partícula para 50% da acumulação de volume de uma região de partículas menores.

(Métodos para produzir material fluorescente de  $\beta$ -sialon)

[0017] Um método para produzir material fluorescente de  $\beta$ -sialon inclui prover uma composição que inclui nitreto de silício que contém alumínio, um átomo de oxigênio e európio (a seguir, também referido como “etapa de provisão”), tratar termicamente a composição (daqui em diante, também referido como “primeira etapa de tratamento térmico”) e colocar a composição tratada termicamente em contato com uma substância básica (a seguir, também referido como “etapa de tratamento de base”).

[0018] A composição provida na etapa de provisão é, por exemplo, partículas de um material fluorescente de  $\beta$ -sialon propriamente dito. Em tratamento térmico, fases instáveis tais como porções cristalinas baixas presentes nas partículas de material fluorescente são provavelmente pirolisadas para gerar pirolisatos tais como o silício. O contato subsequente das partículas de material fluorescente contendo tais pirolisatos com uma substância básica induz, por exemplo, uma reação entre os pirolisatos e a

substância básica e, consequentemente, os pirolisatos são provavelmente convertidos em compostos solúveis altamente transmissíveis à luz tais como silicatos de metais alcalinos. Esta é provavelmente a razão pela qual a intensidade das emissões pode ser feita alta. Os compostos solúveis resultantes podem ser facilmente dissolvidos e removidos por, por exemplo, limpeza com um meio líquido. Além disso, o contato com uma substância básica causará menos danos às partículas do material fluorescente de β-sialon em comparação com o tratamento ácido com ácido fluorídrico, e é assumido que tal característica é uma das razões pelas quais a intensidade de emissão tende a ser feita alta.

(Etapa de provisão)

[0019] Na etapa de provisão, é provida uma composição que inclui nitreto de silício que contém alumínio, um átomo de oxigênio e európio. A composição a ser provida é, por exemplo, uma solução sólida de nitreto de silício no interior do alumínio, um átomo de oxigênio e európio tendo uma composição representada por, por exemplo, a fórmula (I) abaixo:



[0020] Na fórmula (I), z satisfaz  $0 < z \leq 4,2$ .

[0021] Por exemplo, a composição pode ser provida selecionando uma composição desejada a partir de produtos comerciais ou pode ser provida produzindo uma composição desejada por tratamento térmico de uma mistura de matérias-primas de acordo com um método comum.

[0022] Quando a composição é produzida na etapa de provisão, a composição desejada pode ser obtida, por exemplo, tratando termicamente uma mistura incluindo um composto de alumínio, um composto de európio e um nitreto de silício (a seguir, também referido como “mistura bruta”).

[0023] A mistura bruta inclui preferivelmente pelo menos um composto de alumínio, pelo menos um composto de európio e pelo menos um nitreto de silício. Exemplos de compostos de alumínio incluem óxidos,

hidróxidos, nitretos, oxinitretos, fluoretos e cloretos contendo alumínio. Pelo menos parte do composto de alumínio pode ser substituído por metal de alumínio elementar ou uma liga de alumínio. Exemplos específicos dos compostos de alumínio incluem nitreto de alumínio ( $\text{AlN}$ ), óxido de alumínio ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) e hidróxido de alumínio ( $\text{Al(OH)}_3$ ), e é preferível utilizar pelo menos um selecionado a partir do grupo constituído por estes compostos. Os compostos de alumínio podem ser usados individualmente, ou dois ou mais podem ser usados em combinação.

[0024] O tamanho de partícula médio do composto de alumínio utilizado como uma matéria-prima é, por exemplo, não menos do que 0,01  $\mu\text{m}$  e não mais do que 20  $\mu\text{m}$ , e preferivelmente não menos do que 0,1  $\mu\text{m}$  e não mais do que 10  $\mu\text{m}$ . A pureza do composto de alumínio é, por exemplo, não menos do que 95% em peso e, preferivelmente, não menos do que 99% em peso.

[0025] Exemplos de compostos de európio incluem óxidos, hidróxidos, nitretos, oxinitretos, fluoretos e cloretos contendo európio. Pelo menos parte do composto de európio pode ser substituído por metal de európio elementar ou uma liga de európio. Exemplos específicos dos compostos de európio incluem óxido de európio ( $\text{Eu}_2\text{O}_3$ ), nitreto de európio ( $\text{EuN}$ ) e fluoreto de európio ( $\text{EuF}_3$ ), e é preferível usar pelo menos um selecionado do grupo que consiste desses compostos. Os compostos de európio podem ser usados individualmente, ou dois ou mais podem ser usados em combinação.

[0026] O tamanho de partícula médio do composto de európio utilizado como uma matéria-prima é, por exemplo, não menos do que 0,01  $\mu\text{m}$  e não mais do que 20  $\mu\text{m}$ , e preferivelmente não menos do que 0,1  $\mu\text{m}$  e não mais do que 10,0  $\mu\text{m}$ . A pureza do composto de európio é, por exemplo, não menos do que 95% em peso, e preferivelmente não menos do que 99,5% em peso.

[0027] O nitreto de silício é um composto de silício contendo um átomo de nitrogênio e um átomo de silício e pode ser nitreto de silício contendo um átomo de oxigênio. Quando o nitreto de silício contém um átomo de oxigênio, o átomo de oxigênio pode estar presente como óxido de silício ou como oxinitreto de silício. O teor dos átomos de oxigênio no nitreto de silício é, por exemplo, menos do que 2% em peso, e preferivelmente não mais do que 1,5% em peso. O teor dos átomos de oxigênio é, por exemplo, não menos do que 0,3% em peso, e preferivelmente não menos do que 0,4% em peso. A pureza do nitreto de silício é, por exemplo, não menos do que 95% em peso, e preferivelmente não menos do que 99% em peso.

[0028] O tamanho de partícula médio do nitreto de silício é, por exemplo, não menos do que 0,01  $\mu\text{m}$  e não mais do que 15  $\mu\text{m}$ , e preferivelmente não menos do que 0,1  $\mu\text{m}$  e não mais do que 5,0  $\mu\text{m}$ .

[0029] Na mistura bruta, pelo menos parte do nitreto de silício pode ser substituído por silício elementar ou outro composto de silício, tal como óxido de silício. Ou seja, a mistura bruta pode conter silício elementar ou um composto de silício, tal como óxido de silício, em adição ao nitreto de silício, ou pode conter silício elementar ou um composto de silício tal como óxido de silício no lugar do nitreto de silício. Exemplos de compostos de silício incluem óxidos de silício, oxinitretos de silício e silicatos.

[0030] A razão na qual o composto de alumínio, o composto de európio e o nitreto de silício são misturados juntos para formar uma mistura bruta é como se segue. Por exemplo, a razão molar dos átomos de silício para os átomos de alumínio na mistura bruta é  $(6 - z):z$  ( $0 < z \leq 4,2$ ) e, preferivelmente,  $0,01 < z < 1,0$ . Por exemplo, a razão molar dos átomos de silício mais átomos de alumínio para os átomos de európio é de 6:0,001 a 6:0,05, e preferivelmente 6:0,003 a 6:0,02.

[0031] Quando necessário, a mistura bruta pode adicionalmente conter um material fluorescente de  $\beta$ -sialon provido separadamente. Quando a

mistura bruta contém um material fluorescente de β-sialon, o teor do mesmo pode ser, por exemplo, não menos do que 1% em peso e não mais do que 50% em peso do peso total da mistura bruta.

[0032] Quando necessário, a mistura bruta pode conter um fluxo tal como haleto. A adição de um fluxo à mistura bruta promove ainda mais a reação entre as matérias-primas e permite que a reação em fase sólida prossiga mais uniformemente de modo que o material fluorescente obtido alcance grandes tamanhos de partículas e características de emissão mais altas. Por exemplo, a razão para este efeito é provavelmente porque a temperatura do tratamento térmico na etapa de provisão é substancialmente igual ou superior à temperatura a qual o fluxo, tal como o haleto, forma uma fase líquida. Exemplos de haletos incluem cloretos e fluoretos de metais das terras raras, metais alcalino-terrosos e metais alcalinos. O fluxo pode ser adicionado como um composto de preparação para controlar a razão elementar de cátions para a razão alvo, ou pode ser adicionado depois que as matérias-primas tiverem sido adicionadas à razão alvo. Quando a mistura bruta contém um fluxo, o teor do mesmo é, por exemplo, de não mais do que 20% em peso, e preferivelmente não mais do que 10% em peso da mistura bruta. O teor é, por exemplo, de não menos do que 0,1% em peso.

[0033] A mistura bruta pode ser obtida pesando os compostos de partida desejados na razão desejada e misturando os compostos de partida juntamente com o uso de um moinho de bolas ou similares, um misturador tal como um misturador Henschel ou um misturador de dois cilindros, ou um almofariz e um pilão. A mistura pode ser mistura seca ou pode ser uma mistura úmida envolvendo um meio tal como um solvente.

[0034] A temperatura do tratamento térmico da mistura bruta é, por exemplo, não menos do que 1850 °C e não mais do que 2100 °C, preferivelmente não menos do que 1900 °C e não mais do que 2050 °C, mais preferivelmente não menos do que 1920 °C e não mais do que 2050 °C, e

ainda mais preferivelmente não menos do que 2000 °C e não mais do que 2050 °C. Ao realizar o tratamento térmico a uma temperatura de 1850 °C ou acima, a formação de material fluorescente de β-sialon ocorre de forma eficiente com o európio sendo incorporado nos cristais de uma maneira facilitada e o material fluorescente de β-sialon desejado pode ser obtido. A uma temperatura de tratamento térmico de não mais do que 2100 °C, a decomposição do material fluorescente de β-sialon formado tende a ser prevenida.

[0035] A atmosfera em que a mistura bruta é tratada termicamente inclui preferencialmente gás nitrogênio, e mais preferivelmente é substancialmente uma atmosfera de gás nitrogênio. Quando a atmosfera para o tratamento térmico da mistura bruta contém gás nitrogênio, outros gases como hidrogênio, oxigênio e amônia podem estar presentes além do gás nitrogênio. O teor de gás nitrogênio na atmosfera para o tratamento térmico da mistura bruta é, por exemplo, não menos do que 90% em volume, e preferivelmente não menos do que 95% em volume.

[0036] A pressão no tratamento térmico da mistura bruta pode ser, por exemplo, pressão normal para 200 MPa. Para evitar a decomposição do material fluorescente de β-sialon formado, é preferível uma pressão mais alta, e é preferível uma pressão de não menos do que 0,1 MPa e não mais do que 200 MPa e uma pressão de não menos do que 0,6 MPa e não mais do que 1,2 MPa é mais preferível devido a menos restrições na instalação industrial.

[0037] No tratamento térmico, a mistura bruta é tratada termicamente aumentando a temperatura a partir, por exemplo, da temperatura ambiente até uma temperatura prescrita. O tempo para aumentar a temperatura é, por exemplo, não menos do que 1 hora e não mais de 48 horas, preferivelmente não menos do que 2 horas e não mais do que 24 horas, e mais preferivelmente não menos do que 3 horas e não mais do que 20 horas. Se o tempo para aumentar a temperatura é de 1 hora ou mais longo, as partículas de material

fluorescente tendem a crescer suficientemente e a incorporação de európio nos cristais das partículas de material fluorescente tende a ser facilitada.

