

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(10) 国際公開番号

WO 2010/002015 A1

PCT

(43) 国際公開日

2010年1月7日(07.01.2010)

(51) 国際特許分類:

C09K 11/64 (2006.01) H01L 33/00 (2010.01)
C09K 11/08 (2006.01)

(21) 国際出願番号:

PCT/JP2009/062244

(22) 国際出願日:

2009年6月30日(30.06.2009)

(25) 国際出願の言語:

日本語

(26) 国際公開の言語:

日本語

(30) 優先権データ:

特願 2008-173467 2008年7月2日(02.07.2008) JP
特願 2009-122757 2009年5月21日(21.05.2009) JP

(71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): ソニー株式会社(SONY CORPORATION) [JP/JP]; 〒1080075 東京都港区港南1丁目7番1号 Tokyo (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 秋保啓(AKIHO, Hiraku) [JP/JP]; 〒1080075 東京都港区港南1丁目7番1号 ソニー株式会社内 Tokyo (JP). 楠木常夫(KUSUNOKI, Tsuneo) [JP/JP]; 〒1080075 東京都港区港南1丁目7番1号 ソニー株式会社内 Tokyo (JP). 五十嵐崇裕(IGARASHI,

Takahiro) [JP/JP]; 〒1080075 東京都港区港南1丁目7番1号 ソニー株式会社内 Tokyo (JP). 伊澤孝昌(IZAWA, Takamasa) [JP/JP]; 〒1080075 東京都港区港南1丁目7番1号 ソニー株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 田辺 恵基, 外(TANABE, Shigemoto et al.); 〒1410032 東京都品川区大崎3丁目6番4号 トキワビル5階 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, 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, 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, PE, 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.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ

[続葉有]

(54) Title: RED PHOSPHOR, METHOD FOR PRODUCING RED PHOSPHOR, WHITE LIGHT SOURCE, ILLUMINATING DEVICE, AND LIQUID CRYSTAL DISPLAY DEVICE

(54) 発明の名称: 赤色蛍光体、赤色蛍光体の製造方法、白色光源、照明装置、および液晶表示装置

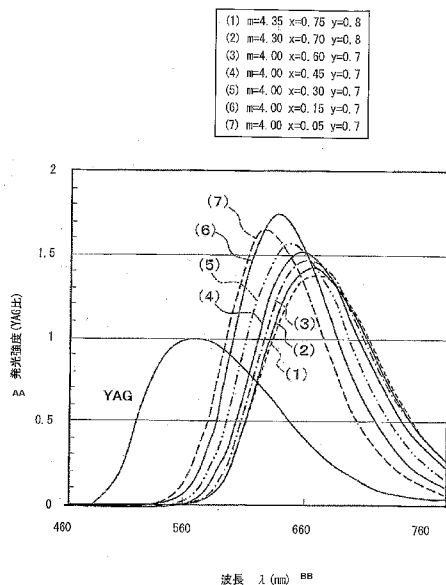


図1

AA: LUMINOUS INTENSITY (RELATIVE TO YAG)
BB: WAVELENGTH A (nm)

(57) Abstract: Disclosed is a red phosphor having high luminous intensity and high luminance, which is obtained by using a compound containing silicon, aluminum, strontium, europium, nitrogen and oxygen. By using the red phosphor, a white LED can have a wide color gamut. The red phosphor contains an element A, europium (Eu), silicon (Si), aluminum (Al), oxygen (O) and nitrogen (N) at the atomic number ratio of composition formula (1). In this connection, the element A in composition formula (1) is at least one of magnesium (Mg), calcium (Ca), strontium (Sr) and barium (Ba); and m, x, y and n in composition formula (1) satisfy $3 < m < 5$, $0 < x < 1$, $0 < y < 2$ and $0 < n < 10$. $[A_{(m-x)}Eu_x]Si_9Al_yO_nN_{[12+y-2(n-m)/3]}$ (1)

(57) 要約: シリコン、アルミニウム、ストロンチウム、ユーロピウム、窒素および酸素を有する化合物を用いることで、発光強度が強く、輝度が高い赤色蛍光体を得ることを可能にし、その赤色蛍光体を用いることで白色LEDの色域を広くすることを可能にする。元素A、ユーロピウム(Eu)、シリコン(Si)、アルミニウム(Al)、酸素(O)、および窒素(N)を、組成式(1)の原子数比で含有する赤色蛍光体。ただし、組成式(1)中の元素Aは、マグネシウム(Mg)、カルシウム(Ca)、ストロンチウム(Sr)、またはバリウム(Ba)の少なくとも1つであり、組成式(1)中のm、x、y、nは、 $3 < m < 5$ 、 $0 < x < 1$ 、 $0 < y < 2$ 、 $0 < n < 10$ なる関係を満たす。 $[A_{(m-x)}Eu_x]Si_9Al_yO_nN_{[12+y-2(n-m)/3]}$... 組成式(1)



(AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB,
GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, 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).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

赤色蛍光体、赤色蛍光体の製造方法、白色光源、照明装置、および液晶表示装置

技術分野

本発明は、赤色蛍光体とその製造方法、さらには赤色蛍光体を用いた白色光源、照明装置、および液晶表示装置に関するものである。

背景技術

照明装置や液晶表示装置のバックライトには、発光ダイオードで構成された白色光源が用いられている。このような白色光源としては、青色発光ダイオード（以下青色LEDと記す）の発光面側に、セリウムを含むイットリウムアルミニウムガーネット（以下YAG:Ceと記す）蛍光体を配置したものが知られている。

またこの他にも、青色LEDの発光面側に緑色と赤色の硫化物蛍光体を配置したものが知られている（例えば、特許文献1参照）。さらに、青紫色または青色で発光するLEDの発光面側に、CaAlSiN₃結晶中にMn、Eu等を固溶してなる蛍光物質を、他の蛍光物質と所定割合で組み合わせて配置する構成も提案されている（例えば、特許文献2参照）。

特許文献1 特開2002-60747公報

特許文献2 特許第3931239号公報

しかしながら、青色LEDの発光面側にYAG:Ce蛍光体を配置した白色光源では、YAG:Ce蛍光体の発光スペクトルに赤色成分が無いため、青みがかった白色光となり色域が狭い。このため、この白色光源を用いて構成された照明装置では純白色の照明を行うことが困難である。またこの白色光源をバックライトに用いた液晶表示装置では、色再現性の良好な表示を行うことが困難である。

また青色LEDの発光面側に緑色と赤色の硫化物蛍光体を配置した白色光源では、硫化物赤色蛍光体の加水分解があるため、輝度が経時的に劣化する。このため、この白色光源を用いて構成された照明装置および液晶表示装置では、輝度の劣化が防止された品質の高い照明や表示を行うことが困難である。

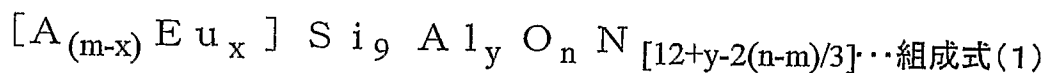
さらにCaAlSiN₃結晶中にMn、Eu等を固溶してなる蛍光物質を用いた白色光源では、2種類の蛍光物質を混合して用いる手間があった。

そこで本発明は、発光強度が強く輝度が高い赤色蛍光体およびその製造方法を提供すること、この赤色蛍光体を用いることで純白な照明が可能な白色光源および照明装置を提供すること、さらには色再現性の良好な液晶表示装置を提供することを目的とする。

発明の開示

このような目的を達成するための本発明の赤色蛍光体は、元素A、ユーロピウム(Eu)、シリコン(Si)、アルミニウム(Al)、酸素(O)、および窒素(N)を、下記組成式(1)の割合で含有する。ただし、組成式(1)中の元素Aは、マグネシウム(Mg)、カルシウム(Ca)、ストロンチウム(Sr)、またはバリウム(Ba)の少なくとも1つである。また、この組成式(1)中、m、x、y、nは、 $3 < m < 5$ 、 $0 < x < 1$ 、 $0 < y < 2$ 、 $0 < n < 10$ なる関係を満たす。

[化1]



以上のような構成の赤色蛍光体では、ストロンチウムとユーロピウムを有することにより、赤色の発光が可能となり、また上記組成とすることで、発光強度が強く、輝度が高いものとなる。この赤色蛍光体は、例えば662nmの発光ピーク波長で、YAG:Ce蛍光体のおよそ1.5倍の発光強度が得られることが確認された。

また本発明は、このような赤色蛍光体の製造方法でもある。元素A、ユーロピウム（Eu）、シリコン（Si）、およびアルミニウム（Al）が、組成式（1）の割合となるように、元素Aの炭酸化合物、窒化ユーロピウム、窒化シリコン、および窒化アルミニウムを用意する。そしてこれらと共にさらにメラミンを混合して混合物を生成し、混合物の焼成と、当該焼成によって得られた焼成物の粉碎とを行う。これにより、組成式（1）の赤色蛍光体を得ることができる。

また本発明は、上記赤色蛍光体と共に緑色蛍光体を透明樹脂に混練した混練物を青色発光ダイオード上に配置した白色光源、この白色光源を基板上に複数配置した照明装置、さらには液晶表示パネルのバックライトとしてこの白色光源を用いた液晶表示装置でもある。

本発明の白色光源では、本発明の赤色蛍光体を用いているため、赤色波長帯（例えば、640nm～770nmの波長帯）でピーク発光波長が得られ、発光強度が強く、輝度が高い。そのため、青色発光ダイオードの青色光、緑色蛍光体による緑色光、そして赤色蛍光体による赤色光からなる光の3原色による明るい白色光を得ることができる。そして、このような白色光源を用いた照明装置およびバックライトでは、明るい白発光での照明および表示が可能になる。

以上説明したように、本発明の赤色蛍光体は、赤色の波長帯に発光ピーク波長を有することから、赤色の発光が可能であり、従来の蛍光体よりも発光強度が強く、輝度が高いという利点がある。

本発明の白色光源は、赤色の波長帯に発光ピーク波長を有し、従来の赤色系の蛍光体よりも発光強度が強く、輝度が高い本発明の赤色蛍光体を用いているため、色域が広い明るい白色光を得ることができるという利点がある。

本発明の照明装置は、本発明の白色光源を用いているため、色域が広い明るい白色光を得ることができるため、輝度の高い純白色の照明を行うことが可能になる。

本発明の液晶表示装置は、液晶表示パネルを照明するバックライトに本発明の白色光源を用いているため、色域が広い明るい白色光で液晶表示パネルを照明す

ることができる。よって、液晶表示パネルの表示画面において輝度の高い純白色を得ることができ、色再現性に優れた画質の高い表示を行うことが可能になる。

図面の簡単な説明

図1は、本発明の赤色蛍光体の発光スペクトルの一例を示した図である。

図2は、本発明の赤色蛍光体における発光特性の E_u 濃度依存を示す図である。

図3は、本発明の赤色蛍光体における色度（X，Y）の E_u 濃度依存を説明する図である。

図4は、本発明の各赤色蛍光体の発光スペクトルを、最大ピーク＝1 cps/nmとして規格化した図（その1）である。

図5は、本発明の各赤色蛍光体の発光スペクトルを、最大ピーク＝1 cps/nmとして規格化した図（その2）である。

図6は、組成式（1）において、アルミニウム（Al）の原子数比 y を変化させた各赤色蛍光体の発光スペクトルである。

図7は、図6に基づいてシリコン（Si）およびアルミニウム（Al）の合計の組成比に対するアルミニウムの組成比 $[y / (9 + y)]$ を変化させた場合の各光学特性値を示す図である。

図8は、本発明の赤色蛍光体中のカルシウム含有量と発光強度の関係を示した図である。

図9は、実施例で作製した赤色蛍光体の温度特性を示す図である。

図10は、本発明の赤色蛍光体の製造方法に係る一実施の形態を示したフローチャートである。

図11は、本発明の白色光源に係る一実施の形態を示した概略断面図である。

図12は、本発明の白色光源の一例の発光スペクトルを示した図である。

図13は、本発明の照明装置に係る一実施の形態を示した概略平面図である。

図14は、本発明の液晶表示装置に係る一実施の形態を示した概略構成図である。

図 1 5 は、実施例で作製した赤色蛍光体の HAADF-STEM 像である。

図 1 6 は、実施例で作製した赤色蛍光体の各ポイントにおける TEM-EDX 分析のスペクトルである。

図 1 7 は、実施例で作製した赤色蛍光体の各ポイントにおける TEM-EDX 分析のスペクトルである。

図 1 8 は、図 1 5 の HAADF-STEM 像の拡大図である。

図 1 9 は、実施例で作製した各赤色蛍光体の XDR 分析のスペクトルである。

図 2 0 は、赤色蛍光体を作製するときのメラミン添加量と発光強度比の関係図である。

図 2 1 は、赤色蛍光体を作製するときの第 1 熱処理工程における加熱温度と発光強度比との関係図である。

図 2 2 は、赤色蛍光体を作製するときのメラミンの添加量とピーク発光強度比の関係図である。

図 2 3 は、赤色蛍光体を作製するときのメラミンの添加量と相対輝度比の関係図である。

図 2 4 は、赤色蛍光体を作製するときのメラミンの添加量と赤色蛍光体中に残る酸素量の関係図である。

図 2 5 は、赤色蛍光体を作製するときのメラミンの添加量と赤色蛍光体中に残る炭素量の関係図である。

図 2 6 は、赤色蛍光体を作製するときのメラミンの添加量と赤色蛍光体の平均粒径の関係図である。

図 2 7 は、赤色蛍光体を作製するときの窒化ユーロピウムの添加量に対する赤色蛍光体のピーク発光強度比の関係図である。

図 2 8 は、赤色蛍光体を作製するときの窒化ユーロピウムの添加量に対する赤色蛍光体の相対輝度比の関係図である。

図 2 9 は、メラミンおよび窒化アルミニウムの成分比を固定して、炭酸ストロンチウム、窒化ユーロピウムおよび窒化シリコンの各成分比を変化させた場合の

比を示した図である。

図30は、本発明の製造方法で作製された一赤色蛍光体のX線回折パターンを示した図である。

符号の説明

1…白色光源、5…照明装置、21…青色発光ダイオード、43…混練物、100…液晶表示装置、110…液晶表示パネル、120…バックライト（照明装置5）

発明を実施するための形態

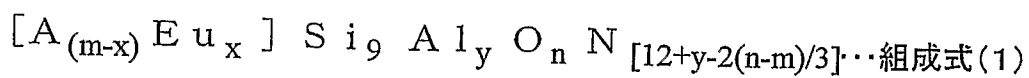
以下本発明の実施の形態を図面に基づいて、次に示す順に実施の形態を説明する。

1. 第1実施形態（赤色蛍光体の構成）
2. 第2実施形態（赤色蛍光体の製造方法）
3. 第3実施形態（白色光源の構成例）
4. 第4実施形態（照明装置の構成例）
5. 第5実施形態（液晶表示装置の構成例）

《1. 第1実施形態（赤色蛍光体の構成）》

赤色蛍光体は、元素A、ユーロピウム（Eu）、シリコン（Si）、アルミニウム（Al）、酸素（O）、および窒素（N）を、下記組成式（1）の割合で含有する化合物である。

[化2]



ただし、組成式（1）中の元素Aは、マグネシウム（Mg）、カルシウム（Ca）、ストロンチウム（Sr）、またはバリウム（Ba）の少なくとも1つであり、複数種類であっても良い。この元素Aにはストロンチウム（Sr）が好まし

く用いられる。また、元素Aとしてカルシウム (Ca) を含むことにより、後で説明するようにカルシウム (Ca) の含有量によって赤色蛍光体の発光ピーク波長の制御が可能である。

また組成式 (1) 中、 m 、 x 、 y 、 n は、 $3 < m < 5$ 、 $0 < x < 1$ 、 $0 < y < 2$ 、 $0 < n < 10$ なる関係を満たす。

尚、組成式 (1) 中の窒素 (N) の原子数比 $[12 + y - 2(n - m) / 3]$ は、組成式 (1) 内における各元素の原子数比の和が中性になるように計算されている。つまり、組成式 (1) における窒素 (N) の原子数比を α とし、組成式 (1) を構成する各元素の電荷が補償されとした場合、 $2(m - x) + 2x + 4 \times 9 + 3y - 2n - 3\alpha = 0$ となる。これにより、窒素 (N) の原子数比 $\alpha = 12 + y - 2(n - m) / 3$ と算出される。

以上のような組成式 (1) の赤色蛍光体は、斜方晶系空間点群 $Pmn21$ に属する結晶構造で構成された化合物となっている。このような結晶構造において、一部のシリコン (Si) がアルミニウム (Al) に置き換わった構成である。

以上のような構成の赤色蛍光体の特性を説明する。

<光学特性>

図1には、元素Aにストロンチウム (Sr) を用いた組成式 (1) の各赤色蛍光体 (1) ~ (7) の発光スペクトルを示す。また比較として、従来のYAG : Ce 蛍光体の発光スペクトルを示す。また下記表1には、図1の発光スペクトルから読み取られた組成式 (1) の各赤色蛍光体 (1) ~ (7) の光学特性値を示す。尚、測定は、SPEX社製FLUOROLOG 3で、450 nmの励起光を照射した際の測定値である。

Sample No.	Eu濃度 (x/m)	ピーク波長 (nm)	発光強度比(YAG基準)	発光強度比(YAG基準)	色度X	色度Y
(1)	17.228%	664	1.39	0.20	0.678	0.321
(2)	16.226%	667	1.42	0.21	0.677	0.322
(3)	15.029%	662	1.48	0.22	0.677	0.323
(4)	11.175%	659	1.51	0.26	0.671	0.328
(5)	7.514%	648	1.58	0.34	0.661	0.338
(6)	3.661%	636	1.74	0.47	0.648	0.351
(7)	1.156%	626	1.66	0.59	0.627	0.372

……表 1

この図 1 および表 1 に示されるように、組成式 (1) の範囲の赤色蛍光体 (1) ~ (7) は、従来の YAG : Ce 蛍光体と比較してピーク波長における発光強度が 1.5 倍程度高い。またピーク波長も 620 nm ~ 670 nm であって、従来の YAG : Ce 蛍光体の黄色と比較して良好な赤色発光が得られていることが分かる。

また特に、組成式 (1) において $0.5 < x < 1$ の赤色蛍光体 (1) ~ (3) では、発光スペクトルのピーク波長 660 nm 付近の特に良好な赤色発光が得られる。

一方、組成式 (1) において、 $0 < x < 0.5$ の赤色蛍光体 (4) ~ (7) であれば、発光スペクトルにおけるピーク波長の発光強度が高い発光を得ることができる。

<発光特性の Eu 濃度依存について>

図 2 (1) には、組成式 (1) における m, x の比 x/m に対する、組成式 (1) の範囲の赤色蛍光体の発光強度比を、従来の YAG : Ce 蛍光体に対する比として示す。図 2 (1) から、組成式 (1) の赤色蛍光体は、 $x/m = 3.75\%$ 付近に発光強度のピークがあり、ユーロピウム (Eu) の濃度によって発光

