

(19) 日本国特許庁(JP)

## (12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第5328657号  
(P5328657)

(45) 発行日 平成25年10月30日(2013.10.30)

(24) 登録日 平成25年8月2日(2013.8.2)

(51) Int.Cl.

H01L 33/50 (2010.01)

F 1

H01L 33/00 410

請求項の数 20 (全 8 頁)

(21) 出願番号 特願2009-535024 (P2009-535024)  
 (86) (22) 出願日 平成19年10月31日 (2007.10.31)  
 (65) 公表番号 特表2010-508665 (P2010-508665A)  
 (43) 公表日 平成22年3月18日 (2010.3.18)  
 (86) 國際出願番号 PCT/EP2007/009471  
 (87) 國際公開番号 WO2008/052772  
 (87) 國際公開日 平成20年5月8日 (2008.5.8)  
 審査請求日 平成22年7月16日 (2010.7.16)  
 (31) 優先権主張番号 102006051756.3  
 (32) 優先日 平成18年11月2日 (2006.11.2)  
 (33) 優先権主張国 ドイツ (DE)

(73) 特許権者 390040420  
 マックス-プランク-ゲゼルシャフト・ツ  
 ア・フェルデルング・デア・ヴィッセンシ  
 ャフテン・エー・ファオ  
 Max-Planck-Gesellsc  
 haft zur Foerderung  
 der Wissenschaften  
 e. V.  
 ドイツ80539ミュンヘン、ホーフガル  
 テンシュトラーゼ8番  
 (74) 代理人 100061815  
 弁理士 矢野 敏雄  
 (74) 代理人 100099483  
 弁理士 久野 琢也

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】光源

## (57) 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

(i) 第1の放射源及び

(ii) 無定形の又は部分結晶性の網目を基礎とする発光物質層を含み、この網目がN、Si及びBの元素からなり、その際、この網目中に少なくとも1種の活性化剤が組み込まれており、部分結晶性の網目が直径100nmを有する微結晶を有しない、光源。

## 【請求項 2】

活性化剤が、Ba、Zn、Mn、Eu、Ce、Pr、Nd、Sm、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、Sn、Sb、Pb又は/及びBiから選択されていることを特徴とする、請求項1記載の光源。 10

## 【請求項 3】

発光物質層が、 $Si_3N_4$ の組成の網目を基礎とすることを特徴とする、請求項1又は2記載の光源。

## 【請求項 4】

第1の放射源が、250nm~450nmの波長範囲の光を放出することを特徴とする、請求項1から3までのいずれか1項記載の光源。

## 【請求項 5】

第1の放射源が、LEDであることを特徴とする、請求項1から4までのいずれか1項記載の光源。

## 【請求項 6】

第1の放射源が、GaN又はGa(In)N-LEDであることを特徴とする、請求項5記載の光源。

## 【請求項 7】

発光物質層が、直接的に又は非直接的に、第1の放射源と接触していることを特徴とする、請求項1から6までのいずれか1項記載の光源。

## 【請求項 8】

発光物質層が、光を480～740nmの波長で放出する発光物質を含有することを特徴とする、請求項1から7までのいずれか1項記載の光源。

## 【請求項 9】

発光物質層が、更に固体粒子を含有することを特徴とする、請求項1から8までのいずれか1項記載の光源。

## 【請求項 10】

固体粒子が、SiO<sub>2</sub>、TiO<sub>2</sub>、SnO<sub>2</sub>、ZrO<sub>2</sub>、HfO<sub>2</sub>又は/及びTa<sub>2</sub>O<sub>5</sub>から選択されていることを特徴とする、請求項9記載の光源。

## 【請求項 11】

発光物質層が、200～3000nmの層厚を有することを特徴とする、請求項1から10までのいずれか1項記載の光源。

## 【請求項 12】

発光物質前駆体が、液状の形態で又は懸濁体として、第1の放射源に直接的に又は非直接的に設けられ、かつ、引き続き硬化されることを特徴とする、請求項1から11までのいずれか1項記載の光源の製造方法。

