

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

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
14. Mai 2009 (14.05.2009)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 2009/059677 A1

(51) Internationale Patentklassifikation:
C09K 11/77 (2006.01)

(74) Anwalt: **MERCK PATENT GMBH**; Frankfurter Strasse
250, 64293 Darmstadt (DE).

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2008/008608

(81) **Bestimmungsstaaten** (soweit nicht anders angegeben, für
jede verfügbare nationale Schutzrechtsart): AE, AG, AL,
AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY,
BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO,
DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN,
HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ,
LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK,
MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG,
PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM,
ST, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ,
VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(22) Internationales Anmeldedatum:
11. Oktober 2008 (11.10.2008)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:
10 2007 053 285.9
8. November 2007 (08.11.2007) DE

(84) **Bestimmungsstaaten** (soweit nicht anders angegeben, für
jede verfügbare regionale Schutzrechtsart): ARIPO (BW,
GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG,
ZM, ZW), eurasisches (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU,
TJ, TM), europäisches (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK,
EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV,
MC, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF,
BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN,
TD, TG).

(71) **Anmelder** (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von
US): **MERCK PATENT GMBH** [DE/DE]; Frankfurter
Strasse 250, 64293 Darmstadt (DE).

(72) **Erfinder; und**

(75) **Erfinder/Anmelder** (nur für US): **WINKLER, Holger**
[DE/DE]; Lily-Pringsheim-Weg 17, 64291 Darmstadt
(DE). **PETRY, Ralf** [DE/DE]; Mozartstrasse 8A, 64347
Griesheim (DE). **RUEGER, Reinhold** [DE/DE]; Schiller-
strasse 11, 63322 Rödermark (DE). **VOSGROENE, Tim**
[DE/DE]; Waldmühlenweg 9, 64372 Ober-Ramstadt (DE).

Veröffentlicht:
— mit internationalem Recherchenbericht

(54) **Title:** METHOD FOR THE PRODUCTION OF COATED LUMINESCENT SUBSTANCES

(54) **Bezeichnung:** VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG VON BESCHICHTETEN LEUCHTSTOFFEN

(57) **Abstract:** The invention relates to coated luminescent substance particles comprising luminescent particles and a preferably extensively transparent, metal, transitional metal, or metalloid oxide coating and to a method for the production thereof.

(57) **Zusammenfassung:** Die Erfindung betrifft beschichtete Leuchtstoffpartikel enthaltend lumineszierende Teilchen und eine, vorzugsweise weitgehend transparente, Metall-, Übergangsmetall- oder Halbmetalloxidbeschichtung sowie ein Verfahren zur deren Herstellung.



WO 2009/059677 A1

Verfahren zur Herstellung von beschichteten Leuchtstoffen

Die Erfindung betrifft beschichtete Leuchtstoffpartikel sowie ein Verfahren zur deren Herstellung.

5

Die Herstellung von Leuchtstoffen erfordert in der Regel einen nachgeschalteten Hochtemperaturprozess. Bei diesem Vorgang werden u.a. in der Leuchtstoffmatrix vorhandene kristallographische Fehlstellen ausgeheilt, um die für die Leuchtstoff-Performance wichtige Kristallgüte der Matrix zu maximieren.

10

Jedoch führt dieser Hochtemperaturprozess zwangsläufig zu einer Versinterung des Leuchtstoffkornes, falls dieser Prozess bei Temperaturen von mindestens $2/3$ der Schmelztemperatur des Leuchtstoffes erfolgt.

15

Durch die Versinterung kommt es zu einer ungünstigen Partikelmorphologie und Partikelgrößenverteilung des Leuchtstoffpulvers, welche in einem nachfolgenden Prozessschritt durch Energieeintrag (Mahlen) wieder in die Primärpartikel zurückgeführt werden muss.

20

Durch den Energieeintrag kommt es zu oberflächlichen Kristallschädigungen, wie beispielsweise Farbzentren, welche die Effizienz des Leuchtstoffes beeinträchtigen.

25

Überraschenderweise kann die Versinterung der Leuchtstoffpartikel während des Hochtemperaturprozesses dadurch vermieden werden, indem man die Leuchtstoffoberfläche über nasschemische Methoden mit kleinen Partikeln belegt, welche als Abstandhalter (oder Spacer genannt) zwischen den Partikeln wirken und auf diese Weise als Diffusionsbarriere für Sinterprozesse fungieren. Der Vorteil der erfindungsgemäßen Lösung besteht darin, dass die Korngrößenverteilung der Leuchtstoffpartikel durch den Hochtemperaturprozess nicht verändert wird und keine aufwändigen und die Leuchtstoffpartikel schädigenden nachgeschalteten Mahlprozesse benötigt werden. Eventuell bei Hochtemperaturprozess entstehende

30

Agglomerate lassen sich bei Anwendung der erfindungsgemäßen Lösung sehr leicht, ohne hohen Energieeintrag deagglomerieren.

5 Aus EP-1560 274 ist eine Metalloxid-, Metallnitrid bzw. Metalloxynitrid-Beschichtung für Leuchtstoffe bekannt, wobei die Beschichtung mittels CVD-Verfahren auf die Leuchtstoffe gebracht wird.

10 Aus EP-1121 397 B1 ist eine im wesentlichen transparente Metalloxynitridbeschichtung für Leuchtstoffe bekannt, wobei die Beschichtung mittels CVD-Verfahren auf die Leuchtstoffe gebracht wird und so die Leuchtstoffpartikel gegen Feuchtigkeit schützen soll.

15 Die EP-0 455 401 B2 beschreibt gekapselte Elektrolumineszenz-Leuchtstoffpartikel, wobei jedes Partikel einen Leuchtstoff auf Zinksulfid-Basis aufweist, der vollständig mit einer weitgehend transparenten zusammenhängenden Metalloxid-Beschichtung gekapselt ist. Auch hier geschieht die Beschichtung über ein CVD-Verfahren und es entstehen ausschließlich zusammenhängende Beschichtungen.

20 CVD Verfahren sind verfahrenstechnisch und apparatetechnisch sehr aufwändig: Es sind sehr hohe Reinheiten der (inerten) Gasatmosphäre über den gesamten Prozess erforderlich und die strömungstechnische Auslegung muss derart erfolgen, dass eine homogene Zuführung der einzelnen Gasströme an das zu beschichtende Material erfolgen kann.

25 Gegenstand der vorliegenden Erfindung sind beschichtete Leuchtstoffpartikel enthaltend lumineszierende Teilchen und eine Metall-, Übergangsmetall- oder Halbmetalloxidbeschichtung erhältlich durch
30 Mischen von mindestens zwei Edukten mit mindestens einem Dotierstoff nach nasschemischen Methoden und anschließender Kalzinierung zu Leuchtstoffprecursoren sowie Beschichtung mit Metall-, Übergangsmetall-

oder Halbmetalloxiden nach nasschemischen Methoden und anschließende Kalzinierung.

Die Metall-, Übergangsmetall- oder Halbmetalbeschichtung ist vorzugsweise weitgehend transparent, d.h. sie muss sowohl für das Anregungs- wie auch für das Emissionsspektrum der jeweils eingesetzten Konversionsleuchtstoffe eine 90%ige bis 100 % ige Transparenz gewährleisten. Andererseits kann die Transparenz der erfindungsgemäßen Beschichtung für alle Wellenlängen, die nicht der Anregungs- und Emissionswellenlänge entsprechen auch weniger als 90% bis 100% betragen.

Die Herstellung von Leuchtstoffen, z.B. YAG:Ce erfordert mindestens zwei nacheinander ablaufende Kalzinierungsschritte:

1. Eine Glühung an Luft bei einer Temperatur $T_1 > 150\text{ °C}$
2. eine Glühung in reduzierender Atmosphäre bei einer Temperatur $T_2 > 800\text{ °C}$, vorzugsweise zwischen 800 und 1750 °C.

Bei der ersten Glühung erfolgt eine nur schwache Agglomeration der Primärkörner. Daher kann nach diesem Schritt durch Eintrag nur sehr geringer Energien eine Mahlung und Klassifizierung in die gewünschte Partikelgrößenverteilung (Zielfraktion) erfolgen.