強度が変化することが分かる。そして、組成式(1)の赤色蛍光体は、 $x/m \leq 1.1\%$ であれば従来のYAG:Ce蛍光体に対して1.5倍の発光強度が得られるため好ましく、 $x/m = 3.75\%$ 付近で最も高い発光強度を得ることが可能であることが分かる。

尚、図2(2)には、組成式(1)における m 、 x の比 x/m に対する、組成式(1)の範囲の赤色蛍光体の相対輝度を従来のYAG:Ce蛍光体に対する比として示した。この図2(2)から、組成式(1)の赤色蛍光体は、ユーロピウム(Eu)の濃度が高い方が、発光波長のピークが高い方にシフトするために相対輝度が低くなることが分かる。

<色度のEu濃度依存について>

図3には、組成式(1)の各赤色蛍光体の色度(X , Y)を示す。各赤色蛍光体は、組成式(1)の範囲で m 、 x の比 x/m の値をそれぞれに設定してユーロピウム(Eu)の濃度を変化させたものである。図3から元素A[ストロンチウム(Sr)]に対するユーロピウム(Eu)の相対濃度が高いほど、色度(X , Y)が($+X$, $-Y$)側にシフトすることが分かる。このことから、組成式(1)の各赤色蛍光体は、元素A[ストロンチウム(Sr)]に対するユーロピウム(Eu)の濃度によって色度の制御が可能であることが分かる。

<ピーク波長のAl濃度依存について>

図4、図5には、組成式(1)の各赤色蛍光体の発光スペクトルを、最大ピーク $=1\text{ cps/nm}$ として規格化したデータを示す。図4、図5のデータは、それぞれ組成式(1)の範囲において、アルミニウム(Al)の原子数比 y を変化させた各赤色蛍光体の発光スペクトルを示している。尚、これらのデータの一部には、比較としてアルミニウム(Al)の原子数比 y が、組成式(1)の範囲である $0 < y < 2$ には含まれない化合物の発光スペクトルも示した。

これらのデータから、組成式(1)の赤色蛍光体は、アルミニウム(Al)の濃度が高いほど、発光強度のピークが長波長側にシフトする傾向が見られる。

図6には、組成式(1)の組成において、アルミニウム(Al)の原子数比 y

を変化させた各赤色蛍光体の発光スペクトルを示す。尚、これらのデータの一部には、比較としてアルミニウム (A 1) の原子数比 y が、組成式 (1) の範囲である $0 < y < 2$ には含まれない化合物の発光スペクトルも示した。また図 7 には、図 6 に基づいてシリコン (S i) およびアルミニウム (A 1) の合計の組成比に対するアルミニウムの組成比 $[y / (9 + y)]$ を変化させた場合の各光学特性値を示す。

図 7 (1) のピーク波長に示すように、組成式 (1) の材料は、アルミニウム (A 1) の組成比 $[y / (9 + y)]$ が高いほど、つまりアルミニウムの濃度が高いほど発光強度のピークが長波長側にシフトする傾向が見られる。

また図 7 (2) のピーク強度に示すように、組成式 (1) の範囲であるアルミニウムの原子数比 $0 < y < 2$ に対応する $0 < [y / (9 + y)] < 18.2$ では、ピーク強度が高く保たれていることが分かる。つまり、本発明の組成式 (1) の範囲である $y < 2$ において、ピーク強度が高く保たれているのである。尚、ピークが低いサンプルは、半値幅が大きく積分値による確認において $[y / (9 + y)] < 18.2$ では、ピーク強度が高く保たれていることが確認される。

さらに図 7 (3) の半値幅に示すように、組成式 (1) の材料は、アルミニウム (A 1) の組成比 $[y / (9 + y)]$ が高いほど、つまりアルミニウムの濃度が高いほど発光スペクトルの半値幅が広くなることが分かる。

<ピーク波長の元素 A 依存について>

図 8 には、組成式 (1) における元素 A をストロンチウム (S r) およびカルシウム (C a) とし、その割合を変化させた各赤色蛍光体における発光スペクトルを示す。この図 8 に示すように、 $C a / S r = 0$ 、すなわちカルシウム (C a) が含まれない場合の発光ピーク波長は、664 nm であった。それが、 $C a / S r = 0.27$ 、すなわちストロンチウムが 1 に対してカルシウムが 0.27 含まれる場合の発光ピーク波長は、678 nm であった。また、 $C a / S r = 0.41$ 、すなわちストロンチウムが 1 に対してカルシウムが 0.41 含まれる場合の発光ピーク波長は、679 nm であった。 $C a / S r = 0.55$ 、すなわちス

トロンチウムが1に対してカルシウムが0.55含まれる場合の発光ピーク波長は、684nmであった。

このように、組成式(1)における元素Aとして、カルシウム(Ca)が含まれている場合であれば、カルシウム(Ca)の含有量を増加させることで、上記組成式(1)で表される赤色蛍光体の発光ピーク波長を長波長側に移行させることができる。

<温度特性>

図9には、組成式(1)の赤色蛍光体(9)の温度特性を示す。また比較として、アルミニウムを含まず組成式(1)からは外れる $y=0$ の蛍光体(9')の温度特性と、従来のYAG:Ce蛍光体の温度特性も示した。

この図9に示されるように、組成式(1)の赤色蛍光体は、アルミニウムを含まない蛍光体(9')および従来のYAG:Ce蛍光体よりも、加熱条件下での発光強度維持率が高く、良好な温度特性を有していることが分かる。

これは、従来の硫化物赤色蛍光体のように加水分解が起こらないだけでなく、アルミニウム(Al)を結晶構造中に含むことによる効果と考えられる。つまり、組成式(1)で示される斜方晶系空間点群 $Pmn21$ に属する結晶構造において、シリコン(Si)にAlが置換された構成となることでc軸が伸び、ユーロピウム(Eu)間の距離が離れたことに関連していると思われる。

<その他>

尚、このような組成式(1)で示される赤色蛍光体には、炭素(C)が含有されていても良い。この炭素(C)は、赤色蛍光体の製造プロセスにおける原材料に由来する元素であり、合成の過程で除去されずにそのまま赤色蛍光体を構成する合成材料中に残されても良い。炭素(C)が含まれることによって、生成過程での余剰な酸素(O)を取り除き、酸素量を調整する機能を果たす。

<赤色蛍光体の変形例1>

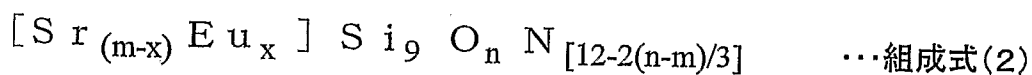
また、赤色蛍光体は、組成式(1)におけるユーロピウム(Eu)に換えて、セレン(Ce)を用いても良い。この場合、赤色蛍光体中には、セレン(Ce)

と共に、その電荷補償原子としてリチウム (Li)、ナトリウム (Na)、カリウム (K) が含有されることとする。

<赤色蛍光体の変形例 2>

以上の第 1 実施形態においては、赤色蛍光体としてアルミニウムを含有する組成式 (1) の化合物を説明した。しかしながら、赤色蛍光体の変形例としては、アルミニウムを含有しない、シリコン、ストロンチウム、ユーロピウム、窒素および酸素からなる化合物も例示される。この化合物は、下記組成式 (2) で表される。

[化 3]



ただし組成式 (2) 中、式中、 x 、 m 、 n は、 $0.5 < x < 1.0$ 、 $3.5 < m < 4.0$ 、 $0 < n < 13.0$ なる関係を満たす。

尚、組成式 (2) 中の窒素 (N) の原子数比 $[12 + y - 2(n - m) / 3]$ も、組成式 (2) 内における各元素の原子数比の和が中性になるように計算されている。

上記組成式 (2) で表される赤色蛍光体にカルシウム (Ca) が含まれていてもよい。ストロンチウムに対するカルシウムの含有量を増加させることで、上記組成式 (2) で表される赤色蛍光体の発光ピーク波長を長波長側に移行させることができる。

また、上記組成式 (2) で表される赤色蛍光体に炭素が含まれていてもよい。炭素が含まれることによって、生成過程での余剰な酸素 (O) を取り除き、酸素量を調整する機能を果たす。

上記組成式 (2) で表される赤色蛍光体は、上記組成式 (1) で表される赤色蛍光体と同様な効果が得られる。それとともに、構成元素が少ないため取り扱いが容易になる。また結晶構造が単純になるため、欠陥が少なくなるという利点がある。ただし、図 9 を用いて説明したように、組成式 (1) の赤色蛍光体の方が

耐熱性に優れている。

《 2. 第 2 実施形態（赤色蛍光体の製造方法） 》

次に、上記組成式（1）の赤色蛍光体の製造方法に係る一実施の形態を、図 4 のフローチャートによって以下に説明する。

図 3 に示すように、最初に「原料混合工程」 S 1 を行う。この原料混合工程では、まず、組成式（1）を構成する元素を含む原料化合物とともに、メラミン（ $C_3H_6N_6$ ）を原料として用いて混合するところが特徴的である。

組成式（1）を構成する元素を含む原料化合物としては、元素 A の炭酸化合物 [例えば炭酸ストロンチウム ($SrCO_3$)]、窒化ユーロピウム (EuN)、窒化シリコン (Si_3N_4)、窒化アルミニウム (AlN) を用意する。そして、用意した各原料化合物に含まれる組成式（1）の元素が、組成式（1）の原子数比となるように、各化合物を所定のモル比に秤量する。秤量した各化合物を混合して混合物を生成する。

またメラミンは、フラックスとして、炭酸ストロンチウム、窒化ユーロピウム、窒化シリコンおよび窒化アルミニウム (AlN) の全モル数の合計に対して所定割合で添加する。

混合物の生成は、例えば、窒素雰囲気中のグローボックス内で、メノウ乳鉢内で混合する。

次に、「第 1 熱処理工程」 S 2 を行う。この第 1 熱処理工程では、上記混合物を焼成して、赤色蛍光体の前駆体となる第 1 焼成物を生成する。例えば、窒化ホウ素製坩堝内に上記混合物を入れて、水素 (H_2) 雰囲気中で熱処理を行う。この第 1 熱処理工程では、例えば、熱処理温度を $1400^{\circ}C$ に設定し、2 時間の熱処理を行う。この熱処理温度、熱処理時間は、上記混合物を焼成できる範囲で、適宜変更することができる。

上記第 1 熱処理工程では、融点が $250^{\circ}C$ 以下であるメラミンが熱分解される。この熱分解された炭素 (C)、水素 (H) が炭酸ストロンチウムに含まれる一部の酸素 (O) と結合して、炭酸ガス (CO もしくは CO_2) や H_2O となり、そ

の炭酸ガスやH₂Oは気化されるので、上記第1焼成物から取り除かれる。また、分解されたメラミンに含まれる窒素（N）によって、還元と窒化とが促される。

次に、「第1粉碎工程」S3を行う。この第1粉碎工程では、上記第1焼成物を粉碎して第1粉末を生成する。例えば、窒素雰囲気中のグローボックス内で、メノウ乳鉢を用いて、上記第1焼成物を粉碎し、その後、例えば#100メッシュ（目開きが約200 μ m）に通して、平均粒径が3 μ mもしくはそれ以下の粒径の上記第1焼成物を得る。これにより、次の工程の第2熱処理で生成される第2焼成物に成分むらを生じにくくさせる。

次に、「第2熱処理工程」S4を行う。この第2熱処理工程では、上記第1粉末を熱処理して第2焼成物を生成する。例えば、窒化ホウ素製坩堝内に上記第1粉末を入れて、窒素（N₂）雰囲気中で熱処理を行う。この第2熱処理工程では、例えば、上記窒素雰囲気を例えば0.85MPaに加圧し、熱処理温度を1800 $^{\circ}$ Cに設定し、2時間の熱処理を行った。この熱処理温度、熱処理時間は、上記第1粉末を焼成できる範囲で、適宜変更することができる。

このような第2熱処理工程を行うことによって、前記組成式（1）で表される赤色蛍光体を得られる。この第2熱処理工程によって得られた第2焼成物（赤色蛍光体）は、組成式（1）で表される均質なものが得られる。

次に、「第2粉碎工程」S5を行う。この第2粉碎工程では、上記第2焼成物を粉碎して第2粉末を生成する。例えば、窒素雰囲気中のグローボックス内で、メノウ乳鉢を用いて粉碎し、例えば#420メッシュ（目開きが約26 μ m）を用いて、上記第2焼成物を、例えば平均粒径が3.5 μ m程度になるまで粉碎する。

上記赤色蛍光体の製造方法により、微粉末（例えば平均粒径が3.5 μ m程度）の赤色蛍光体を得られる。このように赤色蛍光体の粉末化することにより、例えば緑色蛍光体の粉末とともに透明樹脂に混練したときに、均一に混練されるようになる。

以上により、「原料混合工程」S1において混合した原子数比で各元素を含有

する組成式（１）の赤色蛍光体を得ることができる。

＜赤色蛍光体の製造方法の変形例＞

赤色蛍光体としてアルミニウム（Ａ１）を含有をしない上記組成式（２）の化合物の製造方法にも、図４のフローチャートによって説明した製造方法を適用することができる。

この製造方法（第２製造方法）では、炭酸ストロンチウムと、窒化シリコンと、窒化ユーロピウムと、メラミンを混合して混合物を焼成することで、赤色蛍光体の前駆体を生成する。このとき、メラミンが分解され、メラミンに含まれる炭素、水素が炭酸ストロンチウム中の酸素と結合して、例えば炭酸ガスや H_2O となり、炭酸ストロンチウム中より一部の酸素が取り除かれる。

さらに、第１焼成物を粉砕して第１粉末を生成することから、次の工程の第２熱処理工程で生成される第２焼成物に成分むらを生じにくくさせる。

その後第１粉末を熱処理して第２焼成物を生成することから、第２熱処理工程によって得られた第２焼成物（赤色蛍光体）は、組成式（２）で表される均質なものが得られる。

さらに、この第２焼成物を粉砕して第２粉末を生成する。このように赤色蛍光体を粉末化することにより、例えば緑色蛍光体の粉末とともに透明樹脂に混練したときに、均一に混練されるようになる。

上記工程を経て得られた赤色蛍光体は、以降の実施例で示すように、赤色波長帯（例えば、 $640\text{ nm} \sim 770\text{ nm}$ の波長帯）にピーク発光波長がある。

このように、原料に窒化アルミニウムを含まないと、構成元素が少ないため、取り扱いが容易になる。また結晶構造が単純になるため、欠陥が少なくなるという利点がある。

＜３．第３実施形態（白色光源の構成例）＞

次に、本発明の白色光源に係る一実施の形態を、図１１の概略断面図によって説明する。

図１１に示すように、白色光源１は、素子基板１１上に形成されたパッド部１

2上に青色発光ダイオード21を有している。上記素子基板11には上記青色発光ダイオード21を駆動するための電力を供給する電極13、14が絶縁性を保って形成され、それぞれの電極13、14は、例えばリード線15、16によって、上記青色発光ダイオード21に接続されている。

また、上記青色発光ダイオード21の周囲は、例えば樹脂層31が設けられ、その樹脂層31には上記青色発光ダイオード21上を開口する開口部32が形成されている。この開口部32は、上記青色発光ダイオード21の発光方向に開口面積が広がる傾斜面に形成されていて、その傾斜面には反射膜33が形成されている。つまり、すり鉢状の開口部32を有する樹脂層31において、開口部32の壁面が反射膜33でおおわれ、園開口部32の底面に青色発光ダイオード21が配置された状態となっている。そして、上記開口部32内に、赤色蛍光体と緑色蛍光体とを透明樹脂に混練した混練物43が、青色発光ダイオード21を覆おう状態で埋め込まれて白色光源1が構成されている。

上記赤色蛍光体には、上述した本発明の組成式(1)の赤色蛍光体を用いるところが特徴的である。

このような赤色蛍光体の一例として、組成式(1)中の元素Aをストロンチウム(Sr)とし、 $m=4.1$ 、 $x=0.7$ 、 $y=0.7$ 、 $n=0.7$ とした、組成式 $(\text{Sr}_{3.4}\text{Eu}_{0.7})\text{Si}_9\text{Al}_{0.7}\text{O}_{0.7}\text{N}_{15}$ で表される化合物を用いた。

上記緑色蛍光体には、一例として、組成式 $(\text{Sr}, \text{Ba})_2\text{SiO}_4:\text{Eu}$ で表される化合物を用いた。

そして、0.015gの上記赤色蛍光体と0.45gの上記緑色蛍光体をシリコーン樹脂に混練して、上記混練物43を作製した。上記シリコーン樹脂には、一例として、信越化学製のシリコーンKJR637(商品名)(屈折率1.51)を用いた。上記のようにして作製した白色光源1の特性は、以下のようになった。

青色発光ダイオード21に3.235Vを印加し、そのときの電流値は40mAであり、電流密度は327mA/mm²であった。その光学特性は、以下のよ

うになった。放射束 (Radiant Flux) が 31.1 mW、WPE が 0.240、Lms が 6.8、lm/W が 52.7、色度 (x) が 0.2639、色度 (y) が 0.2639 であった。上記 WPE はエネルギー効率、Lms はルーメン・光束、lm/W は発光効率である。

また発光スペクトルは、図 12 に示すように、青色 (450 nm)、緑色 (534 nm)、赤色 (662 nm) に波長のピークを有することがわかった。

また前記説明したように、本発明の赤色蛍光体は、赤色波長帯 (例えば、640 nm ~ 770 nm の波長帯) でピーク発光波長が得られ、発光強度が強く、輝度が高い。そのため、青色 LED の青色光、緑色蛍光体による緑色光、そして赤色蛍光体による赤色光からなる光の 3 原色による明るい白色光を得ることができる。

よって、上記白色光源 1 は、色域が広い明るい白色光を得ることができるという利点がある。

《 4. 第 4 実施形態 (照明装置の構成例) 》

次に、本発明の照明装置に係る一実施の形態を、図 13 の概略平面図によって説明する。

図 13 に示すように、照明装置 5 は、照明基板 51 上に前記図 11 を用いて説明した白色光源 1 が複数配置されている。その配置例は、例えば、(1) 図に示すように、正方格子配列としてもよく、または (2) 図に示すように、1 行おきに例えば 1/2 ピッチずつずらした配列としてもよい。また、ずらすピッチは、1/2 に限らず、1/3 ピッチ、1/4 ピッチであってもよい。さらには、1 行ごとに、もしくは複数行 (例えば 2 行) ごとにずらしてもよい。

もしくは、図示はしていないが、1 列おきに例えば 1/2 ピッチずつずらした配列としてもよい。また、ずらすピッチは、1/2 に限らず、1/3 ピッチ、1/4 ピッチであってもよい。さらには、1 行ごとに、もしくは複数行 (例えば 2 行) ごとにずらしてもよい。

すなわち、上記白色光源 1 のずらし方は、限定されない。

上記白色光源 1 は、前記図 1 1 を参照して説明したのと同様な構成を有するものである。すなわち、上記白色光源 1 は、青色発光ダイオード 2 1 上に、赤色蛍光体と緑色蛍光体を透明樹脂に混練した混練物 4 3 を有するものである。

