

(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



(43) 国際公開日
2011年7月14日(14.07.2011)

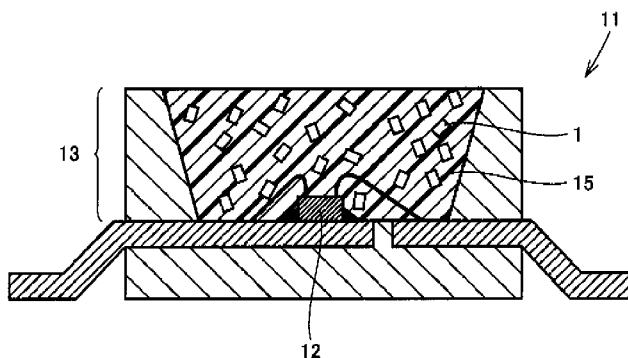
PCT

(10) 国際公開番号
WO 2011/083671 A1

- (51) 国際特許分類:
C09K 11/64 (2006.01) *G02F 1/13357* (2006.01)
C09K 11/08 (2006.01) *H01L 33/50* (2010.01)
C09K 11/62 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2010/072684
- (22) 国際出願日: 2010年12月16日(16.12.2010)
- (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 2010-003058 2010年1月8日(08.01.2010) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について):
 シャープ株式会社(SHARP KABUSHIKI KAISHA)
 [JP/JP]; 〒5458522 大阪府大阪市阿倍野区長池町
 2番22号 Osaka (JP).
- (72) 発明者; および
 (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 増田 昌嗣
 (MASUDA, Masatsugu). 原田 昌道(HARADA,
 Masamichi). 松下 仁士(MATSUSHITA, Hitoshi).
 寺島 賢二(TERASHIMA, Kenji).
- (74) 代理人: 特許業務法人深見特許事務所(Fukami
 Patent Office, p.c.); 〒5300005 大阪府大阪市北区
 中之島二丁目2番7号 中之島セントラルタ
 ワー Osaka (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,
 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, PE, PG, PH,
 PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST,
 SV, SY, TH, 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, LR, 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
 (AL, 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, RS, SE, SI, SK, SM, 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))
 — 補正された請求の範囲 (条約第 19 条(1))

(54) Title: PHOSPHOR, LIGHT-EMITTING DEVICE, AND LIQUID CRYSTAL DISPLAY DEVICE USING SAME
(54) 発明の名称: 蛍光体、発光装置およびそれを用いた液晶表示装置

[図1]



(57) Abstract: A divalent-europium-activated oxynitride green light-emitting phosphor consisting of a β -SiAlON which is substantially represented by general formula (A): $\text{Eu}_a\text{Si}_b\text{Al}_c\text{O}_d\text{N}_e$, [wherein a, b, c, d and e are numbers satisfying the relationships: $0.005 \leq a \leq 0.4$, $b+c=12$, and $d+e=16$] and has a mean particle size (d1) of 9 to $16\mu\text{m}$ (as determined by an air permeability method) and a medium diameter (50%D) of 12.5 to $35\mu\text{m}$ in the particle size distribution, with d1 and 50%D satisfying the relationship: $50\%D/d1=1.4$ to 2.2, and which exhibits an absorbance of 8.0% or less at 600nm; and a light-emitting device, a light source device for BL, and a liquid crystal display device, which are made using the same. The β -SiAlON has controlled dispersibility and therefore exhibits enhanced transparency. Therefore, use of the β -SiAlON makes it possible to provide both a light-emitting device that exhibits high efficiency and stable characteristics and a liquid-crystal display device using the same.

(57) 要約:

[続葉有]



WO 2011/083671 A1

一般式 (A) : $\text{Eu}_a\text{Si}_b\text{Al}_c\text{O}_d\text{N}_e$ (一般式 (A) 中、 $0.005 \leq a \leq 0.4$ 、 $b+c=12$ 、 $d+e=16$ を満足する数である。) で実質的に表され、平均粒度 (d_{10}) (空気透過法) が $9 \sim 16 \mu\text{m}$ であり、粒度分布でのメディアン径 ($50\%D$) が $12.5 \sim 35 \mu\text{m}$ であり、 $50\%D/d_{10} = 1.4 \sim 2.2$ であり、かつ 600nm における吸収率が 8.0% 以下である β 型 SiAlON である、2価のユーロピウム付活酸素化物緑色系発光蛍光体である蛍光体、およびそれを用いた発光装置、BL光源装置、ならびに液晶表示装置によって、分散性を制御し、透明性を高めた β 型 SiAlON を用いることにより、高効率で特性の安定した発光装置およびそれを用いた液晶表示装置を提供する。

明 細 書

発明の名称：蛍光体、発光装置およびそれを用いた液晶表示装置 技術分野

[0001] 本発明は、発光装置用として好適な蛍光体およびそれを波長変換部に用いた発光装置、特に特性の安定した発光装置、ならびにそれを用いた液晶表示装置に関する。

背景技術

[0002] 半導体発光素子と蛍光体とを組み合わせた発光装置は、低消費電力、小型、高輝度、広範囲な色再現性、さらには高演色性が期待される次世代の発光装置として注目され、活発に研究・開発が行われている。発光素子から発せられる一次光は、通常、長波長の紫外線から青色の範囲、すなわち380～480nmのものが用いられる。また、この用途に適合した様々な蛍光体を用いた波長変換部も提案されている。

[0003] 現在、この種の白色の発光装置としては、青色発光の発光素子（ピーク波長：460nm前後）とその青色により励起され黄色発光を示す3価のセリウムで付活された $(Y, Gd)_3(AI, Ga)_5O_{12}$ 蛍光体あるいは2価のユーロピウムで付活された $2(Sr, Ba)O \cdot SiO_2$ 蛍光体との組み合わせが主として用いられている。しかしながら、これらの発光装置では、色再現性（NTSC比）は70%前後であり、近年中、小型LCDにおいてもより色再現性の良好なものが求められている。

[0004] さらに、最近この種の発光装置に対して変換効率（明るさ）のみならず、入力エネルギーをより高くし、さらに明るくしようとする試みがなされている。入力エネルギーを高くした場合、波長変換部を含めた発光装置全体の効率的な放熱が必要となってくる。このために、発光装置全体の構造、材質などの開発も進められているが、動作時における発光素子および波長変換部の温度上昇は避けられないのが現状である。

[0005] しかしながら、特に3価のセリウムで付活された $(Y, Gd)_3(AI, G$

a) ${}_5\text{O}_{12}$ 蛍光体においては、 25°C での輝度（明るさ）を 100% とした場合に、 100°C での輝度は 85% 前後に低下するために、入力エネルギーを高く設定できないという技術課題を有している。したがって、この種の発光装置に対して、用いられる蛍光体の温度特性の改善も急務となっている。

