

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2006年9月8日 (08.09.2006)

PCT

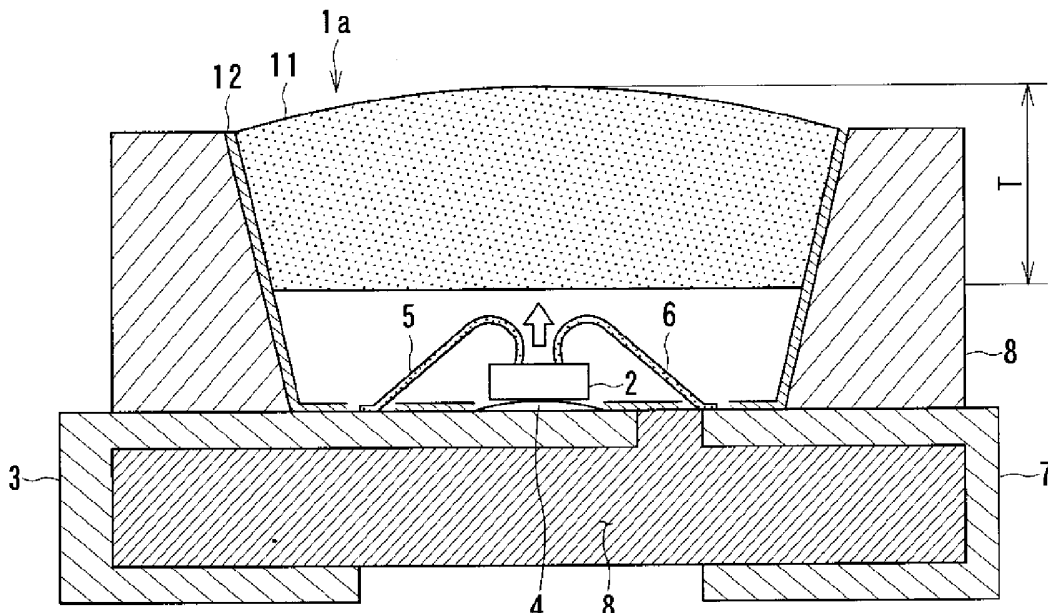
(10) 国際公開番号
WO 2006/093011 A1

- (51) 国際特許分類:
H01L 33/00 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2006/303248
- (22) 国際出願日: 2006年2月23日 (23.02.2006)
- (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2005-055511 2005年3月1日 (01.03.2005) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 株式会社東芝 (KABUSHIKI KAISHA TOSHIBA) [JP/JP]; 〒1058001 東京都港区芝浦一丁目1番1号 Tokyo (JP). 東芝マテリアル株式会社 (TOSHIBA MATERIALS CO., LTD.).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 岡村 正己 (OKAMURA, Masami). 玉谷 正昭 (TAMATANI, Masaaki).
- (74) 代理人: 波多野 久, 外 (HATANNO, Hisashi et al.); 〒1050003 東京都港区西新橋一丁目17番16号 宮田ビル2階東京国際特許事務所 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, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, 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 (AT, BE, BG,

/ 続葉有 /

(54) Title: LIGHT EMISSION DEVICE

(54) 発明の名称: 発光装置



(57) Abstract: A light emission device (1) includes a semiconductor light emission element (2) and a transparent ceramic fluorescent body (11) for converting wavelength of the light from the semiconductor light emission element (2). The semiconductor light emission element (2) emits ultraviolet light. The ceramic fluorescent body (11) corresponding to the semiconductor light emission element (2) emitting the ultraviolet light at the wavelength 350-420 nm has the light transmission rate whose lowest value is in the range from 0.1% to 40% and the ceramic fluorescent body (11) at the main light wavelength has light transmission ratio in the range from 10% to 90%.

/ 続葉有 /



CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE,
IS, IT, LT, LU, LV, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR),
OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML,
MR, NE, SN, TD, TG).

2文字コード及び他の略語については、定期発行される
各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語
のガイダンスノート」を参照。

添付公開書類:

— 国際調査報告書

(57) 要約: 半導体発光素子2と、この半導体発光素子2からの発光を波長変換する透明なセラミックス蛍光体11とを備えた発光装置1であり、上記半導体発光素子2は紫外光を発光し、この紫外光を発光する半導体発光素子2に対応した上記セラミックス蛍光体11は、波長350～420nmにおける光透過率の最低値が0.1%以上40%以下であり、かつセラミックス蛍光体11の主発光波長における光透過率が10%以上90%以下であることを特徴とする発光装置1である。

明 細 書

発光装置

技術分野

- [0001] 本発明は、発光ダイオードから照射される光をセラミックス蛍光体により波長変換して外部に放出する発光装置に係り、特に蛍光体からの発光の取り出し効率が高く発光強度に優れた発光装置に関する。

背景技術

- [0002] 発光ダイオード(LED:Light Emitting Diode)は光を放射する半導体ダイオードであり、電気エネルギーを可視光または赤外光に変換するものである。特に可視光を利用するためにGaPやGaAsP, GaAlAs等の発光材料で形成した半導体発光素子(発光チップ)を透明樹脂等で封止したLEDランプとして広く使用されている。また発光材料をプリント基板や金属リードの上面に固定し、数字や文字を形取った樹脂ケースで封止したディスプレイ型のLEDランプ等の発光装置としても多用されている。
- [0003] また、半導体発光素子の表面ないし発光ダイオードの樹脂中に各種の蛍光体粉末を含有させることにより、放射光の色を適正に調整することも可能な発光装置も実用化されている。すなわち、青色光または紫外光を発する窒化ガリウム系発光ダイオードと、青色光または紫外光で励起され波長の異なる可視光を発する蛍光体とを備え、適当な混色操作によって白色光を発生する発光装置も知られている。この発光装置では、イットリウム・アルミニウム・ガーネット(YAG)系 $[(R, Sm)_3(Al, Ga)_5O_{12}]$ などの蛍光体が用いられる。このような発光装置では、発光ダイオードチップが適当なカップ内に固着され、所定の蛍光体粉末と適当な樹脂とを混合したスラリーをカップ内に注入し乾燥させることにより蛍光体層を形成している。
- [0004] 図4は上記のような半導体発光素子(発光ダイオードチップ)と、この発光素子の周囲に樹脂材を介して分散された蛍光体粉末とから成る従来の発光装置の他の構成例を示す断面図である。この発光装置1は、実装基板上に高密度実装を行うのに好適な表面実装型発光装置(SMD:Surface Mount Device)である。半導体発光素