## 【請求項 13】

発光物質が、プレセラミック材料として設けられることを特徴とする、請求項12記載の方法。

## 【請求項 14】

発光物質が、分子状前駆体から形成されることを特徴とする、請求項12又は13記載の方法。

## 【請求項 15】

分子状前駆体が、一成分前駆体であり、C<sub>1</sub><sub>3</sub>Si(NH)BCl<sub>2</sub>(TABD)、(C<sub>1</sub><sub>3</sub>Si)<sub>2</sub>NBCl<sub>2</sub>、C<sub>1</sub><sub>3</sub>SiN(BCl<sub>2</sub>)<sub>2</sub>、(H<sub>3</sub>Si)<sub>2</sub>NBCl<sub>2</sub>、C<sub>1</sub><sub>3</sub>Si(NH)(BCl)(NH)SiCl<sub>3</sub>又は[(C<sub>1</sub><sub>3</sub>Si)(NH)(BNH)]<sub>3</sub>から選択されていることを特徴とする、請求項14記載の方法。

## 【請求項 16】

発光物質前駆体が、浸漬コーティングにより、スピンコーティングにより、又は、吹付けコーティングにより設けられることを特徴とする、請求項12から15までのいずれか1項記載の方法。

## 【請求項 17】

発光物質前駆体の粘度が、0.01～10Pa.sに調節されることを特徴とする、請求項12から16までのいずれか1項記載の方法。

## 【請求項 18】

発光物質が、複数の層で設けられることを特徴とする、請求項12から17までのいずれか1項記載の方法。

## 【請求項 19】

発光物質前駆体が、熱分解により硬化されることを特徴とする、請求項12から18までのいずれか1項記載の方法。

## 【請求項 20】

請求項1に定義されるような発光物質層を含有する、波長変換材料。

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

10

20

30

40

50

**【0001】****発明の詳細な説明**

本発明は、第1の放射源及び発光物質を含有する光源並びにこのような光源の製造方法に関する。本発明は、特に、1種又は数種の可視可能なスペクトル範囲で発光する発光物質及び少なくとも1種の有利にはUVで発光する、有利には排他的でなく、LEDである第1の源を使用した、電気的光源の製造方法に関する。

**【0002】**

少なくとも1つのLEDを基礎とする光源は、UVで発光する第1の源と1種又は数種の発光物質の組み合わせにより実現されていて、前記発光物質は、第1の源のUV光により励起され、かつ、可視可能なスペクトル範囲で発光する。例示的な実現化において、約460nmで発光するGa(In)N-LED及び黄色を発光する発光物質YAG:Ce<sup>3+</sup>(WO 98/12757)が使用される。純粋な白色光源の獲得が目的とされる場合には、複数の異なる発光物質、通常は、それぞれ1つの赤、緑及び青を発光する材料が使用される必要がある。これらは、技術水準によれば、そのつど最適な粒径に調節されなくてはならず、かつ、通常は、透過性の保護層を備えていなくてはならない。最後に、これは、混合物として又は単独で、ポリマーマトリックス中に埋め込まれて、第1源、例えば、Ga(In)N-LEDの上に設けられる(WO 2006/061778 A1及びU.S. 2003/0052595 A1)。この方法は、複数の独立した部分工程を含み、かつ、明らかに非常に手間がかかる。更に、発光体の高い寿命に興味をもたれる場合に、UV及び温度抵抗性並びに保護層及びポリマーマトリックスの光学的透明度に関して高い要求が課せられるべきである。特に、この製造方法は、この新規のLEDを基礎とする光源が、大量生産物となることを考慮すると、自動化した、従って、安価な製造のための高い可能性を有するべきである。

10  
20  
30

**【0003】**

本発明の課題は、従って、技術水準の上述した欠点を克服すること、かつ、とりわけ、容易に製造でき、かつ、白色光の発光を可能にする光源を提供することにある。

**【0004】**

この課題は、本発明により、

(i) 第1の放射源及び

(ii) 無定形の又は部分結晶性の網目を基礎となる発光物質層又は発光物質を含み、この網目が窒素(N)及びP、Si、B及びAlから選択された少なくとも2種の元素を含有し、その際、この網目中に少なくとも1種の活性化剤が組み込まれている、光源により解決される。

30

**【0005】**

本発明による光源は、成分(i)として第1の放射源を含む。この第1の放射源は、原則的に、任意の波長範囲において光を出す。有利には、これは、UV放射線、特に250nm~450nm、より有利には300~430nmの波長範囲のUV放射線を提供する。特に有利には、この第1の放射源の発光のピーク最大値は、示した範囲内にある。特に有利には、第1の放射源は、LED(発光ダイオード)、特にGaN又はGa(In)N-LEDである。この、第1の放射源により放出される光は、本明細書中で、第1の放射線と呼ばれる。