[0006] これらの技術課題に対して、 $\text{E u}_a\text{S i}_b\text{A l}_c\text{O}_d\text{N}_e$ で表される β 型 S i A l O N である2価のユーロピウム付活酸窒化物緑色系発光蛍光体を用いることにより、色再現性（ N T S C 比）および温度特性の良好な発光装置が得られることが知られている。

[0007] しかしながら、 β 型 S i A l O N である2価のユーロピウム付活酸窒化物緑色系発光蛍光体は、基本的には柱状結晶体であり、かつ単純な組成上その結晶構造を維持しようとする、焼結体（凝集体）が生成しやすい。極端に大きい柱状結晶体（針状結晶体）は結晶成長が不十分であり、良好な特性（明るさ）が得られない。さらには、焼結体（凝集体）は均一な1個の粒子ではないために、粒界での光の吸収などにより、大きさの割には良好な特性（明るさ）が得られない。特に多くの柱状結晶体（針状結晶体）や焼結体（凝集体）が存在すると、発光装置において十分な明るさが得られず、かつ連続点灯時においても明るさの低下および色度の変動が大きくなるという技術課題を有している。

[0008] したがって、形状を制御した $\text{E u}_a\text{S i}_b\text{A l}_c\text{O}_d\text{N}_e$ で表される β 型 S i A l O N である2価のユーロピウム付活酸窒化物緑色系発光蛍光体、およびそれを用いた特性の安定した発光装置の開発が急務となっている。たとえば特開 $2005-255895$ 号公報（特許文献1）には、 β 型 S i A l O N に関し、結晶相が、平均粒径 50nm 以上 $20\mu\text{m}$ 以下の単結晶であるとか、合成した蛍光体粉末の平均粒径を 50nm 以上 $20\mu\text{m}$ 以下に粒度調整するとかが記載されている。また、平均粒径が $20\mu\text{m}$ より大きくなると、照明器具や画像表示装置に適用する際に分散性が悪くなり、色むらが発生するため好ましくない。 50nm より小さくなると粉末が凝集するため操作性が悪くなるとも記載されている。しかしながら、特許文献1においては、分散性（

凝集（焼結）の程度）に関する記載はなく、またそれと600nmにおける吸収率との関係、さらには発光装置の初期特性およびライフ特性に関する記載はない。

先行技術文献

特許文献

[0009] 特許文献1：特開2005-255895号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0010] 本発明は、上記課題を解決するためになされたものであって、その目的とするところは、分散性を制御し、透明性を高めたβ型SiAlONを用いることにより、高効率で特性の安定した発光装置を提供することである。

課題を解決するための手段

[0011] 本発明者らは、上記課題を解決するために鋭意調査、検討および開発を行った結果、β型SiAlONの化学組成の最適化のみによらず、さらにその粒子の分散性を向上させることによって結晶の透明性が向上し、そのβ型SiAlONを用いることにより、初期特性（明るさ）が著しく良好で、かつ良好なライフ特性を有する発光装置が得られることを見出した。すなわち、本発明は以下のとおりである。

[0012] 本発明の蛍光体は、一般式(A)： $\text{Eu}_a\text{Si}_b\text{Al}_c\text{O}_d\text{N}_e$ 。（一般式(A)中、 $0.005 \leq a \leq 0.4$ 、 $b+c=12$ 、 $d+e=16$ を満足する数である。）で実質的に表され、平均粒度(d_1)（空気透過法）が $9 \sim 16 \mu\text{m}$ であり、粒度分布でのメディアン径(50%D)が $12.5 \sim 35 \mu\text{m}$ であり、 $50\%D/d_1=1.4 \sim 2.2$ であり、かつ600nmにおける吸収率が8.0%以下である、粒界における自己吸収による効率低下を抑えたβ型SiAlONである、2価のユーロピウム付活酸窒化物緑色系発光蛍光体であることを特徴とする。

[0013] 本発明の緑色系発光蛍光体は、 $10 \mu\text{m} \leq d_1 \leq 13 \mu\text{m}$ 、 $50\%D/d_1$

1 = 1.6 ~ 2.0 かつ 600 nm における吸収率が 7.0% 以下であることが、好ましい。

[0014] 本発明の緑色系発光蛍光体は、一般式 (A) 中、 $c \geq 0.3$ であることが好ましい。

本発明の緑色系発光蛍光体は、一般式 (A) 中、 $0.01 \leq a \leq 0.2$ であることが好ましい。

[0015] 本発明はまた、ピーク波長が 430 ~ 480 nm の一次光を発する窒化ガリウム系半導体である発光素子と、上記一次光の一部を吸収して、一次光の波長よりも長い波長を有する二次光を発する波長変換部とを備えた発光装置であって、波長変換部は、一般式 (A) : $E_u a S i_b A l_c O_d N_e$ (一般式 (A) 中、 $0.005 \leq a \leq 0.4$ 、 $b + c = 12$ 、 $d + e = 16$ を満足する数である。) で実質的に表され、平均粒度 (d_1) (空気透過法) が 9 ~ 16 μm であり、粒度分布でのメディアン径 (50%D) が 12.5 ~ 35 μm であり、 $50\%D / d_1 = 1.4 \sim 2.2$ であり、かつ 600 nm における吸収率が 8.0% 以下である β 型 $S i A l O N$ である、2価のユーロピウム付活酸窒化物緑色系発光蛍光体を含む発光装置についても提供する。

[0016] 本発明の発光装置における緑色系発光蛍光体は、 $10 \mu m \leq d_1 \leq 13 \mu m$ 、 $50\%D / d_1 = 1.6 \sim 2.0$ かつ 600 nm における吸収率が 7.0% 以下であることが、好ましい。

[0017] 本発明の発光装置における緑色系発光蛍光体は、一般式 (A) 中、 $c \geq 0.3$ であることが好ましい。

[0018] 本発明の発光装置における緑色系発光蛍光体は、一般式 (A) 中、 $0.01 \leq a \leq 0.2$ であることが好ましい。

[0019] 本発明の発光装置の発光色を調整する目的で、波長変換部に赤色系発光蛍光体を併せて用い、その赤色系発光蛍光体としては、一般式 (B) : $(M I_{1-x} E u_x) M I I S i N_3$ (一般式 (B) 中、 $M I$ は $M g$ 、 $C a$ 、 $S r$ および $B a$ から選ばれる少なくとも 1 種のアルカリ土類金属元素を示し、 $M I I$ は $A l$ 、 $G a$ 、 $I n$ 、 $S c$ 、 Y 、 $L a$ 、 $G d$ および $L u$ から選ばれる少なくとも 1

種の3価の金属元素を示し、 $0.001 \leq x \leq 0.10$ を満足する数である。)で実質的に表される2価のユーロピウム付活窒化物赤色系発光蛍光体を用いることが好ましい。