[0038] No tratamento térmico da mistura bruta, a mistura pode ser mantida à temperatura prescrita durante um tempo prescrito. O tempo de retenção é, por exemplo, não menos do que 1 hora e não mais do que 48 horas, preferivelmente não menos do que 2 horas e não mais do que 30 horas, e mais preferivelmente não menos do que 3 horas e não mais do que 20 horas.

[0039] No tratamento térmico da mistura bruta, o tempo de resfriamento no qual o material que foi aquecido até à temperatura prescrita é resfriado até à temperatura ambiente é, por exemplo, não menos do que 0,1 hora e não mais do que 20 horas, preferivelmente não menos do que 1 hora e não mais do que 15 horas, e mais preferivelmente não menos do que 3 horas e não mais do que 12 horas. Durante o resfriamento da temperatura prescrita até à temperatura ambiente, o material pode ser mantido a uma temperatura apropriada para um tempo de retenção apropriado. Este tempo de retenção é controlado de modo que, por exemplo, a intensidade de emissão do material fluorescente de  $\beta$ -sialon se tornará mais alta. O tempo de retenção a uma temperatura prescrita durante o resfriamento é, por exemplo, não menos do que 0,1 hora e não mais do que 20 horas, e preferivelmente não menos do que 1 hora e não mais do que 10 horas. A temperatura a qual o material é mantido é, por exemplo, não menos do que 1000 °C e menos do que 1800 °C, e preferivelmente não menos do que 1200 °C e não mais do que 1700 °C.

[0040] O tratamento térmico da mistura bruta pode ser realizado em, por exemplo, um cadiño de nitreto de boro.

[0041] Após o tratamento térmico da mistura bruta, a composição resultante pode ser submetida a uma etapa de regulação de tamanho que desempenha uma combinação de tratamentos tais como desintegração, esmagamento e classificação. A etapa de regulação do tamanho dá um pó com um tamanho de partícula desejado. Especificamente, após o esmagamento

áspero, a composição pode ser triturada para um tamanho de partícula prescrito com uma máquina de esmagamento usual, tal como um moinho de bolas, um moinho de jato ou um moinho de vibração. O esmagamento excessivo pode causar defeitos na superfície das partículas de material fluorescente e pode resultar em uma diminuição da intensidade de emissão. Quando os grãos esmagados são uma mistura de vários tamanhos, a classificação pode ser realizada para regular o tamanho de partícula. O ajuste final do tamanho de partícula pode ser realizado mesmo após uma etapa a jusante tal como a primeira etapa de tratamento térmico ou a etapa de tratamento de base descrita mais tarde.

(Primeira etapa de tratamento térmico)

[0042] Na primeira etapa de tratamento térmico, a composição obtida na etapa de provisão é tratada termicamente para dar um primeiro produto tratado termicamente. Na primeira etapa de tratamento térmico, por exemplo, os cristais instáveis, tais como os presentes amorfos no material fluorescente de  $\beta$ -sialon, são provavelmente decompostos pelo menos parcialmente. A partir do ponto de vista da intensidade de emissão mais alta, a atmosfera na primeira etapa de tratamento térmico é preferivelmente uma atmosfera de gás nobre ou um vácuo, e é mais preferivelmente uma atmosfera de gás nobre.

[0043] A atmosfera de gás nobre na primeira etapa de tratamento térmico inclui pelo menos um de gases nobres, tais como hélio, neônio e argônio, e preferivelmente inclui pelo menos argônio. A atmosfera de gás nobre pode conter outros gases, como oxigênio, hidrogênio e nitrogênio além do gás nobre. O teor do gás nobre presente na atmosfera de gás nobre é, por exemplo, não menos do que 95% em volume e, preferivelmente, não menos do que 99% em volume.

[0044] Quando a primeira etapa de tratamento térmico é realizada em uma atmosfera de gás nobre, a pressão pode ser, por exemplo, na faixa de pressão normal para 1 MPa e, preferivelmente, a pressão normal para 0,2

MPa.

[0045] A primeira etapa de tratamento térmico pode ser realizada a uma pressão reduzida mais baixa do que a pressão normal e é particularmente preferivelmente realizada em um vácuo. Quando o tratamento térmico é realizado em um vácuo, a pressão é, por exemplo, não mais do que 10 kPa, preferivelmente não mais do que 1 kPa, e mais preferivelmente não mais do que 100 Pa. Aqui, o termo “pressão reduzida” ou “vácuo” não elimina a possibilidade de que qualquer gás esteja presente. Exemplos de gases que podem estar presentes incluem gases nobres, nitrogênio, hidrogênio e oxigênio.

[0046] A temperatura de tratamento térmico na primeira etapa de tratamento térmico é, por exemplo, não menos do que 1300 °C e não mais do que 1600 °C, e preferivelmente não menos do que 1350 °C e não mais do que 1500 °C. A temperatura na primeira etapa de tratamento térmico é preferivelmente menor do que a temperatura do tratamento térmico da mistura bruta. Com esta configuração, os cristais instáveis presentes nas partículas de material fluorescente são provavelmente pirolisados de forma mais eficiente e as partículas de material fluorescente resultantes alcançarão estabilidade mais alta e cristalinidade mais alta. Os pirolisatos formados na primeira etapa de tratamento térmico incluem, por exemplo, silício elementar, e podem ser removidos por etapas a jusante tais como a etapa de tratamento de base descrita mais tarde.

[0047] O tempo de tratamento térmico na primeira etapa de tratamento térmico é, por exemplo, não menos do que 1 hora e não mais do que 48 horas, e preferivelmente não menos do que 2 horas e não mais do que 20 horas.

[0048] Na primeira etapa de tratamento térmico, a composição é tratada termicamente aumentando a temperatura a partir de, por exemplo, da temperatura ambiente até uma temperatura prescrita. O tempo para aumentar

a temperatura é, por exemplo, não menos do que 1 hora e não mais do que 48 horas, preferivelmente não menos do que 2 horas e não mais do que 24 horas, e mais preferivelmente não menos do que 3 horas e não mais do que 20 horas.

[0049] Na primeira etapa de tratamento térmico, a composição pode ser mantida à temperatura prescrita por um tempo prescrito. O tempo de retenção é, por exemplo, não menos do que 1 hora e não mais do que 48 horas, preferivelmente não menos do que 2 horas e não mais do que 30 horas, e mais preferivelmente não menos do que 3 horas e não mais do que 20 horas.

[0050] Na primeira etapa de tratamento térmico, o tempo de resfriamento no qual a composição que foi aquecida à temperatura prescrita é resfriada até à temperatura ambiente é, por exemplo, não menos do que 0,1 hora e não mais do que 20 horas, preferivelmente não menos do que 1 hora e não mais do que 15 horas, e mais preferivelmente não menos do que 3 horas e não mais do que 12 horas. Durante o resfriamento a partir da temperatura prescrita até à temperatura ambiente, a composição pode ser mantida a uma temperatura apropriada por um tempo de retenção apropriado. Este tempo de retenção é controlado de modo que, por exemplo, a intensidade de emissão do material fluorescente de  $\beta$ -sialon se torne mais alta. O tempo de retenção a uma temperatura prescrita durante o resfriamento é, por exemplo, não menos do que 0,5 horas e não mais do que 20 horas, e preferivelmente não menos do que 1 hora e não mais do que 10 horas. A temperatura a qual a composição é mantida é, por exemplo, não menos do que 800 °C e menos do que 1600 °C, e preferivelmente não menos do que 1000 °C e não mais do que 1400 °C.

[0051] Na primeira etapa de tratamento térmico, a composição obtida na etapa de provisão pode ser tratada termicamente na presença de um composto de európio. Neste caso, o tratamento térmico é preferivelmente realizado em uma atmosfera de gás nobre. Quando a composição obtida na etapa de provisão é tratada termicamente na presença de um composto de európio em uma atmosfera de gás nobre, um material fluorescente de  $\beta$ -sialon

tendo excelente intensidade de emissão pode ser produzido eficientemente. Por exemplo, este efeito provavelmente é explicado como se segue. Quando a primeira etapa de tratamento térmico é realizada na presença de um composto de európio em uma atmosfera de gás nobre, pelo menos parte do composto de európio é reduzida para formar um gás derivado do composto de európio. É provável que este gás seja colocado em contato com a composição provida na etapa de provisão e consequentemente o európio presente na composição é facilmente reduzido ao estado divalente. Também é provável que o gás resultante a partir da redução do composto de európio seja incorporado na composição. A intensidade de emissão mais alta é provavelmente atribuída a uma combinação destes mecanismos.

[0052] Exemplos de compostos de európio utilizados na primeira etapa de tratamento térmico incluem óxidos, hidróxidos, nitretos, oxinitretos, fluoretos e cloretos contendo európio. Pelo menos parte do composto de európio pode ser substituída por metal de európio elementar ou uma liga de európio. Exemplos específicos dos compostos de európio incluem óxido de európio ( $\text{Eu}_2\text{O}_3$ ), nitreto de európio ( $\text{EuN}$ ) e fluoreto de európio ( $\text{EuF}_3$ ), e é preferível usar pelo menos um selecionado a partir do grupo que consiste desses compostos. O óxido de európio é mais preferível. Os compostos de európio podem ser usados individualmente, ou dois ou mais podem ser usados em combinação.

[0053] O tamanho de partícula médio do composto de európio utilizado na primeira etapa de tratamento térmico é, por exemplo, não menos do que 0,01  $\mu\text{m}$  e não mais do que 20  $\mu\text{m}$ , e preferivelmente não menos do que 0,1  $\mu\text{m}$  e não mais do que 10,0  $\mu\text{m}$ . A pureza do composto de európio é, por exemplo, não menos do que 95% em peso, e preferivelmente não menos do que 99,5% em peso.

[0054] Quando um composto de európio é utilizado na primeira etapa de tratamento térmico, a razão em peso do composto de európio para a

composição obtida na etapa de provisão (100% em peso) não é menos do que 0,01% em peso, preferivelmente não menos do que 0,05% em peso e mais preferivelmente não menos do que 0,1% em peso. A razão em peso não é mais do que 50% em peso, preferivelmente não mais do que 20% em peso, mais preferivelmente não mais do que 15% em peso, e ainda mais preferivelmente não mais do que 10% em peso.

[0055] Quando um composto de európio é utilizado na primeira etapa de tratamento térmico, o tratamento térmico é realizado de tal maneira que um gás gerado a partir do composto de európio pode ser colocado em contato com a composição obtida na etapa de provisão. Por exemplo, uma mistura da composição obtida na etapa de provisão e o composto de európio podem ser tratados termicamente em um único recipiente. Alternativamente, a composição obtida na etapa de provisão e o composto de európio podem ser tratados termicamente, sem serem misturados um com o outro, em um único recipiente ou recipientes separados. Ainda alternativamente, parte do composto de európio pode ser misturada junto com a composição obtida na etapa de provisão, e a mistura resultante e o resto do composto podem ser tratados termicamente, sem serem misturados um com o outro, em um único recipiente ou recipientes separados. Quando a composição obtida na etapa de provisão e o composto de európio são misturados juntos, a mistura é preferivelmente efetuada tão uniformemente quanto possível.