上記赤色蛍光体には、上述した本発明の組成式 (1) の赤色蛍光体を用いるところが特徴的である。

また、上記照明装置 5 は、点発光とほぼ同等の白色光源 1 が照明基板 5 1 上に、縦横に複数配置されていることから、面発光と同等になるので、例えば液晶表示装置のバックライトとして用いることができる。また、通常の照明装置、撮影用の照明装置、工事現場用の照明装置等、種々の用途の照明装置に用いることができる。

上記照明装置 5 は、本発明の白色光源 1 を用いているため、色域が広い明るい白色光を得ることができる。例えば、液晶表示装置のバックライトに用いた場合に、表示画面において輝度の高い純白色を得ることができ、表示画面の品質の向上が図れるという利点がある。

《 5. 第 5 実施形態（液晶表示装置の構成例） 》

次に、本発明の液晶表示装置に係る一実施の形態を、図 1 4 の概略構成図によって説明する。

図 1 4 に示すように、液晶表示装置 1 0 0 は、透過表示部を有する液晶表示パネル 1 1 0 と、その液晶表示パネル 1 1 0 を裏面（表示面とは反対側に面）側に備えたバックライト 1 2 0 とを有する。このバックライト 1 2 0 には、前記図 1 3 を参照して説明した照明装置 5 を用いる。

上記液晶表示装置 1 0 0 では、バックライト 1 2 0 に本発明の照明装置 5 を用いるため、光の 3 原色による色域が広い明るい白色光で、液晶表示パネル 1 1 0 を照明することができる。よって、液晶表示パネル 1 1 0 の表示画面において輝度の高い純白色を得ることができ、色再現性が良好で表示画面の品質の向上が図れるという利点がある。

実施例

<実施例 1>

次に、本発明の実施例 1 として上記組成式 (1) の赤色蛍光体と、比較例として上記組成式 (1) からは外れる化合物 (蛍光体) とを、図 10 のフローチャートを用いて説明した手順に従って以下のように合成した。

まず、「原料混合工程」S1を行った。ここでは、炭酸ストロンチウム (SrCO_3)、窒化ユーロピウム (EuN)、窒化シリコン (Si_3N_4)、窒化アルミニウム (AlN)、およびメラミン ($\text{C}_3\text{H}_6\text{N}_6$) を用意した。用意した各原料化合物を、下記表 2 に示すモル比に秤量し、窒素雰囲気中のグローボックス内で、メノウ乳鉢内で混合した。尚、メラミンのモル比は、他の化合物の全モル数の合計に対しての割合である。

Sample No.	SrCO_3 (mol%)	EuN (mol%)	Si_3N_4 (mol%)	AlN (mol%)	メラミン (mol%)	組成
(1)	44.2%	9.2%	36.8%	9.8%	60%	$m=4.35, x=0.75, y=0.8$
(2)	44.4%	8.6%	37%	9.9%	60%	$m=4.30, x=0.70, y=0.8$
(3)	44/1%	7.8%	39%	9.1%	60%	$m=4.00, x=0.60, y=0.7$
(4)	46.1%	5.8%	39%	9.1%	60%	$m=4.00, x=0.45, y=0.7$
(5)	48%	3.9%	39%	9.1%	60%	$m=4.00, x=0.30, y=0.7$
(6)	50%	1.9%	39%	9.1%	50%	$m=4.00, x=0.15, y=0.7$
(7)	51.3%	0.6%	39%	9.1%	50%	$m=4.00, x=0.05, y=0.7$

……表 2

次に、「第 1 熱処理工程」S2を行った。ここでは、窒化ホウ素製坩堝内に上記混合物を入れて、水素 (H_2) 雰囲気中で 1400°C 、2 時間の熱処理を行った。

次に、「第 1 粉碎工程」S3を行った。ここでは、窒素雰囲気中のグローボックス内で、メノウ乳鉢を用いて、上記第 1 焼成物を粉碎し、その後、#100 メッシュ (目開きが約 $200\ \mu\text{m}$) に通して、平均粒径が $3\ \mu\text{m}$ 以下の粒径の第 1

焼成物を得た。

次に、「第2熱処理工程」S4を行った。ここでは、第1焼成物の粉末を窒化ホウ素製坩堝内に入れて、0.85MPaの窒素(N₂)雰囲気中で1800℃、2時間の熱処理を行った。これにより、第2焼成物を得た。

次に、「第2粉砕工程」S5を行う。ここでは、窒素雰囲気中のグローボックス内において、メノウ乳鉢を用いて上記第2焼成物を粉砕した。#420メッシュ(目開きが約26μm)を用いて、平均粒径が3.5μm程度になるまで粉砕した。

上記赤色蛍光体の製造方法により、微粉末(例えば平均粒径が3.5μm程度)の赤色蛍光体を得た。

以上のようにして作製した赤色蛍光体をICPにて分析した。この結果、原材料化合物中に含まれる組成式(1)を構成する元素は、ほぼそのままのモル比(原子週比)で赤色蛍光体中に含有されることが確認された。そして上記表2に合わせて示したように、組成式(1)の赤色蛍光体を得られたことが確認された。尚、実施例1で作製したサンプルNo.(1)～(7)の赤色蛍光体は、表1および図1に示した赤色蛍光体(1)～(7)である。これら組成式(1)の範囲の赤色蛍光体(1)～(7)が、従来のYAG:Ce蛍光体と比較してピーク波長においての発光強度が1.5倍程度高く、良好な赤色発光が得られていることは、図1を用いて説明した前述の通りである。

<実施例2>

実施例1で説明したと同様の手順で、組成式(1)の一例であるSr_{3.4}Eu_{0.7}Si₉Al_{10.7}O_{70.7}N₁₀(m=4.1, x=0.7, y=0.7, n=0.7)の赤色蛍光体を作製した。尚、実施例2における窒素の組成比10は、組成式(1) $[12 + y - 2(n - m) / 3]$ に当てはまらないが、これはICP分析が酸素濃度および窒素濃度の測定値の信頼性が低いことに起因している。一方、ICP分析はSr, Eu, Si, Alの測定信頼性は非常に高く、またSr, Eu, Si, Alの値に基づいた電荷補償から考えると組成式(1)の組成になる

ことことに疑問はない。

作製した赤色蛍光体について、TEM-EDX分析を行った。図15には赤色蛍光体の粒子内における分析ポイントを示すHAADF-STEM像を示す。この図15に示すように、同一粒子内においてポイント1～4、別の粒子内でポイント5、6の6ヶ所のTEM-EDX分析を行った。図16および図17には、この結果を示す。

図15のHAADF-STEM像のコントラストが一様なこと、図16に示すように同一粒子内のポイント1～4でEDXプロファイルに大きな違いが見られないことから、粒子内にアルミニウム(A1)などの元素組成の偏りはなく、ほぼ一様であることが確認された。また図17に示すように、別の粒子でもEDXプロファイルに大きな違いがなく、ほぼ同様の組成比の粒子ができていることが確認された。尚、銅(Cu)の検出は、TEM試料台によるものである。

また図18には、図15のHAADF-STEM像の拡大図を示す。この図から、粒子内においては規則正しい格子模様が観察され、上記製造方法によって単結晶構造の赤色蛍光体を得られていることが確認された。また、作製した赤色蛍光体は、リートベルト解析でたてた斜方晶系空間点群 $Pmn21$ のモデルと良好な一致を示した。

<実施例3>

実施例1で説明したと同様の手順で、組成式(1)の範囲でアルミニウム(A1)の含有量(原子数比 y)を変化させた各赤色蛍光体を作製した。アルミニウム(A1)以外の元素の原子数比は、 $(y+9)/m=2.425$ 、 $x/m=3.75\%$ とした。尚、比較としてアルミニウム(A1)を含有しない赤色蛍光体(原子数比 $y=0$)も作製した。

作製した各赤色蛍光体をXDR分析した結果を図19に示す。図19に示すように、アルミニウム(A1)の含有量(原子数比 y)を $y=0$ から増加させていくに従い、各回折角(2θ)に現れるピーク位置が、各ピーク位置毎に一方向にシフトすることが分かる。例えば、回折角 $2\theta=30.5$ 付近のピークはアルミ

ニウム (A 1) の含有量 (原子数比 y) が増加するほど回折角 (2θ) が大きくなる方向にシフトしている。これに対して回折角 $2\theta = 35.5$ 付近のピークはアルミニウム (A 1) の含有量 (原子数比 y) が増加するほど回折角 (2θ) が小さくなる方向にシフトしている。つまり、ルミニウム (A 1) の含有量 (原子数比 y) が増加するほど、斜方晶系空間点群 $Pmn21$ における a 軸および c 軸は伸び、 b 軸が縮むことが分かる。なお、この傾向は、組成式 (1) の範囲で、 m , x , n の原子数比を変えた場合でも同様に確認された。

これにより、赤色蛍光体内に存在するアルミニウム (A 1) が、上述した単結晶内の一部を構成するようにシリコン (Si) と置き換わったため、単結晶における格子間隔が変化していることが分かる。つまり、上述した単結晶からなる赤色蛍光体内には、単結晶の一部を構成するようにアルミニウム (A 1) が存在していることが確認された。また、作製した赤色蛍光体は、リートベルト解析で得た斜方晶系空間点群 $Pmn21$ のモデルと良好な一致を示した。

<実施例 4>

実施例 1 で説明したと同様の手順において、メラミンの添加量を変化させて組成式 (1) 各赤色蛍光体を作製した。

作製した各赤色蛍光体のメラミン添加量に対する発光強度を、YAG : Ce 蛍光体に対する発光強度比として図 20 に示す。図 20 から明らかなように赤色蛍光体の作製時に用いるメラミンの添加量によって、得られた赤色蛍光体の発光強度が変化する。そして、発光強度が最も高くなるようなメラミン添加量の最適値は、メラミン以外の原料割合に応じた値となるため、この原料割合、すなわち合成したい赤色蛍光体の組成比 (1) 毎に最適値を選択することが重要である。

<実施例 5>

実施例 1 で説明した手順における第 1 熱処理工程における加熱温度を変化させたこと以外は、実施例 1 と同様の手順で組成式 (1) の範囲の赤色蛍光体を作製した。図 21 には、作製した赤色蛍光体の発光強度を、YAG : Ce 蛍光体の発光強度の比として示す。

図 2 1 から、赤色蛍光体の発光強度は、第 1 熱処理工程の加熱温度によって変化することが分かる。このため、組成式(1)の赤色蛍光体の作製においては、第 1 熱処理工程の加熱温度を最適化することが好ましく、およそ 1 3 0 0 °C 程度が良好と確認された。

<実施例 6>

実施例 1 で説明した手順において、原料化合物の混合モル比を下記表 3 のようにした以外は、実施例 1 と同様にして赤色蛍光体を作製した。これらのサンプルのうち、S i 9 - 1 0 以外では、組成式 (1) の範囲の赤色蛍光体を得ることができた。S i 9 - 1 0 は、組成式 (1) の $y = 0$ であってアルミニウム(A 1)を含有しない赤色蛍光体を得られた。

サンプル No.	SrCO ₃ (mol%)	EuN (mol%)	Si ₃ N ₄ (mol%)	AlN (mol%)	メラミンの 添加量 (mol%)
Si9-01	42.7	11.8	35.5	10.0	60
Si9-02	43.2	10.8	36.0	10.0	60
Si9-03	43.8	9.9	36.5	10.0	60
Si9-04	44.1	9.7	36.7	10.0	60
Si9-05	44.4	9.2	37.0	10.0	60
Si9-06	45.0	7.5	37.5	10.0	60
Si9-13	40.0	10.0	40.0	10.0	60
Si9-14	41.4	9.7	38.9	10.0	60
Si9-15	42.8	9.4	37.8	10.0	60
Si9-16	44.1	9.2	36.7	10.0	60
Si9-17	45.3	8.9	35.8	10.0	60
Si9-18	46.4	8.7	34.9	10.0	60
Si9-43	45.0	8.8	37.5	8.7	45
Si9-44	45.0	8.8	37.5	8.7	50
Si9-45	45.0	8.8	37.5	8.7	55
Si9-46	45.0	8.8	37.5	8.7	60
Si9-47	45.0	8.8	37.5	8.7	65
Si9-48	45.0	8.8	37.5	8.7	70
Si9-10	47.9	10.0	42.1	(0)	60
Si9-11	44.9	9.4	39.5	6.2	60
Si9-12	43.1	9.0	35.9	12.0	60

……表 3

以上のようにして得られた各赤色蛍光体について、発光スペクトルを測定した。

測定は、分光光度計を用い、450 nmの波長で励起し、波長460 nm～780 nmまで行った。その結果を下記表4に示す。

サンプル No.	ピーク波長 (nm)	ピーク 発光強度比	色度 (X)	色度 (Y)	相対 輝度比
Si9-01	673	1.23	0.685	0.314	0.89
Si9-02	672	1.28	0.683	0.317	1.00
Si9-03	666	1.34	0.680	0.319	1.16
Si9-04	664	1.38	0.680	0.319	1.20
Si9-05	667	1.42	0.679	0.320	1.27
Si9-06	660	1.27	0.676	0.324	1.26
Si9-13	665	0.85	0.679	0.320	0.73
Si9-14	667	1.22	0.683	0.316	0.97
Si9-15	667	1.35	0.682	0.317	1.11
Si9-16	672	1.33	0.680	0.318	1.00
Si9-17	665	1.31	0.678	0.321	1.13
Si9-18	666	1.22	0.677	0.322	1.12
Si9-43	673	0.98	0.671	0.327	0.93
Si9-44	673	1.04	0.677	0.321	0.90
Si9-45	673	1.09	0.678	0.320	0.94
Si9-46	662	1.25	0.674	0.324	1.27
Si9-47	662	1.34	0.678	0.321	1.31
Si9-48	658	0.35	0.671	0.327	0.39
Si9-10	664	1.15	0.679	0.320	0.96
Si9-11	673	1.26	0.681	0.318	1.01
Si9-12	666	1.16	0.680	0.319	0.99

発光強度比は、(YAG : Ce) のピーク発光強度を基準とした時の相対値である。
 (YAG : Ce) のピーク発光強度は、 $61 \times 10^5 \text{ cps}$ に相当する。
 相対輝度比は、(CaS : Eu) の輝度を基準とした時の相対値である。
 (YAG : Ce) の輝度比15%に相当する。

……表 4

尚下記表 5 には、比較する標準蛍光体として、YAG : Ce 蛍光体および CaS : Eu 赤色硫化物蛍光体の測定結果を示す。

標準 サンプル	ピーク 波長 (nm)	ピーク 発光強度比	色度 (X)	色度 (Y)	相対 輝度比	
YAG : Ce	566	61	0.465	0.517	5.50	(緑色の標準)
CaS : Eu	656	80	0.702	0.296	1.00	(赤色硫化物 の標準)

……表 5

上記表 3 および表 4 に示すように、赤色蛍光体のピーク発光強度比が 1.0 以上となるのは、サンプル Si9-01 ~ Si9-06、Si9-10 ~ Si9-12 および Si9-14 ~ Si9-18、ならびに Si9-44 ~ Si9-47 である。

また、CaS : Eu 赤色硫化物蛍光体の輝度を基準とした相対輝度比（以下、相対輝度比という）が 1.0 以上となるのは、サンプル Si9-02 ~ Si9-06、Si9-Si9-11 および Si9-15 ~ Si9-18、ならびに Si9-Si9-46、Si9-Si9-47 である。

したがって、上記赤色蛍光体のピーク発光強度比が 1.0 以上、かつ相対輝度比が 1.0 以上となる赤色蛍光体を生成するには、各原料を以下のような成分比にする必要がある。

例えば、上記炭酸ストロンチウム 42.8 mol % 以上 46.4 mol % 以下とする。

上記窒化ユーロピウムは 7.5 mol % 以上 10.8 mol % 以下とする。

上記窒化シリコンは 36.0 mol % 以上 37.8 mol % 以下とする。

上記窒化アルミニウムは 8.7 mol % 以上 10.0 mol % 以下とする。

かつ上記炭酸ストロンチウム、窒化シリコン、窒化ユーロピウム、窒化アルミニウムおよびメラミンを合わせた全mol数に対して、上記メラミンの添加量は60mol%以上65mol%以下とする。

特に、上記製造方法では、メラミンの成分比が重要となってくる。前述したように、融点が250℃以下であるメラミンは、上記第1熱処理工程で熱分解される。メラミンが熱分解されて生成された炭素(C)、水素(H)が炭酸ストロンチウムに含まれる酸素(O)と結合して、炭酸ガス(COもしくはCO₂)やH₂O、となる。そして、その炭酸ガスやH₂Oは気化されて、上記第1焼成物から取り除かれる。したがって、メラミンは少なすぎても、多すぎてもよくない。

例えば、上記表3、表4に示したSi-43～Si-48の結果を、図22、図23に示した。図23は、メラミンの添加量に対するピーク発光強度を示したもので、図23は、メラミンの添加量に対する輝度を示したものである。

図23から明らかなように、ピーク発光強度比が1.0以上となるのは、メラミンの添加量が45mol%以上67mol%以下のときである。

また、図23から明らかなように、相対輝度比が1.0以上となるのは、メラミンの添加量が56mol%以上68mol%以下のときである。

したがって、Si-43～Si-48に示した原料割合においては、メラミンの添加量は56mol%以上68mol%以下とすることが好ましい。尚、図22、図23から、メラミンの添加量を推察すると、上記範囲より少ない方向および多い方向に±3mol%程度拡大することも可能であると考えられる。

次に、メラミンの添加量と赤色蛍光体中に残る酸素量の関係を図24に、またメラミンの添加量と赤色蛍光体中に残る炭素量の関係を図25に示した。

図24に示すように、メラミンの添加量を変化させることによって、赤色蛍光体中の酸素の含有量も変化する。

特に、メラミンを55mol%以上添加していくと、赤色蛍光体中の酸素が低減される。これは、メラミンが熱分解してできた炭素や水素と、炭酸ストロンチウム中の酸素とが結合して、炭酸ガス(CO、CO₂等)、H₂O等になって、

取り除かれるためである。

しかしながら、メラミンを 70 mol % というような高い成分比にすると、第 1 熱処理工程でメラミンが熱分解された炭素が残留しすぎて、炭素量が多くなりすぎる。例えば、赤色蛍光体中に残留する炭素量が 0.1 wt % であると、ピーク発光強度比は、0.35 となり、相対輝度比が 0.39 となる。このように、残留炭素は、発光強度、輝度を大幅に低下させる一因になっていると考えられる。

したがって、上記説明したように、メラミンの添加量は、より好ましくは 60 mol % 以上 65 mol % 以下とすることである。

また、赤色蛍光体の粒径は、メラミンの添加量に依存する。図 26 に示すように、メラミンの添加量を増大させていくと、赤色蛍光体の粒径が小さくなる方向に変化する。例えばメラミンを 45 mol % 添加した場合は、赤色蛍光体の平均粒径がおおよそ 5 μm であり、メラミンを 60 mol % 添加した場合は、赤色蛍光体の平均粒径がおおよそ 3.7 μm となった。また、メラミンを 65 mol % 添加した場合には、赤色蛍光体の平均粒径がおおよそ 3.5 μm となった。

このように微粉末の赤色蛍光体を得やすく製造するうえでも、メラミンの添加量は重要となっている。

次に、窒化ユーロピウムの添加量について調べた。上記表 3、表 4 に基づいて、窒化ユーロピウムの添加量に対する赤色蛍光体のピーク発光強度の関係を図 27 に、窒化ユーロピウムの添加量に対する赤色蛍光体の輝度の関係を図 28 に示した。

図 27 から明らかなように、ピーク発光強度比が 1.0 以上となるのは、窒化ユーロピウムの添加量がおおよそ 7.0 mol % 以上 12.0 mol % 以下のときには、ピーク発光強度比が 1.0 以上となることが確認された。

また、図 28 から明らかなように、相対輝度比が 1.0 以上となるのは、窒化ユーロピウムの添加量が 7.0 mol % 以上 11.0 mol % 以下のときである。

しかしながら、表 3、表 4 からわかるように、サンプル Si9-13 のように窒化ユーロピウムの添加量が 10.0 mol % であってもピーク発光強度比が 0.