[0020] 本発明の発光装置における赤色発光系蛍光体は、一般式(B)中、MI I はAl、GaおよびInから選ばれる少なくとも1種の元素であることが好ましい。

[0021] 本発明は、上述した本発明の発光装置を点光源として複数含むバックライト光源装置についても提供する。

[0022] 本発明はまた、液晶パネルと、液晶パネルの背面に配置された上述した本発明のバックライト光源装置とを備える液晶表示装置についても提供する。

発明の効果

[0023] 本発明によれば、発光素子からの一次光を効率よく吸収し、高効率かつ優れた色再現性(NTSC比)、さらには良好なライフ特性を有する白色光を得ることができる発光装置、ならびにそれに好適に用いられる蛍光体を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0024] [図1]本発明の好ましい一例の発光装置11を模式的に示す断面図である。

[図2]本発明の他の好ましい一例の発光装置21を模式的に示す断面図である。

発明を実施するための形態

[0025] 本発明の蛍光体は、下記一般式(A)で表される β 型SiAlON(サイアロン)である2価のユーロピウム付活酸窒化物緑色系発光蛍光体である。

[0026] 一般式(A) : $\text{Eu}_a\text{Si}_b\text{Al}_c\text{O}_d\text{N}_e$

上記一般式(A)中、aの値は、 $0.005 \leq a \leq 0.4$ であり、 $b+c=12$ であり、 $d+e=16$ である。上記一般式(A)中、aの値が0.005未満であると、十分な明るさが得られないという不具合があり、またaの値が0.4を超えると、濃度消光などにより、明るさが大きく低下するという不具合がある。なお、特性の安定性、母体の均質性から、上記一般式(

A) 中の a の値は、 $0.01 \leq a \leq 0.2$ であるのが好ましい。

[0027] また、本発明の蛍光体の平均粒度 (d_1) (空気透過法) は $9 \sim 16 \mu\text{m}$ である。 d_1 が $9 \mu\text{m}$ 未満では、結晶成長の不十分な柱状結晶体 (針状結晶体) や焼結体 (凝集体) が多く存在し、十分な明るさが得られない。一方、 d_1 が $16 \mu\text{m}$ を超えると、粗大な焼結体 (凝集体) の存在が多くなり、その大きさの割には、十分な明るさが得られない。特性の安定性、母体の均質性から、 $10 \mu\text{m} \leq d_1 \leq 13 \mu\text{m}$ であるのが好ましい。

[0028] さらに、結晶の分散性を表す式 $50\%D/d_1$ (すなわち、単一粒子の存在割合を示す指標) では、 $1.4 \sim 2.2$ の範囲に限定される。 $50\%D/d_1$ は、 1.0 が理想であるが、 $50\%D/d_1$ が 1.4 未満である場合、粉砕が過度になる傾向にあり、明るさの低下が無視できない。一方、 $50\%D/d_1$ が 2.2 を超えると、焼結体 (凝集体) の存在が多くなり、明るさが著しく低下する。特性の安定性、母体の均質性から、 $1.6 \leq 50\%D/d_1 \leq 2.0$ であるのが好ましい。

[0029] したがって、平均粒度 (d_1) (空気透過法) および $50\%D/d_1$ の範囲が決まれば、粒度分布でのメディアン径 ($50\%D$) はそれに伴って決まってくる。すなわち、 $12.5 \sim 35 \mu\text{m}$ の範囲を有することになる。

[0030] 上述した、平均粒度 (d_1) (空気透過法) および $50\%D/d_1$ の範囲を有する β 型 SiAlON (サイアロン) である 2 価のユーロピウム付活酸素化物緑色系発光蛍光体においては、体色が優れ、 600nm での吸収率は 8.0% 以下の値を有する。 8.0% を超えると、長波長成分 (特に、赤色系領域) の吸収が無視できず、白色の明るさが著しく低下する。特性の安定性、母体の均質性の観点から、 600nm での吸収率は 7.0% 以下であることが好ましい。

[0031] 上記式で表される β 型 SiAlON (サイアロン) である 2 価のユーロピウム付活酸素化物緑色系発光蛍光体としては、具体的には、 $\text{Eu}_{0.05}\text{Si}_{11.50}\text{Al}_{1.50}\text{O}_{0.30}\text{N}_{15.70}$ 、 $\text{Eu}_{0.10}\text{Si}_{11.00}\text{Al}_{1.00}\text{O}_{0.40}\text{N}_{15.60}$ 、 $\text{Eu}_{0.30}\text{Si}_{9.80}\text{Al}_{2.20}\text{O}_{1.00}\text{N}_{15.00}$ 、 $\text{Eu}_{0.15}\text{Si}_{10.00}\text{Al}_{2.00}\text{O}_{0.50}\text{N}_{15.50}$ 、 $\text{Eu}_{0.01}\text{Si}_{11.60}\text{Al}_{0.40}\text{O}_{0.20}\text{N}_{15.80}$ 、

$Eu_{0.005}Si_{11.70}Al_{0.30}O_{0.15}N_{15.85}$ 、 $Eu_{0.25}Si_{11.65}Al_{0.35}O_{0.30}N_{15.70}$ 、 $Eu_{0.40}Si_{11.35}Al_{0.65}O_{0.35}N_{15.65}$ 、 $Eu_{0.05}Si_{11.55}Al_{0.45}O_{0.35}N_{15.65}$ などを挙げることができるが、勿論これらに限定されるものではない。

- [0032] なお、平均粒度（ d_1 ）（空気透過法）は、リーナース法、ブレイン法などにより測定された値を指し、たとえば空気透過式粉体比表面積測定装置（筒井理化学器械（株）製）などを用いて測定することができる。
- [0033] また、上記メディアン径（50%D）は、粒度分布測定装置（LA-920、堀場製作所製）を用いて測定された値を指す。なお、粒度分布測定時には、電解質（ヘキサメタ燐酸ソーダ）を用いたが、超音波による予備分散は行わなかった。
- [0034] さらに、600nmの吸収率は、たとえば分光スペクトル測定装置MCPD7000（大塚電子（株）製）を用いて測定することができる。
- [0035] 本発明の蛍光体は、従来公知の適宜の方法にて作製することができる。ただし、均一に結晶成長させるには、たとえばAl濃度（ c ）を0.3以上にしたり、酸素濃度を精度よく制御したり、焼成容器中の原材料の密度および嵩を精度よく制御したり、合成時の温度プロファイルを最適化するというような方法が挙げられるが、これに限定されるものではない。
- [0036] 図1は、本発明の好ましい一例の発光装置11を模式的に示す断面図である。図1に示す例の本発明の発光装置11に用いられる発光素子12には、効率の観点から、窒化ガリウム（GaN）系半導体を用いられる。また本発明の発光装置11における発光素子12としては、ピーク波長が430～480nmの範囲の一次光を発するものが用いられる。
- [0037] 本発明の発光装置11において、波長変換部13は、上述した本発明の蛍光体を含むし、発光素子12から発せられる一次光の一部を吸収して、一次光の波長以上の長さの波長を有する二次光を発し得るものであれば、その媒質15は特に制限されるものではない。媒質15としては、たとえばエポキシ樹脂、シリコーン樹脂、尿素樹脂などの透明樹脂を用いることができるが、これらに限定されるものではない。具体的には、熱硬化型シリコーン樹脂