40

**【0006】**

更に、本発明による光源は、無定形の又は部分結晶性の網目を基礎とする発光物質層又は発光物質を含有し、その際、この網目は、N並びに、P、Si、B及びAlから選択された少なくとも2種の元素を含み、かつ、その際、この網目中に少なくとも1種の活性化剤が組み込まれている。

**【0007】**

この本発明により使用される発光物質は、特に、これが、結晶性の網目を基礎とする物質でなく、それどころか、無定形の又は部分結晶性の網目を基礎とする物質であることにより特徴付けられる。発光物質の形成のために使用される基礎材料は、網目を有し、これは特にX線無定形であり、つまり、これは直径300nmを有する微結晶、特に直径

50

200 nmを有する微結晶、更に一層有利には直径 100 nmを有する微結晶を有しない。この発光物質の基礎材料は、従って、とりわけいかなる長い範囲にわたる (langreichweit) 格子対称性を示さない。基礎材料の網目中には、発光物質では、更に、少なくとも 1 種の活性化剤が組み込まれている。市販の結晶性発光物質とは対照的に、この際、前もって基礎材料中に含有されているイオンの活性化剤との交換は行われず、活性化剤は付加的に組み込まれる。これは、本質的な利点、この任意の活性化剤が、同じマトリックス中に組み込まれることができ、従って、様々な活性化剤を含有する発光物質が調製されることができる、という利点を有する。

#### 【0008】

無定形の又は部分結晶性の網目を有する本発明による発光物質の基礎材料は、P、Si 10 、B、Al から選択された少なくとも 2 種の元素及びこれとは独立して常にNを含有する。特に、この網目は、元素P、Si、B、Al 及びN、又はそのつどの亜系P、Si、B 及びN、P、Si、Al 及びN、Si、B、Al 及びN、P、B、Al 及びN、P、Si 及びN、P、B 及びN、P、Al 及びN、Si、B 及びN、Si、Al 及びN 又はB、Al 及びN からなる。この網目中には、適した活性化剤が取り付けられ、かつ、組み込まれる。活性化剤として、特に任意の金属イオンが、この無機の無定形の又は部分結晶性の網目中に導入されることができる。有利な活性化剤元素は、Ba、Zn、Mn、Eu、Ce 20 、Pr、Nd、Sm、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、Sn、Sb、Pb 又はBi である。有利には、活性化剤は、Mn<sup>2+</sup>、Zn<sup>2+</sup>、Ba<sup>2+</sup>、Ce<sup>3+</sup>、Nd<sup>3+</sup>、Eu<sup>2+</sup>、Eu<sup>3+</sup>、Gd<sup>3+</sup>、Tb<sup>3+</sup>、Sn<sup>2+</sup>、Sb<sup>3+</sup>、Pb<sup>2+</sup>又はBi<sup>3+</sup>である。発光物質中の活性化剤の量は、有利には 0.1 質量%、特に 0.5 質量%、そして、有利には 14 質量%まで、特に 5 質量%までである。活性化剤は、また、増感剤機能を有することもできる。

#### 【0009】

発光物質は、有利には、480 ~ 740 nmの波長で発光する。有利には、この発光物質は、第1の放射線を可能な限り完全に吸収する。更に、この発光物質の発光される光が、吸収された光とは異なる波長を有することが有利である。本発明により交換が実施されず、活性化剤元素の導入が行われるので、発光物質中には活性化剤の任意の組み合わせも導入されることができ、かつ、これにより、特に、放出色が任意に調節される。特に有利には、この活性化剤は、白色光が放出されるように組み合わされる。

#### 【0010】

本発明により、特に有利には、適した活性化剤の組成 Si / B / N の無定形の三次元の網目中への組み込みが、行われる。この主たる材料は、全く周期的な格子系を有しない。

#### 【0011】

活性化剤のための、結晶の電界強度に対する有利な効果のために、そして、高い機械的及び熱的な安定性を達成するために、この基礎材料構造は、有利には窒化物の性質であり、これは場合により酸化物によりドープされていることができる。