85となることがある。これは、炭酸ストロンチウムの添加量が少ないためと考えられる。このように、他の原料の添加量によっても、窒化ユーロピウムの添加量は左右されることがある。この点を考慮すると、窒化ユーロピウムの添加量は、7.0mol%以上12.5mol%以下とすることがより好ましい。

次に、表3、表4中において、メラミンの成分比を60mol%、窒化アルミニウムの成分比を10.0mol%に固定して、炭酸ストロンチウムの成分比、窒化ユーロピウムの成分比、および窒化シリコンの成分比を変化させた場合のピーク発光強度分布を、図29に示す。尚、図中にはサンプルNo.とピーク発光強度値を示した。

図29に示すように、サンプルSi9-01~Si9-06、サンプルSi9-15~Si9-18は、ピーク発光強度比が1.2以上となっており、特に、サンプルSi9-03~Si9-05およびサンプルSi9-15~Si9-17はピーク発光強度比が1.3以上と、極めて優れた値となっていることがわかった。

ここで、発光ピーク波長が662nmのサンプルSi9-47の赤色蛍光体について、(株)リガク製粉末X線回折計を用いて、Cu-K α 線のX線回折パターンを調べた。その結果を図30に示す。すなわち、蛍光体の結晶構造を示す。このエックス線解析パターンからも、上記製造方法で得られた赤色蛍光体が、斜方晶系空間点群Pmn21であることが確認された。

<実施例7>

次に、実施例1で説明した手順において、原料化合物として、さらに窒化カルシウム(Ca₃N₂)を用い、原料化合物の混合モル比を下記表6のようにした以外は、実施例1と同様にして赤色蛍光体を作製した。

(Si9)	Ca ₃ N ₂ (mol%)	SrCO ₃ (mol%)	EuN (mol%)	Si ₃ N ₄ (mol%)	AlN (mol%)	メラミン の添加量 (mol%)
Si9-Ca01	0	44.2	9.2	44.2	9.8	60
Si9-Ca02	4.5	34.7	10.0	40.1	10.7	60
Si9-Ca03	7.0	29.4	10.5	42.0	11.2	60
Si9-Ca04	9.8	23.5	11.0	44.0	11.7	60

……表 6

以上のようにして得られた各赤色蛍光体について、発光スペクトルを測定した。測定は、分光光度計を用い、450 nmの波長で励起し、波長460 nm～780 nmまで行った。その結果を下記表 7 に示す。

(Si9)	ピーク波長 (nm)	ピーク 発光強度比	色度 (X)	色度 (Y)	相対輝度比
Si9-Ca01	664	1.31	0.680	0.320	1.12
Si9-Ca02	678	1.30	0.685	0.315	0.88
Si9-Ca03	679	1.24	0.688	0.312	0.73
Si9-Ca04	684	1.18	0.690	0.310	0.63

……表 7

上記表 6 および表 7 に示すように、窒化カルシウムの添加量を多くしていくと、ピーク発光波長が長波長側に移行することが確認された。例えば、窒化カルシウムを添加しない場合には、ピーク発光波長は664 nmであった。そして、窒化カルシウムを4.5 mol%添加するとピーク発光波長が678 nmとなり、窒化カルシウムを7.0 mol%添加するとピーク発光波長が679 nmとなり、窒化カルシウムを9.8 mol%添加するとピーク発光波長が684 nmとなった。

しかしながら、窒化カルシウムの添加量を増大していくにつれて、輝度の低下が顕著になる傾向が見られた。したがって、窒化カルシウムの添加によって、ピーク発光波長の移行は可能であるが、輝度の低下を十分考慮する必要がある。

なお、窒化カルシウムの添加量が 9.8 mol % 以下もしくは添加しないのであれば、ピーク発光強度比が 1.0 以上の発光強度を得ることができた。また、窒化合物カルシウムの添加量が 9.8 mol % であっても、ピーク発光強度比で 1.18 の発光強度を得ることができた。

したがって、窒化カルシウムの添加量は、上記範囲であれば発光強度に大きな影響を及ぼさないといえる。

なお、上記赤色蛍光体の製造方法における上記炭酸ストロンチウム (SrCO_3)、窒化ユーロピウム (EuN)、窒化シリコン (Si_3N_4)、窒化アルミニウム (AlN) およびメラミン ($\text{C}_3\text{H}_6\text{N}_6$) の成分比は、各原料化合物の成分比を調整することで、最大、以下の範囲に設定することができる。

すなわち、上記炭酸ストロンチウムは 23.5 mol % 以上 47.0 mol % 以下とする。

上記窒化シリコンは 33.0 mol % 以上 41.0 mol % 以下とする。

上記窒化ユーロピウムは 7.0 mol % 以上 12.5 mol % 以下とする。

上記窒化アルミニウムは少なくとも含み 12.0 mol % 以下とする。

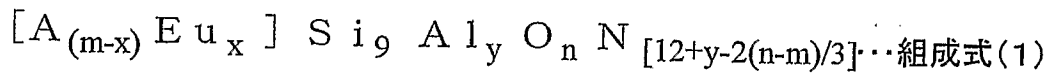
かつ上記炭酸ストロンチウム、窒化シリコン、窒化ユーロピウムおよび窒化アルミニウムを合わせた全 mol 数に対して、上記メラミンの添加量は 60 mol % 以上 65 mol % 以下とする。

また、上記赤色蛍光体の製造方法では、炭素の供給源としてメラミンを用いたが、例えば、上記メラミンの代わりに炭素と水素と窒素からなる有機物を用いることが可能である。なお、酸素を含む有機物は好ましくない。また、上記メラミンの代わりに炭素粉末を用いることも可能である。

請 求 の 範 囲

1. 元素A、ユーロピウム (E u)、シリコン (S i)、アルミニウム (A l)、酸素 (O)、および窒素 (N) を、下記組成式 (1) の原子数比で含有する赤色蛍光体。

[化 4]



ただし、組成式 (1) 中の元素Aは、マグネシウム (M g)、カルシウム (C a)、ストロンチウム (S r)、またはバリウム (B a) の少なくとも1つであり、

組成式 (1) 中のm、x、y、nは、 $3 < m < 5$ 、 $0 < x < 1$ 、 $0 < y < 2$ 、 $0 < n < 10$ なる関係を満たす。

2. 前記組成式 (1) で示される化合物が、斜方晶系空間点群 $P m n 2 1$ に属する結晶構造で構成された

請求項 1 に記載の赤色蛍光体。

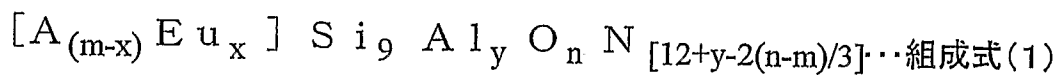
3. 前記元素Aは、ストロンチウム (S r) である

請求項 1 または 2 に記載の赤色蛍光体。

4. 元素A、ユーロピウム (E u)、シリコン (S i)、およびアルミニウム (A l) が、下記組成式 (1) の原子数比となるように、元素Aの炭酸化合物、窒化ユーロピウム、窒化シリコン、および窒化アルミニウムを用意し、これらと共にさらにメラミンを混合して混合物を生成し、

前記混合物の焼成と、当該焼成によって得られた焼成物の粉砕とを行う赤色蛍光体の製造方法。

[化 5]



ただし、組成式(1)中の元素Aは、マグネシウム(Mg)、カルシウム(Ca)、ストロンチウム(Sr)、またはバリウム(Ba)の少なくとも1つであり、

組成式(1)中のm、x、y、nは、 $3 < m < 5$ 、 $0 < x < 1$ 、 $0 < y < 2$ 、 $0 < n < 10$ なる関係を満たす。

5. 前記混合物の焼成と、当該焼成によって得られた焼成物の粉碎とを、繰り返す。

請求項4に記載の赤色蛍光体の製造方法。

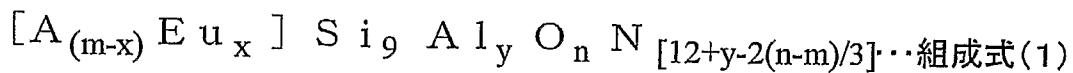
6. 素子基板上に形成された青色発光ダイオードと、

前記青色発光ダイオード上に配置されていて赤色蛍光体と緑色蛍光体とを透明樹脂に混練した混練物とを有し、

前記赤色蛍光体は、

元素A、ユーロピウム(Eu)、シリコン(Si)、アルミニウム(Al)、酸素(O)、および窒素(N)を、下記組成式(1)の原子数比で含有する白色光源。

[化6]



ただし、組成式(1)中の元素Aは、マグネシウム(Mg)、カルシウム(Ca)、ストロンチウム(Sr)、またはバリウム(Ba)の少なくとも1つであり、

組成式(1)中のm、x、y、nは、 $3 < m < 5$ 、 $0 < x < 1$ 、 $0 < y < 2$ 、 $0 < n < 10$ なる関係を満たす。

7. 照明基板上に複数の白色光源が配置され、

前記白色光源は、

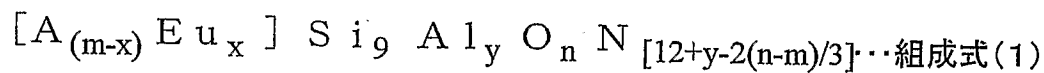
素子基板上に形成された青色発光ダイオードと、

前記青色発光ダイオード上に配置されていて赤色蛍光体と緑色蛍光体を透明樹脂に混練した混練物を有し、

前記赤色蛍光体は、

元素A、ユーロピウム (Eu)、シリコン (Si)、アルミニウム (Al)、酸素 (O)、および窒素 (N) を、下記組成式 (1) の原子数比で含有する照明装置。

[化7]



ただし、組成式 (1) 中の元素Aは、マグネシウム (Mg)、カルシウム (Ca)、ストロンチウム (Sr)、またはバリウム (Ba) の少なくとも1つであり、

組成式 (1) 中のm、x、y、nは、 $3 < m < 5$ 、 $0 < x < 1$ 、 $0 < y < 2$ 、 $0 < n < 10$ なる関係を満たす。

8. 液晶表示パネルと、

前記液晶表示パネルを照明する複数の白色光源を用いたバックライトとを有し、前記白色光源は、

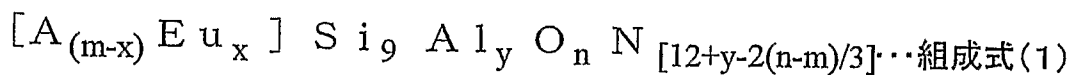
素子基板上に形成された青色発光ダイオードと、

前記青色発光ダイオード上に配置されていて赤色蛍光体と緑色蛍光体を透明樹脂に混練した混練物を有し、

前記赤色蛍光体は、

元素A、ユーロピウム (Eu)、シリコン (Si)、アルミニウム (Al)、酸素 (O)、および窒素 (N) を、下記組成式 (1) の原子数比で含有する液晶表示装置。

[化8]



ただし、組成式 (1) 中の元素 A は、マグネシウム (Mg)、カルシウム (Ca)、ストロンチウム (Sr)、またはバリウム (Ba) の少なくとも 1 つであり、

組成式 (1) 中の m 、 x 、 y 、 n は、 $3 < m < 5$ 、 $0 < x < 1$ 、 $0 < y < 2$ 、 $0 < n < 10$ なる関係を満たす。

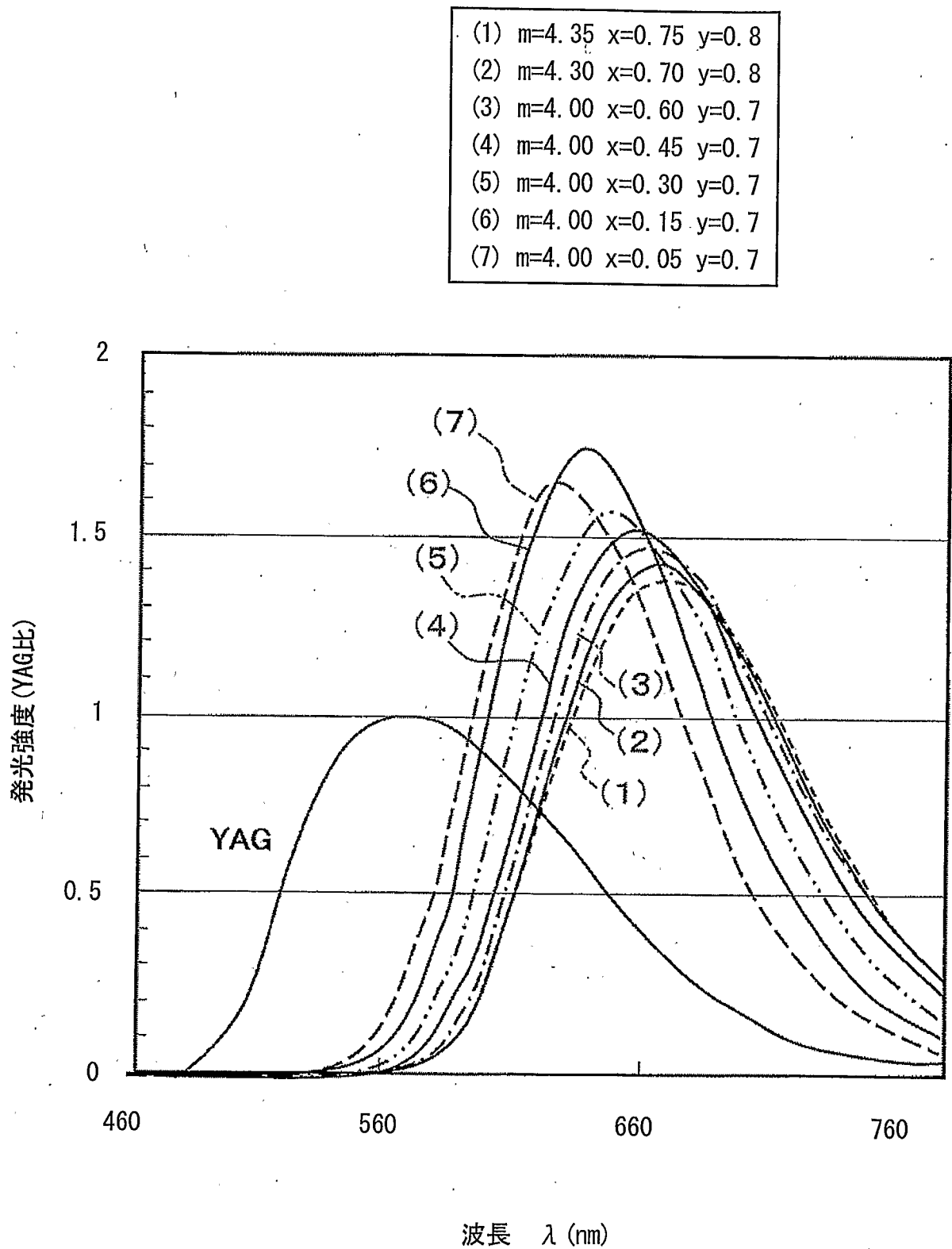


図 1

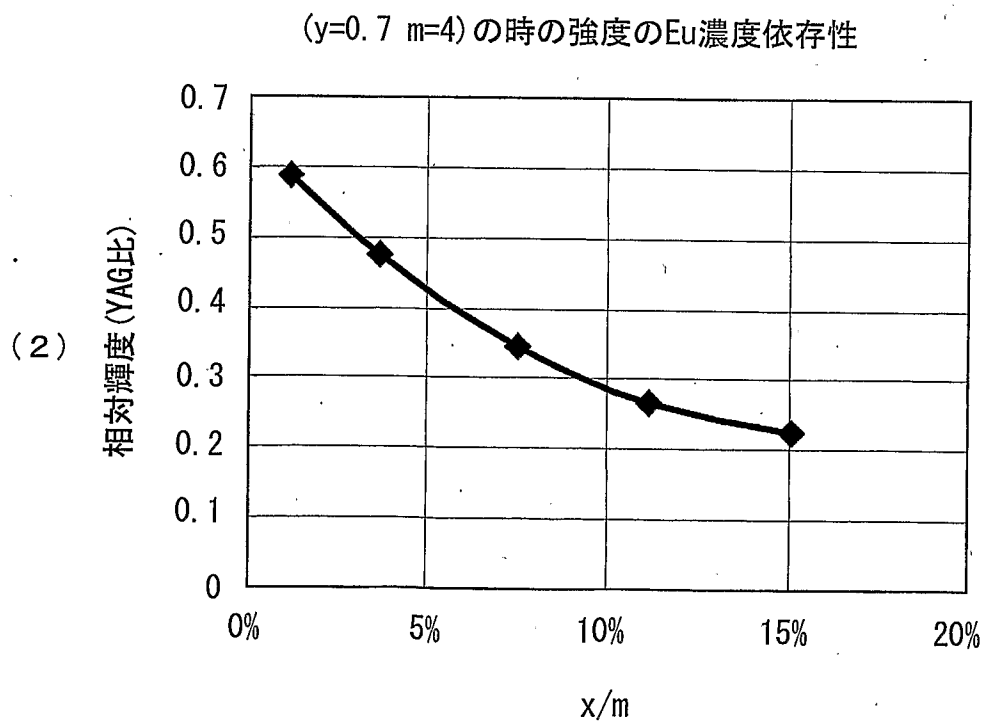
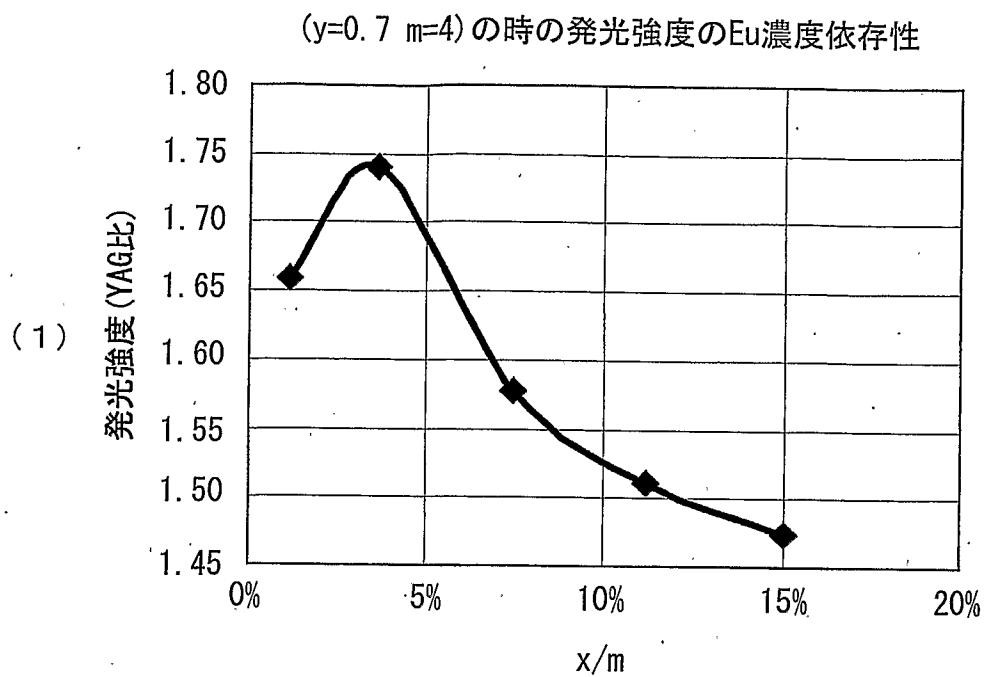