Diese Zielfraktion aus den vorkalzinieren Leuchtstoffpartikeln wird in einem nasschemischen Verfahren in einem Rührkessel mit einem weitgehend transparenten Metall-, Übergangsmetall- oder Halbmetalloxid (wie z.B. Aluminiumoxid) mittels Zugabe wässriger oder nichtwässriger Lösungen der entsprechenden, nichtflüchtigen Salzen und/oder metallorganischen Verbindungen beschichtet. Dies geschieht in der Art, dass auf den Leuchtstoffpartikeln vorzugsweise kleine Inseln aus Metall-, Übergangsmetall- oder Halbmetalloxidpartikeln abgeschieden werden. (siehe Fig. 1)

Dadurch wird die Oberfläche der beschichteten Leuchtstoffpartikel vorzugsweise porös, wodurch eine Barrierewirkung für Sinterprozesse

herbeigeführt wird. Gegenüber zusammenhängenden Beschichtungen wie sie im Stand der Technik erwähnt sind, hat die poröse Beschichtung den Vorteil, dass nur durch diese die Bildung von Abstandshaltern (Spacer) möglich ist. Letztere wirken während des Hochtemperaturprozesses einer Versinterung entgegen, indem ein direkter Kontakt der Leuchtstoffoberflächen zwischen mehreren Leuchtstoffpartikeln verhindert wird. Ein Versintern der Leuchtstoffoberflächen wird dadurch ausgeschlossen. Es ist lediglich möglich, dass die Oberflächen der porösen Beschichtungen der Leuchtstoffpartikel miteinander versintern. Diese Aggregate sind jedoch nur lose miteinander verbunden, da die Kontaktfläche sehr klein ist. Dadurch lassen sich diese Aggregate sehr leicht ohne Einfluss auf die Leuchtstoffeigenschaften trennen. Ein weiterer Vorteil des Metall-, Übergangsmetall- oder Halbmetalloxids besteht darin, dass diese bei geeigneter Wahl mit dem Leuchtstoff keine Mischkristalle bilden, wodurch eine Stabilität der Diffusionsbarriere über den Prozess gegeben ist. Als weitgehend transparente Oxide für die Beschichtung werden vorzugsweise Aluminiumoxid, Zinkoxid, Titandioxid, Zirkoniumoxid oder Siliziumoxid oder Kombinationen davon eingesetzt. Besonders bevorzugt wird Aluminiumoxid eingesetzt. Eventuell kann es z.B. bei Einsatz von Aluminiumoxid als Beschichtungsmaterial während einer reduktiven Hochtemperaturbehandlung zu einer Dunkelfärbung an der Oberfläche der Aluminiumoxidpartikel kommen durch Bildung von Al-sub-Oxiden. Nach dem Hochtemperaturprozess ist dann eine selektive Oxidation des Al-sub-oxides in Al_2O_3 möglich durch eine Behandlung des Pulvers bei 600 bis 800°C in einer Wasserdampfatmosfera.

Unter dem Begriff „Porosität bzw. porös“ versteht man die mittlere Porenöffnung an der Oberfläche eines Materials. Die erfindungsgemäße beschichtete Leuchtstoffoberfläche ist vorzugsweise meso- oder makroporös, wobei „mesoporös“ eine Porenöffnung zwischen 2 bis 50 nm und „makroporös“ eine Porengröße > 50 nm beschreibt.

Diese porösen Beschichtungen bieten außerdem die Möglichkeit, den Brechungsindex einer Einzelschicht weiter zu reduzieren.

5 Die Partikelgröße der erfindungsgemäßen Leuchtstoffe beträgt zwischen 50 nm und 30 µm, vorzugsweise zwischen 1 µm und 20 µm.

Die Dicke der erfindungsgemäßen Metall-, Übergangsmetall- oder Halbmetalloxid-Beschichtung beträgt zwischen 10 und 150 nm. Die
10 Teilchengröße der Primärpartikel der Metall-, Übergangsmetall- oder Halbmetalloxid-Beschichtung beträgt zwischen 5 und 100 nm.

Insbesondere kommen als Material für die erfindungsgemäßen Leuchtstoffpartikel folgende Verbindungen in Frage:

15 (Y, Gd, Lu, Sc, Sm, Tb, Th, Ir, Sb, Bi)₃(Al, Ga)₅O₁₂:Ce (mit oder ohne Pr), YSiO₂N:Ce, Y₂Si₃O₃N₄:Ce, Gd₂Si₃O₃N₄:Ce, (Y, Gd, Tb, Lu)₃Al_{5-x}Si_xO_{12-x}N_x:Ce, BaMgAl₁₀O₁₇:Eu (mit oder ohne Mn), SrAl₂O₄:Eu, Sr₄Al₁₄O₂₅:Eu, (Ca, Sr, Ba)Si₂N₂O₂:Eu, SrSiAl₂O₃N₂:Eu, (Ca, Sr, Ba)₂Si₅N₈:Eu, (Ca, Sr, Ba)SiN₂:Eu, CaAlSiN₃:Eu, Molybdate, Wolframate, Vanadate,
20 Gruppe-III-Nitride, Oxide, jeweils einzeln oder Gemischen derselben mit einem oder mehreren Aktivatorionen wie Ce, Eu, Mn, Cr, Tb und/oder Bi.

Ein weiterer Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist ein Verfahren zur Herstellung von beschichteten Leuchtstoffpartikeln mit weitgehend
25 transparenten Metall-, Übergangsmetall- oder Halbmetalloxiden, gekennzeichnet durch die Schritte:

a. Herstellen einer vorkalzinierten Leuchtstoffprecursor-Suspension durch Mischen von mindestens zwei Edukten und mindestens
30 einem Dotierstoff nach nasschemischen Methoden und thermisch behandelt bei einer Temperatur $T_1 > 150\text{ °C}$.

- b. die vorkalzierte Leuchtstoffprecursor-Suspension wird in einem nasschemischen Prozess bei erhöhter Temperatur mit einem weitgehend transparenten Metall-, Übergangs- oder Halbmetalloxid beschichtet und anschließend bei einer Temperatur $T_2 > 800\text{ °C}$ kalziniert.
- c. gegebenenfalls erfolgt zusätzlich eine selektive Oxidation von Suboxiden bei einer Temperatur $T_3 < 800\text{ °C}$ zu den entsprechenden Metall- oder Halbmetalloxiden.

Die Edukte zur Herstellung des Leuchtstoffs bestehen, wie oben erwähnt, aus dem Basismaterial (z. B. Salzlösungen des Aluminiums, Yttriums und Cer) sowie mindestens einem Dotierstoff, vorzugsweise Europium oder Cer und gegebenenfalls weiteren Gd-, Lu-, Sc-, Sm-, Tb-, Pr- und/oder Ga-haltigen Materialien. Als Edukte kommen anorganische und/oder organische Stoffe wie Nitrate, Carbonate, Hydrogencarbonate, Phosphate, Carboxylate, Alkoholate, Acetate, Oxalate, Halogenide, Sulfate, metallorganische Verbindungen, Hydroxide und/oder Oxide der Metalle, Halbmetalle, Übergangsmetalle und/oder Seltenerden in Frage, welche in anorganischen und/oder organischen Flüssigkeiten gelöst und/oder suspendiert sind. Vorzugsweise werden Mischnitratlösungen, Chlorid- oder Hydroxidlösungen eingesetzt, welche die entsprechenden Elemente im erforderlichen stöchiometrischen Verhältnis enthalten.

Die nasschemische Herstellung besitzt gegenüber der herkömmlichen Festkörperdiffusions-Methode (engl. mixing and firing) generell den Vorteil, dass die resultierenden Materialien eine höhere Einheitlichkeit in Bezug auf die stöchiometrische Zusammensetzung, die Partikelgröße und die Morphologie der Partikel aufweisen, aus denen der erfindungsgemäße Leuchtstoff hergestellt wird.

Für die nasschemische Vorbehandlung einer wässrigen Vorstufe der Leuchtstoffe (= Leuchtstoffprecursoren) bestehend z.B. aus einem Gemisch von Yttriumnitrat-, Aluminiumnitrat- und Cernitratlösung sind folgende bekannte Methoden bevorzugt:

- 5
- Cofällung mit einer NH_4HCO_3 -Lösung (*siehe z.B. Jander, Blasius Lehrbuch der analyt. u. präp. anorg. Chem. 2002*)
 - Pecchini-Verfahren mit einer Lösung aus Zitronensäure und Ethylenglykol (*siehe z.B. Annual Review of Materials Research Vol. 36: 2006, 281-331*)
- 10
- Combustion-Verfahren unter Verwendung von Harnstoff
 - Sprühtrocknung wässriger oder organischer Salzlösungen (Edukte)
 - Sprühpyrolyse (auch Spraypyrolyse genannt) wässriger oder organischer Salzlösungen (Edukte)
- 15
- Bei der o.g. erfindungsgemäß besonders bevorzugten Cofällung werden z.B. Nitratlösungen der entsprechenden Leuchtstoffedukte mit einer NH_4HCO_3 -Lösung versetzt, wodurch sich der Leuchtstoffprecursor bildet.
- Beim Pecchini-Verfahren werden z.B. die o.g. Nitratlösungen der entsprechenden Leuchtstoffedukte bei Raumtemperatur mit einem
- 20
- Fällungsreagenz bestehend aus Zitronensäure und Ethylenglykol versetzt und anschließend erhitzt. Durch Erhöhung der Viskosität kommt es zur Leuchtstoffprecursor-Bildung.
- Beim bekannten Combustion-Verfahren werden z.B. die o.g. Nitratlösungen der entsprechenden Leuchtstoffedukte in Wasser gelöst, dann unter
- 25
- Rückfluss gekocht und mit Harnstoff versetzt, wodurch sich der Leuchtstoffprecursor langsam bildet.