封止材などが媒質 15 として好適に用いられる。また、波長変換部 13 は、本発明の効果を阻害しない範囲で、適宜の SiO₂、TiO₂、ZrO₂、Al₂O₃、Y₂O₃などの添加剤を含有していても勿論よい。

[0038] 図 2 は、本発明の他の好ましい一例の発光装置 21 を模式的に示す断面図である。図 2 に示す例のように、本発明の発光装置 21 の波長変換部 13 には、上述した本発明の蛍光体 1 以外の蛍光体 14 が含まれていても勿論よい。本発明の蛍光体 1 以外に波長変換部 13 に含まれ得る他の蛍光体 14 としては、特に制限されるものではないが、本発明の蛍光体 1 は、緑色系発光蛍光体により構成されているため、混色により白色光を呈する発光装置を実現し得る観点からは、下記一般式 (B) で表される 2 価のユーロピウム付窒素化物赤色系発光蛍光体が好適である。

[0039] 一般式 (B) : $(M I_{1-x} E u_x) M I I S i N_3$

上記一般式 (B) 中、MI は Mg、Ca、Sr および Ba から選ばれる少なくとも 1 種のアルカリ土類金属元素を示す。また上記一般式 (B) 中、MII は Al、Ga、In、Sc、Y、La、Gd および Lu から選ばれる少なくとも 1 種の 3 価の金属元素を示す。中でも、より一層高効率に赤色光を発光することができることから、MII は Al、Ga および In から選ばれる少なくとも 1 種の元素であることが好ましい。また上記一般式 (B) 中、x の値は、 $0.001 \leq x \leq 0.10$ であり、 $0.005 \leq x \leq 0.05$ であるのが好ましい。x の値が 0.001 未満であると、十分な明るさが得られない傾向にあり、x の値が 0.10 を超えると、濃度消光などにより、明るさが大きく低下するという傾向にあるためである。

[0040] このような 2 価のユーロピウム付窒素化物赤色系発光蛍光体としては、具体的には、 $(C a_{0.99} E u_{0.01}) A l S i N_3$ 、 $(C a_{0.97} M g_{0.02} E u_{0.01}) (A l_{0.99} G a_{0.01}) S i N_3$ 、 $(C a_{0.98} E u_{0.02}) A l S i N_3$ 、 $(C a_{0.58} S r_{0.40} E u_{0.02}) (A l_{0.98} I n_{0.02}) S i N_3$ 、 $(C a_{0.999} E u_{0.001}) A l S i N_3$ 、 $(C a_{0.895} S r_{0.100} E u_{0.005}) A l S i N_3$ 、 $(C a_{0.79} S r_{0.20} E u_{0.01}) A l S i N_3$ 、 $(C a_{0.98} E u_{0.02}) (A l_{0.95} G a_{0.05}) S i N_3$ 、 $(C a_{0.20} S r_{0.79} E u_{0.01}) A l S i N_3$ 、

($\text{Ca}_{0.58}\text{Sr}_{0.40}\text{Eu}_{0.02}$) AlSiN_3 などを挙げることができるが、勿論これらに限定されるものではない。

[0041] なお、上述した2価のユーロピウム付窒化物赤色系発光蛍光体を用いる場合、波長変換部13における本発明の蛍光体との混合比率としては、特に制限されるものではないが、本発明の蛍光体に対し、重量比で1~35%の範囲内とすることが好ましく、5~25%の範囲内とすることがより好ましい。

[0042] 本発明の発光装置11における波長変換部13は、本発明の効果を阻害しない範囲で、上述した2価のユーロピウム付窒化物赤色系発光蛍光体以外の、本発明の蛍光体以外の蛍光体を含んでいても勿論よい。また、このような本発明の蛍光体、上述した2価のユーロピウム付窒化物赤色系発光蛍光体以外の蛍光体は、本発明の蛍光体および上述した2価のユーロピウム付窒化物赤色系発光蛍光体に加え、さらに波長変換部13に含まれていてもよい。

[0043] 本発明の発光装置21に用いられる発光素子12には、効率の観点から、窒化ガリウム(GaN)系半導体を用いられる。また本発明の発光装置21における発光素子12としては、ピーク波長が430~480nmの範囲の一次光を発するものが用いられる。ピーク波長が430nm未満の発光素子を用いた場合には、青色成分の寄与が小さくなり、演色性が悪くなり、実用的でないためであり、また、ピーク波長が480nmを超える発光素子を用いた場合には、白色での明るさが低下し、実用的でないためである。効率性の観点からは、本発明の発光装置21における発光素子12は、440~470nmの範囲の一次光を発するものであることが好ましい。

[0044] 本発明の発光装置11, 21は、従来公知の適宜の手法にて製造することができ、その製造方法は特に制限されるものではない。たとえば、媒質15として熱硬化型のシリコーン樹脂製の封止材を用い、これに本発明の蛍光体1(および必要に応じ本発明の蛍光体以外の蛍光体14)を混練し、発光素子12を封止して成形して、製造する場合が例示される。

[0045] 本発明はまた、上述した本発明の発光装置を点光源として複数含むバックライト光源装置を提供する。本発明はさらに、液晶パネルと、液晶パネルの背面に配置された上述した本発明のバックライト光源装置とを備える液晶表示装置を提供する。本発明の液晶表示装置は、たとえば、発光装置を複数用意し、筐体上にマトリクス状に搭載した直下型バックライト光源装置を配置し、バックライト光源装置上に光学シート、液晶パネルを配置して構成される。また、直下型バックライト光源装置の代わりに、上述した本発明の発光装置を複数用意し、導光板側面に配置し、導光板裏面には反射板が設置され、導光板表面から光を取り出す構成のエッジライト方式のバックライト光源装置に置き換えるようにしてもよい。

[0046] 以下、実施例および比較例を挙げて本発明をより詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

[0047] <実施例 1、比較例 1>

発光素子として、450nmにピーク波長を有する窒化ガリウム(GaN)系半導体を用いた。波長変換部には、 $\text{Eu}_{0.05}\text{Si}_{11.55}\text{Al}_{0.45}\text{O}_{0.35}\text{N}_{15.65}$ (β 型SiAlON)なる組成を有する緑色系発光蛍光体であり、平均粒度(d_1)が $11.3\mu\text{m}$ 、メディアン径(50%D)が $18.6\mu\text{m}$ 、 $50\%D/d_1=1.65$ 、600nmにおける吸収率が5.9%である特性値を有するものを用いた。なお、この蛍光体は主として、Al濃度(c)を0.50に制御することによって、調製されたものである。この蛍光体を、所定の割合にて媒質としての熱硬化型のシリコン樹脂製の封止材中に分散させて分散し、発光素子を封止して、波長変換部を作製し、実施例1の発光装置を作製した。このようにして作製した実施例1の発光装置について、初期および5000時間後の明るさを測定した。なお、明るさは順電流(IF)30mAにて点灯し、発光装置からの光出力(光電流)を測定した。