子(LEDチップ)2は、第1リード3上に接着剤4などで接着されている。半導体発光素子2の上面に設けられた第1の電極は、ボンディングワイヤ5によって第1リード3に接続されている。また、半導体発光素子2の上面に設けられた第2の電極は、ボンディングワイヤ6によって第2リード7に接続されている。上記第1リード3および第2リード7は、予めリードフレーム上に連結された状態で、熱可塑性樹脂8などを用いて射出成形などにより埋め込まれて固定されている。第1リード3および第2リード7上には、半導体発光素子2を収容する凹部を形成する熱可塑性樹脂8が配置される。

[0005] 半導体発光素子2の構成材料としては、例えばGaN系材料やInGaAlP系材料が用いられる。GaN系発光素子からは、例えば330～400nmの波長帯の紫外線が放出される一方、InGaAlP系発光素子からは、例えば400～700nmの波長帯の可視光が放出される。半導体発光素子2は透明樹脂9により封止されており、この透明樹脂9には蛍光体粒子10が分散されている。半導体発光素子2から放出された1次光は、蛍光体粒子10に吸収され波長変換されて白色光等の2次光が放出される。

[0006] 前記発光ダイオードランプや発光装置の発光色は、青色から赤色まで各使用用途に応じた可視光領域の発光を再現することができる。また、発光ダイオードは半導体素子であるため、寿命が長く信頼性も高く、光源として用いた場合には、その故障による交換作業も軽減化されることから、携帯通信機器、パーソナルコンピュータ周辺機器、OA機器、家庭用電気機器、オーディオ機器、各種スイッチ、バックライト用光源表示板等の各種表示装置の構成部品として広く使用されている。

特許文献1:特開平10-215001号公報

[0007] しかしながら、上記従来の発光装置で使用する粉末状蛍光体は不透明であるため、蛍光体粉末が堆積した蛍光体層の内部から発光した光は、その外側の不透明蛍光体に吸収・散乱され、発光素子外部に有効に取り出すことが困難であった。そこで蛍光体からの発光の外部取り出し効率を高めるために蛍光体層の厚さを薄くした場合には、半導体発光素子からの全発光の内、蛍光体に有効に吸収されないで発光素子外部に放出される光量が増加し全体的な発光効率が低下する。一方、半導体発光素子からの発光を十分に蛍光体層に吸収させるために蛍光体層を厚くすると、蛍光体から発光の取り出し効率が低下してしまうために発光装置全体の効率が低下

する問題点が生起されていた。

- [0008] また、紫外線を発光する半導体発光素子を用いた場合には、蛍光体粉末と混合された樹脂が紫外線により劣化し発光装置の寿命が制限され発光装置の耐久性が低下する問題もあった。さらに、ディップ法を用いた場合の発光装置の製造ラインでは、樹脂が硬化するまでの工程が長く量産性が悪いという難点があった。
- [0009] また、従来の発光ダイオード装置では、樹脂に含有している蛍光体粉末の濃度と注入量によって発光色の色調が決定される。ところが、樹脂と蛍光体粉末との比重差が大きく蛍光体の濃度管理が困難であり、注入操作毎に蛍光体の濃度が不均一になる問題もあった。また発光装置に対する蛍光体の樹脂懸濁液の注入量は、0.1mcc以下と極めて少ないが、このような微少量を量産レベルで正確に一定値に制御することは極めて困難であった。その結果、注入量および蛍光体含有量が大きくばらつき、発光装置からの発光の色調が不均一になるという問題があった。
- [0010] このような課題を解決する方法として、固体状の樹脂に蛍光体を含有させることも知られているが、蛍光体の濃度が低く、十分な発光出力が得られなかった。また、この場合に蛍光体濃度を高くすると、蛍光体を含有した樹脂層の透明度が低下し、発光出力が低くなるという技術上解決すべき課題があった。
- [0011] 本発明は上記課題を解決するためになされたものであり、特に蛍光体からの発光の取り出し効率が高く発光強度に優れた発光装置を提供することを目的とする。
- [0012] 発明の開示
- 上記目的を達成するために、本発明に係る発光装置は、半導体発光素子と、この半導体発光素子からの発光を波長変換する透明なセラミックス蛍光体とを備えた発光装置であり、上記半導体発光素子は紫外光を発光し、この紫外光を発光する半導体発光素子に対応した上記セラミックス蛍光体は、波長350～420nmにおける光透過率の最低値が0.1%以上40%以下であり、かつセラミックス蛍光体の主発光波長における光透過率が10%以上90%以下であることを特徴とする。
- [0013] 本発明に係る他の発光装置は、半導体発光素子と、この半導体発光素子からの発光を波長変換する透明なセラミックス蛍光体を備えた発光装置であり、上記半導体発光素子は青色光を発光し、この青色光を発光する半導体発光素子に対応した上記

セラミックス蛍光体は、波長420～500nmにおける光透過率の最低値が20%以上80%以下であり、かつセラミックス蛍光体の主発光波長における光透過率が10%以上90%以下であることを特徴とすることを特徴とする。

[0014] 本発明の発光装置においては、使用する波長光に対して所定の透明度を有するセラミックス蛍光体を用いることにより、半導体素子からの発光を十分に吸収できる厚さの蛍光体を用いても、蛍光体内部で発光した光が不透明蛍光体粉末により吸収・散乱されることなく有効に発光装置外部に取り出すことができる。また、蛍光体の樹脂懸濁液を用いることなく、蛍光体を含むすべての部品を固体化できるため、発光装置の工業的な生産効率を著しく向上させることができる。

[0015] ここで、紫外光を発光する半導体発光素子を使用する場合には、セラミックス蛍光体の波長350～420nmにおける光透過率の最低値を0.1%以上40%以下の範囲にすると同時に、蛍光体の主発光波長における光透過率を10%以上90%以下の範囲に制御することが重要であり、また青色光を発光する半導体発光素子を使用する場合には、セラミックス蛍光体の波長420～500nmにおける光透過率の最低値を20%以上80%以下の範囲にすると同時に、蛍光体の主発光波長における光透過率を10%以上90%以下の範囲に制御することが重要である。