Die Sprühpyrolyse gehört zu den Aerosolverfahren, die durch Versprühen von Lösungen, Suspensionen oder Dispersionen in einen durch unterschiedliche Art und Weise erhitzten Reaktionsraum (Reaktor) sowie die Bildung und Abscheidung von Feststoff- Partikeln gekennzeichnet sind. Im Gegensatz zur Sprühtrocknung mit Heißgastemperaturen < 200°C finden bei der Sprühpyrolyse als Hochtemperatur- Prozess außer der Verdampfung des Lösungsmittels zusätzlich die thermische Zersetzung der verwendeten Edukte (z. B. Salze) sowie die Neubildung von Stoffen (z. B. Oxide, Mischoxide) statt.

Die oben genannten 5 Verfahrensvarianten sind ausführlich in der WO 2007/004488 (Merck) beschrieben, die voll umfänglich in den Kontext der vorliegenden Anmeldung durch Bezugnahme eingefügt wird.

Die Herstellung der erfindungsgemäßen Leuchtstoffe kann nach verschiedenen nasschemischen Methoden erfolgen, indem

- 1) eine homogene Ausfällung der Bestandteile erfolgt, gefolgt von der Abtrennung des Lösemittels und einer ein- oder mehrstufigen thermischen Nachbehandlung, wobei ein Schritt davon in reduzierender Atmosphäre erfolgen kann,
- 2) die Mischung fein verteilt wird, beispielsweise mit Hilfe eines Sprühprozesses und eine Entfernung des Lösemittels erfolgt, gefolgt von einer ein -oder mehrstufigen thermischen Nachbehandlung, wobei ein Schritt davon in reduzierender Atmosphäre erfolgen kann, oder
- 3) die Mischung fein verteilt wird, beispielsweise mit Hilfe eines Sprühprozesses und eine Entfernung des Lösemittels einhergehend mit einer Pyrolyse erfolgt, gefolgt von einer ein- oder mehrstufigen thermischen Nachbehandlung, wobei ein Schritt davon in reduzierender Atmosphäre erfolgen kann.

- 4) die mit Hilfe der Methoden 1 – 3 hergestellten Leuchtstoffe nachträglich nasschemisch beschichtet werden.

Vorzugsweise geschieht die nasschemische Herstellung des Leuchtstoffes nach dem Präzipitations- und/oder Sol-Gel-Verfahren.

Bei der oben genannten thermischen Nachbehandlung ist es bevorzugt, wenn die Glühung zumindest teilweise unter reduzierenden Bedingungen (z.B. mit Kohlenmonoxid, Formiergas, reinen oder Wasserstoff oder zumindest Vakuum oder Sauerstoffmangel-Atmosphäre) durchgeführt wird.

Generell ist es auch möglich, die erfindungsgemäßen Leuchtstoffe über die Festkörperdiffusions-Methode herzustellen, was jedoch die schon erwähnten Nachteile verursacht.

Mit Hilfe der o.g. Verfahren können beliebige äußere Formen der Leuchtstoffpartikel hergestellt werden, wie sphärische Partikel, Plättchen und strukturierte Materialien und Keramiken.

Die Anregbarkeit der erfindungsgemäßen Leuchtstoffe erstrecken sich zudem über einen weiten Bereich, der von etwa 250 nm bis 560 nm, bevorzugt 430 nm bis zu etwa 500 nm reicht. Damit sind diese Leuchtstoffe zur Anregung durch UV oder blau emittierende Primärlichtquellen wie LEDs oder konventionelle Entladungslampen (z.B. auf Hg-Basis) geeignet.

Ein weiterer Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist eine Beleuchtungseinheit mit mindestens einer Primärlichtquelle, dessen Emissionsmaximum bzw. -maxima im Bereich 380 nm bis 530 nm, bevorzugt 430 nm bis zu etwa 500 nm reicht. Insbesondere bevorzugt ist ein Bereich zwischen 440 und 480 nm, wobei die primäre Strahlung teilweise oder vollständig durch die erfindungsgemäßen beschichteten Leuchtstoffe in längerwellige Strahlung konvertiert wird. Vorzugsweise ist

diese Beleuchtungseinheit weiß emittierend oder emittiert Licht mit einem bestimmten Farbpunkt (Color-on-demand-Prinzip).

In einer bevorzugten Ausführungsform der erfindungsgemäßen Beleuchtungseinheit handelt es sich bei der Lichtquelle um ein lumineszentes IndiumAluminiumGalliumNitrid, insbesondere der Formel $\text{In}_i\text{Ga}_j\text{Al}_k\text{N}$, wobei $0 \leq i$, $0 \leq j$, $0 \leq k$, und $i+j+k=1$ ist.

Dem Fachmann sind mögliche Formen von derartigen Lichtquellen bekannt. Es kann sich hierbei um lichtemittierende LED-Chips unterschiedlichen Aufbaus handeln.

In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform der erfindungsgemäßen Beleuchtungseinheit handelt es sich bei der Lichtquelle um eine lumineszente auf ZnO, TCO (Transparent conducting oxide), ZnSe oder SiC basierende Anordnung oder auch um eine auf einer organischen lichtemittierende Schicht basierende Anordnung (OLED).

In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform der erfindungsgemäßen Beleuchtungseinheit handelt es sich bei der Lichtquelle um eine Quelle, die Elektrolumineszenz und/oder Photolumineszenz zeigt. Weiterhin kann es sich bei der Lichtquelle auch um eine Plasma- oder Entladungsquelle handeln.

Die erfindungsgemäßen Leuchtstoffe können entweder in einem Harz dispergiert (z.B. Epoxy- oder Siliconharz), oder bei geeigneten Größenverhältnissen direkt auf der Primärlichtquelle angeordnet werden oder aber von dieser, je nach Anwendung, entfernt angeordnet sein (letzte Anordnung schliesst auch die „Remote phosphor Technologie“ mit ein). Die Vorteile der „Remote phosphor Technologie“ sind dem Fachmann bekannt und z.B. der folgenden Publikation zu entnehmen: Japanese Journ. of Appl. Phys. Vol 44, No. 21 (2005). L649-L651.

In einer weiteren Ausführungsform ist es bevorzugt, wenn die optische Ankopplung der Beleuchtungseinheit zwischen dem beschichteten Leuchtstoff und der Primärlichtquelle durch eine lichtleitende Anordnung realisiert wird.

Dadurch ist es möglich, dass an einem zentralen Ort die Primärlichtquelle installiert wird und diese mittels lichtleitender Vorrichtungen, wie beispielsweise lichtleitenden Fasern, an den Leuchtstoff optisch angekoppelt ist. Auf diese Weise lassen sich den Beleuchtungswünschen angepasste Leuchten lediglich bestehend aus einem oder unterschiedlichen Leuchtstoffen, die zu einem Leuchtschirm angeordnet sein können, und einem Lichtleiter, der an die Primärlichtquelle angekoppelt ist, realisieren. Auf diese Weise ist es möglich, eine starke Primärlichtquelle an einen für die elektrische Installation günstigen Ort zu platzieren und ohne weitere elektrische Verkabelung, sondern nur durch Verlegen von Lichtleitern an beliebigen Orten Leuchten aus Leuchtstoffen, welche an die Lichtleiter gekoppelt sind, zu installieren.

Ein weiterer Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist die Verwendung der erfindungsgemäßen Leuchtstoffe zur teilweisen oder vollständigen Konversion der blauen oder im nahen UV-liegenden Emission einer Lumineszenzdiode.

Weiterhin bevorzugt ist die Verwendung der erfindungsgemäßen Leuchtstoffe zur Konversion der blauen oder im nahen UV-liegenden Emission in sichtbare weiße Strahlung. Weiterhin ist die Verwendung der erfindungsgemäßen Leuchtstoffe zur Konversion der Primärstrahlung in einen bestimmten Farbpunkt nach dem „Color on demand“-Konzept bevorzugt.

Ein weiterer Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist die Verwendung der erfindungsgemäßen Leuchtstoffe in Elektrolumineszenz-Materialien,

wie beispielsweise Elektrolumineszenz-Folien (auch Leuchtfolien oder Lichtfolien genannt), in denen beispielsweise Zinksulfid oder Zinksulfid dotiert mit Mn^{2+} , Cu^{+} , oder Ag^{+} als Emitter eingesetzt wird, die im gelbgrünen Bereich emittieren. Die Anwendungsbereiche der Elektrolumineszenz-Folie sind z.B. Werbung, Displayhintergrund-beleuchtung in Flüssigkristallbildschirmen (LC-Displays) und Dünnschichttransistor-Displays (TFT-Displays), selbstleuchtende KFZ-Kennzeichenschilder, Bodengrafik (in Verbindung mit einem tritt- und rutschfesten Laminat), in Anzeigen- und/oder Bedienelementen beispielsweise in Automobilen, Zügen, Schiffen und Flugzeugen oder auch Haushalts-, Garten-, Mess- oder Sport- und Freizeitgeräten.

Die folgenden Beispiele sollen die vorliegende Erfindung verdeutlichen. Sie sind jedoch keinesfalls als limitierend zu betrachten. Alle Verbindungen oder Komponenten, die in den Zubereitungen verwendet werden können, sind entweder bekannt und käuflich erhältlich oder können nach bekannten Methoden synthetisiert werden. Die in den Beispielen angegebenen Temperaturen gelten immer in °C. Es versteht sich weiterhin von selbst, dass sich sowohl in der Beschreibung als auch in den Beispielen die zugegebenen Mengen der Komponenten in den Zusammensetzungen immer zu insgesamt 100% addieren. Gegebene Prozentangaben sind immer im gegebenen Zusammenhang zu sehen. Sie beziehen sich üblicherweise aber immer auf die Masse der angegebenen Teil- oder Gesamtmenge.