[0056] O método para produzir material fluorescente de  $\beta$ -sialon pode incluir uma etapa na qual o primeiro produto tratado termicamente resultante da primeira etapa de tratamento térmico é tratado por desintegração, esmagamento e similares após a primeira etapa de tratamento térmico. Tais tratamentos como desintegração e esmagamento podem ser realizados pelos métodos descritos acima.

(Etapa de tratamento de base)

[0057] Na etapa de tratamento de base, a composição tratada

termicamente na primeira etapa de tratamento térmico (o primeiro produto tratado termicamente) é colocada em contato com uma substância básica para dar um produto tratado com base. O contato com uma substância básica torna possível conseguir uma intensidade de emissão mais alta, provavelmente porque os componentes presentes no primeiro produto tratado termicamente que podem ser prejudiciais às características de emissão, tais como pirolisatos, são feitos reagir com a substância básica e são convertidos em compostos tendo menos impactos sobre características de emissão.

[0058] Exemplos das substâncias básicas incluem hidróxidos de metais alcalinos, tais como LiOH, NaOH, KOH, RbOH e CsOH; carbonatos de metais alcalinos, tais como  $\text{Li}_2\text{CO}_3$ ,  $\text{Na}_2\text{CO}_3$ ,  $\text{K}_2\text{CO}_3$ ,  $\text{Rb}_2\text{CO}_3$  e  $\text{Cs}_2\text{CO}_3$ ; hidróxidos de elementos do Grupo 2 da Tabela Periódica, tais como  $\text{Mg}(\text{OH})_2$ ,  $\text{Ca}(\text{OH})_2$ ,  $\text{Sr}(\text{OH})_2$  e  $\text{Ba}(\text{OH})_2$ ; amônia ( $\text{NH}_3$ ); hidrazina; etilenodiamina pirocatecol (EDP); e compostos de amônio quaternário, tais como hidróxido de tetrametilamônio e hidróxido de tetraetilamônio. Essas substâncias básicas que são solúveis em água são preferíveis. Mais preferivelmente, a substância básica inclui pelo menos uma selecionada do grupo que consiste de LiOH, NaOH, KOH, RbOH, CsOH,  $\text{Li}_2\text{CO}_3$ ,  $\text{Na}_2\text{CO}_3$ ,  $\text{K}_2\text{CO}_3$ ,  $\text{Rb}_2\text{CO}_3$ ,  $\text{Cs}_2\text{CO}_3$ , amônia ( $\text{NH}_3$ ) e hidróxido de tetraetilamônio, ainda mais preferivelmente inclui pelo menos uma selecionada do grupo que consiste de LiOH, NaOH, KOH, RbOH, CsOH e  $\text{NH}_3$ , e particularmente preferivelmente inclui pelo menos NaOH ou KOH.

[0059] A quantidade da substância básica colocada em contato com o primeiro produto tratado termicamente pode ser selecionada apropriadamente de acordo com fatores tais como o tipo da substância básica. Por exemplo, a razão em peso da substância básica para o primeiro produto tratado termicamente não é menos do que 0,5% em peso, preferivelmente não menos do que 1% em peso, mais preferivelmente não menos do que 5% em peso, e ainda mais preferivelmente não menos do que 8% em peso. Por exemplo, a

razão em peso não é mais do que 200% em peso, preferivelmente não mais do que 100% em peso, e mais preferivelmente não mais do que 80% em peso. Quando a substância básica é utilizada em uma razão em peso de 0,5% em peso ou acima, a reação da mesma com componentes tais como pirolisatos tende a prosseguir suficientemente. Ao controlar a razão para não mais do que 200% em peso, os efeitos adversos sobre as partículas de material fluorescente tendem a ser evitados.

[0060] Por exemplo, a etapa de tratamento de base pode ser realizada em uma atmosfera oxidante tal como ar ou em uma atmosfera de gás inerte tal como gás nitrogênio ou gás argônio. A concentração de gás inerte na atmosfera de gás inerte é, por exemplo, não menos do que 90% em volume, e preferivelmente não menos do que 95% em volume. A pressão na atmosfera na etapa de tratamento de base é, por exemplo, não menos do que 10 Pa e não mais do que 1 MPa, e preferivelmente não menos do que 100 Pa e não mais do que 0,2 MPa.

[0061] A temperatura da etapa de tratamento de base é, por exemplo, não menos do que 50 °C e não mais do que 650 °C, preferivelmente não menos do que 50 °C e não mais do que 500 °C, e mais preferivelmente não menos do que 70 °C e não mais do que 400 °C. Controlar a temperatura de contato para 50 °C ou acima aumenta a reatividade entre componentes tais como pirolisatos presentes no primeiro produto tratado termicamente e a substância básica, e consequentemente a produtividade tende a ser ainda melhorada. Limitar a temperatura de contato a não mais do que 650 °C tende a evitar efeitos adversos sobre o material fluorescente produzido.

[0062] A etapa de tratamento de base pode adotar uma pluralidade de condições de temperatura. Por exemplo, a etapa de tratamento de base pode incluir colocar em contato o primeiro produto tratado termicamente com a substância básica a uma primeira temperatura (também referida como “primeiro tratamento de base térmica”) e realizar o contato a uma segunda

temperatura mais alta do que a primeira temperatura (também referida como “segundo tratamento de base térmica”). Realizar o primeiro tratamento de base térmica e o segundo tratamento de base térmica tende a permitir que a reação entre a substância básica e os componentes, tais como pirolisatos, proceda de forma mais eficiente e também tende a tornar possível evitar efeitos adversos sobre as partículas de material fluorescente. Por exemplo, a primeira temperatura não é menos do que 50 °C e não mais do que 150 °C, preferivelmente não menos do que 60 °C e não mais do que 140 °C, e mais preferivelmente não menos do que 60 °C e não mais do que 120 °C. A segunda temperatura é mais alta do que a primeira temperatura e é, por exemplo, não menos do que 90 °C e não mais do que 650 °C, preferivelmente não menos do que 120 °C e não mais do que 500 °C, e mais preferivelmente não menos do que 150 °C e não mais do que 400 °C.

[0063] O tempo de contato na etapa de tratamento de base pode ser selecionado apropriadamente de acordo com fatores tais como o tipo da substância básica, a razão em peso e a temperatura de contato. Por exemplo, o tempo de contato não é menos do que 0,1 hora e não mais do que 48 horas, e preferivelmente não menos do que 0,5 horas e não mais do que 20 horas. No caso em que a etapa de tratamento de base inclui o primeiro tratamento de base térmica e o segundo tratamento de base térmica, o tempo de tratamento do primeiro tratamento de base térmica é, por exemplo, não menos do que 0,1 hora e não mais do que 48 horas, e preferivelmente não menos do que 0,5 horas e não mais do que 20 horas, e o tempo de tratamento do segundo tratamento de base térmica é, por exemplo, não menos do que 0,1 hora e não mais do que 24 horas, e preferivelmente não menos do que 0,5 horas e não mais do que 12 horas.

[0064] A maneira pela qual o primeiro produto tratado termicamente e a substância básica são feitas contatar juntas, preferivelmente, inclui misturar o primeiro produto tratado termicamente com uma solução da substância

básica. Ao utilizar a substância básica na forma de uma solução, a reação entre o primeiro produto tratado termicamente e a substância básica pode ser realizada mais uniformemente. O solvente utilizado para formar a solução da substância básica pode ser selecionado apropriadamente a partir dos solventes usuais. Exemplos de solventes incluem água; álcoois tais como metanol, etanol e isopropanol; e aminas tais como etanolamina, trietanolamina e etilenodiamina. Os solventes podem ser usados individualmente, ou dois ou mais podem ser usados em combinação. Em particular, o solvente preferivelmente inclui água.

[0065] A concentração da solução da substância básica pode ser selecionada apropriadamente de acordo com fatores tais como o tipo da substância básica e o solvente. A concentração da solução da substância básica pode ser, por exemplo, não menos do que 0,1% em peso e não mais do que 80% em peso, e preferivelmente não menos do que 1% em peso e não mais do que 50% em peso.

[0066] A etapa de tratamento de base inclui preferivelmente misturar o primeiro produto tratado termicamente com uma solução da substância básica e remover pelo menos parte do solvente presente na solução. A remoção de pelo menos parte do solvente tende a aumentar ainda mais a eficiência na reação entre a substância básica e os pirolisatos. Quando o solvente é removido da mistura do primeiro produto tratado termicamente e da solução da substância básica, a taxa de remoção do solvente pode ser, por exemplo, não menos do que 1% em peso, preferivelmente não menos do que 10% em peso e mais preferivelmente não menos do que 20% em peso.

[0067] Exemplos dos métodos para remover o solvente incluem tratamento térmico e tratamento a vácuo. Estes métodos podem ser utilizados em combinação. O método de remoção de solvente é apropriadamente um que não removerá a substância básica na solução juntamente com o solvente, e preferivelmente inclui pelo menos tratamento térmico. Quando o solvente é

removido por tratamento térmico, a temperatura é preferivelmente similar à primeira temperatura descrita acima.

[0068] A etapa de tratamento de base inclui preferivelmente a mistura do primeiro produto tratado termicamente com uma solução da substância básica, fazendo contatar o primeiro produto tratado termicamente com a substância básica a uma primeira temperatura (primeiro tratamento de base térmica) e fazendo contatar o primeiro produto tratado termicamente a partir do primeiro tratamento de base térmica com a substância básica a uma segunda temperatura mais alta do que a primeira temperatura (segundo tratamento de base térmica). Mais preferivelmente, o primeiro tratamento de base térmica inclui remover pelo menos parte do solvente presente na solução da substância básica e o segundo tratamento de base térmica inclui tratar termicamente a mistura do primeiro produto tratado termicamente e a substância básica, que pelo menos parte do solvente é removida, na segunda temperatura. Ao realizar o tratamento de tal maneira que pelo menos parte do solvente é removida na primeira temperatura e depois disso a mistura é tratada termicamente na segunda temperatura, a reação entre componentes tais como pirolisatos presentes no primeiro produto tratado termicamente e a substância básica tende a prosseguir mais uniformemente e eficientemente.

[0069] O tempo para o qual a remoção do solvente é realizada na primeira temperatura pode ser selecionado apropriadamente de acordo com fatores tais como a taxa desejada de remoção do solvente. O tempo de remoção de solvente na primeira temperatura é similar ao tempo de tratamento do primeiro tratamento de base térmica e o tempo de tratamento térmico na segunda temperatura é similar ao tempo de tratamento do segundo tratamento de base térmica. Aqui, a atmosfera na qual a remoção de solvente é realizada na primeira temperatura pode ser, por exemplo, atmosfera de ar ou de gás inerte. Por outro lado, a atmosfera do tratamento térmico na segunda temperatura é preferivelmente uma atmosfera de gás inerte.

[0070] A etapa de tratamento de base pode incluir uma etapa na qual o produto tratado com base resultante do tratamento de base é tratado por desintegração, esmagamento e similares. Tais tratamentos como desintegração e esmagamento podem ser realizados pelos métodos descritos acima.