[0048] 一方、 $\text{Eu}_{0.05}\text{Si}_{11.93}\text{Al}_{0.07}\text{O}_{0.10}\text{N}_{15.90}$ (β 型SiAlON)なる組成を有する緑色系発光蛍光体であり、平均粒度(d_1)が $6.5\mu\text{m}$ 、メディアン径(50%D)が $19.5\mu\text{m}$ 、 $50\%D/d_1=3.00$ 、600nmに

おける吸収率が12.0%である特性値を有するものを用いたこと以外は上述と同様にして、比較例1の発光装置を作製し、同様に特性を評価した。

[0049] 実施例1、比較例1の結果を表1に示す。表1から、実施例1の発光装置は、比較例1の発光装置と比較して、著しく明るくかつ明るさの変動が小さいことが分かる。

[0050] [表1]

| | 初期 | 5000時間後 |
|------|-----------|-----------|
| | 明るさ (相対値) | 明るさ (維持率) |
| 実施例1 | 109.8% | 90.3% |
| 比較例1 | 100.0% | 70.6% |

[0051] <実施例2、3、比較例2、3>

表2に示すような種々の平均粒度(d1)、メディアン径(50%D)、50%D/d1値、600nmにおける吸収率を有する蛍光体を用いたこと以外は実施例1と同様にして、それぞれ実施例2、3、比較例2、3の発光装置を作製した。実施例1と同様にして測定した特性(明るさ)の結果を表3に示す。表3から、実施例2、3の発光装置は、比較例2、3の発光装置に比し、著しく明るくかつ明るさの変動が小さいことが分かる。

[0052] [表2]

| | 組成 | 平均粒度 (d1) (μm) | 50%D (μm) | 50%D/d1 | 600nm 吸収率 (%) |
|------|--|----------------|-----------|---------|---------------|
| 実施例2 | Eu _{0.05} Si _{11.50} Al _{0.50} O _{0.30} N _{15.70} | 13.1 | 21.0 | 1.60 | 6.30 |
| 比較例2 | Eu _{0.05} Si _{11.95} Al _{0.05} O _{0.06} N _{15.94} | 7.3 | 17.5 | 2.40 | 13.6 |
| 実施例3 | Eu _{0.10} Si _{11.00} Al _{1.00} O _{0.40} N _{15.60} | 9.5 | 15.0 | 1.58 | 5.70 |
| 比較例3 | Eu _{0.10} Si _{11.90} Al _{0.10} O _{0.10} N _{15.90} | 5.9 | 16.8 | 2.85 | 14.7 |

[0053] [表3]

| | 初期 | 5000時間後 |
|------|-----------|-----------|
| | 明るさ (相対値) | 明るさ (維持率) |
| 実施例2 | 110.8% | 91.6% |
| 比較例2 | 100.0% | 72.1% |
| 実施例3 | 109.0% | 90.9% |
| 比較例3 | 100.0% | 71.3% |

[0054] <実施例4、比較例4>

発光素子として、460nmにピーク波長を有する窒化ガリウム(GaN)

系半導体を用いた。波長変換部には、 $\text{Eu}_{0.05}\text{Si}_{11.55}\text{Al}_{0.45}\text{O}_{0.35}\text{N}_{15.65}$ (β 型SiAlON)なる組成を有する緑色系発光蛍光体であり、平均粒度(d_1)が $11.3\mu\text{m}$ 、メディアン径(50%D)が $18.6\mu\text{m}$ 、 $50\%D/d_1=1.65$ 、 600nm における吸収率が5.9%である特性値を有するものと、 $(\text{Ca}_{0.99}\text{Eu}_{0.01})\text{AlSiN}_3$ (D50値: $12.8\mu\text{m}$)なる組成を有する2価のユーロピウム付窒化物赤色系発光蛍光体とを用いた。この蛍光体および赤色系発光蛍光体を、所定の割合にて媒質としての熱硬化型のシリコン樹脂製の封止材中に分散させて分散し、発光素子を封止して、波長変換部を作製し、実施例4の発光装置を作製した。このようにして作製した実施例4の発光装置について、初期および5000時間後の明るさおよび色度を測定した。なお、明るさは順電流(IF)30mAにて点灯し、発光装置からの光出力(光電流)を測定し、色度はMCPD-2000(大塚電子製)を用い、測定した。

[0055] 一方、 $\text{Eu}_{0.05}\text{Si}_{11.93}\text{Al}_{0.07}\text{O}_{0.10}\text{N}_{15.90}$ (β 型SiAlON)なる組成を有する緑色系発光蛍光体であり、平均粒度(d_1)が $6.5\mu\text{m}$ 、メディアン径(50%D)が $19.5\mu\text{m}$ 、 $50\%D/d_1=3.00$ 、 600nm における吸収率が12.0%である特性値を有するものを用いたことは実施例4と同様にして、比較例4の発光装置を作製した。

[0056] これら実施例4、比較例4の発光装置について、実施例1と同様にして特性(明るさおよび色度)の評価を行った。結果を表4に示す。表4から、実施例4の発光装置は、比較例4の発光装置と比較して、著しく明るくかつ明るさおよび色度の変動が小さいことが分かる。

[0057] [表4]

| | 初期 | | | 5000時間後 | | |
|------|--------------|-------|-------|--------------|-------|-------|
| | 明るさ (相対値) | x | y | 明るさ (維持率) | x | y |
| 実施例4 | 108.5% | 0.295 | 0.280 | 92.5% | 0.294 | 0.278 |
| 比較例4 | 100.0% | 0.296 | 0.280 | 74.8% | 0.290 | 0.268 |

[0058] <実施例5~9、比較例5~9>

表5に示すような種々の平均粒度（ d_{10} ）、メディアン径（ $50\%D$ ）、 $50\%D/d_{10}$ 値、 600nm における吸収率を有する β 型SiAlON蛍光体を用いたこと以外は実施例4と同様にして、それぞれ実施例5～9、比較例5～9の発光装置を作製した。実施例4と同様にして測定した特性（明るさおよび色度）の評価結果を表6に示す。表6から、実施例5～9の発光装置は、比較例5～9の発光装置に比し、著しく明るく、かつ明るさおよび色度の変動が小さいことが分かる。

[0059]