Beispiele

Beispiel 1: Herstellung eines mit Alumina-beschichteten YAG:Ce

5 410,423 g Aluminiumchlorid Hexahydrat (1,70 Mol), 300,140 g
Yttriumchlorid Hexahydrat (0,98 Mol) und 10,850 g Cerchlorid Hexahydrat
(0,03 Mol) werden in 800 ml vollentsalztem Wasser gelöst. Diese Lösung
wird innerhalb von 1 ½ Stunden in eine frisch angesetzte Lösung aus
1075,2 g Ammoniumhydrogencarbonat in 2 l vollentsalztem Wasser unter
10 Rühren eingetropft. Anschließend wird die Mischung über einen Zeitraum
von 30 min nachgerührt. Der Niederschlag wird abfiltriert und bei 120°C
getrocknet. Danach erfolgt die Vorkalzinierung des Materials bei 1000°C
über einen Zeitraum von 4 h in Luftatmosphäre.

15 In einem Glasreaktor mit Heizmantel werden 50 g vorkalzinisiertes YAG:Ce
in 950 g VE-Wasser suspendiert. Zu der Suspension werden unter Rühren
bei 80 °C 600g einer wässrigen Lösung von 98,7 g $\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ pro Kg
Lösung enthält, in 2 ½ Stunden zudosiert. Dabei wird der pH-Wert durch
Zudosierung von Natronlauge konstant auf 6,5 gehalten. Nach dem Ende
20 der Zudosierung wird noch 1 Stunde bei 80°C nachgerührt, dann wird auf
Raumtemperatur abgekühlt, der Leuchtstoff abfiltriert, mit Wasser
gewaschen und getrocknet. Der getrocknete Leuchtstoff wird abschließend
30 min bei 750 °C geglüht und abschließend über ein 50µ-Sieb gesiebt.
Danach wird das Produkt in die weitere Prozessierung, d.h. Hoch-
25 temperaturkalzinierung bei 1700°C in 20% H_2 -Atmosphäre, überführt.
Falls das danach erhaltene Material eine Vergrauung aufweist (Bildung von
Aluminium-sub-oxid, s. oben), wird es in einer ungesättigten
Wasserdampf-atmosphäre im Ofen bei einer Temperatur zwischen 600°C
und 800°C über einen Zeitraum von 2 h behandelt.

Beispiel 2: Herstellung eines mit Zirkondioxid-beschichteten YAG:Ce

410,423 g Aluminiumchlorid Hexahydrat (1,70 Mol), 300,140 g
Yttriumchlorid Hexahydrat (0,98 Mol) und 10,850 g Cerchlorid Hexahydrat
5 (0,03 Mol) werden in 800 ml vollentsalztem Wasser gelöst. Diese Lösung
wird innerhalb von 1 ½ Stunden in eine frisch angesetzte Lösung aus
1075,2 g Ammoniumhydrogencarbonat in 2 l vollentsalztem Wasser unter
Rühren eingetropft. Anschließend wird die Mischung über einen Zeitraum
von 30 min nachgerührt. Der Niederschlag wird abfiltriert und bei 120°C
10 getrocknet. Danach erfolgt die Vorkalzinierung des Materials bei 1000°C
über einen Zeitraum von 4 h in Luftatmosphäre.

100g des vorkalzinieren YAG:Ce-Leuchtstoffes wird in 2 l VE-Wasser
suspendiert und die Suspension mit 1000 UpM gerührt. Die Suspension
15 wird anschließend mittels Thermostaten auf eine Temperatur von 75°C
gebracht. Eine 10 wt % Zirkonoxichloridlösung (ZrOCl_2 -Lösung) wird nun
mit einer Dosierate von 2 ml/min zur vorgelegten Suspension dazudosiert.
Der pH-Wert der Suspension wird dabei durch Gegendotation mit einer 30
%igen Natronlauge konstant auf pH=3,5 gehalten. Nach erfolgter Zugabe
20 wird der beschichtete Leuchtstoff abfiltriert und mit VE-Wasser salzfrei
gewaschen. Der getrocknete Leuchtstoff wird abschließend 30 min bei 750
°C geglüht und über ein 20µm-Sieb gesiebt.

Danach wird das Produkt in die weitere Prozessierung, den zweiten
Hochtemperaturkalzinierungsschritt überführt.

Beispiel 3: Herstellung eines mit Titandioxid-beschichteten YAG:Ce

410,423 g Aluminiumchlorid Hexahydrat (1,70 Mol), 300,140 g
30 Yttriumchlorid Hexahydrat (0,98 Mol) und 10,850 g Cerchlorid Hexahydrat
(0,03 Mol) werden in 800 ml vollentsalztem Wasser gelöst. Diese Lösung

wird innerhalb von 1 ½ Stunden in eine frisch angesetzte Lösung aus 1075,2 g Ammoniumhydrogencarbonat in 2 l vollentsalztem Wasser unter Rühren eingetropft. Anschließend wird die Mischung über einen Zeitraum von 30 min nachgerührt. Der Niederschlag wird abfiltriert und bei 120°C getrocknet. Danach erfolgt die Vorkalzinierung des Materials bei 1000°C über einen Zeitraum von 4 h in Luftatmosphäre.

100g des vorliegenden YAG:Ce wird in 2 l VE-Wasser suspendiert und die Suspension mit 1000 UpM gerührt. Die Suspension wird anschließend mittels Thermostaten auf eine Temperatur von 75°C gebracht. Eine 30 wt % Titanoxichloridlösung (TiOCl₂-Lösung) wird nun mit einer Dosierate von 2 ml/min zur vorgelegten Suspension dazudosiert. Der pH-Wert der Suspension wird dabei durch Gegentitration mit einer 30 %igen Natronlauge konstant auf pH=2,2 gehalten. Nach erfolgter Zugabe wird die Suspension auf pH=5,0 eingestellt und der beschichtete Leuchtstoff abfiltriert sowie mit VE-Wasser salzfrei gewaschen. Der getrocknete Leuchtstoff wird abschließend 30 min bei 800 °C geglüht und über ein 20 µm-Sieb gesiebt.

Danach wird das Produkt in die weitere Prozessierung, d.h. Hochtemperaturkalzinierung in oxidativer oder Schutzgasatmosphäre überführt. Nach der Hochtemperaturkalzinierung wird bei grauer Verfärbung (Titansuboxidbildung) das Material im Wasserdampf bei erhöhter Temperatur (600°C – 800°C) über zwei Stunden behandelt, wodurch die Grauverfärbung verschwindet und sich Titandioxid bildet.

Beispiel 4: Herstellung eines mit Zinkoxid-beschichteten YAG:Ce

410,423 g Aluminiumchlorid Hexahydrat (1,70 Mol), 300,140 g Yttriumchlorid Hexahydrat (0,98 Mol) und 10,850 g Cerchlorid Hexahydrat (0,03 Mol) werden in 800 ml vollentsalztem Wasser gelöst. Diese Lösung

wird innerhalb von 1 ½ Stunden in eine frisch angesetzte Lösung aus 1075,2 g Ammoniumhydrogencarbonat in 2 l vollentsalztem Wasser unter Rühren eingetropft. Anschließend wird die Mischung über einen Zeitraum von 30 min nachgerührt. Der Niederschlag wird abfiltriert und bei 120°C getrocknet. Danach erfolgt die Vorkalzinierung des Materials bei 1000°C über einen Zeitraum von 4 h in Luftatmosphäre.

100g des vorliegenden YAG:Ce-Leuchtstoffes wird in 2 l VE-Wasser suspendiert und die Suspension mit 1000 UpM gerührt. Die Suspension wird anschließend mittels Thermostaten auf eine Temperatur von 75°C gebracht. Eine Zinkchloridlösung (ZnCl₂-Lösung) – 22,7 g Zinkchlorid zusammen mit 1,0 g Aluminiumchlorid-Hexahydrat in 400 g VE-Wasser gelöst - wird nun mit einer Dosierate von 5 ml/min zur vorgelegten Suspension dazudosiert. Der pH-Wert der Suspension wird dabei durch Gegentitration mit einer 15 %igen Natronlauge konstant auf pH= 8,0 gehalten. Nach erfolgter Zugabe wird die Suspension durch Zugabe von 10 % HCl-Lösung auf pH=5 eingestellt. Der beschichtete Leuchtstoff wird nun abfiltriert und mit VE-Wasser salzfrei gewaschen und anschließend getrocknet. Nun wird das Material bei 500 °C geglüht und über ein 20µm-Sieb gesiebt.

Danach wird das Produkt in die weitere Prozessierung, d.h. Hochtemperaturkalzinierung bei 1700°C in 20% H₂-Atmosphäre, überführt.