(Etapa de lavagem)

[0071] Quando necessário, o método para produzir material fluorescente de  $\beta$ -sialon pode incluir lavar o produto tratado com base a partir da etapa de tratamento de base com um meio líquido (também referido como “etapa de lavagem”). Lavar o produto tratado com base com um meio líquido remove pelo menos parte dos componentes indesejados tais como silicatos de metais alcalinos presentes no produto tratado com base.

[0072] O método para produzir material fluorescente de  $\beta$ -sialon de acordo com a presente forma de realização basicamente completa na etapa de tratamento de base. A etapa de lavagem não tem um grande papel no aprimoramento das características de emissão das próprias partículas de material fluorescente após a etapa de tratamento de base, e é destinada a remover componentes indesejados tais como vestígios de silicatos de metais alcalinos gerados durante a etapa de tratamento de base. Os pirolisatos formados na primeira etapa de tratamento térmico tais como silício elementar são convertidos em compostos tais como silicatos de metais alcalinos durante a etapa de tratamento de base. Tais compostos próprios não têm um grande envolvimento nas características de emissão. No entanto, a etapa de lavagem para remover tais compostos formados na etapa de tratamento de base torna possível evitar efeitos adversos em materiais tais como resinas de silicone utilizadas na fabricação de dispositivos emissores de luz, incluindo as partículas de material fluorescente.

[0073] A etapa de lavagem envolve um meio líquido. O meio líquido pode ser selecionado apropriadamente a partir do meio líquido usual de

acordo com o propósito, desde que os componentes indesejados possam ser removidos. O meio líquido de quaisquer propriedades pode ser usado sem limitação. Exemplos incluem água; meio líquido neutro tais como álcoois, por exemplo, etanol e isopropanol; e meio líquido ácido, tal como ácido clorídrico e ácido nítrico, e é preferível utilizar pelo menos um selecionado a partir do grupo que consiste deste meio. É mais preferível que o meio líquido inclua pelo menos água. O uso de meio líquido ácido, tal como ácido clorídrico e ácido nítrico, às vezes torna possível remover componentes indesejados mais eficientemente.

[0074] No que se refere ao método de lavagem, a lavagem pode ser realizada, por exemplo, embebendo o produto tratado com base no meio líquido, opcionalmente seguido por agitação e separando o sólido e o líquido. A separação sólido líquido pode ser seguida pelo tratamento de secagem conforme requerido.

[0075] A temperatura do meio líquido utilizado para a lavagem é, por exemplo, não menos do que 5 °C e não mais do que 95 °C, e preferivelmente não menos do que 25 °C e não mais do que 80 °C. O tempo de lavagem pode ser, por exemplo, não menos do que 0,01 hora e não mais do que 48 horas, e preferivelmente não menos do que 0,1 hora e não mais do que 20 horas.

[0076] O meio líquido utilizado na etapa de lavagem pode ser uma solução neutra, uma solução ácida ou uma solução alcalina. Como o produto tratado com base foi tratado com uma base, ele exibe alcalinidade quando adicionado à água. Assim, a etapa de lavagem inclui preferivelmente lavar com uma solução neutra a ácida.

[0077] A etapa de lavagem pode ser realizada duas ou mais vezes usando o mesmo meio líquido ou diferente. Por exemplo, a primeira lavagem pode ser realizada usando água, uma solução neutra, uma solução ácida ou uma solução alcalina, e depois a segunda lavagem pode ser realizada usando água. Desta maneira, por exemplo, os compostos básicos ou compostos ácidos

ligados à superfície do material fluorescente de β-sialon podem ser removidos eficientemente pela primeira lavagem.

(Segunda etapa de tratamento térmico)

[0078] O método para produzir material fluorescente de β-sialon pode incluir tratar termicamente a composição provida na etapa de provisão em uma atmosfera de nitrogênio antes da primeira etapa de tratamento térmico (Este tratamento será também referido como “segunda etapa de tratamento térmico”). A adição da segunda etapa de tratamento térmico garante que o material fluorescente de β-sialon obtenível alcançará uma intensidade de emissão mais alta. Por exemplo, algumas das razões pelas quais a segunda etapa de tratamento térmico provê um aumento na intensidade de emissão são porque a cristalinidade é melhorada, e porque as partículas de crescimento de cristal pobres presentes na composição obtida na etapa de provisão são incorporadas em partículas grandes com o resultado que as partículas crescem para tamanhos maiores.

[0079] A temperatura de tratamento térmico na segunda etapa de tratamento térmico é, por exemplo, não menos do que 1800 °C e não mais do que 2100 °C, preferivelmente não menos do que 1850 °C e não mais do que 2040 °C, e mais preferivelmente não menos do que 1900 °C e menos do que 2040 °C.

[0080] A atmosfera na segunda etapa de tratamento térmico é uma atmosfera de nitrogênio que inclui pelo menos gás nitrogênio e é preferivelmente uma atmosfera de nitrogênio que consiste substancialmente em gás nitrogênio. A atmosfera de nitrogênio na segunda etapa de tratamento térmico pode conter outros gases tais como hidrogênio, oxigênio e amônia, em adição ao gás nitrogênio. O teor de gás nitrogênio na atmosfera de nitrogênio na segunda etapa de tratamento térmico é, por exemplo, não menos do que 90% em volume, e preferivelmente não menos do que 95% em volume.

[0081] A pressão na segunda etapa de tratamento térmico é, por exemplo, a pressão pode ser a pressão normal para 200 MPa. Para evitar a decomposição do material fluorescente de  $\beta$ -sialon formado, é preferível uma pressão mais alta e é preferível uma pressão de não menos do que 0,1 MPa e não mais do que 200 MPa, e uma pressão de não menos do que 0,6 MPa e não mais do que 1,2 MPa é mais preferível devido a menos restrições na instalação industrial.

[0082] Na segunda etapa de tratamento térmico, a composição é tratada termicamente aumentando a temperatura a partir da, por exemplo, temperatura ambiente até uma temperatura prescrita. O tempo para aumentar a temperatura é, por exemplo, não menos do que 1 hora e não mais do que 48 horas, preferivelmente não menos do que 2 horas e não mais do que 24 horas, e mais preferivelmente não menos do que 3 horas e não mais do que 20 horas.

[0083] Na segunda etapa de tratamento térmico, a composição pode ser mantida à temperatura prescrita por um tempo prescrito. O tempo de retenção é, por exemplo, não menos do que 1 hora e não mais do que 48 horas, preferivelmente não menos do que 2 horas e não mais do que 30 horas, e mais preferivelmente não menos do que 3 horas e não mais do que 20 horas.

[0084] Na segunda etapa de tratamento térmico, o tempo de resfriamento no qual a composição que foi aquecida até a temperatura prescrita é resfriada até à temperatura ambiente é, por exemplo, não menos do que 0,1 hora e não mais do que 20 horas, preferivelmente não menos do que 1 hora e não mais do que 15 horas, e mais preferivelmente não menos do que 3 horas e não mais do que 12 horas. Durante o resfriamento a partir da temperatura prescrita até à temperatura ambiente, a composição pode ser mantida a uma temperatura apropriada para um tempo de retenção apropriado. Este tempo de retenção é controlado de modo que, por exemplo, a intensidade de emissão do material fluorescente de  $\beta$ -sialon se torne mais alta. O tempo de retenção a uma temperatura prescrita durante o resfriamento é, por

exemplo, não menos do que 0,1 hora e não mais do que 20 horas, e preferivelmente não menos do que 1 hora e não mais do que 10 horas. A temperatura na qual a composição é mantida é, por exemplo, não menos do que 1000 °C e menos do que 1800 °C, e preferivelmente não menos do que 1200 °C e não mais do que 1700 °C.

[0085] Quando o método para produzir material fluorescente de β-sialon inclui a segunda etapa de tratamento térmico, a composição resultante da segunda etapa de tratamento térmico é submetida à primeira etapa de tratamento térmico. No método para produzir material fluorescente de β-sialon, além disso, a segunda etapa de tratamento térmico pode ser realizada duas ou mais vezes. Neste caso, a composição resultante da segunda etapa de tratamento térmico final é submetida à primeira etapa de tratamento térmico.

(Terceira etapa de tratamento térmico)

[0086] Quando o método para produzir material fluorescente de β-sialon inclui a etapa de lavagem, o método pode incluir tratar termicamente o produto tratado com base após a etapa de lavagem (Este tratamento será também referido como “terceira etapa de tratamento térmico”). A adição da terceira etapa de tratamento térmico provavelmente aumenta a cristalinidade das partículas de material fluorescente e, assim, garante que o material fluorescente de β-sialon obtenível alcance uma intensidade de emissão mais alta. A temperatura de tratamento térmico na terceira etapa de tratamento térmico é, por exemplo, não menos do que 1000 °C e não mais do que 1800 °C, preferivelmente não menos do que 1100 °C e não mais do que 1700 °C, e mais preferivelmente não menos do que 1150 °C e menos do que 1650 °C.

[0087] A atmosfera na terceira etapa de tratamento térmico não é particularmente limitada. A atmosfera na terceira etapa de tratamento térmico é preferivelmente uma atmosfera contendo nitrogênio. É mais preferível que a atmosfera seja substancialmente atmosfera de nitrogênio. Quando a atmosfera na terceira etapa de tratamento térmico contém nitrogênio, outros gases, como

hidrogênio, oxigênio e amônia, podem estar presentes além do nitrogênio. O teor de nitrogênio na atmosfera na terceira etapa de tratamento térmico é, por exemplo, não menos do que 90% em volume, e preferivelmente não menos do que 95% em volume.

[0088] A pressão na terceira etapa de tratamento térmico é, por exemplo, pressão normal para 200 MPa. Para evitar a decomposição do material fluorescente de  $\beta$ -sialon formado, é preferível uma pressão mais elevada e é preferível uma pressão não menos do que 0,1 MPa e não mais do que 200 MPa, e uma pressão não menos do que 0,6 MPa e não mais do que 1,2 MPa é mais preferível devido a menos restrições na instalação industrial.

[0089] Na terceira etapa de tratamento térmico, o produto tratado com base é tratado termicamente aumentando a temperatura a partir da, por exemplo, temperatura ambiente até uma temperatura prescrita. O tempo para aumentar a temperatura é, por exemplo, não menos do que 1 hora e não mais do que 48 horas, preferivelmente não menos do que 2 horas e não mais do que 24 horas, e mais preferivelmente não menos do que 3 horas e não mais do que 20 horas.

[0090] Na terceira etapa de tratamento térmico, o produto tratado com base pode ser mantido à temperatura prescrita por um tempo prescrito. O tempo de retenção é, por exemplo, não menos do que 1 hora e não mais do que 48 horas, preferivelmente não menos do que 2 horas e não mais do que 30 horas, e mais preferivelmente não menos do que 3 horas e não mais do que 20 horas.

[0091] Na terceira etapa de tratamento térmico, o tempo de resfriamento no qual o produto tratado com base que foi aquecido até a temperatura prescrita é resfriado até à temperatura ambiente é, por exemplo, não menos do que 0,1 hora e não mais do que 20 horas, preferivelmente não menos do que 1 hora e não mais do que 15 horas, e mais preferivelmente não menos do que 3 horas e não mais do que 12 horas. Durante o resfriamento a

partir da temperatura prescrita até à temperatura ambiente, o produto tratado com base pode ser mantido a uma temperatura apropriada por um tempo de retenção apropriado. Este tempo de retenção é controlado de modo que, por exemplo, a intensidade de emissão do material fluorescente de β-sialon se tornará mais alta.

