

【公報種別】特許法第 17 条の 2 の規定による補正の掲載

【部門区分】第 3 部門第 3 区分

【発行日】平成22年9月30日(2010.9.30)

【公開番号】特開2010-106127(P2010-106127A)

【公開日】平成22年5月13日(2010.5.13)

【年通号数】公開・登録公報2010-019

【出願番号】特願2008-278642(P2008-278642)

【国際特許分類】

C 0 9 K 11/64 (2006.01)

C 0 9 K 11/08 (2006.01)

H 0 1 L 33/48 (2010.01)

【F I】

C 0 9 K 11/64 C P M

C 0 9 K 11/08 J

H 0 1 L 33/00 N

【手続補正書】

【提出日】平成22年8月18日(2010.8.18)

【手続補正 1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

斜方晶系に属する $Sr_2Al_3Si_7ON_{13}$ 属結晶であり、前記結晶の Sr に対応する金属元素 M と、前記結晶の Sl に対応する元素 M^1 と、前記結晶の Si に対応する元素 M^2 と、O および N の両方を含む組成を有し、前記金属元素 M の一部が発光中心元素 EC により置換された無機化合物を含む蛍光体であって、前記蛍光体の結晶構造における格子定数および原子座標から計算された $M^1 - N$ および $M^2 - N$ の化学結合の長さが、 $Sr_2Al_3Si_7ON_{13}$ の格子定数と原子座標から計算された Al - N および Si - N の化学結合の長さに比べて、それぞれ $\pm 15\%$ 以内であることを特徴とする蛍光体。

【請求項 2】

下記一般式 (1) :

$(M_{1-x}EC_x)_aSi_bAlO_cN_d$ (1) (式中、M は I A 族元素、II A 族元素、III A 族元素、IIIB 族元素、希土類元素、および IVA 族元素から選択される元素であり、

EC は Eu、Ce、Mn、Tb、Yb、Dy、Sm、Tm、Pr、Nd、Pm、Ho、Er、Cr、Sn、Cu、Zn、As、Ag、Cd、Sb、Au、Hg、Tl、Pb、Bi、および Fe から選ばれる元素であり、

$0 < x < 0.4$,

$0.65 < a < 0.70$,

$2 < b < 3$,

$0.3 < c < 0.6$,

$4 < d < 5$)

で表わされる組成を有し、波長 250 ~ 500 nm の光で励起した際に波長 570 ~ 650 nm の間にピークを有する発光を示す、請求項 1 に記載の蛍光体。

【請求項 3】

前記元素 M の窒化物または炭化物、前記元素 M^1 の窒化物、酸化物、または炭化物、前

記元素 M^2 の窒化物、酸化物、または炭化物、および前記発光中心元素 EC の酸化物、窒化物、または炭酸塩を原料として用い、これらの原料を混合してから焼成することにより製造されたものである、請求項 1 または 2 に記載の蛍光体。

【請求項 4】

斜方晶系に属する $Sr_2Al_3Si_7ON_{13}$ 属結晶であり、前記結晶の Sr に対応する金属元素 M と、前記結晶の Sl に対応する元素 M^1 と、前記結晶の Si に対応する元素 M^2 と、 O および N の両方を含む組成を有し、前記金属元素 M の一部が発光中心元素 EC により置換された無機化合物を含む蛍光体であって、前記蛍光体の XRD プロファイルの回折ピークのうちの回折強度の強い 10 本のピーク位置が、 $Sr_3Al_3Si_{13}ON_{13}$ 結晶と一致することを特徴とする蛍光体。

【請求項 5】

下記一般式 (1) :

$(M_{1-x}EC_x)_aSi_bAlO_cN_d$ (1) (式中、 M は I A 族元素、II A 族元素、III A 族元素、III B 族元素、希土類元素、および IV A 族元素から選択される元素であり、

EC は Eu 、 Ce 、 Mn 、 Tb 、 Yb 、 Dy 、 Sm 、 Tm 、 Pr 、 Nd 、 Pm 、 Ho 、 Er 、 Cr 、 Sn 、 Cu 、 Zn 、 As 、 Ag 、 Cd 、 Sb 、 Au 、 Hg 、 Tl 、 Pb 、 Bi 、および Fe から選ばれる元素であり、

$0 < x < 0.4$ 、

$0.65 < a < 0.70$ 、

$2 < b < 3$ 、

$0.3 < c < 0.6$ 、

$4 < d < 5$)

で表わされる組成を有し、波長 250 ~ 500 nm の光で励起した際に波長 570 ~ 650 nm の間にピークを有する発光を示す、請求項 4 に記載の蛍光体。

【請求項 6】

前記元素 M の窒化物または炭化物、前記元素 M^1 の窒化物、酸化物、または炭化物、前記元素 M^2 の窒化物、酸化物、または炭化物、および前記発光中心元素 EC の酸化物、窒化物、または炭酸塩を原料として用い、これらの原料を混合してから焼成することにより製造されたものである、請求項 4 または 5 に記載の蛍光体。