Beispiel 5: Herstellung eines mit Aluminiumoxid-beschichteten (Ca,Sr,Ba)SiN₂:Eu

In einem Glasreaktor mit Heizmantel werden 50 g (Ca,Sr,Ba)SiN₂:Eu in 950 g VE-Wasser suspendiert. Zu der Suspension werden unter Rühren bei 80 °C 600g einer wässrigen Lösung von 98,7 g AlCl₃ *6H₂O pro Kg Lösung enthält, in 2 ½ Stunden zudosiert. Dabei wird der pH-Wert durch Zudosierung von Natronlauge konstant auf 6,5 gehalten. Nach dem Ende der Zudosierung wird noch 1 Stunde bei 80°C nachgerührt, dann wird auf

Raumtemperatur abgekühlt, der Leuchtstoff abfiltriert, mit Wasser gewaschen und getrocknet. Der getrocknete Leuchtstoff wird abschließend 30 min bei 750 °C geglüht und abschließend über ein 50µ-Sieb gesiebt.

Beispiel 6: Herstellung eines mit Aluminiumoxid-beschichteten (Ca,Sr,Ba)Si₂N₅:Eu

In einem Glasreaktor mit Heizmantel werden 50 g (Ca,Sr,Ba)Si₂N₅:Eu in 950 g VE-Wasser suspendiert. Zu der Suspension werden unter Rühren bei 80 °C 600g einer wässrigen Lösung von 98,7 g AlCl₃ *6H₂O pro Kg Lösung enthält, in 2 ½ Stunden zudosiert. Dabei wird der pH-Wert durch Zudosierung von Natronlauge konstant auf 6,5 gehalten. Nach dem Ende der Zudosierung wird noch 1 Stunde bei 80°C nachgerührt, dann wird auf Raumtemperatur abgekühlt, der Leuchtstoff abfiltriert, mit Wasser gewaschen und getrocknet. Der getrocknete Leuchtstoff wird abschließend 30 min bei 750 °C geglüht und abschließend über ein 50µ-Sieb gesiebt.

Beispiel 7: Herstellung eines mit Zirkoniumoxid-beschichteten (Ca,Sr,Ba)SiN₂:Eu

100g (Ca,Sr,Ba)SiN₂:Eu werden in 2 l VE-Wasser suspendiert und die Suspension mit 1000 UpM gerührt. Die Suspension wird anschließend mittels Thermostaten auf eine Temperatur von 75°C gebracht. Eine 10 wt % Zirkonoxichloridlösung (ZrOCl₂-Lösung) wird nun mit einer Dosierate von 2 ml/min zur vorgelegten Suspension dazudosiert. Der pH-Wert der Suspension wird dabei durch Gegendotation mit einer 30 %igen Natronlauge konstant auf pH=3,5 gehalten. Nach erfolgter Zugabe wird der beschichtete Leuchtstoff abfiltriert und mit VE-Wasser salzfrei gewaschen. Der getrocknete Leuchtstoff wird abschließend 30 min bei 750 °C geglüht und über ein 20µm-Sieb gesiebt.

Beispiel 8: Herstellung eines mit Zirkoniumoxid-beschichteten**(Ca,Sr,Ba)Si₂N₅:Eu**

100g (Ca,Sr,Ba)Si₂N₅:Eu werden in 2 l VE-Wasser suspendiert und die
Suspension mit 1000 UpM gerührt. Die Suspension wird anschließend
mittels Thermostaten auf eine Temperatur von 75°C gebracht. Eine 10 wt
% Zirkonoxichloridlösung (ZrOCl₂-Lösung) wird nun mit einer Dosierate
von 2 ml/min zur vorgelegten Suspension dazudosiert. Der pH-Wert der
Suspension wird dabei durch Gegentitration mit einer 30 %igen
Natronlauge konstant auf pH=3,5 gehalten. Nach erfolgter Zugabe wird der
beschichtete Leuchtstoff abfiltriert und mit VE-Wasser salzfrei gewaschen.
Der getrocknete Leuchtstoff wird abschließend 30 min bei 750 °C geglüht
und über ein 20µm-Sieb gesiebt.

Beispiel 9: Herstellung eines mit Titandioxid-beschichteten**(Ca,Sr,Ba)SiN₂:Eu**

100g (Ca,Sr,Ba)SiN₂:Eu werden in 2 l VE-Wasser suspendiert und die
Suspension mit 1000 UpM gerührt. Die Suspension wird anschließend
mittels Thermostaten auf eine Temperatur von 75°C gebracht. Eine 30 wt
% Titanoxichloridlösung (TiOCl₂-Lösung) wird nun mit einer Dosierate von
2 ml/min zur vorgelegten Suspension dazudosiert. Der pH-Wert der
Suspension wird dabei durch Gegentitration mit einer 30 %igen
Natronlauge konstant auf pH=2,2 gehalten. Nach erfolgter Zugabe wird die
Suspension auf pH=5,0 eingestellt und der beschichtete Leuchtstoff
abfiltriert sowie mit VE-Wasser salzfrei gewaschen. Der getrocknete
Leuchtstoff wird abschließend 30 min bei 800 °C geglüht und über ein 20
µm-Sieb gesiebt.

Beispiel 10: Herstellung eines mit Titanoxid-beschichteten**(Ca,Sr,Ba)Si₂N₅:Eu**

100g (Ca,Sr,Ba)Si₂N₅:Eu werden in 2 l VE-Wasser suspendiert und die
Suspension mit 1000 UpM gerührt. Die Suspension wird anschließend

mittels Thermostaten auf eine Temperatur von 75°C gebracht. Eine 30 wt % Titanoxichloridlösung (TiOCl_2 -Lösung) wird nun mit einer Dosierate von 2 ml/min zur vorgelegten Suspension dazudosiert. Der pH-Wert der Suspension wird dabei durch Gegendotation mit einer 30 %igen Natronlauge konstant auf pH=2,2 gehalten. Nach erfolgter Zugabe wird die Suspension auf pH=5,0 eingestellt und der beschichtete Leuchtstoff abfiltriert sowie mit VE-Wasser salzfrei gewaschen. Der getrocknete Leuchtstoff wird abschließend 30 min bei 800 °C geglüht und über ein 20 µm-Sieb gesiebt.

Beispiel 11: Herstellung eines mit Zinkoxid-beschichteten

(Ca,Sr,Ba)SiN₂:Eu

100g (Ca,Sr,Ba)SiN₂:Eu werden in 2 l VE-Wasser suspendiert und die Suspension mit 1000 UpM gerührt. Die Suspension wird anschließend mittels Thermostaten auf eine Temperatur von 75°C gebracht. Eine Zinkchloridlösung (ZnCl_2 -Lösung) – 22,7 g Zinkchlorid zusammen mit 1,0 g Aluminiumchlorid-Hexahydrat in 400 g VE-Wasser gelöst - wird nun mit einer Dosierate von 5 ml/min zur vorgelegten Suspension dazudosiert. Der pH-Wert der Suspension wird dabei durch Gegendotation mit einer 15 %igen Natronlauge konstant auf pH= 8,0 gehalten. Nach erfolgter Zugabe wird die Suspension durch Zugabe von 10 % HCl-Lösung auf pH=5 eingestellt. Der beschichtete Leuchtstoff wird nun abfiltriert und mit VE-Wasser salzfrei gewaschen und anschließend getrocknet. Nun wird das Material bei 500 °C geglüht und über ein 20µm-Sieb gesiebt.

Beispiel 12: Herstellung eines mit Zinkoxid-beschichteten

(Ca,Sr,Ba)Si₂N₅:Eu

100g (Ca,Sr,Ba)Si₂N₅:Eu werden in 2 l VE-Wasser suspendiert und die Suspension mit 1000 UpM gerührt. Die Suspension wird anschließend mittels Thermostaten auf eine Temperatur von 75°C gebracht. Eine

Zinkchloridlösung (ZnCl_2 -Lösung) – 22,7 g Zinkchlorid zusammen mit 1,0 g Aluminiumchlorid-Hexahydrat in 400 g VE-Wasser gelöst - wird nun mit einer Dosierate von 5 ml/min zur vorgelegten Suspension dazudosiert. Der pH-Wert der Suspension wird dabei durch Ggentitration mit einer 15 %igen Natronlauge konstant auf pH= 8,0 gehalten. Nach erfolgter Zugabe wird die Suspension durch Zugabe von 10 % HCl-Lösung auf pH=5 eingestellt. Der beschichtete Leuchtstoff wird nun abfiltriert und mit VE-Wasser salzfrei gewaschen und anschließend getrocknet. Nun wird das Material bei 500 °C geglüht und über ein 20µm-Sieb gesiebt.

Beispiel 13: Herstellung eines mit SiO_2 -beschichteten $(\text{Ca},\text{Sr},\text{Ba})\text{SiN}_2$:Eu

50 g $(\text{Ca},\text{Sr},\text{Ba})\text{SiN}_2$:Eu werden in einem 2-L-Reaktor mit Schliffdeckel, Heizmantel und Rückflußkühler in 1 Liter Ethanol suspendiert. Dazu wird eine Lösung von 17 g Ammoniakwasser (25 Gew% NH_3) in 170 g Wasser gegeben. Unter Rühren wird bei 65 °C eine Lösung von 48 g Tetraethylorthosilikat (TEOS) in 48 g wasserfreiem Ethanol langsam (ca. 1 ml/min) zugetropft. Nach Beendigung der Zugabe wird die Suspension nach 2 Stunden nachgerührt, auf Raumtemperatur gebracht und abfiltriert. Der Rückstand wird mit Ethanol gewaschen, getrocknet, anschließend geglüht und gesiebt.