(Material fluorescente de β-sialon)

[0092] O material fluorescente de β-sialon da presente forma de realização é obtido pelo método de produção específico e, como um resultado, exibe alta intensidade de emissão. Por exemplo, a intensidade de emissão pode ser tornada mais alta em 5% ou acima, às vezes por 10% ou acima, e mais por 50% ou acima, em comparação com a produção sem o tratamento de base.

[0093] O material fluorescente de β-sialon da presente forma de realização tem uma composição representada pela fórmula descrita acima e pode ainda conter vestígios de elementos de metal alcalino. Quando o material fluorescente de β-sialon contém elementos de metal alcalino, o teor dos mesmos é, por exemplo, não menos do que 0,1 ppm e não mais do que 1000 ppm, e preferivelmente não menos do que 0,1 ppm e não mais do que 100 ppm.

[0094] O material fluorescente de β-sialon da presente forma de realização absorve luz na região da luz ultravioleta para a luz de comprimento de onda curto da luz visível e emite luz tendo um comprimento de onda de pico maior do que o comprimento de onda do pico de emissão da luz de excitação. A luz de comprimento de onda curto da luz visível está principalmente na região da luz azul. Especificamente, o material fluorescente é excitado por luz a partir de uma fonte de luz de excitação tendo um comprimento de onda de pico de emissão na faixa de 250 nm a 480 nm inclusive, e emite luz fluorescente tendo um comprimento de onda de pico de emissão na faixa de 520 nm a 560 nm inclusive. Pelo uso de uma fonte de luz

de excitação tendo um comprimento de onda de pico na faixa de 250 nm a 480 nm, pode ser conseguida uma eficiência de emissão mais alta do material fluorescente de  $\beta$ -sialon, devido à intensidade relativamente alta no espectro de excitação do material fluorescente de  $\beta$ -sialon naquela faixa do comprimento de onda. Em particular, é preferível utilizar uma fonte de luz de excitação tendo um comprimento de onda de pico de emissão de 350 nm a 480 nm inclusive, e é mais preferível utilizar uma fonte de luz de excitação tendo um comprimento de onda de pico de emissão de 420 nm a 470 nm inclusive.

[0095] Além disso, o material fluorescente de  $\beta$ -sialon da presente forma de realização tem alta cristalinidade. O vidro (amorfo), por exemplo, tem uma estrutura irregular e é de baixa cristalinidade. Assim, as proporções de componentes no material fluorescente são variáveis e problemas tais como a cromaticidade irregular tendem a ser causados, a menos que as condições de reação nas etapas de produção possam ser controladas para serem estritamente constantes. Em contraste, o material fluorescente de  $\beta$ -sialon de acordo com a presente forma de realização é um pó ou grãos que têm alta cristalinidade em pelo menos parte de sua estrutura, e essa característica tende a permitir a fácil produção e processamento do material fluorescente. Além disso, o material fluorescente de  $\beta$ -sialon pode ser facilmente disperso em um meio orgânico uniformemente, o que torna fácil a preparação de produtos tais como plásticos luminescentes e materiais de película fina de polímero. Especificamente, por exemplo, não menos do que 50% em peso, e mais preferivelmente não menos do que 80% em peso da estrutura do material fluorescente de  $\beta$ -sialon tem cristalinidade. Esta razão indica a proporção de fases cristalinas luminescentes, e a emissão de luz que pode suportar o uso prático pode ser vantajosamente conseguida quando tais fases cristalinas representam não menos do que 50% em peso da estrutura. Assim, quanto mais alta a proporção das fases cristalinas, mais alta a eficiência de emissão e, portanto, mais alta a

intensidade de emissão pode ser tornada e mais fácil para processar o material fluorescente pode ser tornado.

[0096] No que se refere ao tamanho de partícula médio do material fluorescente de  $\beta$ -sialon da presente forma de realização, o diâmetro médio do volume ( $D_m$ ) medido com base no princípio Coulter é, por exemplo, não menos do que 4  $\mu\text{m}$  e não mais do que 40  $\mu\text{m}$ , e preferivelmente não menos do que 8  $\mu\text{m}$  e não mais do que 30  $\mu\text{m}$ . É preferível que o material fluorescente de  $\beta$ -sialon contenha partículas tendo este tamanho de partícula médio com uma alta frequência. Ou seja, é preferível que a distribuição do tamanho de partícula esteja em uma faixa estreita. A utilização de um material fluorescente de  $\beta$ -sialon tendo uma pequena meia largura da distribuição de tamanho de partícula torna possível fabricar um dispositivo emissor de luz tendo homogeneidades de cores aprimoradas e bons tons de cor. Além disso, quanto maior o tamanho de partícula médio, mais alta a taxa de absorção de luz e mais alta a eficiência de emissão. Assim, o uso de um material fluorescente tendo as excelentes características óticas acima e um grande tamanho de partícula médio nos dispositivos emissores de luz aumenta a eficiência de emissão de dispositivos emissores de luz.

## EXEMPLOS

(Exemplo 1)

Etapa de provisão

[0097] Como compostos de partida, foram pesados nitreto de silício ( $\text{Si}_3\text{N}_4$ ), nitreto de alumínio (AlN) e óxido de európio ( $\text{Eu}_2\text{O}_3$ ) em uma razão molar Si:Al:Eu = 5,88:0,12:0,01 e foram misturados juntos para dar uma primeira mistura bruta. A mistura bruta foi acondicionada em um cadinho de nitreto de boro e foi tratada termicamente em uma atmosfera de nitrogênio a uma pressão de cerca de 0,92 MPa (pressão de medida manométrica) e 2030 °C durante 10 horas. Obteve-se assim um material fluorescente de  $\beta$ -sialon.

[0098] Em seguida, o material fluorescente de  $\beta$ -sialon obtido pelo

tratamento térmico acima foi misturado junto com nitreto de silício, nitreto de alumínio e óxido de európio para dar uma segunda mistura bruta. Aqui, a razão Si:Al:Eu era a mesma que acima, e o teor do material fluorescente de  $\beta$ -sialon era de 20% em peso do peso total da segunda mistura bruta. A segunda mistura bruta foi tratada termicamente de tal maneira que a mistura foi calcinada em uma atmosfera de nitrogênio a uma pressão de cerca de 0,92 MPa (pressão de medida manométrica) e 1970 °C por 10 horas e foi resfriada até à temperatura ambiente enquanto se mantinha a uma temperatura de 1500 °C por 5 horas durante o curso do resfriamento. Uma composição representada pela fórmula (I) descrita acima foi assim obtida.

#### Segunda etapa de tratamento térmico

[0099] A composição obtida foi triturada, acondicionada em um cadiño de nitreto de boro e tratada termicamente em uma atmosfera de nitrogênio a uma pressão de cerca de 0,92 MPa (pressão de medida manométrica) de tal maneira que a temperatura foi aumentada para 2030 °C em 10 horas e manteve-se a uma temperatura de 2030 °C por 10 horas e a composição foi resfriada até à temperatura ambiente enquanto se mantinha a uma temperatura de 1500 °C por 5 horas durante o curso do resfriamento. Por esta segunda etapa de tratamento térmico, obteve-se um produto tratado termicamente.

#### Primeira etapa de tratamento térmico

[00100] O produto tratado termicamente obtido pela segunda etapa de tratamento térmico foi misturado junto com 0,5% em peso em relação ao produto tratado termicamente, de óxido de európio. A mistura resultante foi tratada termicamente em uma atmosfera de argônio a pressão normal de tal modo que a mistura foi aquecida a uma temperatura de 1400 °C por 5 horas e foi resfriada até à temperatura ambiente enquanto se mantinha a uma temperatura de 1100 °C por 5 horas durante o curso do resfriamento. O tratamento térmico foi seguido por tratamentos de esmagamento e dispersão.

Obteve-se assim um primeiro produto tratado termicamente.

Etapa de tratamento de base

[00101] O primeiro produto tratado termicamente foi misturado com uma solução contendo, em relação ao primeiro produto tratado termicamente, 10% em peso de hidróxido de sódio e 90% em peso de água pura. Posteriormente, o tratamento térmico foi realizado a 70 °C durante 3 horas no ar para remover a água. Obteve-se assim um produto tratado com base.

Etapa de lavagem

[00102] O produto tratado com base foi agitado em 1000% em peso de água pura (10 vezes mais) em relação ao produto tratado com base. Posteriormente, a água pura foi mudada várias vezes. O produto que foi assim lavado foi submetido a tratamento de separação sólido líquido e de secagem.

Obteve-se assim um material fluorescente 1.

(Exemplo 2)

[00103] Um material fluorescente 2 foi obtido realizando a síntese sob as mesmas condições que no Exemplo 1, com a exceção de que as quantidades de hidróxido de sódio e de água pura na etapa de tratamento de base foram mudadas para 1% em peso e 99% em peso, respectivamente.

(Exemplo 3)

[00104] Um material fluorescente 3 foi obtido realizando a síntese sob as mesmas condições que no Exemplo 1, com a exceção de que as quantidades de hidróxido de sódio e de água pura na etapa de tratamento de base foram mudadas para 5% em peso e 95% em peso, respectivamente.

(Exemplo 4)

[00105] Um material fluorescente 4 foi obtido realizando a síntese sob as mesmas condições que no Exemplo 1, com a exceção de que as quantidades de hidróxido de sódio e de água pura na etapa de tratamento de base foram mudadas para 20% em peso e 80% em peso, respectivamente.

(Exemplo 5)

[00106] Um material fluorescente 5 foi obtido realizando a síntese sob as mesmas condições que no Exemplo 1, com a exceção de que as quantidades de hidróxido de sódio e de água pura na etapa de tratamento de base foram mudadas para 50% em peso e 50% em peso, respectivamente.

(Exemplo 6)

[00107] Um material fluorescente 6 foi obtido realizando a síntese sob as mesmas condições que no Exemplo 2, com a exceção de que a etapa de tratamento de base foi executada realizando o primeiro tratamento de base térmica a 70 °C por 3 horas de forma similar ao Exemplo 2 e adicionalmente realizando o segundo tratamento de base térmica a 200 °C por 2 horas em uma atmosfera de nitrogênio.

(Exemplo 7)

[00108] Um material fluorescente 7 foi obtido realizando a síntese sob as mesmas condições que no Exemplo 3, com a exceção de que a etapa de tratamento de base foi executada realizando o primeiro tratamento de base térmica a 70 °C por 3 horas de forma similar ao Exemplo 3 e adicionalmente realizando o segundo tratamento de base térmica a 200 °C por 2 horas em uma atmosfera de nitrogênio.

(Exemplo 8)

[00109] Um material fluorescente 8 foi obtido realizando a síntese sob as mesmas condições que no Exemplo 1, com a exceção de que a etapa de tratamento de base foi executada realizando o primeiro tratamento de base térmica a 70 °C por 3 horas de forma similar ao Exemplo 1 e adicionalmente realizando o segundo tratamento de base térmica a 200 °C por 2 horas em uma atmosfera de nitrogênio.