[0016] 上記紫外光を発光する半導体発光素子の場合、発光波長領域である波長350～420nmにおけるセラミックス蛍光体の光透過率の最低値が0.1%未満となると、半導体発光素子からの発光の吸収効率は高まるが、同時に蛍光体層内部で有効に発光しない部分も増加するために、装置全体の発光効率が低下する。また、紫外光を発光する半導体発光素子の場合における波長350～420nmの光透過率の最低値が40%を超えると、セラミックス蛍光体に吸収される光が少なくなり、発光効率が低下する。

[0017] 一方、青色光を発光する半導体発光素子の場合、発光波長領域である波長420～500nmにおけるセラミックス蛍光体の光透過率の最低値が20%未満となると、半導体素子からの発光の吸収効率は高まるが、素子の外部に透過する青色光成分が減少し演色性が低下する。青色光を発光する半導体素子の場合における波長420～500nmにおける光透過率の最低値が80%を超えると蛍光体に吸収される光が少なく

なり、発光効率が低下するとともに、発光素子の外部に透過する青色光成分が増加し同様に演色性が低下する。

[0018] 上記各発光装置において、セラミックス蛍光体の主発光波長における光透過率が10%未満になると、セラミックス蛍光体内部で発光した光をセラミックス蛍光体外部に有効に取り出せなくなり発光効率が低下する。一方、セラミックス蛍光体の主発光波長における光透過率を90%より高くすることは可能ではあるが、そのような非常に透明度の高いセラミックスを製造するためには、蛍光体の不純物量を極めて少なくしなければならず工業的には適さない。

[0019] 上記のような透明なセラミックス蛍光体を実現するためには、不純物量を低い値に制御すると共に、焼結助剤を可及的に用いない方が好ましい。また、散乱などの原因となる微小な空隙を低減するために焼結体の密度を高めることが重要である。

[0020] また、上記発光装置において、前記セラミックス蛍光体の少なくとも一部の表面の平均表面粗さが算術平均粗さRaで0.5~150 μ mの範囲であることが好ましい。セラミックス蛍光体の外表面の平均表面粗さを0.5~150 μ mの範囲の制御することにより、より高い発光強度が得られる。ここで、セラミックス蛍光体の外表面とは、発光装置として実質的に利用できる光を放出する面を意味する。この平均表面粗さが0.5 μ m未満である場合には、セラミックス蛍光体から放出された光が空気との界面で全反射し易く、発光強度が低下する。一方、上記平均表面粗さが150 μ mを超えると、表面粗さが緩すぎて光の波長に対して実質的に鏡面のように作用し光の散乱が大きくなる。

[0021] さらに、上記発光装置において、前記セラミックス蛍光体の外表面の平均表面粗さが算術平均粗さRaで0.5~150 μ mであることが好ましい。セラミックス蛍光体の外表面は、波長変換された光が放出される面であり、この外表面の表面粗さを上記所定範囲に設定することにより、外表面での全反射や散乱を防止でき、発光強度を高めることができる。

[0022] 上述の表面粗さは機械的な加工、例えば、適当な粗度を有する表面を有する工具を用いた研磨、適当な粗度の刃面による切断などにより実現できる。また、エッチングにより表面を荒らす方法も考えられる。セラミックス蛍光体の場合には、粒界の存在や

、結晶粒毎の結晶方位の違いにより、場所毎にエッチング速度が異なり表面に粗さが生じる。

[0023] また上記発光装置において、前記セラミックス蛍光体の少なくとも一部の表面に最大高さが0.15～2mmである突起物が形成されていることが好ましい。

[0024] さらに上記発光装置において、前記セラミックス蛍光体の外表面に最大高さが0.15～2mmである突起物が形成されていることが好ましい。

[0025] 上記所定高さを有する突起物も前記所定範囲の表面粗さを有する凹凸と同様な作用効果を生じるものであり、この突起物の高さが0.15mm未満である場合には、セラミックス蛍光体から放出された光が空気との界面で全反射し易く、発光強度が低下する。一方、上記突起物の高さが2mmを超えると、突起物が大き過ぎて光の波長に対して突起物表面が実質的に鏡面のように作用し光の散乱が大きくなる。

[0026] また、前記表面粗さの作用と同様に、セラミックス蛍光体の外表面における突起物の高さを上記所定範囲に設定することにより、外表面での全反射や散乱を防止でき、発光強度を高めることができる。

[0027] 一般に、蛍光体に機械的加工を加えるとメカニカルダメージによりセラミックス蛍光体の透明性が低下するおそれがある。このような場合には、機械加工の後に適当な熱処理を施すことにより、透明性低下の原因である歪を緩和させることが可能になり透明性を回復させることができ有効である。

[0028] 前記のような透明度の高いセラミックス蛍光体は所定の波長光を放出する蛍光体粉末を成形した後に焼成して焼結体として製造される。特に、透明度が高いセラミックス蛍光体を得るためには、焼結体の密度を高くすることが重要である。具体的に焼結体の相対密度は、99.50%以上99.98%以下の範囲が望ましい。焼結体の相対密度が99.50%未満では、焼結体内部に存在する空隙での散乱などの影響で透明度が低下してしまう。一方、相対密度が99.98%を超える焼結体を実現しようとする、不純物量を著しく低下させるために不純物管理を厳重にしたり、HIP(熱間静水圧プレス)やホットプレスなどの焼結条件を高温にしたりする必要があり、工業的に好ましくない。

[0029] 本発明のように、蛍光体粉末との比重差が大きい樹脂と蛍光体粉末とを混合したス

ラリーを用いず、蛍光体粉末を焼結した固体のセラミック蛍光体を用いることにより、スラリーにおける蛍光体粉末の濃度および注入量の管理が不要となり、発光装置間における発光の色調を均一にすることができる。