Beispiel 14: Herstellung eines mit SiO_2 -beschichteten $(\text{Ca},\text{Sr},\text{Ba})\text{Si}_2\text{N}_5$:Eu

50 g $(\text{Ca},\text{Sr},\text{Ba})\text{Si}_2\text{N}_5$:Eu werden in einem 2-L-Reaktor mit Schliffdeckel, Heizmantel und Rückflußkühler in 1 Liter Ethanol suspendiert. Dazu wird eine Lösung von 17 g Ammoniakwasser (25 Gew% NH_3) in 170 g Wasser gegeben. Unter Rühren wird bei 65 °C eine Lösung von 48 g Tetraethylorthosilikat (TEOS) in 48 g wasserfreiem Ethanol langsam (ca. 1 ml/min) zugetropft. Nach Beendigung der Zugabe wird die Suspension nach 2 Stunden nachgerührt, auf Raumtemperatur gebracht und abfiltriert.

Der Rückstand wird mit Ethanol gewaschen, getrocknet, anschließend
geglüht und gesiebt.

5

Beschreibung der Figuren

Im folgenden soll die Erfindung anhand eines Ausführungsbeispiels näher
erläutert werden. Es zeigen:

10

Fig. 1: Spacer-Wirkung der Al_2O_3 -Oberflächenbeschichtung
1 zeigt ein vorkalziniertes YAG-Leuchtstoffpartikel
2 zeigt die Al_2O_3 -Beschichtung

15

Fig.2 : REM-Aufnahme von Partikeln, die mit Al_2O_3 Spacern beschichtet
sind

20

25

30

Patentansprüche

- 5 1. Beschichtete Leuchtstoffpartikel enthaltend lumineszierende Teilchen und eine Metall-, Übergangsmetall- oder Halbmetalloxidbeschichtung erhältlich durch Mischen von mindestens zwei Edukten mit mindestens einem Dotierstoff nach nasschemischen Methoden und anschließender Kalzinierung zu Leuchtstoffprecursoren sowie
- 10 Beschichtung mit Metall-, Übergangsmetall- oder Halbmetalloxiden nach nasschemischen Methoden und anschließende Kalzinierung.
- 15 2. Beschichtete Leuchtstoffpartikel nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Oberfläche der beschichteten Leuchtstoffpartikel porös ist.
- 20 3. Beschichtete Leuchtstoffpartikel nach Anspruch 1 und/oder 2, wobei jedes der beschichteten Partikel ein lumineszierendes Teilchen umfasst, das aus mindestens einer lumineszierenden Verbindung, ausgewählt aus der Gruppe der $(Y, Gd, Lu, Sc, Sm, Tb)_3(Al, Ga)_5O_{12}:Ce$ (mit oder ohne Pr), $YSiO_2N:Ce$, $Y_2Si_3O_3N_4:Ce$, $Gd_2Si_3O_3N_4:Ce$, $(Y, Gd, Tb, Lu)_3Al_{5-x}Si_xO_{12-x}N_x:Ce$, $BaMgAl_{10}O_{17}:Eu$ (mit oder ohne Mn), $SrAl_2O_4:Eu$, $Sr_4Al_{14}O_{25}:Eu$, $(Ca, Sr, Ba)Si_2N_2O_2:Eu$, $SrSiAl_2O_3N_2:Eu$, $(Ca, Sr, Ba)_2Si_5N_8:Eu$, $(Ca, Sr, Ba)SiN_2:Eu$,
- 25 $CaAlSiN_3:Eu$, Molybdate, Wolframate, Vanadate, Gruppe-III-Nitride, Oxide, jeweils einzeln oder Gemischen derselben mit einem oder mehreren Aktivatorionen wie Ce, Eu, Mn, Cr, Tb und/oder Bi, besteht.
- 30 4. Beschichtete Leuchtstoffpartikel nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, dass die Metall-,

Übergangsmetall- oder Halbmetalloxidbeschichtung weitgehend transparent ist.

5. Verfahren zur Herstellung von beschichteten Leuchtstoffpartikeln mit weitgehend transparenten Metall-, Übergangsmetall- oder Halbmetalloxiden, gekennzeichnet durch die Schritte:

a. Herstellen einer vorkalzinierten Leuchtstoffprecursor-Suspension durch Mischen von mindestens zwei Edukten und mindestens einem Dotierstoff nach nasschemischen Methoden und thermisch behandelt bei einer Temperatur $T_1 > 150\text{ °C}$.

b. die vorkalzinierte Leuchtstoffprecursor-Suspension wird in einem nasschemischen Prozess bei erhöhter Temperatur mit einem weitgehend transparenten Metall-, Übergangs- oder Halbmetalloxid beschichtet und anschließend bei einer Temperatur $T_2 > 800\text{ °C}$ kalziniert.

c. gegebenenfalls erfolgt zusätzlich eine selektive Oxidation von Suboxiden bei einer Temperatur $T_3 < 800\text{ °C}$ zu den entsprechenden Metall- oder Halbmetalloxiden.

6. Verfahren nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, dass als weitgehend transparentes Metall-, Übergangsmetall- oder Halbmetalloxid Nanopartikel aus Aluminiumoxid, Zirkoniumoxid, Zinkoxid, Titanoxid, Siliciumoxid oder Kombinationen davon eingesetzt werden.

7. Verfahren nach Anspruch 5 und/oder 6, dadurch gekennzeichnet, dass als weitgehend transparentes Metall-, Übergangsmetall- oder Halbmetalloxid Nanopartikel aus Aluminiumoxid eingesetzt werden.

- 5 8. Verfahren nach einem oder mehreren der Ansprüche 5 bis 7, dadurch gekennzeichnet, dass der Leuchtstoffprecursor nasschemisch aus organischen und/oder anorganischen Metall-, Halbmetall-, Übergangsmetall- und/oder Seltenerd-Salzen mittels Sol-Gel-Verfahren und/oder Präzipitationsverfahren hergestellt wird.
- 10 9. Verfahren nach einem oder mehreren der Ansprüche 5 bis 8, dadurch gekennzeichnet, dass die nasschemische Herstellung der Leuchtstoffprecursoren aus einer der folgenden 5 Methoden gewählt wird:
- Cofällung mit einer NH_4HCO_3 -Lösung
 - Pecchini-Prozess mit einer Lösung aus Zitronensäure und Ethylenglycol
 - Combustion-Prozess unter Verwendung von Harnstoff
 - 15 • Sprühtrocknung der dispergierten Edukte
 - Sprühpyrolyse der dispergierten Edukte
- 20 10. Verfahren nach Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, dass die nasschemische Herstellung der Leuchtstoffprecursoren mittels Cofällung mit einer NH_4HCO_3 -Lösung erfolgt.
- 25 11. Verfahren nach einem oder mehreren der Ansprüche 5 bis 10, dadurch gekennzeichnet, dass die Beschichtung mit mindestens einem Metal-, Übergangsmetall- oder Halbmetalloxid mittels Zugabe wässriger oder nichtwässriger Lösungen von nichtflüchtigen Salzen und/oder metallorganischen Verbindungen durchgeführt wird.
- 30 12. Verfahren nach einem oder mehreren der Ansprüche 5 bis 11, dadurch gekennzeichnet, dass die Edukte und der Dotierstoff anorganische und/oder organische Stoffe wie Nitrate, Carbonate, Hydrogencarbonate, Phosphate, Carboxylate, Alkoholate, Acetate,

Oxalate, Halogenide, Sulfate, metallorganische Verbindungen, Hydroxide und/oder Oxide der Metalle, Halbmetalle, Übergangsmetalle und /oder Seltenerden sind, welche in anorganischen und/oder organischen Flüssigkeiten gelöst und/oder suspendiert sind.

5

13. Verfahren nach einem oder mehreren der Ansprüche 5 bis 12, dadurch gekennzeichnet, dass die Leuchtstoffpartikel aus mindestens einem der folgenden Leuchtstoffmaterialien bestehen:

10

(Y, Gd, Lu, Sc, Sm, Tb, Th, Ir, Sb, Bi)₃(Al, Ga)₅O₁₂:Ce (mit oder ohne Pr), YSiO₂N:Ce, Y₂Si₃O₃N₄:Ce, Gd₂Si₃O₃N₄:Ce, (Y, Gd, Tb, Lu)₃Al_{5-x}Si_xO_{12-x}N_x:Ce, BaMgAl₁₀O₁₇:Eu (mit oder ohne Mn), SrAl₂O₄:Eu, Sr₄Al₁₄O₂₅:Eu, (Ca, Sr, Ba)Si₂N₂O₂:Eu, SrSiAl₂O₃N₂:Eu, (Ca, Sr, Ba)₂Si₅N₈:Eu, (Ca, Sr, Ba)SiN₂:Eu, CaAlSiN₃:Eu, Molybdate, Wolframate, Vanadate, Gruppe-III-Nitride, Oxide, jeweils einzeln oder Gemischen derselben mit einem oder mehreren Aktivatorionen wie Ce, Eu, Mn, Cr, Tb und/oder Bi.

