

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

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
1. Dezember 2011 (01.12.2011)

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 2011/147517 A1

- (51) **Internationale Patentklassifikation:**
C09K 11/77 (2006.01)
- (21) **Internationales Aktenzeichen:** PCT/EP2011/002084
- (22) **Internationales Anmeldedatum:**
26. April 2011 (26.04.2011)
- (25) **Einreichungssprache:** Deutsch
- (26) **Veröffentlichungssprache:** Deutsch
- (30) **Angaben zur Priorität:**
10 2010 021 341.1 22. Mai 2010 (22.05.2010) DE
- (71) **Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US):** MERCK PATENT GMBH [DE/DE]; Frankfurter Strasse 250, 64293 Darmstadt (DE).
- (72) **Erfinder; und**
- (75) **Erfinder/Anmelder (nur für US):** WINKLER, Holger [DE/DE]; Lily-Pringsheim-Weg 17, 64291 Darmstadt (DE). BENKER, Andreas [DE/DE]; Krehbergstrasse 579, 64686 Lautertal (DE). PETRY, Ralf [DE/DE]; Mozartstrasse 8A, 64347 Griesheim (DE). VOSGROENE, Tim [DE/DE]; Claude-Monet-Weg 22, 64372 Ober-Ramstadt (DE).
- (81) **Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare nationale Schutzrechtsart):** AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, 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) **Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare regionale Schutzrechtsart):** ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches (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).
- Veröffentlicht:**
— mit internationalem Recherchenbericht (Artikel 21 Absatz 3)



WO 2011/147517 A1

(54) **Title:** LUMINESCENT SUBSTANCES

(54) **Bezeichnung:** LEUCHTSTOFFE

(57) **Abstract:** The invention relates to mixtures containing at least one luminescent substance of formula I, $A_n Lu_x Ce_x Al_l Ga_m O_{12}$ (I), and at least one red-emitting luminescent substance, to corresponding methods for producing said mixtures, and to the use of said mixtures as conversion luminescent substances.

(57) **Zusammenfassung:** Die Erfindung betrifft Mischungen enthaltend mindestens einen Leuchtstoff der Formel I, $A_n Lu_x Ce_x Al_l Ga_m O_{12}$ (I) und mindestens einen rot emittierenden Leuchtstoff, entsprechende Verfahren zur Herstellung dieser Mischungen und deren Verwendung als Konversionsleuchtstoffe.

Leuchtstoffe

Die Erfindung betrifft Leuchtstoffmischungen, Verfahren zur Herstellung dieser Mischungen und deren Verwendung als Konversionsleuchtstoffe bzw. in Leuchtmitteln.

LEDs gewinnen zunehmend an Bedeutung – sowohl als Beleuchtungsmittel als auch bei der Verwendung als Hintergrundbeleuchtung in Flüssigkristall-Displays (FK-Displays). Diese neuartigen Lichtquellen weisen gegenüber den herkömmlichen Kaltkathodenfluoreszenzlampen (cold cathode fluorescence lamps - CCFL) mehrere Vorteile auf, wie längere Lebensdauer, potentielle Energieersparnis, Abwesenheit schädlicher Inhaltsstoffe (wie Quecksilber in CCFL).

In der Vergangenheit wurden beispielsweise Anordnungen aus LEDs, die blaues, grünes und rotes Licht emittieren, als Hintergrundbeleuchtungsquelle für FK-TV-Anwendungen eingesetzt. Dieser Multi-Chip-Ansatz hat jedoch einige Nachteile: es ist ausgesprochen schwierig, drei verschiedene Chipmaterialien zu kombinieren und Einheitlichkeit und Stabilität der Lichtparameter wie Farbpunkt sicherzustellen.

Es wurden daher pcLEDs („phosphor converted LEDs“) als Lichtquellen für die Verwendung als Hintergrundbeleuchtung eingeführt. Diese enthalten üblicherweise einen grünen Leuchtstoff und einen tiefroten Leuchtstoff zusammen mit der blauen Lichtemission eines LED-Chips, die entsprechend den Transmissionsspektren des Farbfilters (Transmissionsbanden im blauen, grünen und roten Bereich des Spektrums) angeglichen sind. Theoretisch ermöglicht ein derartiger Aufbau Farbräume, die viel größer als der übliche sRGB sind. Aufgrund von Engpässen in der Verfügbarkeit geeigneter Qualitäten, besteht noch immer Bedarf an weiteren optimierten Leuchtstoffen und/oder Leuchtstoff-Gemischen.

Überraschenderweise wurde nun gefunden, dass bestimmte Leuchtstoffkombinationen in vergleichsweise geringen Mengen eingesetzt bereits gute LED-Qualitäten ergeben.