[0030] 前記セラミックス蛍光体の組成は、特に限定されるものではないが、母体組成が、珪酸塩、アルミン酸塩、リン酸塩、ハロリン酸塩、ホウ酸塩、酸化物、タンゲステン酸塩、バナジン酸塩、酸硫化物、硫化物、窒化物、酸窒化物である蛍光体の1種または2種以上が好適に用いられる。より具体的には、青色発光を吸収して発光する蛍光体として、黄色発光の $(\text{Sr}, \text{Ba}, \text{Ca})_2\text{SiO}_4:\text{Eu}$ 、 $(\text{Y}, \text{Gd})_3(\text{Al}, \text{Ga})_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$ 、 $\text{SrGa}_2\text{S}_4:\text{Eu}$ があり、赤色発光の $3.5\text{MgO} \cdot 0.5\text{MgF}_2 \cdot \text{GeO}_2:\text{Mn}$ があげられる。また、紫外線を吸収して発光する蛍光体として、赤色発光の $\text{La}_2\text{O}_2\text{S}:\text{Eu}$ 、 Sm 、緑色発光の $\text{BaMgAl}_{10}\text{O}_{17}:\text{Eu}$ 、 Mn 、青色発光の $(\text{Sr}, \text{Ca})_5(\text{PO}_4)_3\text{Cl}:\text{Eu}$ 、黄色発光の $(\text{Sr}, \text{Ba}, \text{Ca})_2\text{SiO}_4:\text{Eu}$ 、が好適に用いられる。

[0031] 上述のセラミックス蛍光体の作製方法としては、例えば、以下に示す製造方法を適用することができる。例えば、共沈法、固相反応法、および各種ガスと固体との気相反応法などにより蛍光体粉末を得る。さらに、その作製した粉末を、その材料に応じた高温で焼成し、粒径、組成、均一性、内部欠陥などを調整する。なお、粉体粒子を樹脂中に分散させて半導体発光素子の周囲に配置する場合の蛍光体の組成と本発明の焼結体をおく場合とを比較すると、蛍光体組成中の付活剤の濃度が、後者において少ない部位に発光が最大になる最適値が存在する。

[0032] 例えば、黄色発光の $(\text{Sr}, \text{Ba}, \text{Ca})_2\text{SiO}_4:\text{Eu}$ の作製に際しては、まず、炭酸ストロンチウム、炭酸バリウム、炭酸カルシウム、酸化ユーロピウムおよびシリカから成る蛍光体原料を所定量秤量し、結晶成長剤の塩化アンモニウムを蛍光体原料に対して2重量%の割合で添加して十分に混合する。次に、この混合物をアルミナ製るつぼに充填し、空气中で温度600℃で1時間の条件で仮焼する。冷却後、るつぼ中の原料を十分に混合する。次に、この混合物をアルミナ製るつぼに充填し、水素／窒素から成る還元雰囲気中で温度1200℃で2時間の条件で焼成する。さらに、得られた焼成物を粉砕し水洗した後に乾燥し、目開きが30 μm のふるいを通すことにより目的とする蛍光体粉末が得られる。

- [0033] また、赤色発光の $\text{La}_2\text{O}_2\text{S}:\text{Eu}, \text{Sm}$ の作製に際しては、まず、酸化ランタン、酸化ユーロピウムおよび酸化サマリウムを適量を硝酸に溶解し、この溶液にシュウ酸溶液を加えてシュウ酸塩共沈殿物を得る。これを空気中における温度 1000°C の焼成によって酸化物とする。この酸化物と硫黄と炭酸ナトリウムと燐酸アルカリ粉末との所定量を混合する。得られた混合物を、アルミナ製るつぼに充填し、気密性が良好となる蓋を装着して温度 1100°C で5時間焼成する。得られた焼成物を十分に水洗し、乾燥した後、ふるいを通すことにより目的とする蛍光体が得られる。
- [0034] 上述したような蛍光体の混合粉末をラバープレスで適当な形に成形して成形体とした後に、金属容器などに成形体を充填封入してHIP処理を施すことにより、透明なセラミックス蛍光体が得られる。この時のHIP温度(焼結温度)は、対象とする材料により異なるが、適当な温度範囲が存在する。一般に、その温度範囲より低すぎると結晶粒の成長が不十分となり、相対密度も低く、空隙などによる散乱が多くなるため、セラミックス蛍光体の透明性が損なわれる。一方、HIP温度が過度に高いと、結晶粒の成長が急激に起こるため結晶粒が粗大化し、粒界の影響により同様にセラミックス蛍光体の透明性が低下する。なお、HIP処理でなく高温焼成のみによってもセラミックス蛍光体の焼結体を作ることできる。
- [0035] $(\text{Sr}, \text{Ba}, \text{Ca})_2\text{SiO}_4:\text{Eu}$ の組成を有するセラミックス蛍光体を調製する場合を例にとって具体的に条件を説明すると、HIP温度は $1000\sim 1500^\circ\text{C}$ の範囲とすることが好ましい。より好ましいHIP温度は $1200\sim 1300^\circ\text{C}$ の範囲である。また、HIP圧力は 98MPa 以上とする。HIP圧力が 98MPa 未満であると、HIP処理による緻密化効果を十分に得ることができない。HIP時間はHIP温度およびHIP圧力にもよるが、HIP温度が $1200\sim 1300^\circ\text{C}$ であると共に、HIP圧力を 98MPa 以上とした場合には、HIP時間は $5\sim 7$ 時間の範囲とすることが好ましい。
- [0036] $\text{La}_2\text{O}_2\text{S}:\text{Eu}, \text{Sm}$ の組成を有するセラミックス蛍光体を調製する場合には、HIP温度は $1200\sim 1500^\circ\text{C}$ の範囲とすることが好ましい。より好ましいHIP温度は $1300\sim 1400^\circ\text{C}$ の範囲である。HIP温度が $1300\sim 1400^\circ\text{C}$ でありHIP圧力を 98MPa 以上とした場合には、HIP時間は $5\sim 7$ 時間の範囲とすることが好ましい。
- [0037] このように調製した焼結体を、例えばダイシング加工などを用いて所定の形状に機