図 2

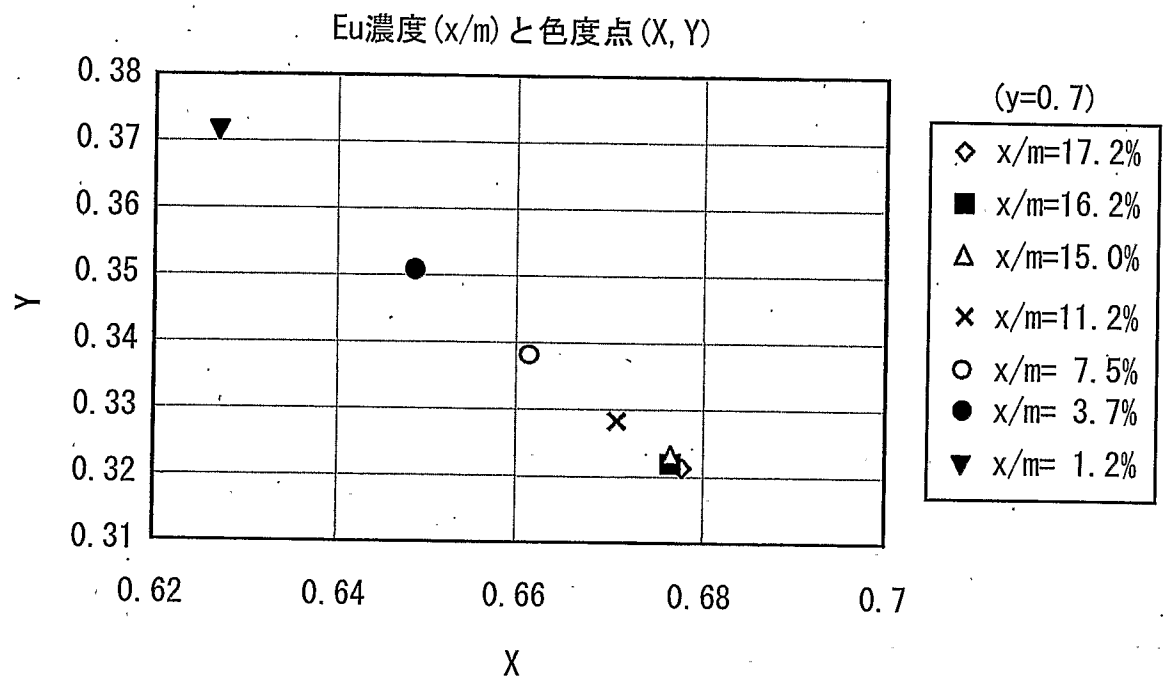


図 3

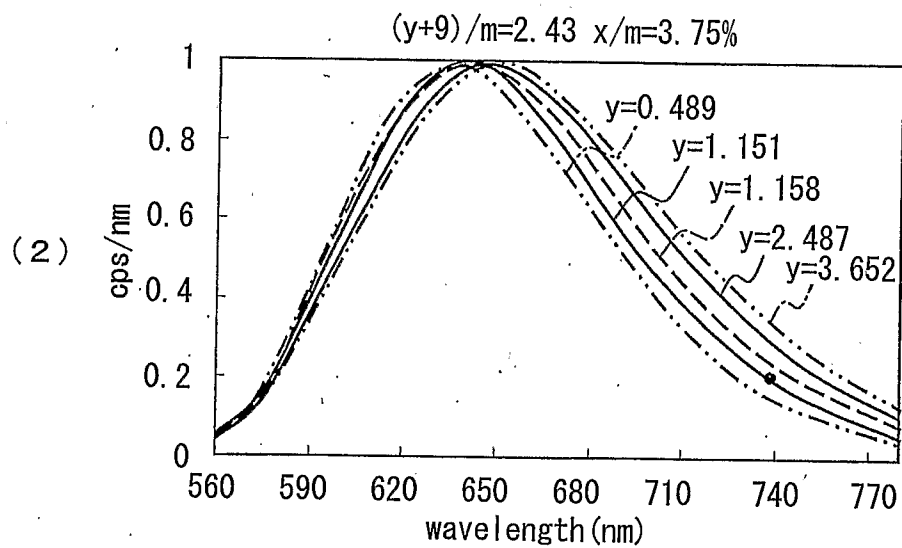
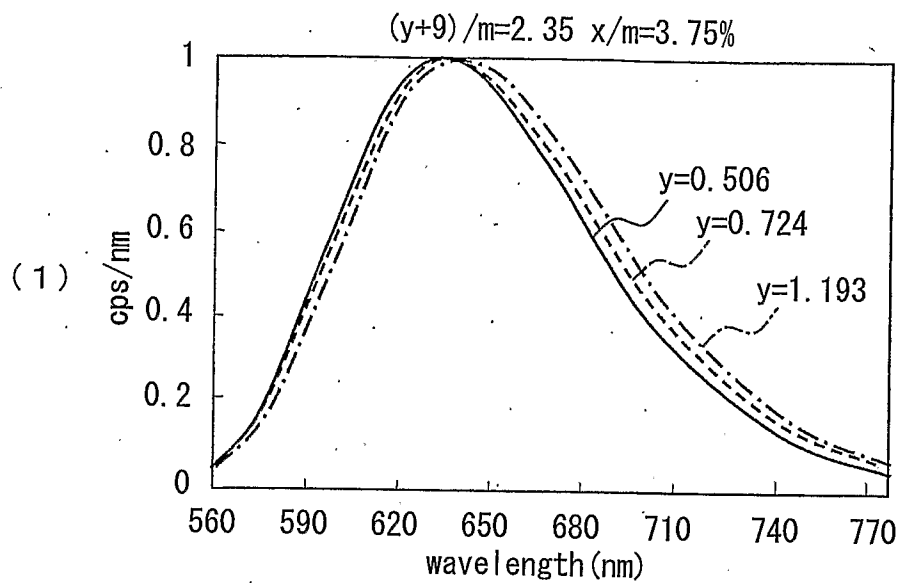


図 4

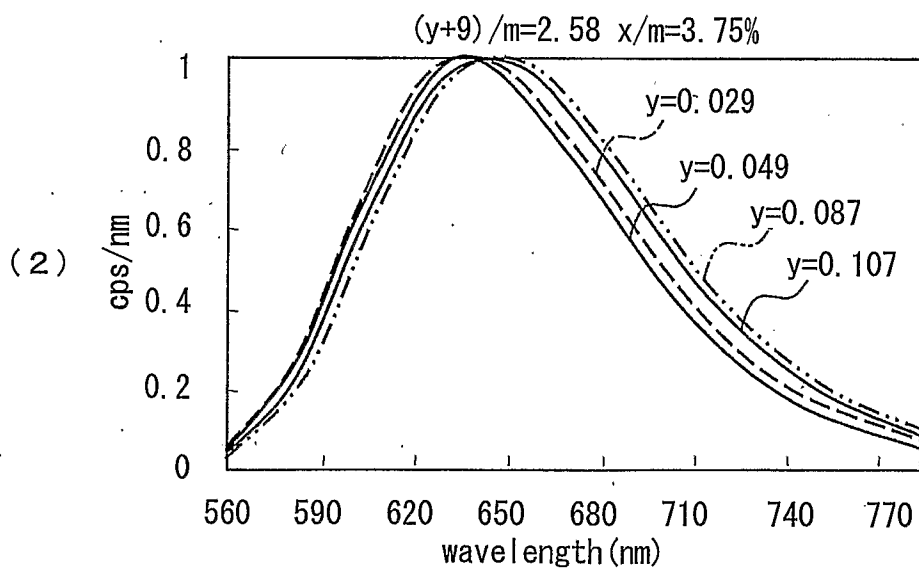
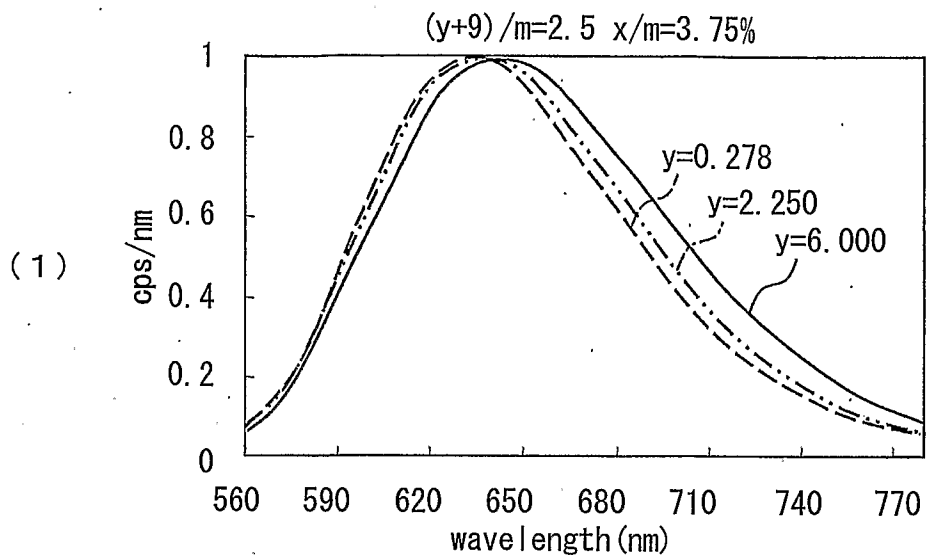