5

Eine erste Ausführungsform der vorliegenden Erfindung ist daher eine Mischung enthaltend mindestens einen Leuchtstoff der Formel I,



wobei

10 A steht für ein oder mehrere Elemente ausgewählt aus Y, Gd, Se, Sm, Tb, Pr, Th, Ir, Sb, Bi und

a steht für einen Wert aus dem Bereich von 0 bis 2,895 und

c steht für einen Wert aus dem Bereich von 0,1 bis 2,995 und

x steht für einen Wert aus dem Bereich von 0,005 bis 1 und

15

wobei a, c und x so gewählt sind, dass gilt $a + c + x = 3$ und

l steht für einen Wert aus dem Bereich von 0 bis 4,99 und

m steht für einen Wert aus dem Bereich von 0,01 bis 5, wobei l und m so gewählt sind, dass gilt $l + m = 5$ und

und mindestens einen rot emittierenden Leuchtstoff.

20

Erfindungsgemäße Mischungen in geringen Mengen eingesetzt ergeben bereits gute LED-Qualitäten. Bei Verwendung bevorzugter Mischungen lassen sich die Leuchtstoffmengen gegenüber dem Stand der Technik, insbesondere von roten Leuchtstoffen bei gleichbleibender LED-Qualität, sogar reduzieren bzw. die LED-Qualität kann gesteigert werden kann, wenn übliche Mengen eingesetzt werden. Die LED-Qualität wird dabei über übliche Parameter, wie beispielsweise den Color Rendering Index, die Correlated Color Temperature, Lumenäquivalente oder absolute Lumen, bzw. den Farbpunkt in CIE x und CIE y Koordinaten beschrieben.

25

30

Der Color Rendering Index oder CRI ist eine dem Fachmann geläufige, einheitslose lichttechnische Größe, welche die Farbwiedergabetreue einer

künstlichen Lichtquelle mit derjenigen des Sonnenlichtes bzw. und Filamentlichtquellen vergleicht (die beiden letztgenannten besitzen einen CRI von 100).

5 Die CCT oder Correlated Color Temperature ist eine dem Fachmann geläufige, lichttechnische Größe mit der Einheit Kelvin. Je höher der Zahlenwert, desto kälter erscheint dem Betrachter das Weißlicht einer künstlichen Strahlungsquelle. Die CCT folgt dem Konzept des Schwarzlichtstrahlers, dessen Farbtemperatur der sog. Planckschen Kurve im
10 CIE Diagramm verläuft.

Das Lumenäquivalent ist eine dem Fachmann geläufige lichttechnische Größe mit der Einheit lm/W, die beschreibt, wie groß der photometrische Lichtstrom in Lumen einer Lichtquelle bei einer bestimmten radiometrischen
15 Strahlungsleistung mit der Einheit Watt, ist. Je höher das Lumenäquivalent ist, desto effizienter ist eine Lichtquelle.

Das Lumen ist eine dem Fachmann geläufige, photometrische lichttechnische Größe, welche den Lichtstrom einer Lichtquelle, der ein Maß für die gesamte
20 von einer Strahlungsquelle ausgesandte sichtbare Strahlung ist, beschreibt. Je größer der Lichtstrom, desto heller erscheint die Lichtquelle dem Beobachter.

CIE x und CIE y stehen für die Koordinaten im dem dem Fachmann geläufigen CIE Normfarbdiagramm (hier Normalbeobachter 1931), mit denen
25 die Farbe einer Lichtquelle beschrieben wird.

Alle oben aufgeführten Größen werden nach dem Fachmann geläufigen Methoden aus Emissionsspektren der Lichtquelle berechnet.

30 Bevorzugte Mischungen enthalten mindestens einen Leuchtstoff der Formel I, der dadurch gekennzeichnet ist, dass a steht für einen Wert aus dem Bereich

von 0 bis 0,5, vorzugsweise aus dem Bereich 0 bis 0,3 und wobei insbesondere bevorzugt gilt $a = 0$ bis 0,2.

Ebenfalls bevorzugt sind Mischungen, die dadurch gekennzeichnet sind, dass die Mischung mindestens einen Leuchtstoff der Formel I enthält, wobei x steht
5 für einen Wert aus dem Bereich von 0,01 bis 0,5, vorzugsweise aus dem Bereich 0,015 bis 0,2 und insbesondere bevorzugt aus dem Bereich 0,02 bis 0,1.

Weiterhin bevorzugt sind Mischungen, die mindestens einen Leuchtstoff der Formel I enthalten, der dadurch gekennzeichnet ist, dass m steht für einen
10 Wert aus dem Bereich von 0,05 bis 3, vorzugsweise aus dem Bereich 0,1 bis 2 und insbesondere bevorzugt aus dem Bereich 0,5 bis 1,5.