械加工し、必要に応じて不活性ガス雰囲気中で熱処理を実施することによりセラミックス蛍光体が得られる。

- [0038] また前記発光装置において、図3に示すように前記セラミックス蛍光体11bが先端方向に縮径する砲弾形状に形成されていることが好ましい。この場合、半導体発光素子2から放出された発光はセラミックス蛍光体11bと外部雰囲気との界面において中心方向に屈折して放出されるために、本来の発光方向に光束を揃えられる、いわゆるレンズ効果が発揮される結果、正面方向への放射光強度を高めることができる。
- [0039] さらに上記発光装置において、前記セラミックス蛍光体の外表面以外の部分が反射材に被覆されていることが好ましい。反射材としては、厚さが数 μ m程度のアルミニウム(Al)や銀(Ag)の薄膜が好適である。このようにセラミックス蛍光体の外表面以外の側面部等に上記反射材を形成することにより、セラミックス蛍光体の側面部から逸散する発光を効果的に本来の照射方向に反射させることが可能になり、装置全体における発光強度を高めることができる。
- [0040] また前記発光装置において、前記セラミックス蛍光体は、組成が異なる複数のセラミックス蛍光体層を積層して形成されるように構成することもできる。本発明で使用するセラミックス蛍光体は、前記のように青色、緑色、赤色の各発光色のそれぞれを均一に混合した状態で焼結して形成された一体の蛍光体としても良いが、組成が異なる複数のセラミックス蛍光体層を積層して構成することにより、照射方向に対して直角の方向における各蛍光体成分の配置割合を一定にすることができる。
- [0041] 以上のように本発明に係る発光装置によれば、発光効率が高く工業的生産性に優れた発光素子を提供することが可能となる。また蛍光体を含むすべての部品を固体化することが可能になるために、発光装置の工業的な生産効率が著しく向上する。

発明を実施するための最良の形態

- [0042] 次に本発明の実施形態について以下の実施例に基づいて、より具体的に説明する。

[0043] [実施例1]

炭酸ストロンチウムを0.9モルと、炭酸バリウムを0.08モルと、炭酸カルシウムを0.02モルと、酸化ユーロピウムを0.001モルと、シリカを0.5モルとの割合から成る蛍

光体原料を秤量し、この蛍光体原料に2質量%の塩化アンモニウムを添加して十分に混合した。次に、この混合物をアルミナ製るつぼに充填し、空気中において温度600℃で1時間の条件で仮焼した。冷却後、るつぼ中の原料を十分に混合した。さらに、この混合物をアルミナ製るつぼに充填し、3%水素／窒素から成る還元雰囲気中において温度1200℃で2時間の条件で焼成した。得られた焼成物を粉碎・水洗した後乾燥し、さらに目開きが30 μ mのふるいを通すことによりセラミックス蛍光体粉末を得た。この蛍光体粉末をラバープレス法により成形した後に、ニッケル金属容器に充填し真空ベーキング封入し、温度が1200℃で加圧力が150MPaの条件でHIP処理を実施した。このHIP処理の完了後に金属容器を破ってインゴットを取り出し、ダイシング加工により直径が2mmで厚さTが0.4mmである円板状のセラミックス蛍光体11の焼結体を切り出した。この焼結体の密度は真比重に対して99.8%であり、波長570nmにおける光透過率は60%であり、波長470nmにおける光透過率は40%であった。また、セラミックス蛍光体の上下面の表面粗さRaは50 μ mであった。

[0044] 一方、発光ピーク波長が470nmであり、寸法が200 μ m×200 μ mのフリップチップ型半導体発光ダイオードを用意すると共に、底面と壁面に厚さ3 μ mのAl蒸着膜から成る白色の反射材12を有する2mm径のパッケージ容器を用意した。上記の円板状のセラミックス蛍光体11をパッケージ容器の底面の中心に位置決めし、間に空気が混入しない程度に薄いエポキシ樹脂から成る接着剤で接着した。

[0045] 図1は、上記のように調製されたフリップチップ構造を有する実施例1に係る発光装置1aの断面図である。なお、図4に示す従来の発光装置1と同一の構成要素には同一符号を付している。本実施例に係る発光装置1aは、半導体発光素子2としての発光ダイオードと、例えば透明な接着剤により半導体発光素子2の上面側に固着されたセラミックス蛍光体11とを備えている。半導体発光素子2は、第1リード3上に接着剤4などで接着されている。半導体発光素子2の上面に設けられた第1の電極は、ボンディングワイヤ5によって第1リード3に接続されている。また、半導体発光素子2の上面に設けられた第2の電極は、ボンディングワイヤ6によって第2リード7に接続されている。上記第1リード3および第2リード7は、予めリードフレーム上に連結された状態で、熱可塑性樹脂8などを用いて射出成形などにより埋め込まれて固定されている。

第1リード3および第2リード7上には、半導体発光素子2を収容する凹部を形成する熱可塑性樹脂8が配置されて構成される。

[0046] 上記構成の実施例1に係る発光装置1aにおいて、半導体発光素子2から放射された光は、セラミックス蛍光体11を透過する際に波長変換されて可視光等としてセラミックス蛍光体11から放出される。この発光装置1aに3.5V、20mAの電力を入力したときの発光出力は $600\text{mCd}/\text{m}^2$ であり、発光色度は $x=0.27$ 、 $y=0.25$ であった。以上のように、本実施例によれば、使用する波長光に対して所定の透明度を有するセラミックス蛍光体11を用いているため、蛍光体内部で発光した光が不透明蛍光体粉末により吸収・散乱されることなく有効に発光装置外部に取り出すことができる。また、蛍光体の樹脂懸濁液を用いることなく、蛍光体を含むすべての部品を固体化できるため、発光装置の工業的な生産効率を著しく向上させることができた。

[0047] [実施例2～4]

実施例1において調製した円板状のセラミックス蛍光体11焼結体の厚さのみを表1に示すように変化させた点以外は実施例1と同様な条件でセラミックス蛍光体11を調製し、各セラミックス蛍光体11をパッケージ容器の底面の中心に装着して図1に示す実施例1と同一構造を有する実施例2～4に係る発光装置を調製した。

[0048] このように調製した各発光装置1aについて、実施例1と同一条件で電力を入力した時の発光出力および発光色度を測定して下記表1に示す結果を得た。

[0049] 【表1】

試料No.	セラミックス蛍光体(焼結体)の厚さ (mm)	発光出力 (mCd/m^2)	発光色度 (x, y)
実施例2	0.6	650	0.31, 0.30
実施例3	0.8	680	0.33, 0.34
実施例4	1.0	700	0.35, 0.36

上記表1に示す結果から明らかなように、所定の透明度を有するセラミックス蛍光体11を用いた各実施例に係る発光装置においては、セラミックス蛍光体内部で発光した光が不透明蛍光体粉末により吸収・散乱されることなく高い発光出力で有効に発光装置外部に取り出すことができ、発光色度も良好であることが判明した。

[0050] [比較例1]