15

14. Beleuchtungseinheit mit mindestens einer Primärlichtquelle, deren Emissionsmaximum im Bereich 380 nm bis 530 nm liegt, vorzugsweise zwischen 430 nm und 500 nm, wobei diese Strahlung teilweise oder vollständig in längerwellige Strahlung konvertiert wird durch beschichtete Leuchtstoffpartikel nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 3.

20

25

15. Beleuchtungseinheit nach Anspruch 14, dadurch gekennzeichnet, dass es sich bei der Lichtquelle um ein lumineszentes IndiumAluminiumGalliumNitrid, insbesondere der Formel In_iGa_jAl_kN, wobei 0 ≤ i, 0 ≤ j, 0 ≤ k, und i+j+k=1 handelt.

30

16. Beleuchtungseinheit nach Anspruch 14, dadurch gekennzeichnet, dass es bei der Lichtquelle um eine lumineszente auf ZnO, TCO

(Transparent conducting oxide), ZnSe oder SiC basierende Verbindung handelt.

5 17. Beleuchtungseinheit nach Anspruch 14, dadurch gekennzeichnet, dass es sich bei der Lichtquelle um eine auf einer organischen lichtemittierenden Schicht basierendes Material handelt.

10 18. Beleuchtungseinheit nach Anspruch 14, dadurch gekennzeichnet, dass es sich bei der Lichtquelle um eine Quelle handelt, die Elektrolumineszenz und/oder Photolumineszenz zeigt.

15 19. Beleuchtungseinheit nach Anspruch 14, dadurch gekennzeichnet, dass es sich bei der Lichtquelle um eine Plasma- oder Entladungsquelle handelt.

20 20. Verwendung von beschichteten Leuchtstoffpartikeln nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 4 zur teilweisen oder vollständigen Konversion der blauen oder im nahen UV-liegenden Emission einer Lumineszenzdiode.

20

25

30

Fig. 1

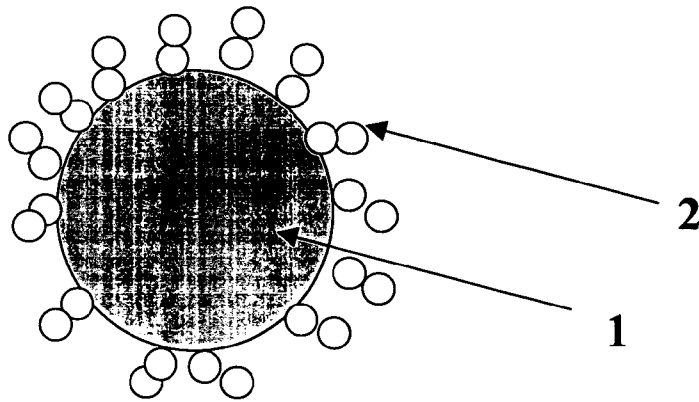
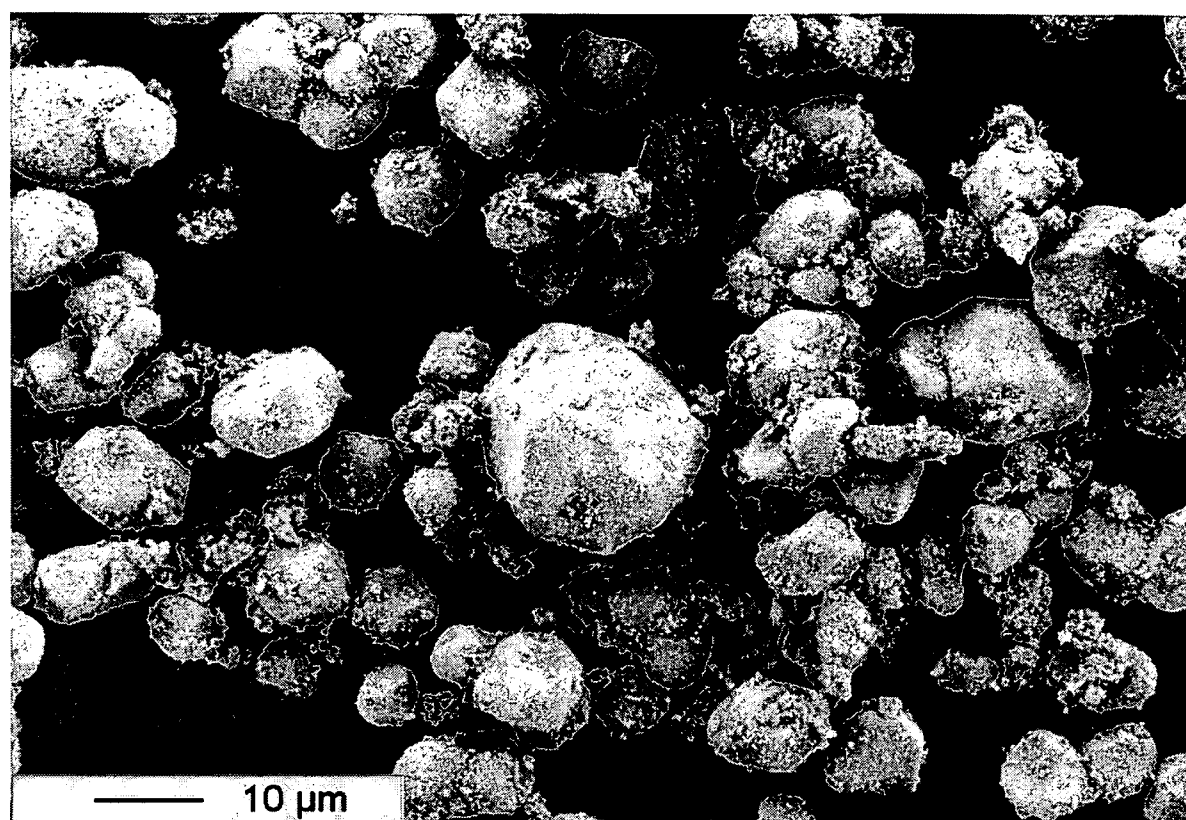


Fig. 2



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No

PCT/EP2008/008608

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

INV. C09K11/77

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C09K

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

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

EPO-Internal

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2007/064414 A (SARNOFF CORP [US]; TIAN YONGCHI [US]; YOCOM PERRY NIEL [US]) 7 June 2007 (2007-06-07) paragraphs [0058], [0075]	3,4,20
Y		6-13
X	US 2006/068203 A1 (YING JACKIE Y [SG] ET AL) 30 March 2006 (2006-03-30) paragraph [0022]; claim 3	3,4,20
Y		6-13
X	EP 0 160 856 A (GTE LABORATORIES INC [US]) 13 November 1985 (1985-11-13) examples I,II	5
Y		6-13
A	US 2004/101822 A1 (WIESNER ULRICH [US] ET AL) 27 May 2004 (2004-05-27) the whole document	3-20



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

- *A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- *E* earlier document but published on or after the international filing date
- *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- *T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- *X* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- *Y* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- *G* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

27 November 2008

Date of mailing of the international search report

04/12/2008

Name and mailing address of the ISA/

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

Authorized officer

Saldamli, Saltuk

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/EP2008/008608

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
2. ☒ Claims Nos.: **1, 2**
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

see supplemental sheet PCT/ISA/210

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, the payment of a protest fee.
- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.
- ☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

Continuation of Box II.2

Claims 1, 2

Claim 1 relates to an extremely large number of possible compounds (the same applies for claim 2, because said claim does not restrict the scope of protection much further). However, support and disclosure (PCT Articles 6 and 5) can only be found for a very small proportion of the claimed compounds, namely for the examples. The failure to meet the relevant requirements is so serious that it was taken into consideration in determining the scope of protection (PCT Guidelines 9.19 and 9.23).

Furthermore, the introduced device features are non-restrictive with respect to the subject matter of claim 1, because a product does not become novel only because it is produced by a method that is novel. A patent claim, which defines a product in terms of the production process by which the product is made, is directed to the product per se (PCT Guidelines 5.26).

The search on claim 1 was restricted to those claimed compounds which are supported by the description, namely the coated luminescent particles of the examples.