図 5

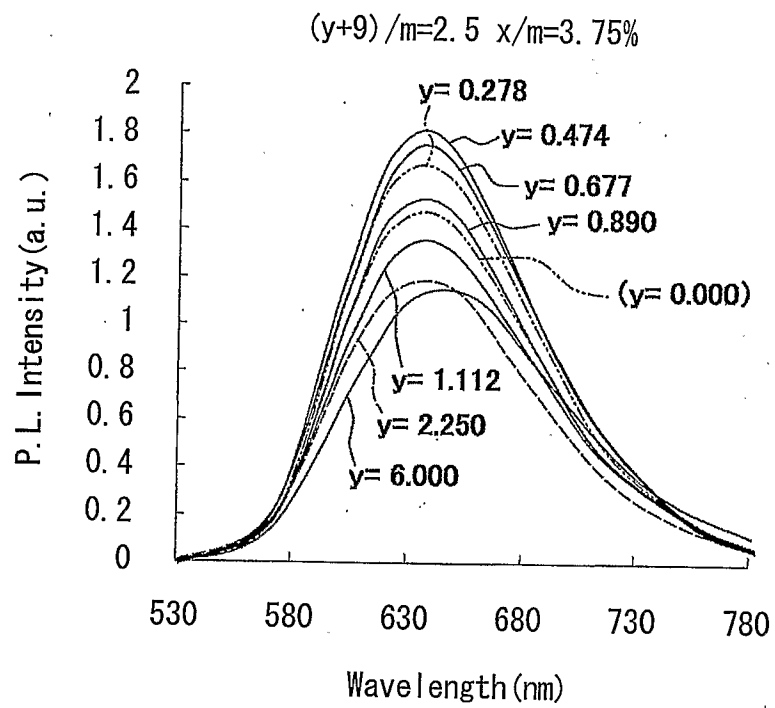


図 6

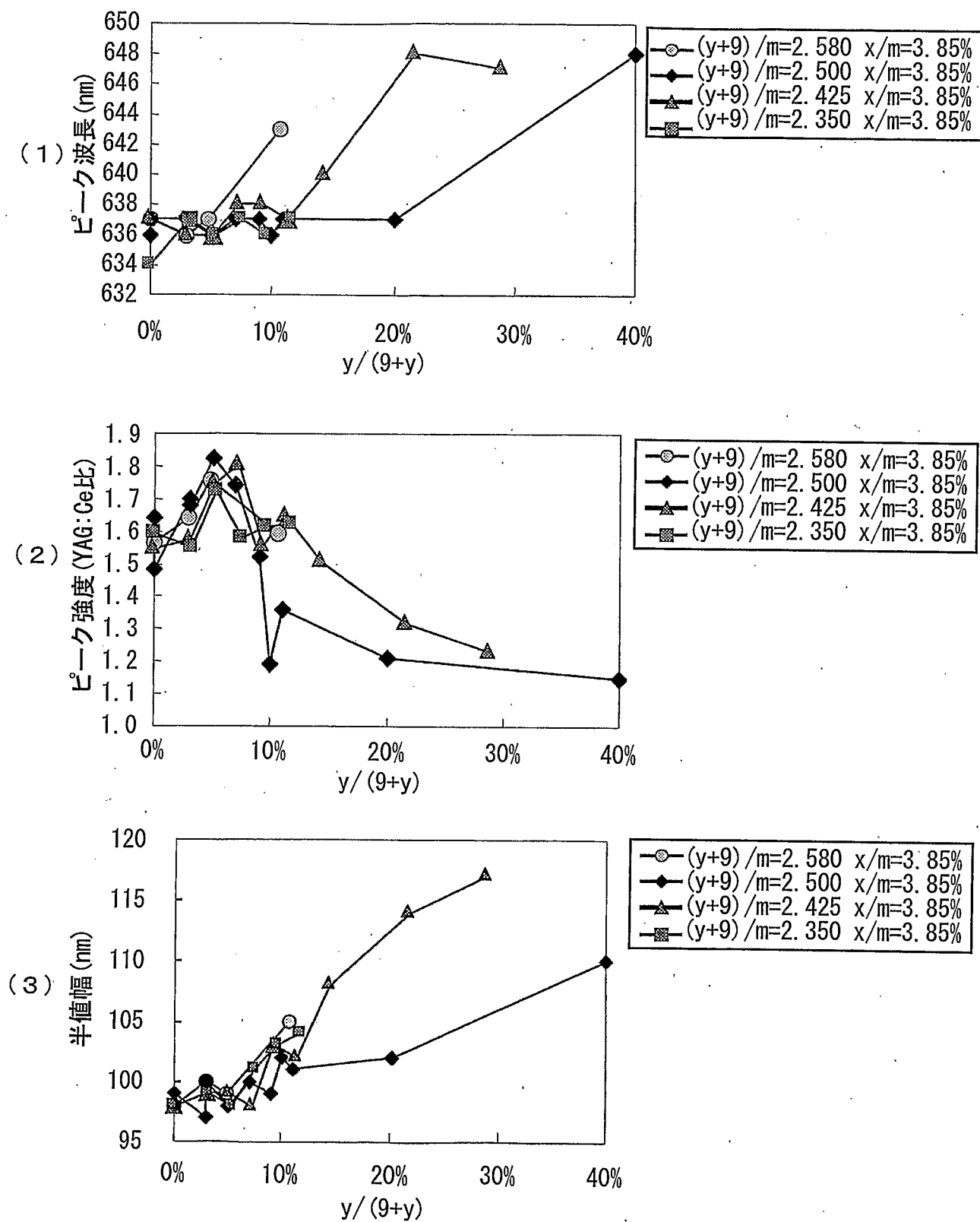


図 7

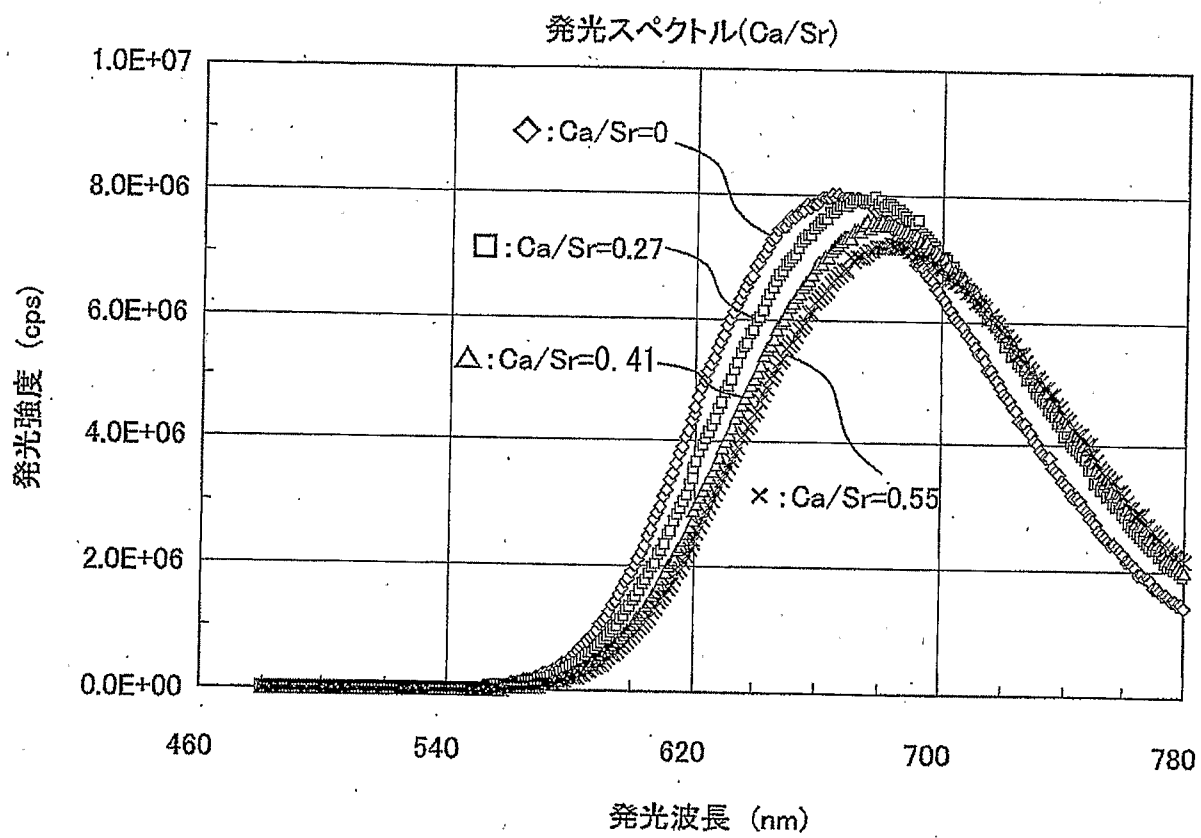


図 8

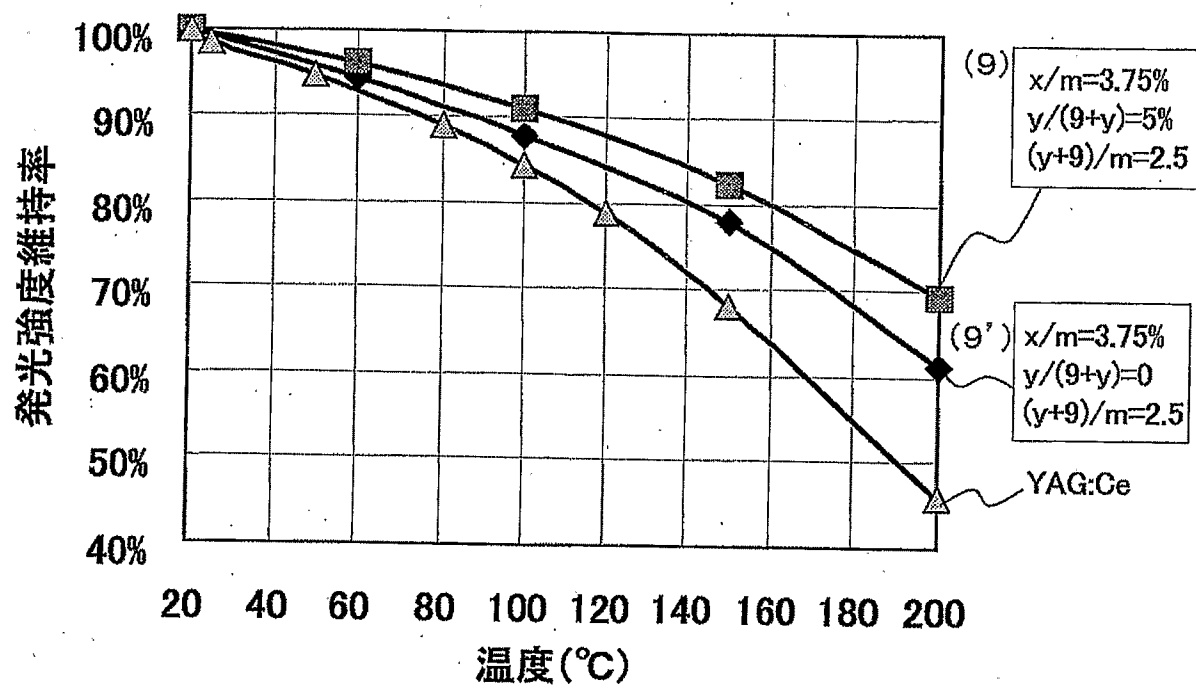


図 9

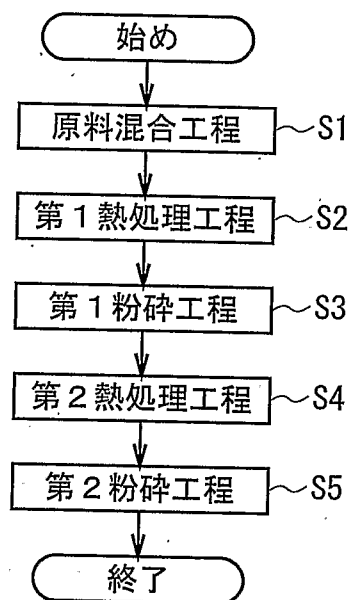


図10

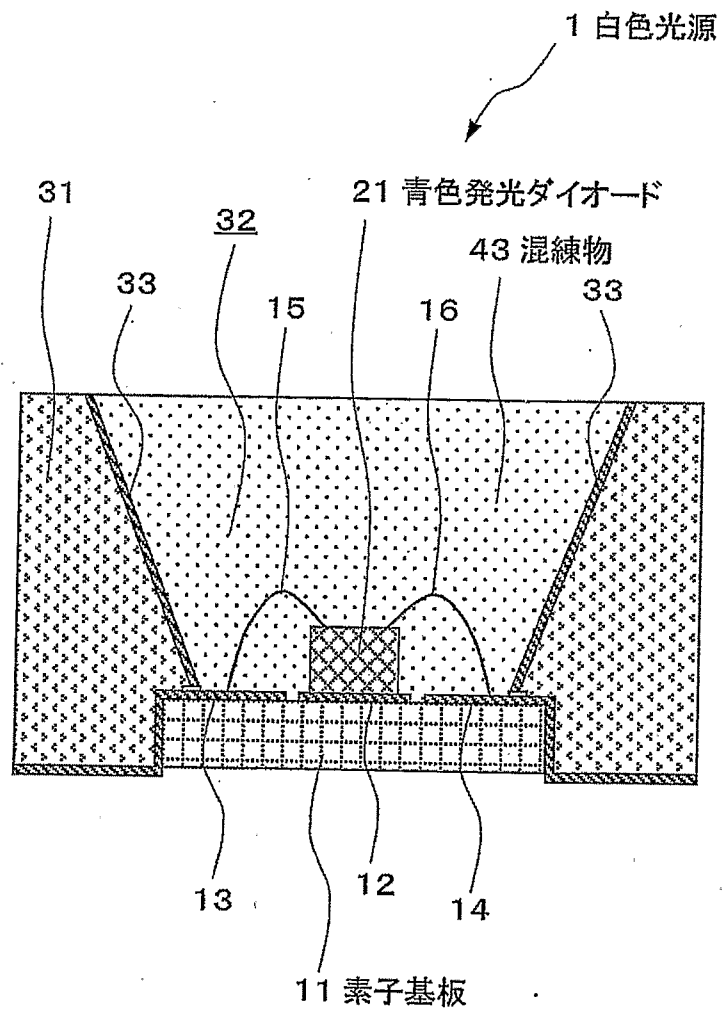


図 1 1

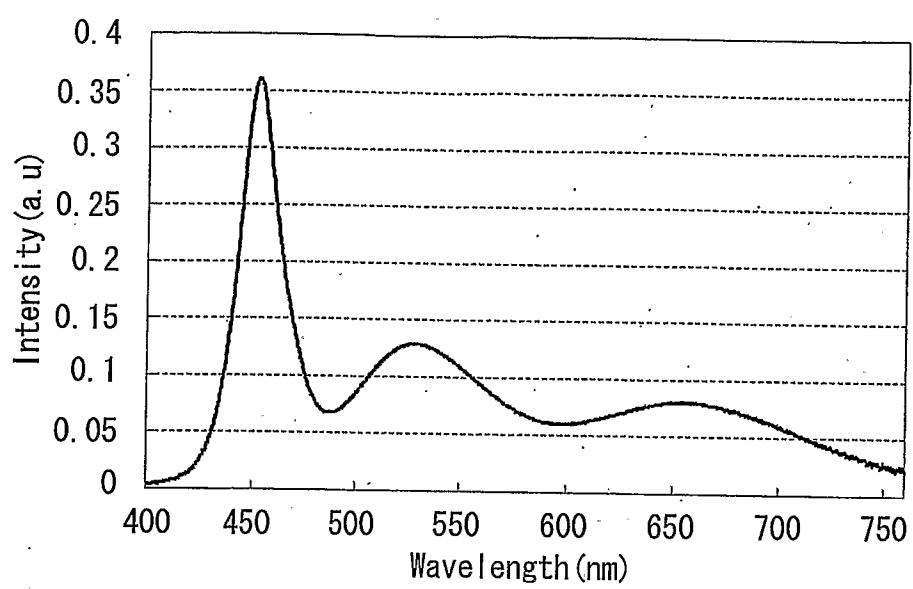


図 1 2

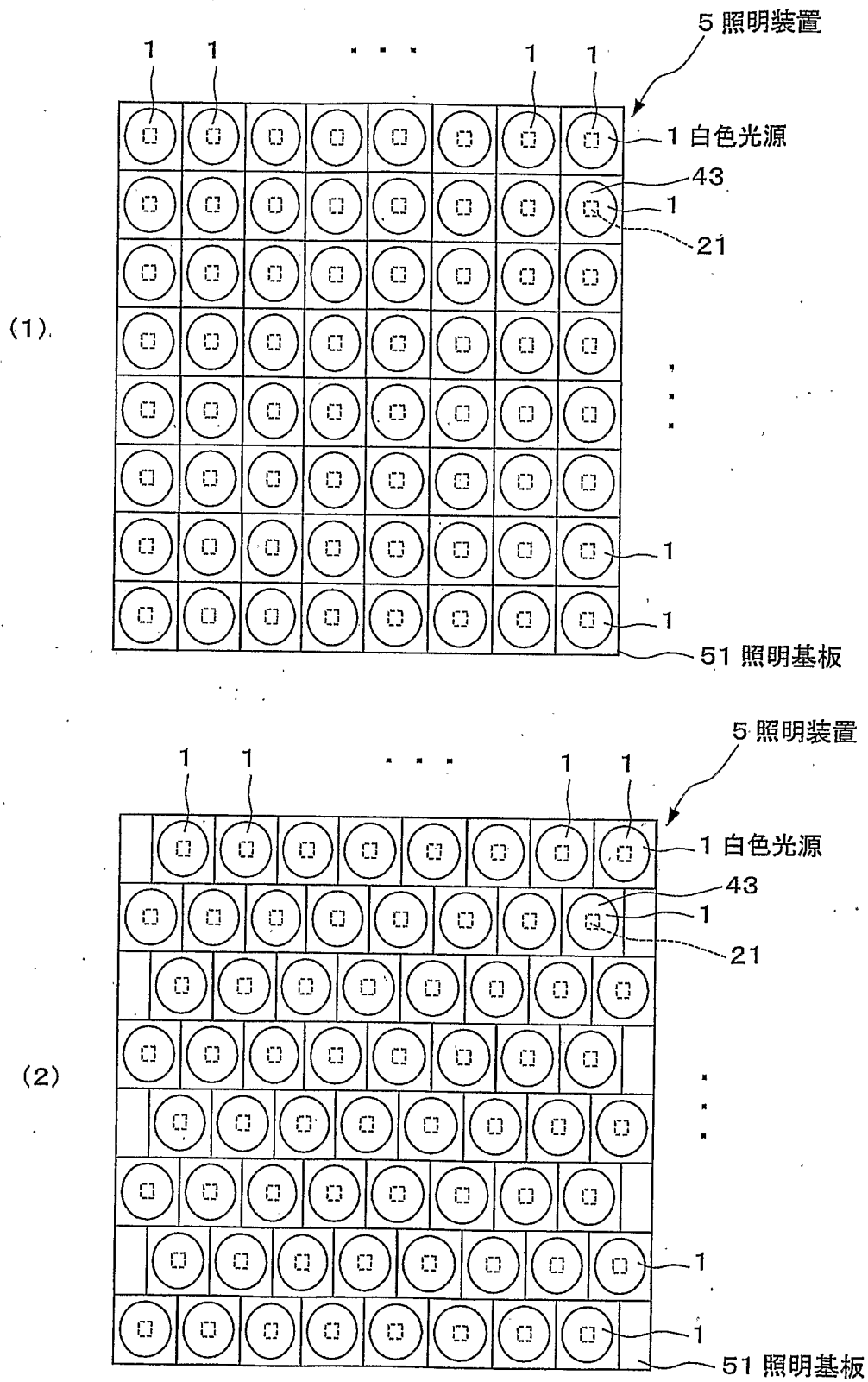


图 1 3

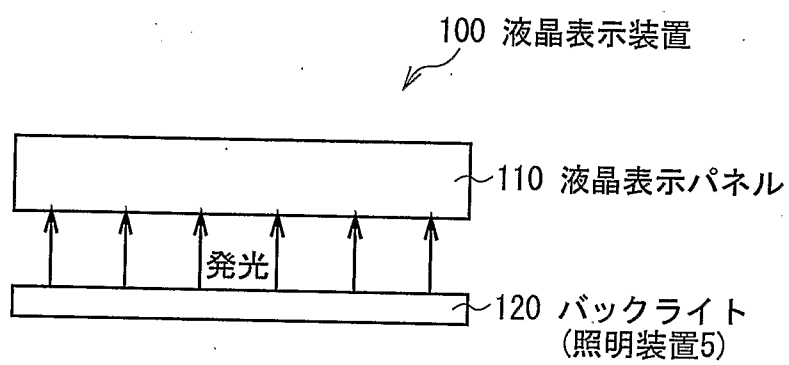


図 1 4

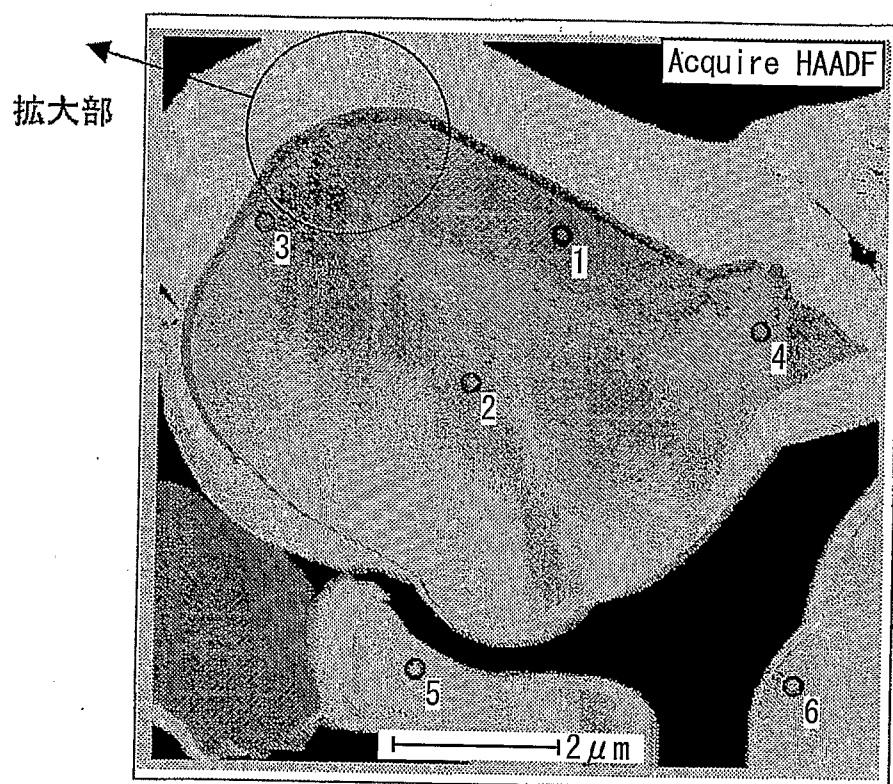


図 15

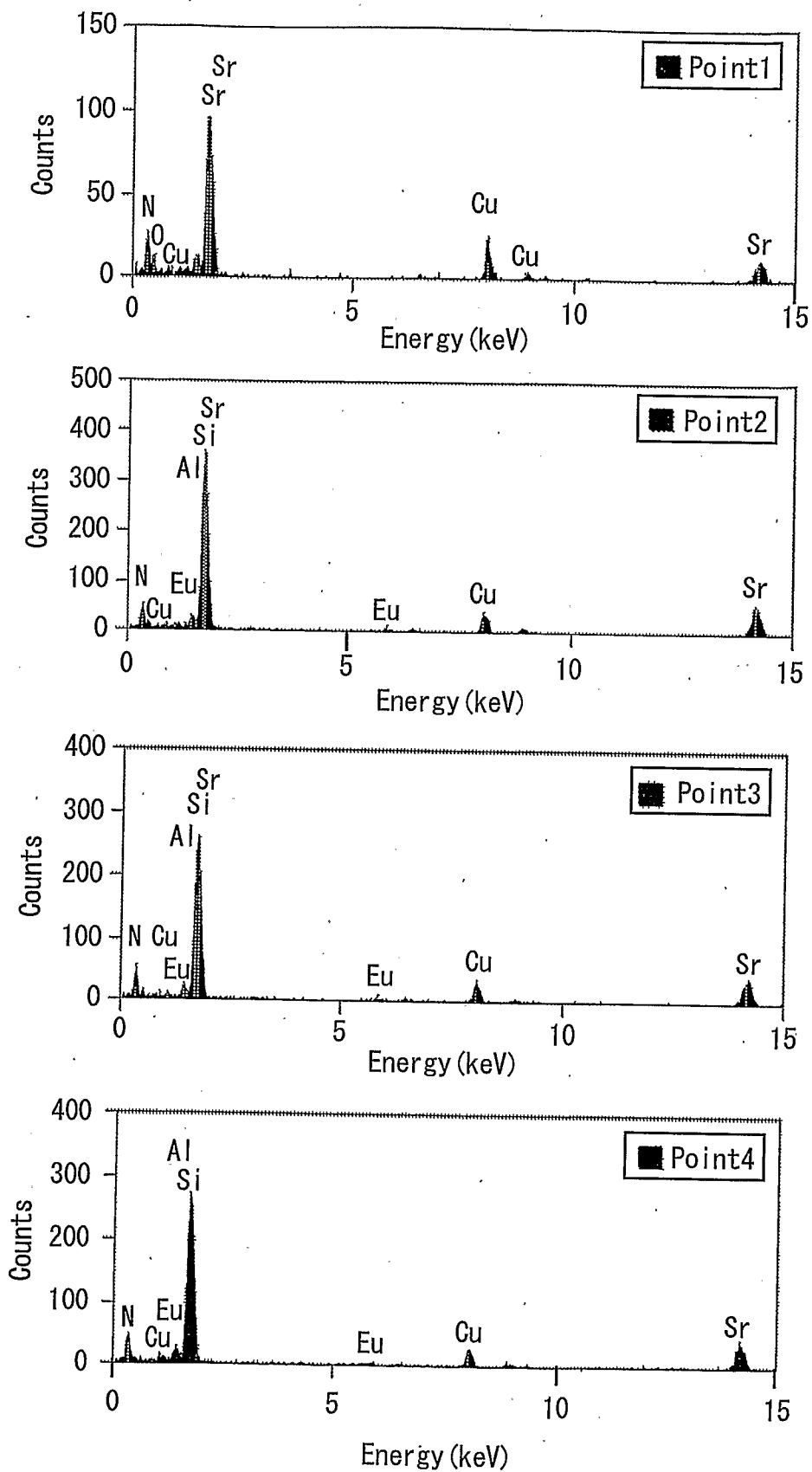
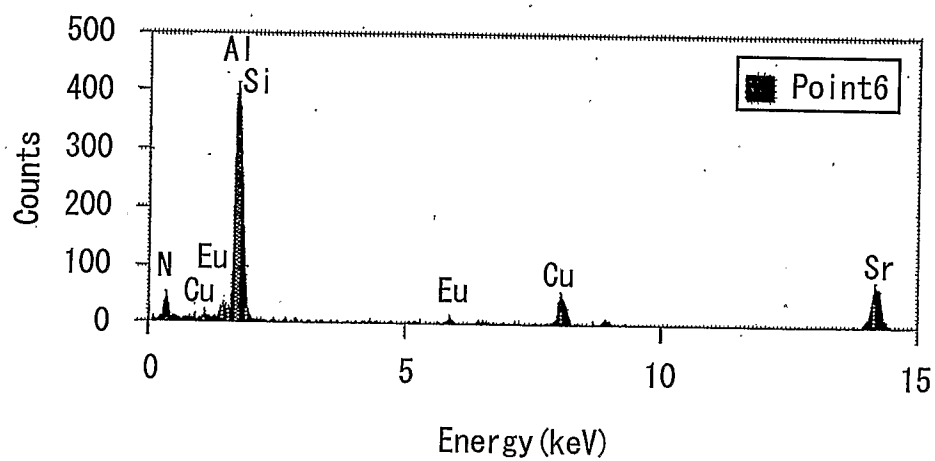
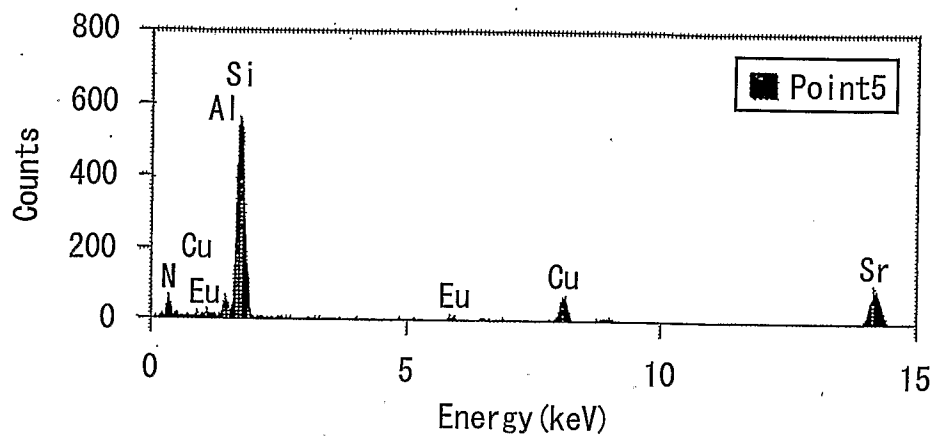