(Exemplo 9)

[00110] Um material fluorescente 9 foi obtido realizando a síntese sob as mesmas condições que no Exemplo 4, com a exceção de que a etapa de tratamento de base foi executada realizando o primeiro tratamento de base

térmica a 70 °C por 3 horas de forma similar ao Exemplo 4 e adicionalmente realizando o segundo tratamento de base térmica a 200 °C por 2 horas em uma atmosfera de nitrogênio.

(Exemplo 10)

[00111] Um material fluorescente 10 foi obtido realizando a síntese sob as mesmas condições que no Exemplo 5, com a exceção de que a etapa de tratamento de base foi executada realizando o primeiro tratamento de base térmica a 70 °C por 3 horas de forma similar ao Exemplo 5 e adicionalmente realizando o segundo tratamento de base térmica a 200 °C por 2 horas em uma atmosfera de nitrogênio.

(Exemplo 11)

[00112] Um material fluorescente 11 foi obtido realizando a síntese sob as mesmas condições que no Exemplo 6, com a exceção de que as quantidades de hidróxido de sódio e de água pura na etapa de tratamento de base foram mudadas para 10% em peso e 70% em peso, respectivamente.

(Exemplo 12)

[00113] Um material fluorescente 12 foi obtido realizando a síntese sob as mesmas condições que no Exemplo 6, com a exceção de que a substância básica na etapa de tratamento de base foi mudada para 0,5% em peso de hidróxido de potássio.

(Exemplo 13)

[00114] Um material fluorescente 13 foi obtido realizando a síntese sob as mesmas condições que no Exemplo 6, com a exceção de que a substância básica na etapa de tratamento de base foi mudada para 1% em peso de hidróxido de potássio.

(Exemplo 14)

[00115] Um material fluorescente 14 foi obtido realizando a síntese sob as mesmas condições que no Exemplo 7, com a exceção de que a substância básica na etapa de tratamento de base foi mudada para 5% em peso de

hidróxido de potássio.

(Exemplo 15)

[00116] Um material fluorescente 15 foi obtido realizando a síntese sob as mesmas condições que no Exemplo 8, com a exceção de que a substância básica na etapa de tratamento de base foi mudada para 10% em peso de hidróxido de potássio.

(Exemplo 16)

[00117] Um material fluorescente 16 foi obtido realizando a síntese sob as mesmas condições que no Exemplo 9, com a exceção de que a substância básica na etapa de tratamento de base foi mudada para 20% em peso de hidróxido de potássio.

(Exemplo 17)

[00118] Um material fluorescente 17 foi obtido realizando a síntese sob as mesmas condições que no Exemplo 8, com a exceção de que a temperatura no segundo tratamento de base térmica foi mudada para 100 °C.

(Exemplo 18)

[00119] Um material fluorescente 18 foi obtido realizando a síntese sob as mesmas condições que no Exemplo 8, com a exceção de que a temperatura no segundo tratamento de base térmica foi mudada para 150 °C.

(Exemplo 19)

[00120] Um material fluorescente 19 foi obtido realizando a síntese sob as mesmas condições que no Exemplo 8, com a exceção de que a temperatura no segundo tratamento de base térmica foi mudada para 300 °C.

(Exemplo 20)

[00121] Um material fluorescente 20 foi obtido realizando a síntese sob as mesmas condições que no Exemplo 8, com a exceção de que a temperatura no segundo tratamento de base térmica foi mudada para 400 °C.

(Exemplo 21)

[00122] Um material fluorescente 21 foi obtido realizando a síntese sob

as mesmas condições que no Exemplo 8, com a exceção de que a temperatura no segundo tratamento de base térmica foi mudada para 600 °C.

(Exemplo 22)

[00123] Um material fluorescente 22 foi obtido realizando a síntese sob as mesmas condições que no Exemplo 8, com a exceção de que o tempo para o qual o segundo tratamento de base térmica foi realizado foi mudado para 0,5 horas.

(Exemplo 23)

[00124] Um material fluorescente 23 foi obtido realizando a síntese sob as mesmas condições que no Exemplo 8, com a exceção de que o tempo para o qual o segundo tratamento de base térmica foi realizado foi mudado para 1 hora.

(Exemplo 24)

[00125] Um material fluorescente 24 foi obtido realizando a síntese sob as mesmas condições que no Exemplo 8, com a exceção de que o tempo para o qual o segundo tratamento de base térmica foi realizado foi mudado para 4 horas.

(Exemplo 25)

[00126] Um material fluorescente 25 foi obtido realizando a síntese sob as mesmas condições que no Exemplo 8, com a exceção de que o tempo para o qual o segundo tratamento de base térmica foi realizado foi mudado para 8 horas.

(Exemplo 26)

[00127] Um material fluorescente 26 foi obtido realizando a síntese sob as mesmas condições que no Exemplo 8, com a exceção de que a substância básica na etapa de tratamento de base foi mudada para 10% em peso de hidróxido de lítio.

(Exemplo 27)

[00128] Um material fluorescente 27 foi obtido realizando a síntese sob

as mesmas condições que no Exemplo 8, com a exceção de que a substância básica na etapa de tratamento de base foi mudada para 10% em peso de hidróxido de rubídio.

(Exemplo 28)

[00129] Um material fluorescente 28 foi obtido realizando a síntese sob as mesmas condições que no Exemplo 8, com a exceção de que a substância básica na etapa de tratamento de base foi mudada para 10% em peso de hidróxido de césio.

(Exemplo 29)

[00130] Um material fluorescente 29 foi obtido realizando a síntese sob as mesmas condições que no Exemplo 12, com a exceção de que a etapa de tratamento de base envolveu 8,5% em peso de hidróxido de potássio, 1,5% em peso de água pura e 90% em peso de etanol, e a temperatura e o tempo no primeiro tratamento de base térmica foram mudados para 100 °C e 1 hora.

(Exemplo Comparativo 1)

[00131] Um material fluorescente C1 foi obtido realizando a síntese sob as mesmas condições que no Exemplo 1, com a exceção de que a etapa de tratamento de base não foi executada.

(Exemplo comparativo 2)

[00132] Um material fluorescente C2 foi obtido realizando a síntese sob as mesmas condições que no Exemplo 11, com a exceção de que o hidróxido de sódio na etapa de tratamento de base foi substituído por nitrato de sódio.

(Exemplo 30)

[00133] Um material fluorescente 30 foi obtido realizando a síntese sob as mesmas condições que no Exemplo 1, com a exceção de que na etapa de provisão, o teor do material fluorescente de  $\beta$ -sialon foi mudado para 10% em peso do peso total da segunda mistura bruta e, na etapa de tratamento de base, o primeiro produto tratado termicamente obtido foi misturado com uma

solução contendo, em relação ao primeiro produto tratado termicamente, 18% em peso de hidróxido de sódio e 82% em peso de água pura e tratamento térmico foi realizado a 105 °C por 16 horas no ar para remover água, obtendo-se assim um produto tratado com base.

(Exemplo 31)

[00134] Um material fluorescente 31 foi obtido realizando a síntese sob as mesmas condições que no Exemplo 30, com a exceção de que, na etapa de tratamento de base, o primeiro produto tratado termicamente obtido foi misturado com uma solução contendo, em relação ao primeiro produto tratado termicamente, 20% em peso de carbonato de sódio e 100% em peso de água pura.

(Exemplo 32)

[00135] Um material fluorescente 32 foi obtido realizando a síntese sob as mesmas condições que no Exemplo 30, com a exceção de que, na etapa de tratamento de base, o primeiro produto tratado termicamente obtido foi misturado com uma solução contendo, em relação ao primeiro produto tratado termicamente, 20% em peso de carbonato de potássio e 100% em peso de água pura.

(Exemplo 33)

[00136] Um material fluorescente 33 foi obtido realizando a síntese sob as mesmas condições que no Exemplo 30, com a exceção de que, após a primeira etapa de tratamento de base ter sido conduzida a 70 °C por 3 horas, a segunda etapa de tratamento de base foi conduzida a 300 °C por 2 horas sob atmosfera de nitrogênio.

(Exemplo 34)

[00137] Um material fluorescente 34 foi obtido realizando a síntese sob as mesmas condições que no Exemplo 31, com a exceção de que, após a primeira etapa de tratamento de base ter sido conduzida a 70 °C por 3 horas, a segunda etapa de tratamento de base foi conduzida a 300 °C por 2 horas sob

atmosfera de nitrogênio.

(Exemplo 35)

[00138] Um material fluorescente 35 foi obtido realizando a síntese sob as mesmas condições que no Exemplo 32, com a exceção de que, após a primeira etapa de tratamento de base ter sido conduzida a 70 °C por 3 horas, a segunda etapa de tratamento de base foi conduzida a 300 °C por 2 horas sob atmosfera de nitrogênio.

(Exemplo Comparativo 3)

[00139] Um material fluorescente C3 foi obtido realizando a síntese sob as mesmas condições que no Exemplo 30, com a exceção de que a etapa de tratamento de base não foi executada.

#### Avaliações

[00140] O material fluorescente de β-sialon obtido foi analisado por um método de resistência elétrica de poro (um método de zona de detecção elétrica) com base no princípio Coulter usando um analisador de distribuição de tamanho de partícula (Multisizer fabricado por BECKMAN COULTER) para determinar o tamanho de partícula médio (D<sub>m</sub>, diâmetro médio).

[00141] As características de emissão dos materiais fluorescentes foram medidas com espectrofluorofotômetro QE-2000 (fabricado pela OTSUKA ELECTRONICS Co., LTD.). Especificamente, os espectros de emissão foram registrados usando luz de excitação de comprimento de onda de 450 nm e a intensidade de emissão relativa (%) e o comprimento de onda do pico de emissão (nm) no topo do pico dos espectros de emissão foram medidos. Aqui, a intensidade de emissão relativa foi calculada em relação à intensidade do material fluorescente C1 do Exemplo Comparativo 1 em relação aos Exemplos 1 a 29 e Exemplo Comparativo 2 e em relação à intensidade do material fluorescente C3 do Exemplo Comparativo 3 em relação aos Exemplos 30 a 35. Todos os comprimentos de onda de pico de emissão foram perto de 538 nm.

[00142] Os resultados das avaliações estão descritos na Tabela 1 abaixo.