The applicant is advised that claims relating to inventions in respect of which no international search report has been established cannot normally be the subject of an international preliminary examination (PCT Rule 66.1(e)). In its capacity as International Preliminary Examining Authority the EPO generally will not carry out a preliminary examination for subject matter that has not been searched. This also applies in cases where the claims were amended after receipt of the international search report (PCT Article 19) or where the applicant submits new claims in the course of the procedure under PCT Chapter II. However, after entry into the regional phase before the EPO an additional search may be carried out in the course of the examination (cf. EPO Guidelines, C-VI, 8.5) if the deficiencies that led to the declaration under PCT Article 17(2) have been corrected.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/EP2008/008608

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 2007064414 A	07-06-2007	EP 1969085 A1 KR 20080076993 A US 2007125982 A1	17-09-2008 20-08-2008 07-06-2007
US 2006068203 A1	30-03-2006	CN 101103419 A EP 1794764 A1 WO 2006107331 A1	09-01-2008 13-06-2007 12-10-2006
EP 0160856 A	13-11-1985	AR 242639 A1 AU 614864 B2 AU 3935789 A AU 589122 B2 AU 4142585 A BR 8502203 A CA 1264223 A1 CA 1277551 C2 DE 3578599 D1 FI 851785 A JP 1984792 C JP 7005884 B JP 61023678 A	30-04-1993 12-09-1991 23-11-1989 05-10-1989 14-11-1985 14-01-1986 09-01-1990 11-12-1990 16-08-1990 08-11-1985 25-10-1995 25-01-1995 01-02-1986
US 2004101822 A1	27-05-2004	AU 2003303290 A1 AU 2003303309 A1 CN 1742094 A CN 1767941 A EP 1604031 A2 EP 1572445 A2 JP 2006517985 T JP 2006514708 T KR 20050103186 A KR 20050109455 A WO 2004063387 A2 WO 2004074504 A2 US 2006183246 A1	09-09-2004 10-08-2004 01-03-2006 03-05-2006 14-12-2005 14-09-2005 03-08-2006 11-05-2006 27-10-2005 21-11-2005 29-07-2004 02-09-2004 17-08-2006

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2008/008608

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
INV. C09K11/77

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

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
C09K

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

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

EPO-Internal

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	WO 2007/064414 A (SARNOFF CORP [US]; TIAN YONGCHI [US]; YOCOM PERRY NIEL [US]) 7. Juni 2007 (2007-06-07) Absätze [0058], [0075]	3,4,20
Y	-----	6-13
X	US 2006/068203 A1 (YING JACKIE Y [SG] ET AL) 30. März 2006 (2006-03-30) Absatz [0022]; Anspruch 3	3,4,20
Y	-----	6-13
X	EP 0 160 856 A (GTE LABORATORIES INC [US]) 13. November 1985 (1985-11-13) Beispiele I,II	5
Y	-----	6-13
A	US 2004/101822 A1 (WIESNER ULRICH [US] ET AL) 27. Mai 2004 (2004-05-27) das ganze Dokument	3-20

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

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen

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

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

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

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

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

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

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

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

G Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

27. November 2008

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

04/12/2008

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

Bevollmächtigter Bediensteter

Saldamli, Saltuk

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2008/008608

Feld Nr. II Bemerkungen zu den Ansprüchen, die sich als nicht recherchierbar erwiesen haben (Fortsetzung von Punkt 2 auf Blatt 1)

Gemäß Artikel 17(2)a) wurde aus folgenden Gründen für bestimmte Ansprüche kein internationaler Recherchenbericht erstellt:

1. ☐ Ansprüche Nr.
 weil sie sich auf Gegenstände beziehen, zu deren Recherche diese Behörde nicht verpflichtet ist, nämlich

2. ☒ Ansprüche Nr. 1,2
 weil sie sich auf Teile der internationalen Anmeldung beziehen, die den vorgeschriebenen Anforderungen so wenig entsprechen, dass eine sinnvolle internationale Recherche nicht durchgeführt werden kann, nämlich
 siehe BEIBLATT PCT/ISA/210

3. ☐ Ansprüche Nr.
 weil es sich dabei um abhängige Ansprüche handelt, die nicht entsprechend Satz 2 und 3 der Regel 6.4 a) abgefasst sind.

Feld Nr. III Bemerkungen bei mangelnder Einheitlichkeit der Erfindung (Fortsetzung von Punkt 3 auf Blatt 1)

Diese Internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, dass diese internationale Anmeldung mehrere Erfindungen enthält:

1. ☐ Da der Anmelder alle erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht auf alle recherchierbaren Ansprüche.

2. ☐ Da für alle recherchierbaren Ansprüche die Recherche ohne einen Arbeitsaufwand durchgeführt werden konnte, der zusätzliche Recherchegebühr gerechtfertigt hätte, hat die Behörde nicht zur Zahlung solcher Gebühren aufgefordert.

3. ☐ Da der Anmelder nur einige der erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht nur auf die Ansprüche, für die Gebühren entrichtet worden sind, nämlich auf die Ansprüche Nr.

4. ☐ Der Anmelder hat die erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren nicht rechtzeitig entrichtet. Dieser internationale Recherchenbericht beschränkt sich daher auf die in den Ansprüchen zuerst erwähnte Erfindung; diese ist in folgenden Ansprüchen erfasst:

Bemerkungen hinsichtlich eines Widerspruchs

- ☐ Der Anmelder hat die zusätzlichen Recherchegebühren unter Widerspruch entrichtet und die gegebenenfalls erforderliche Widerspruchsgebühr gezahlt.
- ☐ Die zusätzlichen Recherchegebühren wurden vom Anmelder unter Widerspruch gezahlt, jedoch wurde die entsprechende Widerspruchsgebühr nicht innerhalb der in der Aufforderung angegebenen Frist entrichtet.
- ☐ Die Zahlung der zusätzlichen Recherchegebühren erfolgte ohne Widerspruch.

WEITERE ANGABEN

PCT/ISA/ 210

Fortsetzung von Feld II.2

Ansprüche Nr.: 1,2

Der Anspruch 1 bezieht sich auf eine extrem großen Anzahl von möglichen Verbindungen (Das gleiche gilt für Anspruch 2, da der den Schutzzumfang auch nicht viel weiter beschränkt). Stützung und Offenbarung im Sinne von Artikel 6 und 5 PCT kann jedoch nur für einen sehr kleinen Teil der beanspruchten Verbindungen gefunden werden, und zwar die Beispiele. Die Verletzung der einschlägigen Erfordernisse ist so schwerwiegend, dass sie bei der Bestimmung des Recherchenumfangs berücksichtigt wurde (PCT Richtlinien 9.19 und 9.23).

Ferner sind die eingeführten Verfahrensmerkmale nicht einschränkend für den Gegenstand des Anspruchs 1, da ein Erzeugnis nicht schon dadurch neu wird, dass es durch ein neues Verfahren hergestellt ist. Ein Patentanspruch, der ein Erzeugnis durch ein Herstellungsverfahren kennzeichnet, ist als auf das Erzeugnis als solches gerichtet anzusehen (PCT Richtlinien 5.26).

Die Recherche von Anspruch 1 wurde auf jene beanspruchten Verbindungen beschränkt, die durch die Beschreibung gestützt sind; nämlich die beschichteten Leuchtstoffpartikel der Beispiele.

Der Anmelder wird darauf hingewiesen, dass Patentansprüche auf Erfindungen, für die kein internationaler Recherchenbericht erstellt wurde, normalerweise nicht Gegenstand einer internationalen vorläufigen Prüfung sein können (Regel 66.1(e) PCT). In seiner Eigenschaft als mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragte Behörde wird das EPA also in der Regel keine vorläufige Prüfung für Gegenstände durchführen, zu denen keine Recherche vorliegt. Dies gilt auch für den Fall, dass die Patentansprüche nach Erhalt des internationalen Recherchenberichtes geändert wurden (Art. 19 PCT), oder für den Fall, dass der Anmelder im Zuge des Verfahrens gemäss Kapitel II PCT neue Patentansprüche vorlegt. Nach Eintritt in die regionale Phase vor dem EPA kann jedoch im Zuge der Prüfung eine weitere Recherche durchgeführt werden (Vgl. EPA-Richtlinien C-VI, 8.2), sollten die Mängel behoben sein, die zu der Erklärung gemäss Art. 17 (2) PCT geführt haben.

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2008/008608

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
WO 2007064414 A	07-06-2007	EP 1969085 A1	17-09-2008
		KR 20080076993 A	20-08-2008
		US 2007125982 A1	07-06-2007
US 2006068203 A1	30-03-2006	CN 101103419 A	09-01-2008
		EP 1794764 A1	13-06-2007
		WO 2006107331 A1	12-10-2006
EP 0160856 A	13-11-1985	AR 242639 A1	30-04-1993
		AU 614864 B2	12-09-1991
		AU 3935789 A	23-11-1989
		AU 589122 B2	05-10-1989
		AU 4142585 A	14-11-1985
		BR 8502203 A	14-01-1986
		CA 1264223 A1	09-01-1990
		CA 1277551 C2	11-12-1990
		DE 3578599 D1	16-08-1990
		FI 851785 A	08-11-1985
		JP 1984792 C	25-10-1995
		JP 7005884 B	25-01-1995
		JP 61023678 A	01-02-1986
US 2004101822 A1	27-05-2004	AU 2003303290 A1	09-09-2004
		AU 2003303309 A1	10-08-2004
		CN 1742094 A	01-03-2006
		CN 1767941 A	03-05-2006
		EP 1604031 A2	14-12-2005
		EP 1572445 A2	14-09-2005
		JP 2006517985 T	03-08-2006
		JP 2006514708 T	11-05-2006
		KR 20050103186 A	27-10-2005
		KR 20050109455 A	21-11-2005
		WO 2004063387 A2	29-07-2004
		WO 2004074504 A2	02-09-2004
		US 2006183246 A1	17-08-2006