実施例1で用いた蛍光体粉末を6mg秤量した。この量は実施例1に用いたセラミッ

クス蛍光体の量と同じである。この蛍光体粉末をエポキシ樹脂内に分散せしめた懸濁液をパッケージ容器内に配置した半導体発光ダイオード2の上に充填することにより、比較例1に係る従来の発光装置を調製した。この発光装置を実施例1と同一の給電条件で動作させた時の発光装置の発光出力(光度)は $100\text{mCd}/\text{m}^2$ であり、発光色度は $x=0.48$ 、 $y=0.51$ であった。各実施例1～4と比較して、発光出力が低下し発光色度もほとんど蛍光体のみの発光色となり白色からはずれてしまうことが確認された。

[0051] [実施例5]

蛍光体原料における酸化ユーロピウム(III)の割合を酸化ユーロピウム(III)を0.004モルとした点以外は実施例1と同一条件で原料混合・成形・焼成を実施して円板状のセラミックス蛍光体を焼結体として作製した。この焼結体の密度(相対密度)は真比重に対して99.8%であり、波長570nmにおける光透過率は40%であり、波長395nmにおける光透過率は2%であった。また、円板状セラミックス蛍光体の上下面の表面粗さ R_a は $50\mu\text{m}$ であった。

[0052] 一方、発光ピーク波長が395nmであり、外径寸法が $200\mu\text{m}\times 200\mu\text{m}$ であるフリップチップ型半導体発光ダイオードを底面の中心に有し、底面と壁面に実施例1と同様の白色の反射材12を有する2mm径のパッケージ容器を用意し、上記の円板状のセラミックス蛍光体を空気が混入しない程度に薄いシリコン樹脂で接着することにより、図1に示すような実施例5に係る発光装置1aを調製した。

[0053] この発光装置1aに3.5V、20mAの電力を入力したときの発光出力は $350\text{mCd}/\text{m}^2$ であり、発光色度は $x=0.46$ 、 $y=0.45$ であった。また、装置からの紫外線出力(放射紫外線比)はセラミックス蛍光体としての焼結体を装着しない時を基準として2%であった。

[0054] 以上のように実施例5によれば、使用する波長光に対して所定の透明度を有するセラミックス蛍光体11を用いているため、実施例1と同様に、蛍光体内部で発光した光が不透明蛍光体粉末により吸収・散乱されことなく有効に発光装置外部に取り出すことができた。

[0055] [実施例6～8]

実施例5において調製した円板状のセラミックス蛍光体11焼結体の厚さのみを表2に示すように変化させた点以外は実施例5と同様な条件でセラミックス蛍光体11を調製し、各セラミックス蛍光体11をパッケージ容器の底面の中心に装着して図1に示す実施例5と同一構造を有する実施例6～8に係る発光装置を調製した。

[0056] このように調製した各発光装置1aについて、実施例5と同一条件で電力を入力した時の発光出力および紫外線量を測定して下記表2に示す結果を得た。

[0057] 【表2】

試料No.	セラミックス蛍光体(焼結体)の厚さ (mm)	発光出力 (mCd/m ²)	紫外線量 (%)
実施例6	0.3	300	10
実施例7	0.8	370	0.5
実施例8	1.3	400	0.1

上記表2に示す結果から明らかなように、発光装置から放出される紫外線(UV)の透過量が少ない方が、より高い発光出力を実現できることが判明した。

[0058] [比較例2～4]

実施例5で調製した蛍光体粉末の含有量(充填量)を表3に示すように変化させた点以外は実施例5と同様に発光ダイオードパッケージに蛍光体粉末を充填することにより、比較例2～4に係る発光装置を調製した。

[0059] このように調製した各発光装置1aについて、実施例5と同一条件で電力を入力した時の発光出力および紫外線量を測定して下記表3に示す結果を得た。

[0060] 【表3】

試料No.	充填量 (mg)	発光出力 (mCd/m ²)	紫外線量 (%)
比較例2	0.8	200	60
比較例3	1.6	250	20
比較例4	2.4	150	5

上記表3に示す結果から明らかなように、蛍光体のパッケージへの充填量を、発光装置での発光出力が高くなるように最適にした場合でも、発光装置から放出される紫外線量が多くなることが確認された。

[0061] [比較例5～9]

蛍光体原料の酸化ユーロピウムの配合割合を0.01モルとした点以外は実施例1と

同様な条件で蛍光体粉末を作製し、その充填量を表4に示すように変化させて実施例5で使用した発光ダイオードパッケージに充填することにより、比較例5～9に係る発光装置を調製した。ここで上記充填量は実施例5での充填量を100%として相対的な重量割合で示した。

[0062] このように調製した各発光装置1aについて、実施例5と同一条件で電力を入力した時の発光装置の発光出力および紫外線量を測定して下記表4に示す結果を得た。

[0063]

【表4】

試料No.	充填量 (%)	発光出力 (mCd/m ²)	紫外線量 (%)
比較例5	10	200	50
比較例6	20	260	35
比較例7	30	245	12
比較例8	40	200	1.5
比較例9	50	145	1

上記表4に示す結果から明らかなように、蛍光体粉末のパッケージへの充填量を最適濃度にしても可視光出力が最大になる充填量で紫外線出力は相当大きく、発光素子から放出される紫外線の利用効率が低くなることが判明した。

[0064] [実施例9～11]

酸化ランタンを0.98モルと、酸化ユーロピウムを0.01モルと、酸化サマリウムを0.01モルとの割合で各酸化物を秤量して硝酸に溶解した。この溶液にシュウ酸溶液を加えてシュウ酸塩共沈殿物を得た。この沈殿物を空気中において温度1000℃で焼成することによって酸化物を得た。この酸化物100gに対して硫黄を50gと炭酸ナトリウムを50gと磷酸カリウムを14gとを混合した。得られた混合物を、アルミナ製のつぼに充填し、気密性を有する蓋を装着して温度1100℃で5時間焼成した。得られた焼成物を十分に水洗して乾燥した後に、ふるいを通してLa₂O₃S:Eu, Smなる組成の赤色発光蛍光体粉末を得た。

[0065] 上述した蛍光体粉末をラバープレスで成形した後、タンタル金属容器中に充填封入し、温度が1380℃であり、加圧力が200MPaの条件でHIP処理を実施した。HIP処理後に金属容器を破ってインゴットを取り出し、表5に示すように厚さを変えて直径が2mmである円板状の焼結体をセラミックス蛍光体として切り出した。この焼結体の