[表5]

| | 組成 | 平均粒度 (d1)(μ m) | 50%D(μ m) | 50%D/d1 | 600nm 吸収率(%) |
|-------|--|------------------------|----------------|---------|-----------------|
| 実施例 5 | 緑 : $\text{Eu}_{0.30}\text{Si}_{9.80}\text{Al}_{2.20}\text{O}_{1.00}\text{N}_{15.00}$ 赤 : $(\text{Ca}_{0.58}\text{Sr}_{0.40}\text{Eu}_{0.02}) \text{AlSiN}_3$ | 15.0 | 21.8 | 1.45 | 4.5 |
| 比較例 5 | 緑 : $\text{Eu}_{0.30}\text{Si}_{11.95}\text{Al}_{0.05}\text{O}_{0.07}\text{N}_{15.93}$ 赤 : $(\text{Ca}_{0.58}\text{Sr}_{0.40}\text{Eu}_{0.02}) \text{AlSiN}_3$ | 8.0 | 21.2 | 2.65 | 13.1 |
| 実施例 6 | 緑 : $\text{Eu}_{0.15}\text{Si}_{10.00}\text{Al}_{2.00}\text{O}_{0.50}\text{N}_{15.50}$ 赤 : $(\text{Ca}_{0.97}\text{Mg}_{0.02}\text{Eu}_{0.01}) (\text{Al}_{0.99}\text{Ga}_{0.01})\text{SiN}_3$ | 9.2 | 17.0 | 1.87 | 7.0 |
| 比較例 6 | 緑 : $\text{Eu}_{0.15}\text{Si}_{11.85}\text{Al}_{0.15}\text{O}_{0.10}\text{N}_{15.90}$ 赤 : $(\text{Ca}_{0.97}\text{Mg}_{0.02}\text{Eu}_{0.01}) (\text{Al}_{0.99}\text{Ga}_{0.01})\text{SiN}_3$ | 6.0 | 18.6 | 3.10 | 15.3 |
| 実施例 7 | 緑 : $\text{Eu}_{0.01}\text{Si}_{11.60}\text{Al}_{0.40}\text{O}_{0.20}\text{N}_{15.80}$ 赤 : $(\text{Ca}_{0.895}\text{Sr}_{0.100}\text{Eu}_{0.005}) \text{AlSiN}_3$ | 16.0 | 34.9 | 2.18 | 7.5 |
| 比較例 7 | 緑 : $\text{Eu}_{0.01}\text{Si}_{11.85}\text{Al}_{0.15}\text{O}_{0.10}\text{N}_{15.90}$ 赤 : $(\text{Ca}_{0.895}\text{Sr}_{0.100}\text{Eu}_{0.005}) \text{AlSiN}_3$ | 6.8 | 20.0 | 2.94 | 14.3 |
| 実施例 8 | 緑 : $\text{Eu}_{0.005}\text{Si}_{11.70}\text{Al}_{0.30}\text{O}_{0.15}\text{N}_{15.85}$ 赤 : $(\text{Ca}_{0.999}\text{Eu}_{0.001}) \text{AlSiN}_3$ | 11.7 | 17.7 | 1.51 | 5.1 |
| 比較例 8 | 緑 : $\text{Eu}_{0.005}\text{Si}_{11.90}\text{Al}_{0.10}\text{O}_{0.15}\text{N}_{15.85}$ 赤 : $(\text{Ca}_{0.999}\text{Eu}_{0.001}) \text{AlSiN}_3$ | 5.4 | 16.1 | 2.98 | 13.9 |
| 実施例 9 | 緑 : $\text{Eu}_{0.25}\text{Si}_{11.65}\text{Al}_{0.35}\text{O}_{0.30}\text{N}_{15.70}$ 赤 : $(\text{Ca}_{0.58}\text{Sr}_{0.40}\text{Eu}_{0.02}) (\text{Al}_{0.98}\text{In}_{0.02}) \text{SiN}_3$ | 14.3 | 23.6 | 1.65 | 6.2 |
| 比較例 9 | 緑 : $\text{Eu}_{0.25}\text{Si}_{11.85}\text{Al}_{0.15}\text{O}_{0.25}\text{N}_{15.75}$ 赤 : $(\text{Ca}_{0.58}\text{Sr}_{0.40}\text{Eu}_{0.02}) (\text{Al}_{0.98}\text{In}_{0.02}) \text{SiN}_3$ | 17.0 | 44.5 | 2.62 | 12.5 |

[0060]

[表6]

| | 初期 | | | 5000時間後 | | |
|-------|--------------|-------|-------|--------------|-------|-------|
| | 明るさ (相対値) | x | y | 明るさ (維持率) | x | y |
| 実施例 5 | 109.9% | 0.260 | 0.235 | 92.1% | 0.259 | 0.234 |
| 比較例 5 | 100.0% | 0.259 | 0.235 | 75.5% | 0.253 | 0.225 |
| 実施例 6 | 108.0% | 0.270 | 0.250 | 93.4% | 0.269 | 0.247 |
| 比較例 6 | 100.0% | 0.270 | 0.250 | 74.1% | 0.263 | 0.237 |
| 実施例 7 | 108.1% | 0.280 | 0.250 | 93.6% | 0.279 | 0.248 |
| 比較例 7 | 100.0% | 0.280 | 0.251 | 75.9% | 0.274 | 0.239 |
| 実施例 8 | 109.3% | 0.275 | 0.240 | 92.0% | 0.274 | 0.238 |
| 比較例 8 | 100.0% | 0.276 | 0.240 | 73.8% | 0.269 | 0.227 |
| 実施例 9 | 108.7% | 0.260 | 0.250 | 92.6% | 0.259 | 0.248 |
| 比較例 9 | 100.0% | 0.260 | 0.249 | 73.9% | 0.255 | 0.239 |

[0061] 本発明の発光装置は、本発明の蛍光体を含む波長変換部を備えるものである。このような本発明の発光装置は、発光素子からの一次光を効率よく吸収し、高効率かつ優れた色再現性（NTSC比）、さらには良好な温度およびライフ特性の白色光を得ることができる。

[0062] 以上の実施例 1～9 に挙げたいずれかの発光装置を複数用意し、筐体上にマトリックス状に搭載した直下型バックライト発光装置を構成し、バックライト光源装置上に光学シート、液晶パネルを配置して構成された液晶表示装置（TV）を構成すると色再現性に優れた液晶表示装置が得られた。また、直下型バックライト光源装置の代わりに、実施例 1～9 に挙げたいずれかの発光装置を複数用意し、導光板側面に配置し、導光板裏面には反射板を設置され、導光板表面から光を取り出す構成のエッジライト方式のバックライト光源装置に置き換えても構わない。

[0063] 今回開示された実施の形態および実施例はすべての点で例示であって制限的なものではないと考えられるべきである。本発明の範囲は上記した説明ではなくて請求の範囲によって示され、請求の範囲と均等の意味および範囲内でのすべての変更が含まれることが意図される。