【手続補正 2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0001

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0001】

発光装置に使用される蛍光体に関するものである。

【手続補正 3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0007

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0007】

本発明の一実施形態である蛍光体は、斜方晶系に属する $Sr_2Al_3Si_7ON_{13}$ 属結晶であり、前記結晶の Sr に対応する金属元素 M と、前記結晶の Sl に対応する元素 M^1 と、前記結晶の Si に対応する元素 M^2 と、 O および N の両方を含む組成を有し、前記金属元素 M の一部が発光中心元素 EC により置換された無機化合物を含むものであって、前記蛍光体の結晶構造における格子定数および原子座標から計算された $M^1 - N$ および $M^2 - N$ の化学結合の長さが、 $Sr_2Al_3Si_7ON_{13}$ の格子定数と原子座標から計算された $Al - N$ および $Si - N$ の化学結合の長さに比べて、それぞれ $\pm 15\%$ 以内である

ことを特徴とするものである。

【手続補正 4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0008

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0008】

また、本発明のほかの一実施形態である蛍光体は、斜方晶系に属する $\text{Sr}_2\text{Al}_3\text{Si}_{13}\text{ON}_{13}$ 属結晶であり、前記結晶の Sr に対応する金属元素 M と、前記結晶の Si に対応する元素 M^1 と、前記結晶の Si に対応する元素 M^2 と、O および N の両方を含む組成を有し、前記金属元素 M の一部が発光中心元素 EC により置換された無機化合物を含むものである。、前記蛍光体の XRD プロファイルの回折ピークのうちの回折強度の強い 10 本のピーク位置が、 $\text{Sr}_3\text{Al}_3\text{Si}_{13}\text{ON}_{13}$ 結晶と一致することを特徴とするものである。

【手続補正 5】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0009

【補正方法】削除

【補正の内容】

【手続補正 6】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0017

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0017】

発光中心元素 EC は、元素 M の少なくとも 0.1 モル% を置換することが望まれる。置換量が 0.1 モル% 未満の場合には、十分な発光効果を得ることが困難となる。発光中心元素 EC は、元素 M の全量を置き換えてもよいが、置換量が 50 モル% 未満の場合には、発光確率の低下（濃度消光）を極力抑制することができる。そして、本発明による赤色蛍光体（R）は、波長 250 ~ 500 nm の光で励起した際、黄色から赤色にわたる領域の発光、すなわち波長 580 ~ 650 nm の間にピークを有する発光を示すものである。

【手続補正 7】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0027

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0027】

本発明に用いられる緑色蛍光体（G）は、 $\text{Sr}_3\text{Al}_3\text{Si}_{13}\text{O}_2\text{N}_{21}$ をベースとするものである。そして、前記した赤色蛍光体と同様に元素の置き換え等によって、結晶構造が若干変化することがあるが、基本的な結晶構造が変化しない範囲で本発明の効果を奏することができる。このような基本的な結晶構造が変化しない範囲は、前記した赤色発光と同様である。すなわち、本発明においては、X 線回折や中性子線回折により求めた格子定数および原子座標から計算された $\text{M}^1 - \text{N}$ および $\text{M}^2 - \text{N}$ の化学結合の長さ（近接原子間距離）が、表 2 に示す $\text{Sr}_2\text{Al}_3\text{Si}_{13}\text{O}_2\text{N}_{21}$ の格子定数と原子座標から計算された $\text{Al} - \text{N}$ および $\text{Si} - \text{N}$ の化学結合の長さに比べて、それぞれ $\pm 15\%$ 以内であるときに結晶構造が変化していないと定義する。本発明に用いられる緑色蛍光体はこのような結晶構造を有することを必須とする。この範囲を超えて化学結合の長さが変化すると、その化学結合が切れて別の結晶となり、本発明による効果を得ることができなくなる。

【手続補正 8】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0049

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0049】

蛍光層109は、本発明の実施形態にかかる蛍光体の混合物110を、例えばシリコン樹脂からなる樹脂層111中に5重量%から50重量%の割合で分散、もしくは沈降させることによって形成することができる。実施形態にかかる蛍光体には、共有結合性の高い酸窒化物が母体として用いられている。このため、本発明による蛍光体は一般に疎水性であり、樹脂との相容性が極めて良好である。したがって、樹脂と蛍光体との界面での散乱が著しく抑制されて、光取出し効率が向上する。