#### 【0012】

本発明により、発光物質又は発光物質層は、更に、充填物を含有することができる。有利には、この固形粒子は、同時に光散乱的に作用する充填剤である。このような固形粒子は、例えば、SiO<sub>2</sub>、TiO<sub>2</sub>、SnO<sub>2</sub>、ZrO<sub>2</sub>、HfO<sub>2</sub>及び/又はTa<sub>2</sub>O<sub>5</sub>である。有利には、この固形粒子は、狭い粒径分布を有し、その際、この粒径分布の平均値は、そのつどの材料の屈折率に依存して、有利には、白色光が最適に散乱されるように選択される。

#### 【0013】

この発光物質又は発光物質層の層厚は、有利には 200 ~ 3000 nm、特に 300 ~ 2000 nm である。

#### 【0014】

本発明により、この発光物質層は、第1の放射源と直接的に接触し、即ち、直接的に、この第1の放射源に対して設けられている。しかしながら、この発光物質層を、第1の放射源と非直接的に配置することも可能であり、即ち、この第1の放射源と発光物質層との

10

20

30

40

50

間には更なる材料又は層が配置されている。有利には、第1の放射源のためのこの中間層又は中間材料は、完全に透過性である。

#### 【0015】

本発明は、更に、発光物質前駆体を液状の形態で又は懸濁液として、第1の放射源に直接的に又は非直接的に設け、引き続き硬化させることを特徴とする、本明細書中に記載されたような光源の製造方法に関する。

#### 【0016】

本発明は、特に、可視可能なスペクトル範囲で発光する発光物質での、第1の源の液相コーティングのための方法を提供する。本発明による方法は、無定形のマトリックスからなる発光物質の新規の種類を基礎とし、この中には、全ての考慮できる活性化剤が、幅広く変動可能な濃度で導入されることができる。この極めて有利な特徴部は、この活性化剤が置換的に、即ちマトリックス原子を置き換えるようにでなく、それどころか、相加的に組み込まれることにより、生じる。

10

#### 【0017】

発光物質の新規のこのクラスは、分子状前駆体から出発してオリゴマーの又はポリマーの中間段階、そして、引き続き、熱分解の工程を経て獲得される。この溶解された活性化剤を有するこの分子状前駆体又はこの部分架橋されたプレセラミック性のオリゴマーが液状である限りは、これは、例えば、浸漬コーティング (dipcoating)、スピンドルコーティング又は吹付けコーティングにより設けられ、アンモニア雰囲気中で加熱により、引き続き完全に架橋され、そして、熱分解により、固着 (festhaften) したセラミック層に移行する。

20

#### 【0018】

有利な一実施態様において、少なくとも1種の分枝状前駆体、少なくとも1種の活性化剤及び場合により充填剤からなる混合物が形成され、かつ、第1の源に設けられる。引き続き、硬化が、特にアンモノリシス及び引き続く熱分解により行われる。この第1の源に対して設けられるべき混合物の粘度は、この際、この充填剤の種類及び含有量により調節されることができる。

#### 【0019】

有利な更なる一実施態様において、同様に、少なくとも1種の分子状前駆体、少なくとも1種の活性化剤及び場合により充填剤からなる混合物が、第1の源に設けられ、その際、この混合物は、しかしながら、まず、所望の値に粘度を調節するために、部分硬化、例えば、部分アンモノリシスに付される。引き続き、この第1の源に対する設置及びこの後に続くこの完全な硬化は、例えば、アンモノリシス及び熱分解により行われる。

30

#### 【0020】

更なる有利な一実施態様において、まず、分子状前駆体、活性化剤及び場合により充填剤から、プレセラミックポリマーが形成される。このプレセラミックポリマーは、例えば、完全なアンモノリシスにより得られる。このプレセラミックポリマーは、次いで、第1の源に設けられる。液状のプレセラミックポリマーは、直接的に設けられることができる。このプレセラミックポリマーが樹脂性又は固形である場合には、有利には、プレセラミックポリマーの微粒状の懸濁液が、溶媒中で形成され、かつ、この懸濁液は、第1の源に設けられる。この溶媒は、次いで蒸発され、かつ、引き続き発光物質層は、例えば熱分解により硬化される。

40

#### 【0021】

更に、本発明により、この出発材料を、発光物質層のために慣用の固形の粉末状発光物質に混合することが可能である。このような混合により、発光の微細な調節が得られることができる。