Tabela 1

|                       | Aditivo           | Primeiro tratamento de base térmica | Segundo tratamento de base terrinca | Quantidade de aditivo (% em peso) | Quantidade de água (% em peso) | Quantidade de etanol (% em peso) | Tamanho de partícula Dm ( $\mu\text{m}$ ) | Intensidade de emissão relativa (%) | Comprimento de onda de pico de emissão (nm) |
|-----------------------|-------------------|-------------------------------------|-------------------------------------|-----------------------------------|--------------------------------|----------------------------------|---|-------------------------------------|---|
| Comparativo 1         | -                 | -                                   | -                                   | -                                 | -                              | -                                | 12,0                                      | 100,0                               | 536   |
| Exemplo 2             | -                 | -                                   | 1                                   | 99                                | -                              | -                                | 13,0                                      | 115,3                               | 537   |
| Exemplo 3             | -                 | -                                   | 5                                   | 95                                | -                              | -                                | 13,4                                      | 114,5                               | 538   |
| Exemplo 1             | -                 | -                                   | 10                                  | 90                                | 0                              | -                                | 12,5                                      | 116,5                               | 538   |
| Exemplo 4             | -                 | -                                   | 20                                  | 80                                | -                              | -                                | 12,3                                      | 137,8                               | 537   |
| Exemplo 5             | -                 | -                                   | 50                                  | 50                                | -                              | -                                | 13,4                                      | 157,0                               | 538   |
| Exemplo 6             | NaOH              | 70°C,<br>3 h, ar                    | 1                                   | 99                                | -                              | -                                | 12,7                                      | 118,4                               | 538   |
| Exemplo 7             | -                 | -                                   | 5                                   | 95                                | -                              | -                                | 12,6                                      | 162,8                               | 539   |
| Exemplo 8             | -                 | -                                   | 10                                  | 90                                | -                              | -                                | 13,0                                      | 169,4                               | 538   |
| Exemplo 9             | -                 | -                                   | 20                                  | 80                                | 0                              | -                                | 12,2                                      | 165,5                               | 540   |
| Exemplo 10            | -                 | -                                   | 50                                  | 50                                | -                              | -                                | 12,5                                      | 165,2                               | 539   |
| Exemplo 11            | -                 | -                                   | 10                                  | 70                                | -                              | -                                | 12,5                                      | 166,2                               | 539   |
| Exemplo Comparativo 2 | NaNO <sub>3</sub> | -                                   | 10                                  | 70                                | -                              | -                                | 12,1                                      | 99,9                                | 536   |
| Exemplo 12            | -                 | -                                   | 0,5                                 | 99,5                              | -                              | -                                | 12,5                                      | 112,2                               | 536   |
| Exemplo 13            | -                 | -                                   | 1                                   | 99                                | -                              | -                                | 12,3                                      | 112,4                               | 537   |
| Exemplo 14            | KOH               | 70°C,<br>3 h, ar                    | 5                                   | 95                                | 0                              | -                                | 13,1                                      | 166,6                               | 539   |
| Exemplo 15            | -                 | -                                   | 10                                  | 90                                | -                              | -                                | 114                                       | 166,9                               | 539   |
| Exemplo 16            | -                 | -                                   | 20                                  | 80                                | -                              | -                                | 15,6                                      | 168,4                               | 539   |
| Exemplo 17            | -                 | -                                   | -                                   | -                                 | -                              | -                                | 13,3                                      | 161,3                               | 537   |
| Exemplo 18            | -                 | -                                   | 100°C, 2<br>h, nitrogênio           | -                                 | -                              | -                                | -   | -                                   | -   |
| Exemplo 19            | NaOH              | 70°C,<br>3 h, ar                    | 100°C, 2<br>h, nitrogênio           | -                                 | -                              | -                                | -   | -                                   | -   |
| Exemplo 20            | -                 | -                                   | 150 ° 2C<br>h, nitrogênio           | -                                 | -                              | -                                | -   | -                                   | -   |
| Exemplo 21            | -                 | -                                   | 300°C, 2<br>h, nitrogênio           | -                                 | -                              | -                                | -   | -                                   | -   |
| Exemplo 22            | -                 | -                                   | 400°C, 2<br>h, nitrogênio           | -                                 | -                              | -                                | -   | -                                   | -   |
| Exemplo 23            | -                 | -                                   | 600°C, 2<br>h, nitrogênio           | -                                 | -                              | -                                | -   | -                                   | -   |

|                          |                                 |                    |                             |     |     |      |       |       |
|--------------------------|---------------------------------|--------------------|-----------------------------|-----|-----|------|-------|-------|
| Exemplo 22               |                                 |                    | 200°C, 0,5<br>h, nitrogênio |     |     | 12,4 | 162,0 | 539   |
| Exemplo 23               |                                 |                    | 200°C 1<br>h, nitrogênio    |     |     | 12,7 | 165,1 | 539   |
| Exemplo 24               |                                 |                    | 200°C, 4<br>h, nitrogênio   | 10  | 90  | 0    | 12,7  | 164,8 |
| Exemplo 25               |                                 |                    | 200°C, 8<br>h, nitrogênio   |     |     |      | 13,2  | 165,0 |
| Exemplo 26               | LiOH                            | 70°C,<br>3 h, ar   | 200°C, 2<br>h, nitrogênio   | 10  | 90  | 0    | 12,3  | 159,7 |
| Exemplo 27               | RbOH                            |                    |                             |     |     |      | 12,6  | 164,7 |
| Exemplo 28               | CsOH                            |                    |                             |     |     |      | 12,4  | 167,1 |
| Exemplo 29               | KOH                             | 100°C,<br>1 h, ar  | 200°C, 2<br>h, nitrogênio   | 8,5 | 1,5 | 90   | 112   | 167,9 |
| Exemplo 30               | NaOH                            |                    |                             | 18  | 82  |      | 15,1  | 250,4 |
| Exemplo 31               | Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> | 105°C,<br>16 h, ar | -                           | 20  | 100 | 0    | 16,4  | 180,0 |
| Exemplo 32               | K <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>  |                    |                             | 20  | 100 |      | 15,9  | 176,2 |
| Exemplo 33               | NaOH                            | 70°C,<br>3 h, ar   | 300°C, 2<br>h, nitrogênio   | 18  | 82  |      | 16,7  | 253,7 |
| Exemplo 34               | Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> |                    |                             | 20  | 100 | 0    | 17,1  | 228,7 |
| Exemplo 35               | K <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>  |                    |                             | 20  | 100 |      | 18,2  | 238,8 |
| Exemplo<br>Comparativo 3 | -                               | -                  | -                           | -   | -   | 16,9 | 100,0 | 537   |

[00143] A FIG. 1 ilustra os espectros de emissão do material fluorescente de  $\beta$ -sialon obtido nos Exemplos 1 a 5 e Exemplo Comparativo 1, os espectros sendo normalizados com base na intensidade de emissão máxima do Exemplo Comparativo 1. Como também mostrado na Tabela 1, os materiais fluorescentes de  $\beta$ -sialon 1 a 29 demonstraram ter alta intensidade de emissão relativa.

[00144] A FIG. 2 e a FIG. 3 são micrografias de elétrons (imagens SEM) que ilustram as formas das partículas do material fluorescente de  $\beta$ -sialon obtido no Exemplo Comparativo 1 e no Exemplo 1, respectivamente. Da FIG. 2 e FIG. 3, o material fluorescente de  $\beta$ -sialon tem substancialmente as mesmas formas de partículas e não encontramos nenhuma mudança causada. Isso provavelmente indica que a etapa de tratamento de base não causa mudanças no tamanho ou forma de partículas. Isto é, o tratamento com a substância básica pode remover componentes indesejados tais como produtos de decomposição formados durante a primeira etapa de tratamento térmico sem causar uma mudança na forma do próprio material fluorescente de  $\beta$ -sialon e, desse modo, permitir que o material fluorescente de  $\beta$ -sialon alcance uma intensidade de emissão mais alta.

[00145] Os Exemplos 6 a 11 envolveram o segundo tratamento de base térmica a uma temperatura mais alta, em adição ao primeiro tratamento de base térmica e, consequentemente, alcançaram melhorias adicionais na intensidade de emissão relativa em comparação com os Exemplos 1 a 5, nos quais a etapa de tratamento de base incluiu o primeiro tratamento de base térmica sozinho. A razão para este resultado é provavelmente a reação acelerada entre a substância básica e o  $\beta$ -sialon tratado termicamente pelo tratamento de base térmica a uma temperatura mais alta.

[00146] Os Exemplos 12 a 16 mostraram que a intensidade de emissão relativa é melhorada mesmo quando hidróxido de potássio é utilizado como a substância básica, similarmente a quando é utilizado hidróxido de sódio.

[00147] Nos Exemplos 17 a 21 nos quais o segundo tratamento de base térmica foi realizado a várias temperaturas, foi mostrado que a intensidade de emissão relativa foi particularmente melhorada quando a temperatura do segundo tratamento de base térmica foi de 300 °C no Exemplo 19.

[00148] Os Exemplos 22 a 25 nos quais o segundo tratamento de base térmica foi realizado para vários comprimentos de tempo mostraram que a intensidade de emissão relativa foi particularmente melhorada quando o tempo de tratamento era de 1 hora ou mais longo.

[00149] Nos Exemplos 26 a 28 que envolveram várias substâncias básicas, foi mostrado que uma substância básica considerada como tendo reatividade mais alta proveu uma melhoria mais alta na intensidade de emissão relativa.

[00150] O Exemplo 29 mostrou que o solvente não está limitado à água e a intensidade de emissão relativa também é melhorada com um álcool.

[00151] Em cada um dos Exemplos 30 a 35, a quantidade do material fluorescente de  $\beta$ -sialon na segunda mistura bruta era 1/2 da do Exemplo 1 e o tamanho de partícula médio era maior do que o do Exemplo 1. Em alguns dos Exemplos 30 a 35, a intensidade de emissão relativa foi aproximadamente duas vezes mais alta do que a do Exemplo 1. Em geral, a intensidade de emissão é assumida como sendo mais alta à medida em que as partículas se tornam maiores. No entanto, durante o processo de crescimento das partículas para as maiores, a possibilidade de ocorrência de amorfos é assumida como sendo mais alta. Esses fatos mostram que o efeito do tratamento de base para tornar mais alta a intensidade de emissão é particularmente notável no material fluorescente de  $\beta$ -sialon com possibilidade mais alta de ocorrência de amorfos devido ao tamanho de partícula médio maior.

[00152] O material fluorescente de  $\beta$ -sialon obtido pelo método de produção de acordo com a forma de realização descrita acima pode ser adequadamente utilizado em aplicações tais como fontes de luz de iluminação

com excelentes características de emissão utilizando, em particular, diodos emissores de luz azul ou ultravioleta, diodos emissores de luz como fontes de luz de excitação, visores de LED, fontes de luz traseira, semáforos, interruptores de iluminação, vários sensores e vários indicadores.

[00153] Como descrito acima, deve ser óbvio que são possíveis várias outras formas de realização sem afastar-se do espírito e do escopo da presente invenção. Consequentemente, o escopo e o espírito da presente invenção devem ser limitados apenas pelas reivindicações seguintes.

[00154] Todas as publicações, pedidos de patente e normas técnicas mencionadas neste relatório descritivo são aqui incorporadas por referência na mesma extensão que se cada publicação individual, pedido de patente ou norma técnica fosse especificamente e individualmente indicado para ser incorporado por referência.

[00155] Embora a presente descrição tenha sido descrita com referência a várias formas de realização exemplificativas, deve ser entendido que as palavras que foram utilizadas são palavras de descrição e ilustração, em vez de palavras de limitação. Mudanças podem ser feitas dentro do âmbito das reivindicações anexas, conforme presentemente indicado e como emendado, sem se afastar do escopo e do espírito da descrição em seus aspectos. Embora a descrição tenha sido descrita com referência a exemplos, meios e formas de realização particulares, a descrição pode não ser destinada a ser limitada aos dados divulgados; em vez disso, a descrição estende-se a todas as estruturas, métodos e usos funcionalmente equivalentes, tais como dentro do escopo das reivindicações anexadas.