密度は真比重に対して99.9%であり、波長630nmにおける光透過率は60%であり、波長395nmにおける光透過率は、厚さ0.5mmのとき20%であった。また、円板状セラミックス蛍光体の上下面の表面粗さRaは50 μm であった。この焼結体を実施例5と同じようにしてパッケージにそれぞれ装着することにより、実施例9～11に係る発光装置を調製した。得られた発光装置の赤色出力結果を下記表5に示す。

[0066]

【表5】

試料No.	セラミックス蛍光体(焼結体)の厚さ (mm)	発光出力 (mCd/m ²)	紫外線量 (%)
実施例9	0.3	90	40
実施例10	0.8	170	10
実施例11	1.2	180	3

上記表5に示す結果から明らかなように、紫外線量がゼロに近づくに伴って発光出力が最大になる傾向が確認でき、発光素子から放出される紫外線の利用効率が高くなることが判明した。

[0067]

上記各実施例においては、図1に示すように、半導体発光素子を中心部に配置した発光ダイオードパッケージに円板型の固形セラミックス蛍光体を装着した発光装置を例にとって説明しているが、本発明はこれに限定されない。例えば、図2に示すように、LED素子等の半導体発光素子2を配置した樹脂基板13の頂部に半球状のセラミックス蛍光体11aを装着して構成することもできる。また、図3に示すように、LED素子等の半導体発光素子2を配置した樹脂基板13の頂部に、先端方向に縮径する砲弾形状に形成されているセラミックス蛍光体11bを装着して構成することもできる。特に砲弾型のセラミックス蛍光体11bを使用した場合には、半導体発光素子2から放出された発光はセラミックス蛍光体11bと外部雰囲気との界面において中心方向に屈折して放出されるために、本来の発光方向に光束を揃えられる、いわゆるレンズ効果が発揮される結果、正面方向への放射光強度を高めることができる。

産業上の利用可能性

[0068]

以上説明の通り、本発明に係る発光装置によれば、発光効率が高く工業的生産性に優れた発光素子を提供することが可能となる。また蛍光体を含むすべての部品を固体化することが可能になるために、発光装置の工業的な生産効率が著しく向上す

る。

図面の簡単な説明

[0069] [図1]本発明に係る発光装置の一実施例を示す断面図。

[図2]セラミックス蛍光体を半球状に形成した発光装置の実施例を示す断面図。

[図3]セラミックス蛍光体を砲弾状に形成した発光装置の実施例を示す断面図。

[図4]半導体発光素子と、この素子の周囲に樹脂材を介して分散された蛍光体粉末とを備える従来の発光装置の構成例を示す断面図。

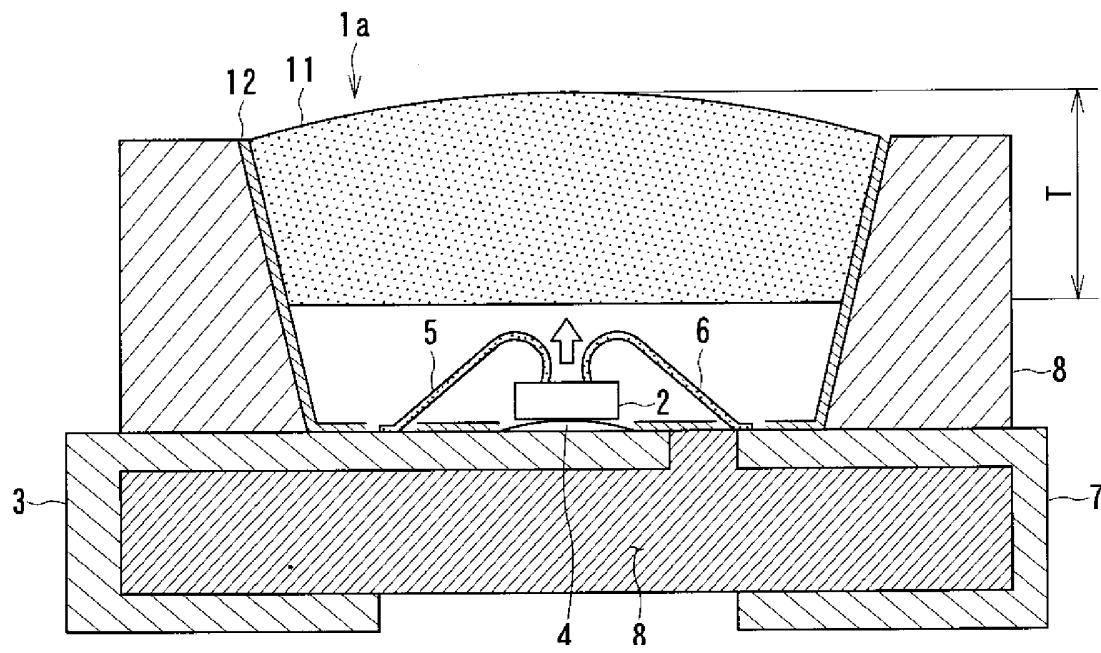
請求の範囲

- [1] 半導体発光素子と、この半導体発光素子からの発光を波長変換する透明なセラミックス蛍光体とを備えた発光装置であり、上記半導体発光素子は紫外光を発光し、この紫外光を発光する半導体発光素子に対応した上記セラミックス蛍光体は、波長350～420nmにおける光透過率の最低値が0.1%以上40%以下であり、かつセラミックス蛍光体の主発光波長における光透過率が10%以上90%以下であることを特徴とする発光装置。
- [2] 半導体発光素子と、この半導体発光素子からの発光を波長変換する透明なセラミックス蛍光体を備えた発光装置であり、上記半導体発光素子は青色光を発光し、この青色光を発光する半導体発光素子に対応した上記セラミックス蛍光体は、波長420～500nmにおける光透過率の最低値が20%以上80%以下であり、かつセラミックス蛍光体の主発光波長における光透過率が10%以上90%以下であることを特徴とする発光装置。
- [3] 前記セラミックス蛍光体の少なくとも一部の表面の平均表面粗さが算術平均粗さRaで0.5～150 μ mの範囲であることを特徴とする請求項1または2記載の発光装置。
- [4] 前記セラミックス蛍光体の外表面の平均表面粗さが算術平均粗さRaで0.5～150 μ mであることを特徴とする請求項1または2記載の発光装置。
- [5] 前記セラミックス蛍光体の少なくとも一部の表面に最大高さが0.15～2mmである突起物が形成されていることを特徴とする請求項1または2記載の発光装置。
- [6] 前記セラミックス蛍光体の外表面に最大高さが0.15～2mmである突起物が形成されていることを特徴とする請求項1または2記載の発光装置。
- [7] 前記セラミックス蛍光体の相対密度が99.50%以上99.98%以下であることを特徴とする請求項1～6のいずれかに記載の発光装置。
- [8] 前記セラミックス蛍光体先端方向に縮径する砲弾形状に形成されていることを特徴とする請求項1～7のいずれかに記載の発光装置。
- [9] 前記セラミックス蛍光体の外表面以外の部分が反射材に被覆されていることを特徴とする請求項1～8のいずれかに記載の発光装置。
- [10] 前記セラミックス蛍光体は、組成が異なる複数のセラミックス蛍光体層を積層して形