符号の説明

[0064] 1 蛍光体、11、21 発光装置、12 発光素子、13 波長変換部

、 1 4 本発明の蛍光体以外の蛍光体、 1 5 媒質。

請求の範囲

[請求項1]

一般式 (A) : $E u_a S i_b A l_c O_d N_e$

(一般式 (A) 中、 $0.005 \leq a \leq 0.4$ 、 $b + c = 12$ 、 $d + e = 16$ を満足する数である。)

で実質的に表され、平均粒度 (d_1) (空気透過法) が $9 \sim 16 \mu m$ であり、粒度分布でのメディアン径 (50%D) が $12.5 \sim 35 \mu m$ であり、 $50\%D / d_1 = 1.4 \sim 2.2$ であり、かつ $600 nm$ における吸収率が 8.0% 以下である β 型 SiAlON である、2価のユーロピウム付活酸窒化物緑色系発光蛍光体。

[請求項2]

$10 \mu m \leq d_1 \leq 13 \mu m$ 、 $50\%D / d_1 = 1.6 \sim 2.0$ かつ $600 nm$ における吸収率が 7.0% 以下である、請求項1に記載の蛍光体。

[請求項3]

一般式 (A) 中、 $c \geq 0.3$ である、請求項1に記載の蛍光体。

[請求項4]

一般式 (A) 中、 $0.01 \leq a \leq 0.2$ である、請求項1に記載の蛍光体。

[請求項5]

ピーク波長が $430 \sim 480 nm$ の一次光を発する窒化ガリウム系半導体である発光素子と、前記一次光の一部を吸収して、一次光の波長よりも長い波長を有する二次光を発する波長変換部とを備えた発光装置であって、前記波長変換部は、

一般式 (A) : $E u_a S i_b A l_c O_d N_e$

(一般式 (A) 中、 $0.005 \leq a \leq 0.4$ 、 $b + c = 12$ 、 $d + e = 16$ を満足する数である。)

で実質的に表され、平均粒度 (d_1) (空気透過法) が $9 \sim 16 \mu m$ であり、粒度分布でのメディアン径 (50%D) が $12.5 \sim 35 \mu m$ であり、 $50\%D / d_1 = 1.4 \sim 2.2$ であり、かつ $600 nm$ における吸収率が 8.0% 以下である β 型 SiAlON である、2価のユーロピウム付活酸窒化物緑色系発光蛍光体を含む、発光装置。

[請求項6]

蛍光体が、 $10 \mu m \leq d_1 \leq 13 \mu m$ 、 $50\%D / d_1 = 1.6 \sim$

2. 0かつ600nmにおける吸収率が7.0%以下である、請求項5に記載の発光装置。

[請求項7] 一般式(A)中、 $c \geq 0.3$ である、請求項5に記載の発光装置。

[請求項8] 一般式(A)中、 $0.01 \leq a \leq 0.2$ である、請求項5に記載の発光装置。

[請求項9] 一般式(B) : $(M I_{1-x} E u_x) M I I S i N_3$

(一般式(B)中、MIはMg、Ca、SrおよびBaから選ばれる少なくとも1種のアルカリ土類金属元素を示し、MIIはAl、Ga、In、Sc、Y、La、GdおよびLuから選ばれる少なくとも1種の3価の金属元素を示し、 $0.001 \leq x \leq 0.10$ を満足する数である。)

で実質的に表される2価のユーロピウム付活素化物赤色系発光蛍光体を波長変換部に含む、請求項5に記載の発光装置。

[請求項10] 一般式(B)中、MIIはAl、GaおよびInから選ばれる少なくとも1種の元素である、請求項5に記載の発光装置。

[請求項11] 請求項5に記載の発光装置を点光源として複数含むバックライト光源装置。

[請求項12] 液晶パネルと、
液晶パネルの背面に配置された請求項11に記載のバックライト光源装置とを備える、液晶表示装置。

補正された請求の範囲
[2011年4月27日(27.04.2011)国際事務局受理]

- [請求項1] 一般式 (A) : $E u_a S i_b A l_c O_d N_e$
 (一般式 (A) 中、 $0.005 \leq a \leq 0.4$ 、 $b + c = 12$ 、 $d + e = 16$ を満足する数である。)
 で実質的に表され、平均粒度 (d_1) (空気透過法) が $9 \sim 16 \mu m$ であり、粒度分布でのメディアン径 ($50\%D$) が $12.5 \sim 35 \mu m$ であり、 $50\%D / d_1 = 1.4 \sim 2.2$ であり、かつ $600 nm$ における吸収率が 8.0% 以下である β 型 $S i A l O N$ である、2価のユーロピウム付活酸窒化物緑色系発光蛍光体。
- [請求項2] $10 \mu m \leq d_1 \leq 13 \mu m$ 、 $50\%D / d_1 = 1.6 \sim 2.0$ かつ $600 nm$ における吸収率が 7.0% 以下である、請求項1に記載の蛍光体。
- [請求項3] 一般式 (A) 中、 $c \geq 0.3$ である、請求項1に記載の蛍光体。
- [請求項4] 一般式 (A) 中、 $0.01 \leq a \leq 0.2$ である、請求項1に記載の蛍光体。
- [請求項5] ピーク波長が $430 \sim 480 nm$ の一次光を発する窒化ガリウム系半導体である発光素子と、前記一次光の一部を吸収して、一次光の波長よりも長い波長を有する二次光を発する波長変換部とを備えた発光装置であって、前記波長変換部は、
 一般式 (A) : $E u_a S i_b A l_c O_d N_e$
 (一般式 (A) 中、 $0.005 \leq a \leq 0.4$ 、 $b + c = 12$ 、 $d + e = 16$ を満足する数である。)
 で実質的に表され、平均粒度 (d_1) (空気透過法) が $9 \sim 16 \mu m$ であり、粒度分布でのメディアン径 ($50\%D$) が $12.5 \sim 35 \mu m$ であり、 $50\%D / d_1 = 1.4 \sim 2.2$ であり、かつ $600 nm$ における吸収率が 8.0% 以下である β 型 $S i A l O N$ である、2価のユーロピウム付活酸窒化物緑色系発光蛍光体を含む、発光装置。
- [請求項6] 蛍光体が、 $10 \mu m \leq d_1 \leq 13 \mu m$ 、 $50\%D / d_1 = 1.6 \sim$

2. 0かつ600nmにおける吸収率が7.0%以下である、請求項5に記載の発光装置。

[請求項7] 一般式(A)中、 $c \geq 0.3$ である、請求項5に記載の発光装置。

[請求項8] 一般式(A)中、 $0.01 \leq a \leq 0.2$ である、請求項5に記載の発光装置。

[請求項9] 一般式(B) : $(MI_{1-x}Eu_x)MIISiN_3$

(一般式(B)中、MIはMg、Ca、SrおよびBaから選ばれる少なくとも1種のアルカリ土類金属元素を示し、MIIはAl、Ga、In、Sc、Y、La、GdおよびLuから選ばれる少なくとも1種の3価の金属元素を示し、 $0.001 \leq x \leq 0.10$ を満足する数である。)