图 16



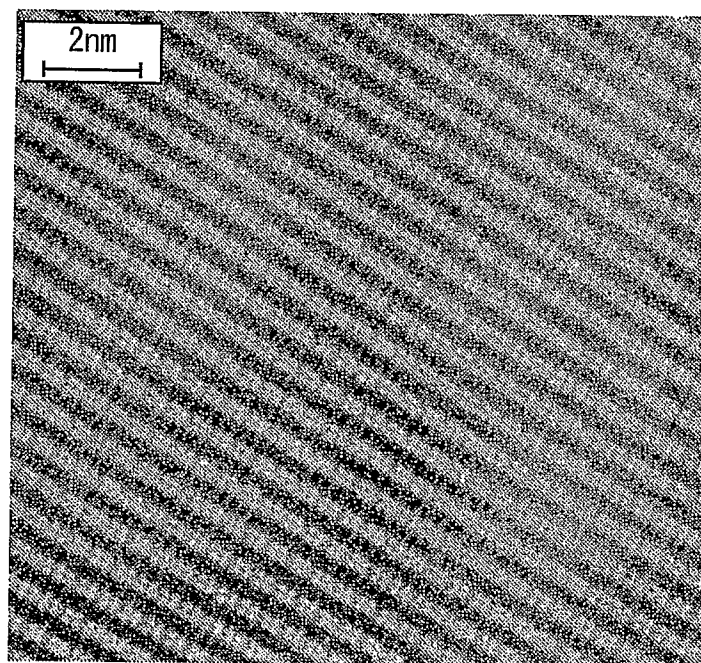
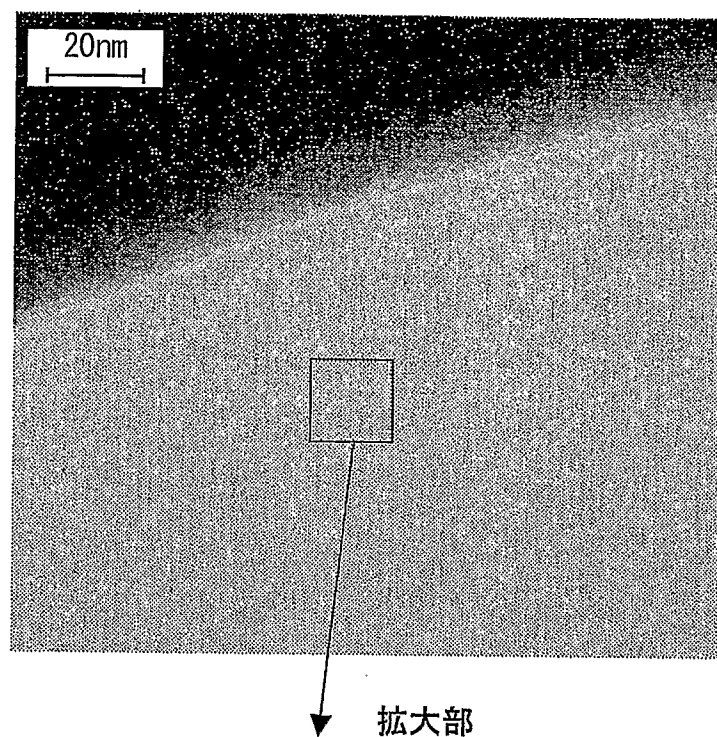