#### 【0022】

本発明により使用される発光物質のベース材料は、特に、分子状前駆体により入手可能であり、これは、プレセラミック材料へと加工され、これは次いで熱分解により最終的なセラミック状態に移行する。この発光物質は、放射線源に対して、分子状前駆体の形態で

50

設けられるか又は分子状前駆体から形成されることがある。

【0023】

このためには、まず、1種又は数種の分子状前駆体が提供される。この分子状前駆体は、この際、ベース材料の元素、即ち、特に、P、Si、B及びAlから選択された少なくとも2種の元素、有利には少なくとも3種の元素を含有する。P、Si、B、Alに関するこの濃度は、この際、有利には、それぞれ、0～100原子%、より有利には10～80原子%に調節される。特に有利には、この分子状前駆体は、ハロゲン化物、有利には塩化物である。

【0024】

出発材料として、数種の分子状前駆体、特に、分子状前駆体の混合物を使用することが可能であり、これは次いで共アンモノリシス (Co-Ammonolysis) に課せられる。分子状前駆体の混合物は、例えば、シラザン及びホウ素-及び/又はリンハロゲン化物の混合により獲得されることがある。

【0025】

更なる一実施態様において、一成分前駆体である分子状前駆体が使用される。このような一成分前駆体は、既に、生成物の全ての元素を含有する。特に有利には、この製造の出発点として、分子化合物  $\text{Cl}_3\text{Si}(\text{NH})\text{BCl}_2$  (TADB) が使用され、これは既に、終生成物中に得ることが望まれる連結  $\text{Si}-\text{N}-\text{B}$  を含有する。

【0026】

更なる有利な分子状一成分前駆体は、 $\text{Cl}_4\text{P}(\text{N})(\text{BCl}_2)\text{SiCl}_3$ 、 $\text{Cl}_3\text{PN}\text{SiCl}_3$ 、 $(\text{Cl}_3\text{Si})_2\text{N}\text{BCl}_2$ 、 $\text{Cl}_3\text{SiN}(\text{BCl}_2)_2$ 、 $(\text{H}_3\text{Si})_2\text{N}\text{BCl}_2$ 、 $\text{Cl}_3\text{Si}(\text{NH})(\text{BCl})(\text{NH})\text{SiCl}_3$ 、 $\text{Cl}_3\text{Si}(\text{NH})(\text{AlCl})(\text{NH})\text{SiCl}_3$ 、 $[\text{Cl}_3\text{Si}(\text{NH})(\text{BNH})]_3$ 、 $(\text{Cl}_3\text{Si}(\text{NH})\text{AlCl})_2$  又は  $[\text{Cl}_3\text{PN}(\text{PCl}_2)_2\text{N}]^+[\text{AlCl}_4]^-$  である。

【0027】

この前駆体材料は、次いで、無定形の又は部分結晶性の網目を有する発光物質へと硬化される。この硬化は、有利には、プレセラミック材料の中間工程を介して行われる。この発光物質前駆体は、アンモノリシス、重縮合及び熱分解により、窒素により相互に連結されている相応する元素からの無定形の網目に移行されることがある。窒素は、部分的に酸素により置き換えられていることができ、これにより、酸化物のドーピングが得られる。

【0028】

この発光物質層中には、活性化剤が組み込まれていて、これは有利には、以下の経路を介してもたらされる。

【0029】

例えばユーロピウム又はバリウムを液状アンモニアに溶解する金属が液状アンモニア中に溶解されて存在し、かつ、分子状前駆体、例えばTADBが滴加される。反対に、アンモニア中のこの金属の溶液が、装入された前駆体、例えばTADB中に滴加されることができる。この生じるポリマー状イミドアミドは、ベース材料元素の他に、例えばケイ素及びホウ素を含み、また、1種又は数種の活性化剤元素を均質に分散する。熱分解により、ここからセラミック状の発光体が獲得される。

【0030】

元素の形態で液状アンモニア中に溶解しない活性化剤は、複合的な分子化合物の形態で導入されることができる。この使用されるリガンドは、有利には、系内在的な元素、例えばハロゲン化物(塩化物)、水素、ケイ素又はホウ素を含有することが望ましい。