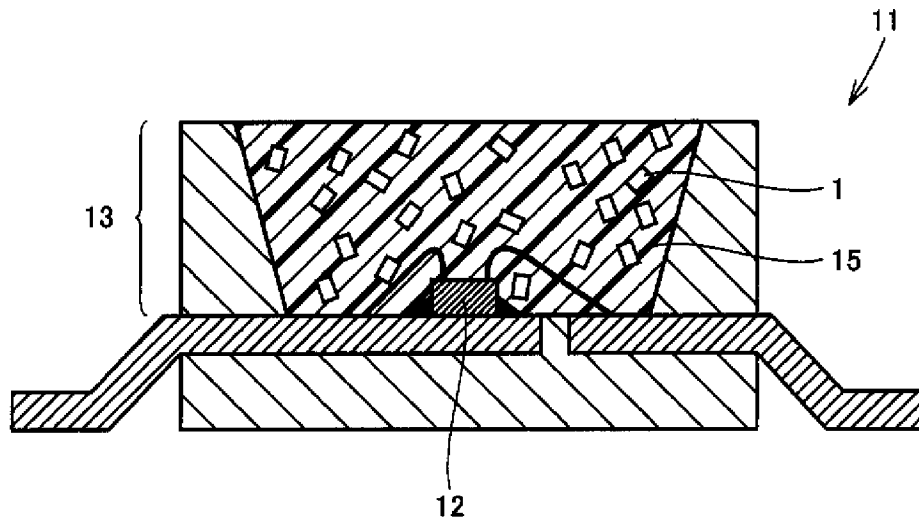
で実質的に表される2価のユーロピウム付窒化物赤色系発光蛍光体を波長変換部に含む、請求項5に記載の発光装置。

[請求項10] (補正後) 一般式(B)中、MIIはAl、GaおよびInから選ばれる少なくとも1種の元素である、請求項9に記載の発光装置。

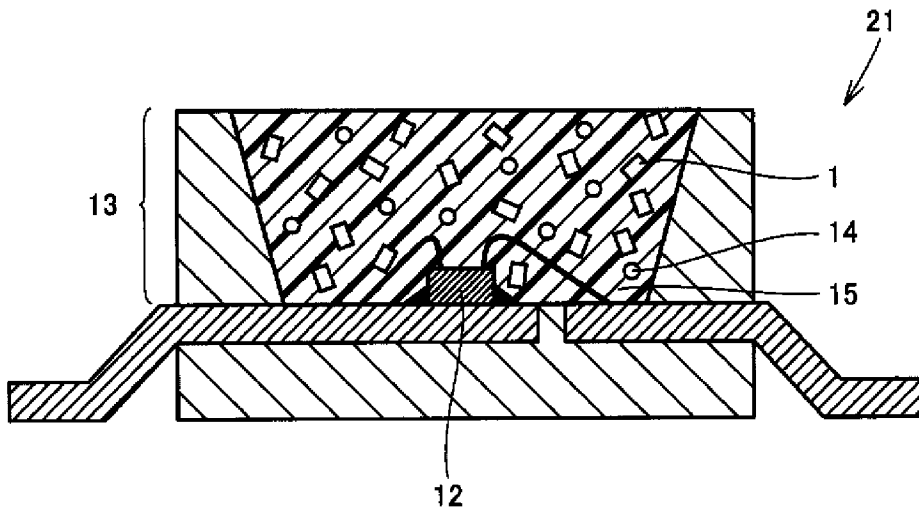
[請求項11] 請求項5に記載の発光装置を点光源として複数含むバックライト光源装置。

[請求項12] 液晶パネルと、
液晶パネルの背面に配置された請求項11に記載のバックライト光源装置とを備える、液晶表示装置。

[図1]



[図2]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2010/072684

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C09K11/64(2006.01)i, C09K11/08(2006.01)i, C09K11/62(2006.01)i,
G02F1/13357(2006.01)i, H01L33/50(2010.01)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, C09K11/62, G02F1/13357, H01L33/50

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 1996-2011
 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2011 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2011

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. |
|-----------|---|-----------------------|
| A | WO 2009/008250 A1 (Sharp Corp.), 15 January 2009 (15.01.2009), claims; examples & US 2010/0176713 A & EP 2175006 A1 & CN 101688115 A | 1-12 |
| A | WO 2008/062781 A1 (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 29 May 2008 (29.05.2008), claims; examples & US 2010/0053932 A & EP 2093272 A1 & CN 101600778 A | 1-12 |

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 12 January, 2011 (12.01.11) | Date of mailing of the international search report 25 January, 2011 (25.01.11) |
| Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office | Authorized officer |
| Facsimile No. | Telephone No. |

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2010/072684

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 2007-308593 A (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 29 November 2007 (29.11.2007), claims; examples (Family: none) | 1-12 |
| A | WO 2007/129713 A1 (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 15 November 2007 (15.11.2007), claims; examples & JP 2007-302757 A & JP 2007-332324 A & US 2010/0237767 A & EP 2022835 A1 & CN 101443432 A | 1-12 |

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. C09K11/64(2006.01)i, C09K11/08(2006.01)i, C09K11/62(2006.01)i, G02F1/13357(2006.01)i, H01L33/50(2010.01)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 (IPC))

Int.Cl. C09K11/64, C09K11/08, C09K11/62, G02F1/13357, H01L33/50

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 | 1971-2011年 |
| 日本国実用新案登録公報 | 1996-2011年 |
| 日本国登録実用新案公報 | 1994-2011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 請求項の番号 |
|-----------------|--|----------------|
| A | WO 2009/008250 A1 (シャープ株式会社) 2009.01.15, 特許請求の範囲、実施例等 & US 2010/0176713 A & EP 2175006 A1 & CN 101688115 A | 1-12 |
| A | WO 2008/062781 A1 (電気化学工業株式会社) 2008.05.29, 特許請求の範囲、実施例等 & US 2010/0053932 A & EP 2093272 A1 & CN 101600778 A | 1-12 |
| A | JP 2007-308593 A (電気化学工業株式会社) 2007.11.29, 特許請求 | 1-12 |

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、一般的な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

12.01.2011

国際調査報告の発送日

25.01.2011

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)
 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)

馬籠 朋広

4V

4510

電話番号 03-3581-1101 内線 3483

| 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 | <p>の範囲、実施例等 (ファミリーなし)</p> <p>WO 2007/129713 A1 (電気化学工業株式会社) 2007.11.15, 特許請求 の範囲、実施例等 & JP 2007-302757 A & JP 2007-332324 A & US 2010/0237767 A & EP 2022835 A1 & CN 101443432 A</p> | 1-12 |