図 18

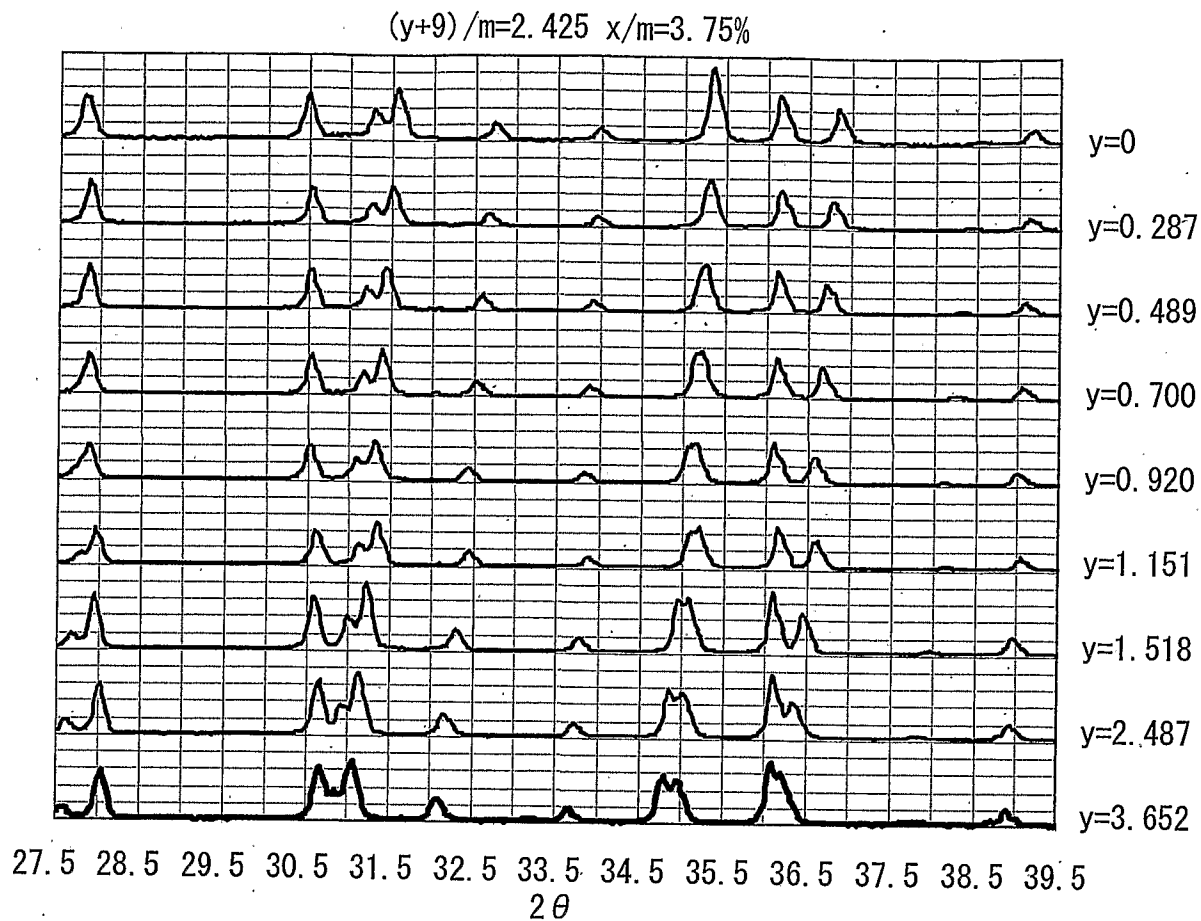


図 1 9

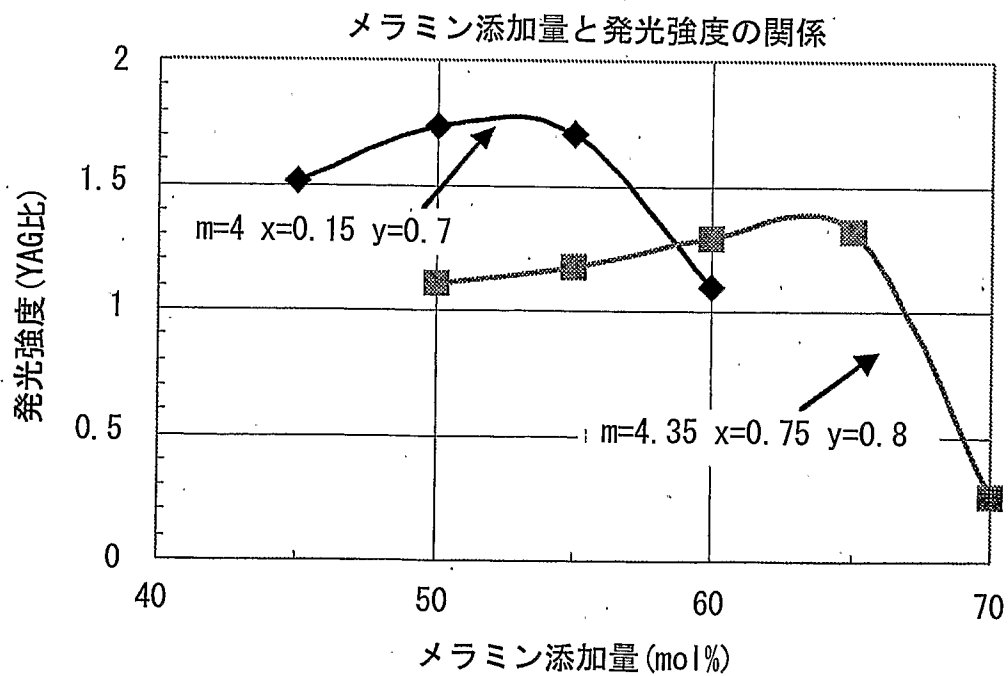


図 2 0

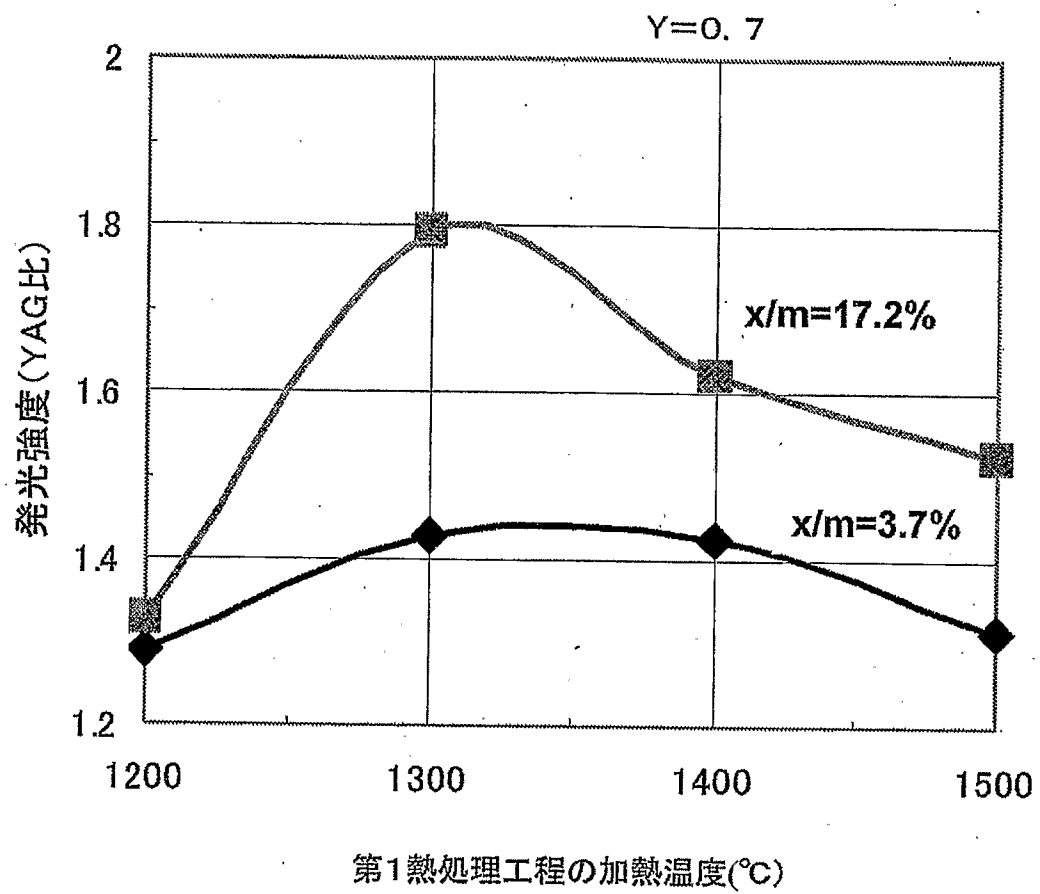


図 2 1

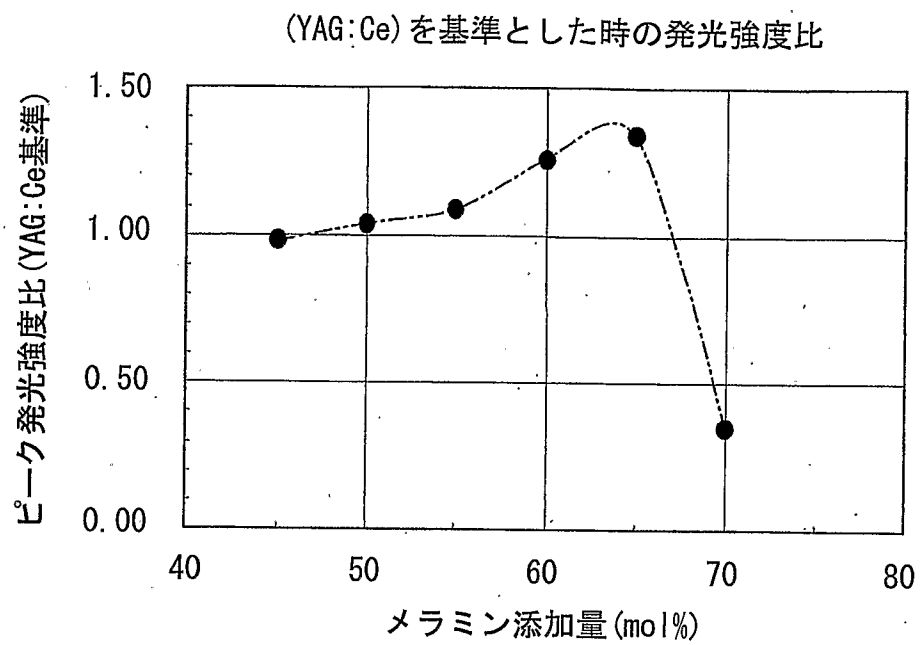


図 2 2

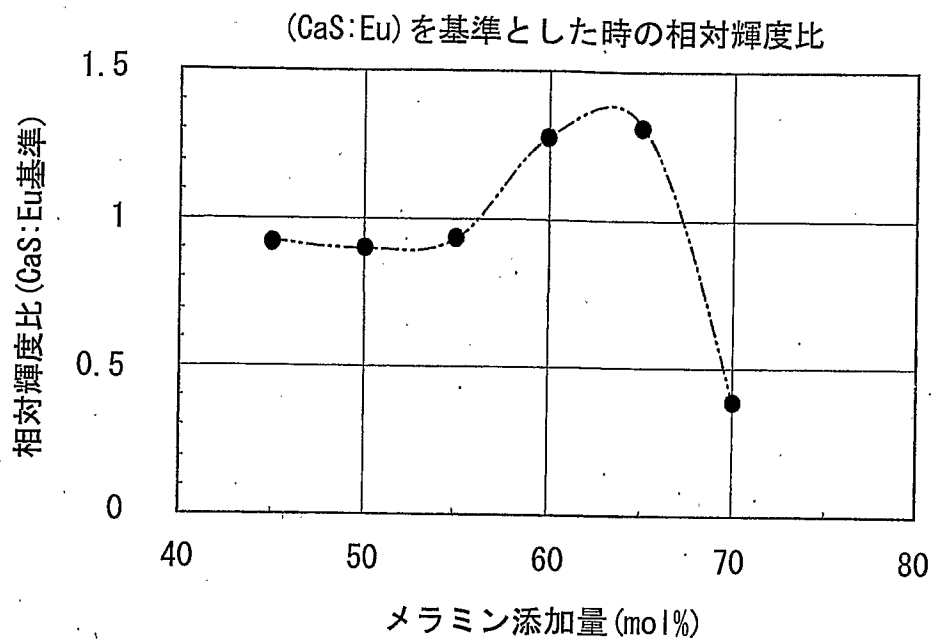


図 2 3

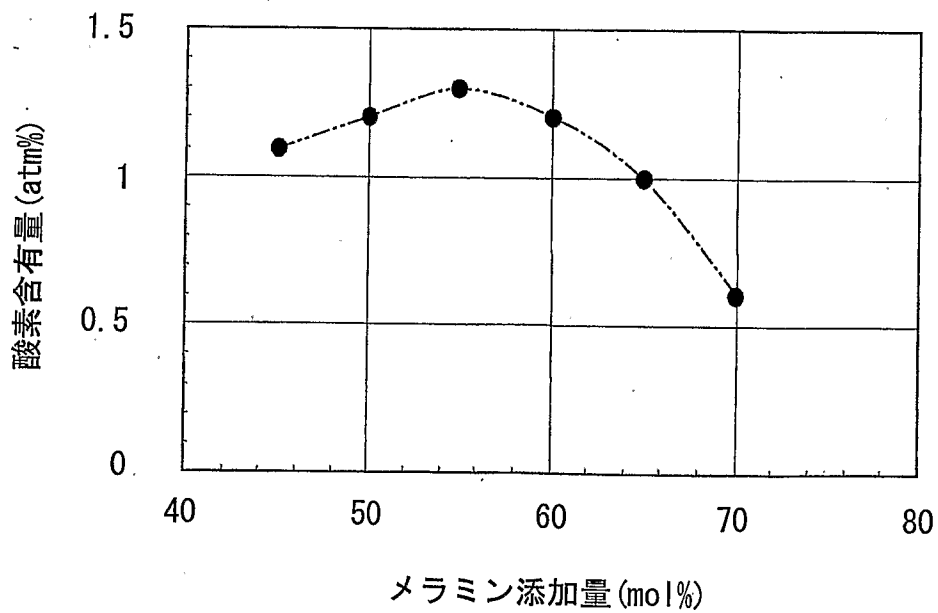


図 2 4

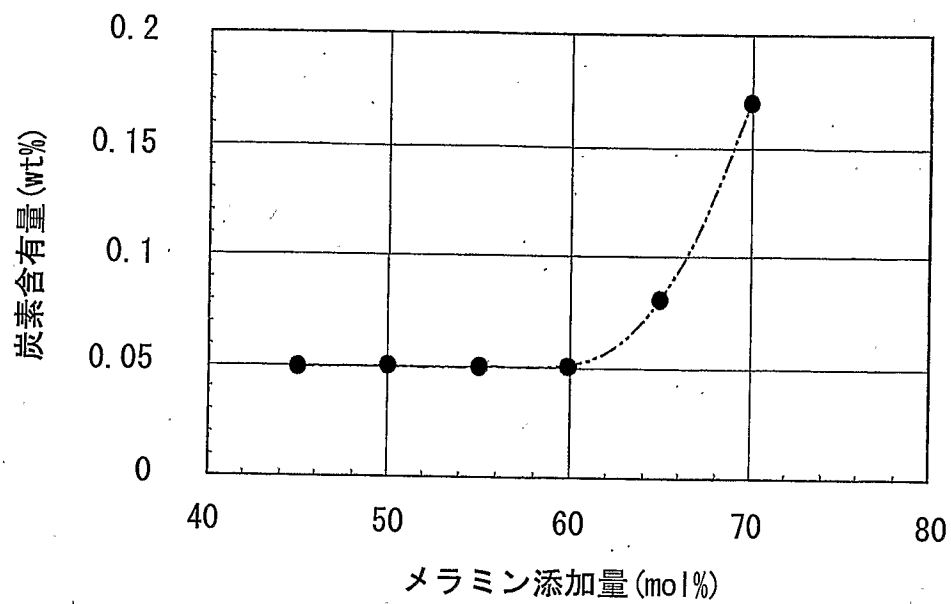


図 2 5

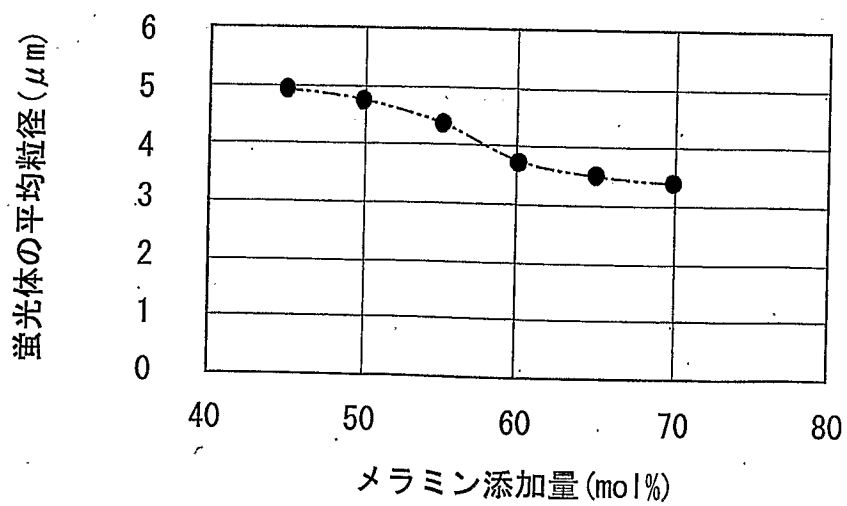


図 2 6

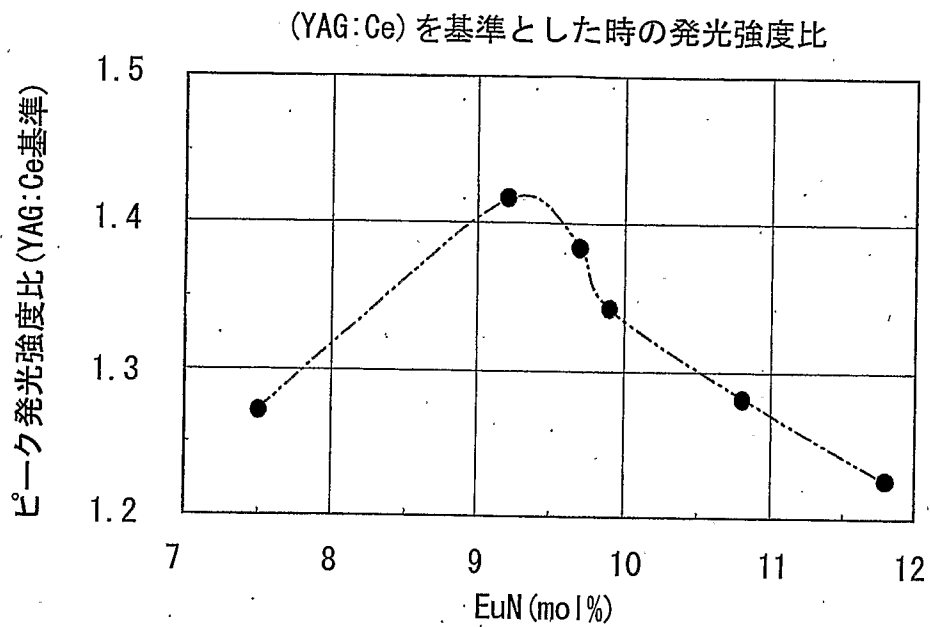


図 2 7

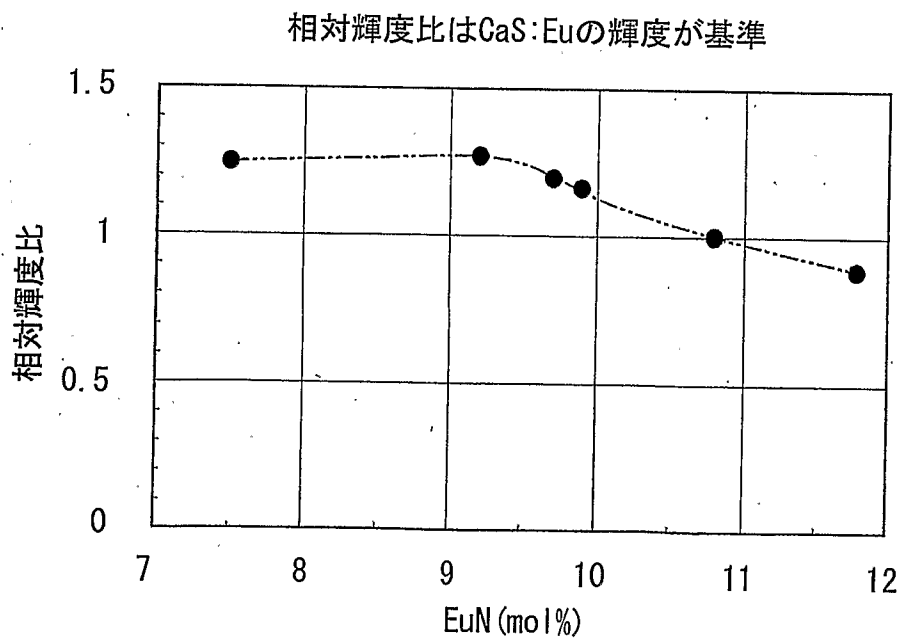
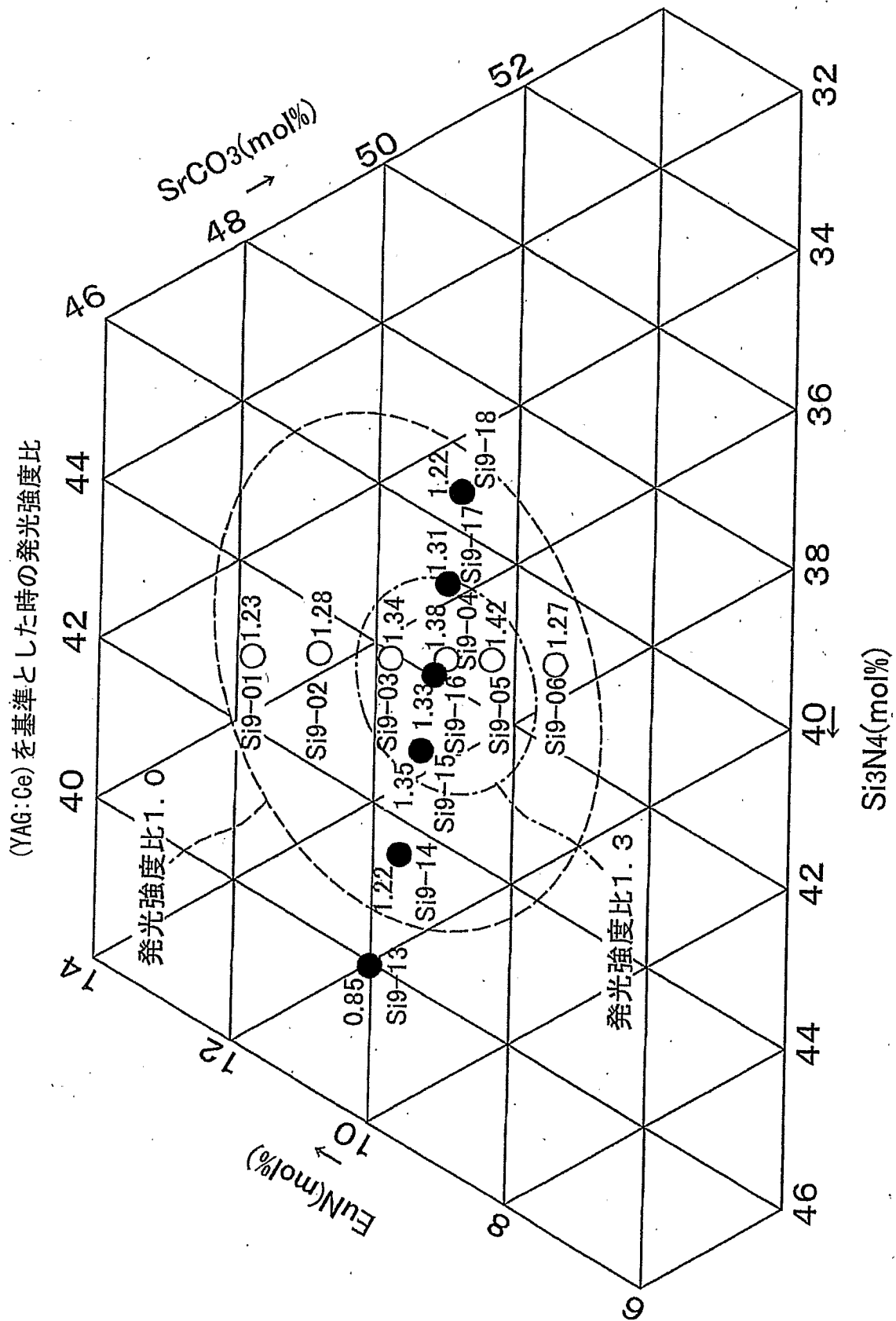


図 2 8



各組成は、SrCO₃、Si₃N₄、EuNに、AlN:+10mol%を加算した値である。
また、発光強度比は、全mol数に対し、60mol%のメラミンを添加した時の相対値である。

図 29

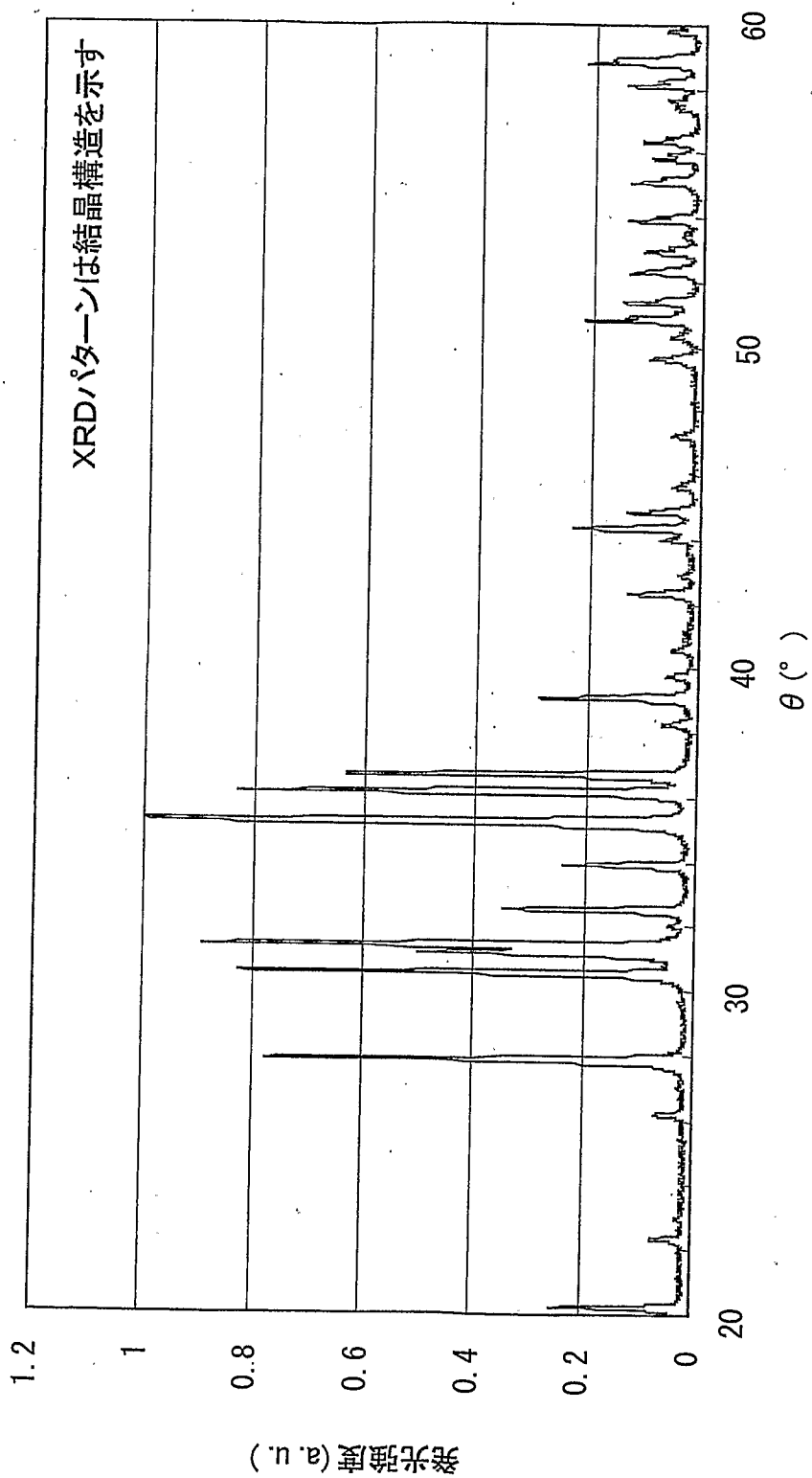


図 30

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/062244

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C09K11/64(2006.01)i, C09K11/08(2006.01)i, H01L33/00(2006.01)i

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)

C09K11/64, C09K11/08, H01L33/00

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2009
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2009	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2009

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

CA/REGISTRY(STN), JSTPlus/JMEDPlus/JST7580(JDreamII)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, X	WO 2009/31089 A1 (PHILIPS INTELLECTUAL PROPERTY & STANDARDS GMBH), 12 March, 2009 (12.03.09), Full text (Family: none)	1-3, 6-8
A	Yumi FUKUDA, "Eu Fukatsu Sr Sialon Keikotai no Hakko Tokusei", Extended Abstracts, Japan Society of Applied Physics and Related Societies, 27 March, 2008 (27.03.08), Vol.55, page 1523	1-8
P, A	JP 2008-166825 A (Samsung Electro-Mechanics Co., Ltd.), 17 July, 2008 (17.07.08), Full text & US 2008/0180948 A1	1-8

☒ 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 application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
03 August, 2009 (03.08.09)

Date of mailing of the international search report
11 August, 2009 (11.08.09)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/062244

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2008-120946 A (Sony Corp.), 29 May, 2008 (29.05.08), Full text (Family: none)	1-8
A	WO 2006/106883 A1 (Dowa Mining Co., Ltd.), 12 October, 2006 (12.10.06), Full text & US 2009/0026915 A1 & US 2006/0220047 A1 & US 2006/0220520 A1 & EP 1878778 A1	1-8

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. C09K11/64(2006.01)i, C09K11/08(2006.01)i, H01L33/00(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. C09K11/64, C09K11/08, H01L33/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 0 9 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 0 9 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 0 9 年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

CA/REGISTRY (STN), JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamII)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
P, X	WO 2009/31089 A1 (PHILIPS INTELLECTUAL PROPERTY & STANDARDS GMBH) 2009.03.12, 全文 (ファミリーなし)	1-3, 6-8
A	福田由美, E u 付活 S r サイアロン蛍光体の発光特性, 応用物理学 関係連合講演会 講演予稿集, 2008.03.27, 第55巻, p 1523	1-8
P, A	JP 2008-166825 A (三星電機株式会社) 2008.07.17, 全文 & US 2008/0180948 A1	1-8

☒ C 欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

0 3 . 0 8 . 2 0 0 9

国際調査報告の発送日

1 1 . 0 8 . 2 0 0 9

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / J P)

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

中西 祐子

4 V

3 6 4 9

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 8 3

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2008-120946 A (ソニー株式会社) 2008.05.29, 全文 (ファミリーなし)	1-8
A	WO 2006/106883 A1 (同和鉱業株式会社) 2006.10.12, 全文 & US 2009/0026915 A1 & US 2006/0220047 A1 & US 2006/0220520 A1 & EP 1878778 A1	1-8