【手続補正9】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0085

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0085】

比較例2

発光ピーク波長455nmの発光ダイオードを、8mm角のAlNパッケージ上に半田を用いて接合し、金ワイヤーを介して電極に接続した。この発光ダイオード上にドーム状に透明樹脂を塗布し、その上にピーク波長585nmの赤色発光蛍光体($\text{Ba}_{0.1}\text{Sr}_{0.8}\text{Ca}_{0.1})_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$)を40重量%混入させた透明樹脂を層状に塗布し、その上に($\text{Ba}_{0.1}\text{Sr}_{0.8})_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$)を30重量%混入させた透明樹脂を層状に塗布して、図6に示された構造を有する発光装置を製造した。この緑色蛍光体と赤色蛍光体の発光強度の温度依存性を、室温における発光強度を1として規格化して図31に示す。この発光装置を積分球内に設置し、20mA、3.1Vで駆動させたところ、色度(0.345, 0.352)、色温度5000K、光束効率68.6lm/W、 $R_a = 86$ であった。20mA駆動における発光スペクトルを図32に示す。

【手続補正10】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0088

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0088】

【図1】一実施形態にかかる蛍光体を用いる発光装置の構成を表わす概略図。

【図2】 $\text{Sr}_2\text{Al}_3\text{Si}_7\text{ON}_{13}$ のXRDプロファイル。

【図3】 $\text{Sr}_2\text{Al}_3\text{Si}_7\text{ON}_{13}$ 結晶構造を示す図。(a)はa軸方向への投影図、(b)はb軸方向への投影図、(c)はc軸方向への投影図をそれぞれ示す。

【図4】実施例1～4の赤色蛍光体の460nm励起における発光スペクトル。

【図5】実施例1に用いた蛍光体の温度特性を表すグラフ。

【図6】実施例1の発光装置の構成を表す概略図。

【図7】実施例1の発光装置の発光スペクトル。

【図8】実施例1の発光装置の駆動電流と色度(2度視野)の関係。

【図9】実施例2の発光装置の発光スペクトル。

【図10】実施例2の発光装置の駆動電流と色度(2度視野)の関係。

【図11】実施例3の発光装置の発光スペクトル。

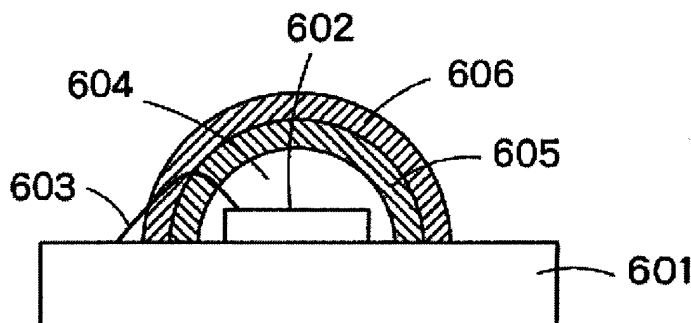
【図12】実施例3の発光装置の駆動電流と色度(2度視野)の関係。

【図13】実施例4の発光装置の発光スペクトル。

【図14】実施例4の発光装置の駆動電流と色度(2度視野)の関係。

【図15】実施例5に用いた蛍光体の温度特性を表すグラフ。

- 【図 1 6】実施例 6 の発光装置の発光スペクトル。
【図 1 7】実施例 6 の発光装置の駆動電流と色度（2 度視野）の関係。
【図 1 8】実施例 5 の発光装置の発光スペクトル。
【図 1 9】実施例 5 の発光装置の駆動電流と色度（2 度視野）の関係。
【図 2 0】実施例 7 の発光装置の発光スペクトル。
【図 2 1】実施例 7 の発光装置の駆動電流と色度（2 度視野）の関係。
【図 2 2】実施例 8 の発光装置の発光スペクトル。
【図 2 3】実施例 8 の発光装置の駆動電流と色度（2 度視野）の関係。
【図 2 4】実施例 9 に用いた蛍光体の温度特性を表すグラフ。
【図 2 5】実施例 9 の発光装置の発光スペクトル。
【図 2 6】実施例 9 の発光装置の駆動電流と色度（2 度視野）の関係。
【図 2 7】比較例 1 の赤色蛍光体の 4 6 0 n m 励起における発光スペクトル。
【図 2 8】比較例 1 に用いた蛍光体の温度特性を表すグラフ。
【図 2 9】比較例 1 の発光装置の発光スペクトル。
【図 3 0】比較例 1 の発光装置の駆動電流と色度（2 度視野）の関係。
【図 3 1】比較例 2 に用いた蛍光体の温度特性を表すグラフ。
【図 3 2】比較例 2 の発光装置の発光スペクトル。
【図 3 3】比較例 2 の発光装置の駆動電流と色度（2 度視野）の関係。
【手続補正 1 1】
【補正対象書類名】図面
【補正対象項目名】図 6
【補正方法】変更
【補正の内容】
【図 6】



- 【手続補正 1 2】
【補正対象書類名】図面
【補正対象項目名】図 2 7
【補正方法】変更
【補正の内容】

【図 27】