【0031】

全ての他の元素は、終生成物から更なる手間をかけてのみ終生成物から除去されるか又は除去されることがないものである。特に好適かつ系相容的であるのは、例えば  $[\text{Cl}_3\text{Si}(\text{N})\text{SiCl}_3]^-$  及び塩化物をリガンドとして有する金属錯体である。全ての活性化剤として考慮される金属は、二元塩化物(ここから、所望される錯体が  $\text{Li}[\text{Cl}_3\text{Si}(\text{N})\text{SiCl}_3]$  )である。

10

20

30

40

50

$_{3}Si(N)SiCl_3$ ]との反応により作出可能である)を形成するので、これらは普遍的に入手できる。この活性化剤の錯体化合物は、分子状前駆体中で、例えばTADB中で溶解されるか又は場合により分子状前駆体と共に、例えばTADBと共に、一緒に、適した溶媒中で溶解される。この混合物又は溶液は、アンモニアシスのために、液状のアンモニア中に滴加され、その際、これは、逆の様式で行われることもできる。

#### 【0032】

このポリマー/オリゴマー層の厚さは、この溶液の粘度及びこのコーティングプロセスのパラメーターを介して調節することができる。この粘度の側では、この重縮合の程度を介して、即ち、このオリゴマーの平均モル質量を介して、溶媒の添加により、充填剤の添加により、かつ/又は、温度により狙いを定めて調節することができる。充填剤として、有利には、同時に光散乱性に作用する材料が使用される。考慮されるのは、それぞれの材料の屈折率に依存して白色光を最適に散乱する値の周辺の、狭い粒径分布を有する、例えば $SiO_2$ 、 $TiO_2$ 、 $ZrO_2$ 、 $SnO_2$ 又は $Ta_2O_5$ である。この層厚は、熱分解の際に引裂のないセラミック層が生じるように調節される。有利には、この層厚は200~3000nm、特に有利には300~2000nmである。このコーティング工程において達成可能な層厚は、実質的に、この設けるべき混合物の粘度並びに塗布方法に依存する。LEDベースの光源の最適な光学的性能のために必要である場合には、この全体のコーティングプロセスは、所望の層厚を得るために、場合により複数回繰り替えされる。

10

#### 【0033】

発光物質又は発光物質層へのこの最終的な硬化は、有利には、熱分解により行われ、その際、無定形の又は部分結晶性の網目が形成される。熱分解の際には、中間工程としてアンモニアシスの際に得られるプレセラミック性のイミドアミドが、温度600~1500で、有利には1000~1300で、終生成物に移行される。この熱分解は、有利には、窒素、アルゴン、アンモニア又はこれらの混合物を含有する雰囲気中で生じる。

20

#### 【0034】

有利な一実施態様において、この設けられる層は、アンモニア雰囲気中で室温で200までで硬化される。この後で、この温度を段階的に、例えば620まで高め、そして、この温度で維持する。引き続き、この熱分解を例えば1050で行う。加熱要素として、電気的な抵抗炉又は有利には赤外加熱装置、ミラーオーブン(Spiegeloefen)又はレーザーが使用されることができる。この全体的なコーティングプロセスは、並行かつ連続的に(ベルトコンベア式に)実施されることができる。例えば、このコーティングされるべきLED'sは、 $100 \times 80$ マトリックス配置中で並行して加工されることができる。この個々のプロセス工程の相違する期間は、同じ運転速度で、より長いか又は並行した運転道程により平衡化される。

30

---

フロントページの続き

(74)代理人 100112793  
弁理士 高橋 佳大  
(74)代理人 100128679  
弁理士 星 公弘  
(74)代理人 100135633  
弁理士 二宮 浩康  
(74)代理人 100114890  
弁理士 アインゼル・フェリックス=ラインハルト  
(72)発明者 マルティン ヤンセン  
ドイツ連邦共和国 レオンベルク ベルクハルデ 18 / 1

審査官 清水 靖記

(56)参考文献 特開2005-225942 (JP, A)  
特開2006-274265 (JP, A)  
国際公開第2006/077740 (WO, A1)  
特開2006-008862 (JP, A)  
特開平07-216094 (JP, A)  
特開2006-306982 (JP, A)  
特開2003-298116 (JP, A)  
特開平06-279587 (JP, A)  
特開2006-169014 (JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

H01L 33/00-33/64  
C09K 11/00-11/89  
C01B 33/00-33/193