[00156] Um ou mais exemplos ou formas de realização da descrição podem ser referidos aqui, individualmente e/ou coletivamente, pelo termo “descrição” meramente por conveniência e sem pretender limitar voluntariamente o escopo deste pedido a qualquer descrição ou conceito inventivo particular. Além disso, embora exemplos e formas de realização

específicos tenham sido ilustrados e aqui descritos, deve ser reconhecido que qualquer arranjo subsequente concebido para conseguir a mesma finalidade ou finalidade similar pode ser substituída pelos exemplos ou formas de realização específicos mostrados. Esta divulgação pode ser destinada a cobrir qualquer e todas as adaptações ou variações subsequentes de vários exemplos e formas de realização. As combinações dos exemplos e formas de realização acima, e outros exemplos e formas de realização não especificamente descritos aqui, serão evidentes para os especialistas na técnica após a revisão da descrição.

[00157] Adicionalmente, na Descrição Detalhada anterior, várias características podem ser agrupadas em conjunto ou descritas em uma única forma de realização com a finalidade de simplificar a descrição. Esta descrição pode não ser interpretada como refletindo uma intenção de que as formas de realização reivindicadas exijam mais características que as expressamente recitadas em cada reivindicação. Em vez disso, à medida que as seguintes reivindicações refletem, a matéria objeto inventiva pode ser direcionada para menos do que todas as características de quaisquer formas de realização descritas. Assim, as seguintes reivindicações são incorporadas na Descrição Detalhada, com cada reivindicação ficando por conta própria como a definição da matéria objeto reivindicada separadamente.

[00158] A matéria descrita acima deve ser considerada ilustrativa e não restritiva, e as reivindicações anexas destinam-se a abranger todas as modificações, melhoramentos e outras formas de realização que se enquadram no verdadeiro espírito e escopo da presente descrição. Assim, na extensão máxima permitida por lei, o escopo da presente descrição pode ser determinado pela mais ampla interpretação permitida das seguintes reivindicações e seus equivalentes, e não deve ser restringida ou limitada pela descrição detalhada anterior.

## REIVINDICAÇÕES

1. Método para produzir um material fluorescente de  $\beta$ -SiAlON, caracterizado pelo fato de que o método compreende:

prover uma composição representada por uma fórmula:



em que z satisfaz  $0 < z \leq 4,2$ ;

tratar termicamente a composição em uma atmosfera de gás nobre, e

colocar em contato a composição tratada termicamente com uma substância básica a uma temperatura de não menos do que 50 °C e não mais do que 650 °C, compreendendo

misturar a composição tratada termicamente com uma solução da substância básica; em que o solvente da solução inclui água, em que a substância básica compreende pelo menos uma selecionada do grupo que consiste de LiOH, NaOH, KOH, RbOH, CsOH e NH<sub>3</sub>; e

remover pelo menos parte de um solvente presente na solução.

2. Método de acordo com a reivindicação 1, caracterizado pelo fato de que o contato da composição tratada termicamente com a substância básica compreende um contato a uma primeira temperatura e um contato a uma segunda temperatura mais alta do que a primeira temperatura.

3. Método de acordo com a reivindicação 1, caracterizado pelo fato de que compreende adicionalmente lavar a composição, que foi colocada em contato com a substância básica, com um meio líquido.

4. Método de acordo com a reivindicação 1, caracterizado pelo fato de que uma razão em peso da substância básica colocada em contato com a composição tratada termicamente não é menor do que 0,5% em peso em relação à composição tratada termicamente.

5. Método de acordo com a reivindicação 1, caracterizado pelo fato de que o tratamento térmico da composição acontece na presença de um

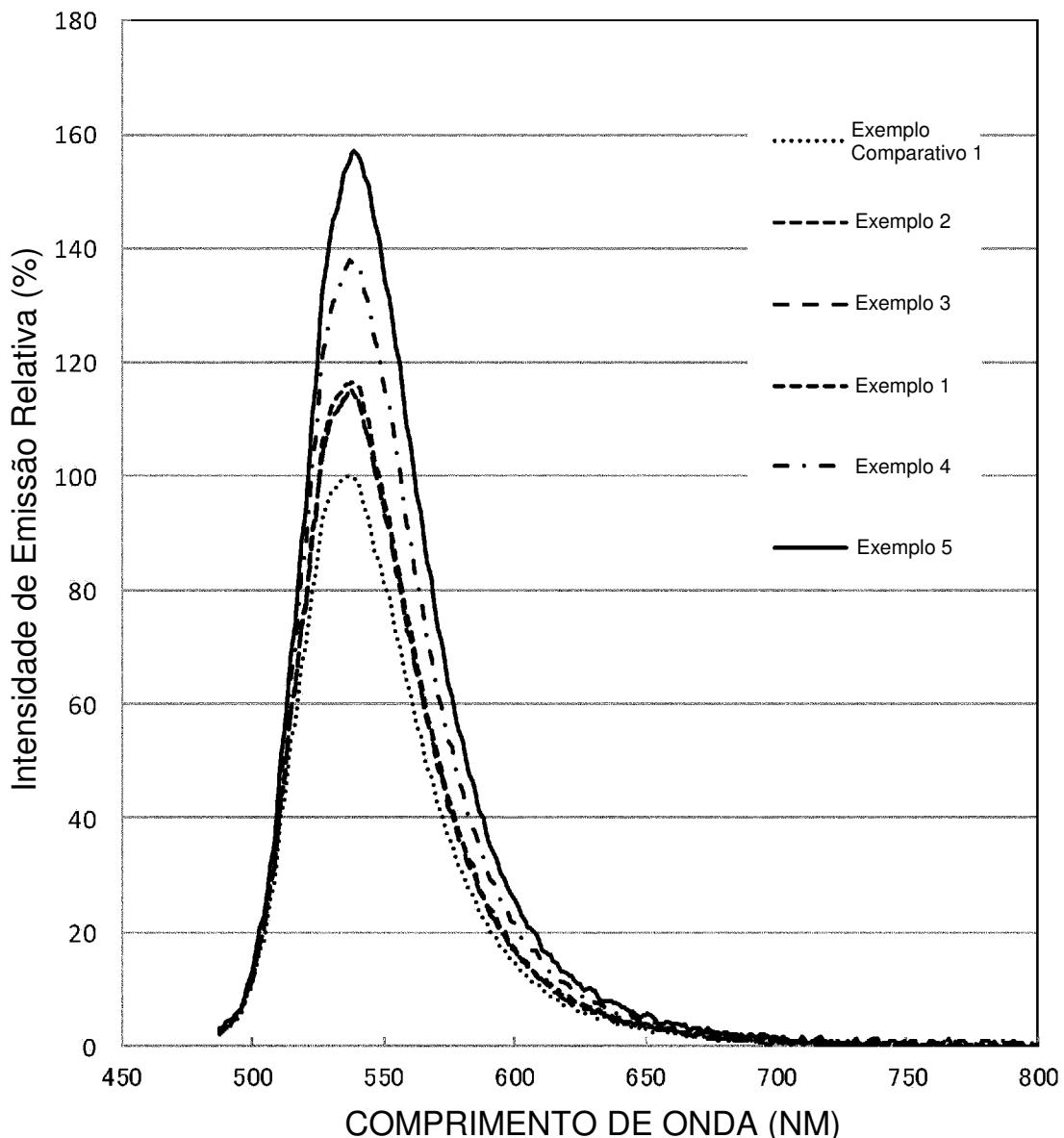
composto de európio.

6. Método de acordo com a reivindicação 1, caracterizado pelo fato de que o tratamento térmico da composição acontece a uma temperatura de não menos do que 1300 °C e não mais do que 1600 °C.

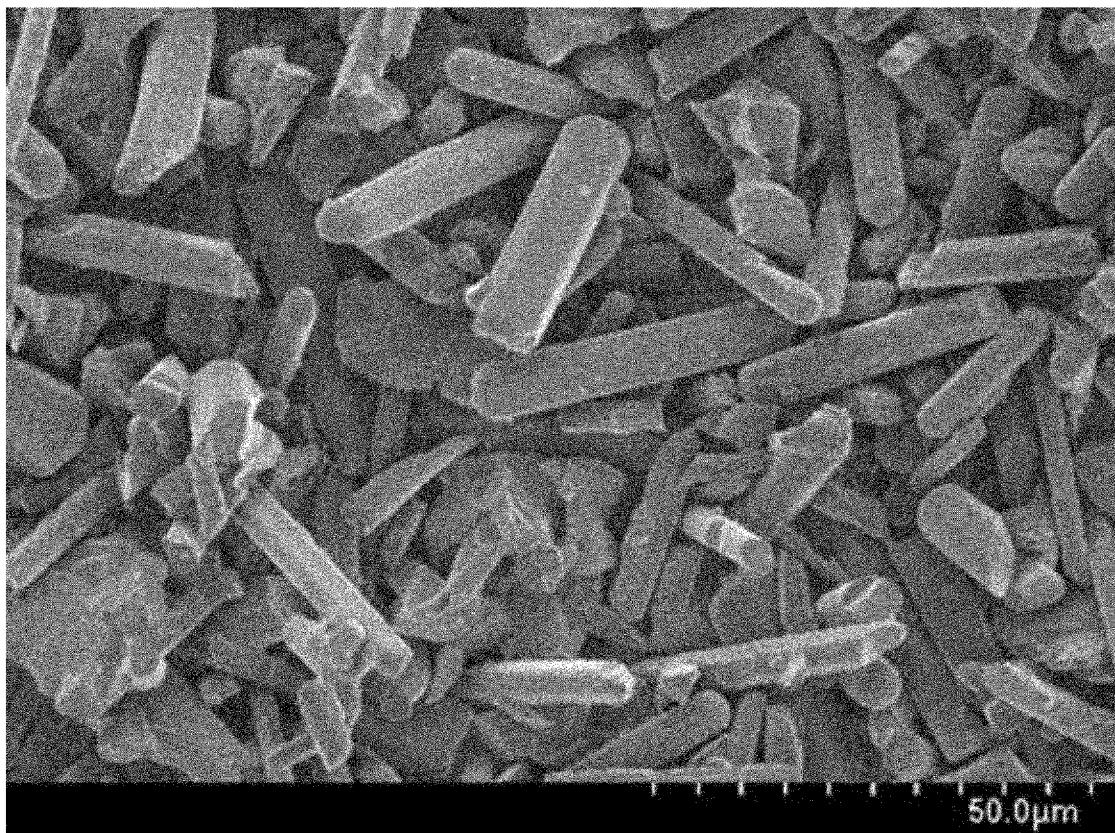
7. Método de acordo com a reivindicação 1, caracterizado pelo fato de que o provimento da composição compreende tratar termicamente uma mistura compreendendo um composto de alumínio, um composto de európio e um nitreto de silício.

8. Método de acordo com a reivindicação 1, caracterizado pelo fato de que compreende adicionalmente tratar termicamente a composição em uma atmosfera de nitrogênio entre o provimento e o tratamento térmico da composição.

[Fig. 1]



[Fig. 2]



[Fig. 3]