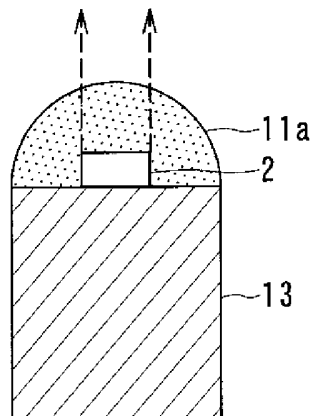
成されていることを特徴とする請求項1～9のいずれかに記載の発光装置。

- [11] 前記セラミックス蛍光体の少なくとも一部の母体組成が、珪酸塩、アルミン酸塩、リン酸塩、ハロリン酸塩、ホウ酸塩、酸化物、タングステン酸塩、バナジン酸塩、酸硫化物、硫化物、窒化物、酸窒化物のいずれかであることを特徴とする請求項1～10のいずれかに記載の発光装置。

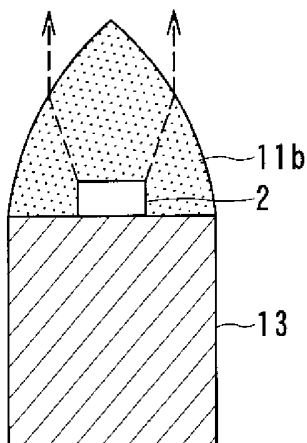
[図1]



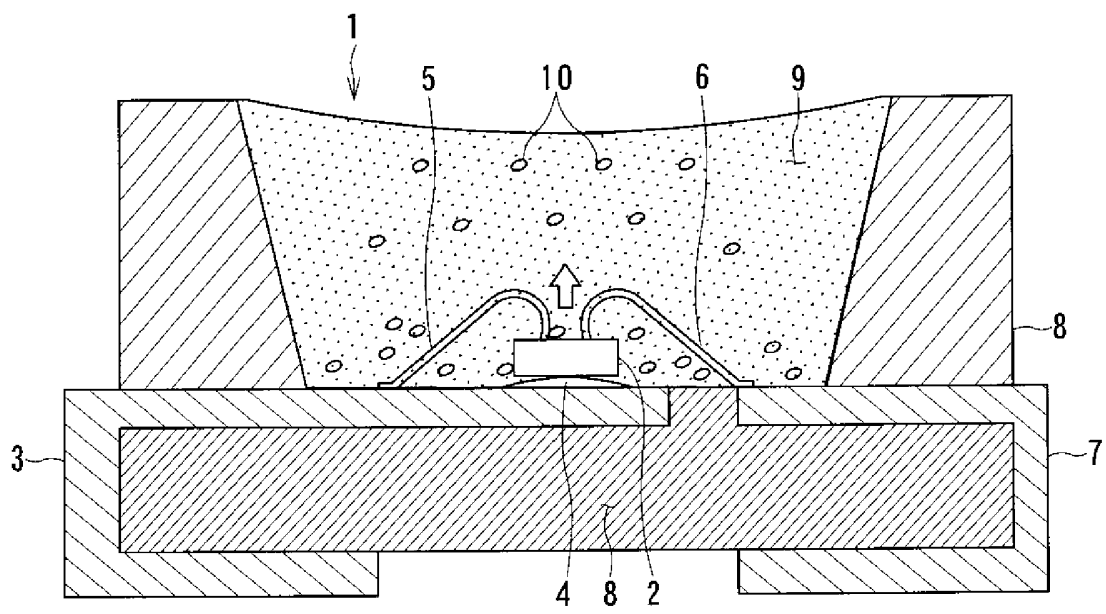
[図2]



[図3]



[図4]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2006/303248

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01L33/00 (2006.01)

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)

H01L33/00 (2006.01), **C09K11/00-11/89** (2006.01)

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	1996-2006
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2006	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2006

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2002-141559 A (Sanken Electric Co., Ltd.), 17 May, 2002 (17.05.02), Figs. 1, 5 to 8; Par. Nos. [0017] to [0027] (Family: none)	1-11
A	JP 10-036833 A (NEC Kansai, Ltd.), 10 February, 1998 (10.02.98), Fig. 1; full text (Family: none)	1-11
P, X	JP 2005-255747 A (Kabushiki Kaisha Fainraba Kenkyusho), 22 September, 2005 (22.09.05), Full text; all drawings (Family: none)	1-11

☐ 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
09 March, 2006 (09.03.06)Date of mailing of the international search report
20 March, 2006 (20.03.06)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. H01L33/00(2006.01)

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 (IPC))

Int.Cl. H01L33/00(2006.01), C09K11/00-11/89(2006.01)

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	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2006年
日本国実用新案登録公報	1996-2006年
日本国登録実用新案公報	1994-2006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)

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 請求の範囲の番号
X	JP 2002-141559 A (サンケン電気株式会社) 2002.05.17, 図1, 図5-8, 段落【0017】 - 【0027】 (ファミリーなし)	1-11
A	JP 10-036833 A (関西日本電気株式会社) 1998.02.10, 図1, 全文 (ファミリーなし)	1-11
P, X	JP 2005-255747 A (株式会社ファインラバー研究所) 2005.09.22, 全文, 全図 (ファミリーなし)	1-11

☐ 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

09.03.2006

国際調査報告の発送日

20.03.2006

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)
郵便番号100-8915
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)

門田 かづよ

電話番号 03-3581-1101 内線 3255

2K

3412