Insbesondere bevorzugt sind dabei solche Mischungen bei denen die Indices a , x und m Kombinationen der angegebenen bevorzugten Bereiche darstellen.

15 Entsprechende Verbindungen der Formel I sind dem Fachmann wohl bekannt. So werden beispielsweise in J.M. Robertson, M.W.vanTol, W.H. Smits, J.P.H.Heynen, Philips HJ. Res. 36 (1981) 15-30 die Leuchtstoffeigenschaften von in unterschiedlichen Mengen mit Lutetium und
20 Gallium substituierten YAG-Derivaten untersucht.

Erfindungswesentlich ist dabei, dass die Mischung mindestens einen rot emittierenden Leuchtstoff enthält.

25 Im Kontext dieser Anmeldung wird als rote Emission oder rotes Licht solches Licht bezeichnet, dessen Intensitätsmaximum zwischen 610 nm und 670 nm Wellenlänge liegt, entsprechend wird als grün solches Licht bezeichnet, dessen Maximum zwischen 508 nm und 550 nm Wellenlänge liegt und als
30 gelb Licht, dessen Maximum zwischen 551 nm und 585 nm Wellenlänge liegt.

Der mindestens eine rot emittierende Leuchtstoff ist in erfindungsgemäß bevorzugten Mischungen ausgewählt aus Ce-dotierten Granaten, Eu-dotierten

Thiogallaten, Eu-dotierten Sulfoseleniden und Eu- und/oder Ce-dotierten Nitriden, Oxynitriden, Alumonitriden und/oder Mn(IV) dotierten Oxiden und/oder Fluoriden. Dabei kann es insbesondere bevorzugt sein, wenn der rot emittierende Leuchtstoff ausgewählt ist aus den nitridischen Leuchtstoffen, vorzugsweise $(\text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba})_2\text{Si}_5\text{N}_8:\text{Eu}$, $(\text{Ca}, \text{Sr})\text{AlSiN}_3:\text{Eu}$, $(\text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba})\text{SiN}_2:\text{Eu}$, $(\text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba})_6\text{Si}_3\text{O}_6\text{N}_4:\text{Eu}$, $\text{A}_{2-0,5y-x} \text{Eu}_x \text{Si}_5 \text{N}_{8-y} \text{O}_y$, wobei A steht für ein oder mehrere Elemente ausgewählt aus Ca, Sr, Ba und x steht für einen Wert aus dem Bereich von 0,005 bis 1 und y steht für einen Wert aus dem Bereich von 0,01 bis 3 oder Varianten der genannten Verbindungen, bei denen einzelne Gitterpositionen durch andere chemische Elemente, wie Alkalimetalle, Aluminium, Gallium, oder Gadolinium, substituiert sind bzw. solche weitere Elemente als Dotierstoff Fehlstellen besetzen. Dem Fachmann bekannte und geeignete Materialsystem stellen Siliconitride und Alumosilikonitride dar (vgl. Xie, Sci. Technol. Adv. Mater. 2007, 8, 588-600): 1-1-2-Nitride, wie z.B. das $\text{CaSiN}_2:\text{Eu}^{2+}$ (Le Toquin, Cheetham, Chem. Phys. Lett. 2006, 423, 352.), 2-5-8-Nitride, wie das $(\text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba})_2\text{Si}_5\text{N}_8:\text{Eu}^{2+}$ (Li et al., Chem. Mater. 2005, 15, 4492) und Alumosilikonitride, wie das $(\text{Ca}, \text{Sr})\text{AlSiN}_3:\text{Eu}^{2+}$ (K. Uheda et al., Electrochem. Solid State Lett. 2006, 9, H22).

Die Verbindung $\text{A}_{2-0,5y-x} \text{Eu}_x \text{Si}_5 \text{N}_{8-y} \text{O}_y$, wobei A steht für ein oder mehrere Elemente ausgewählt aus Ca, Sr, Ba und x steht für einen Wert aus dem Bereich von 0,005 bis 1 und y steht für einen Wert aus dem Bereich von 0,01 bis 3 ist in der Patentanmeldung EP10000933.1 beschrieben und wird im folgenden Verbindung der Formel II genannt. Dabei kann die Verbindung als Reinstoff oder im Gemisch mit mindestens einer weiteren Silicium und Sauerstoff enthaltenden Verbindung vorliegen, wobei es bevorzugt ist, wenn die mindestens eine weitere Silicium und Sauerstoff enthaltende Verbindung ein Reaktionsnebenprodukt der Herstellung der Verbindung der Formel II ist und diese die anwendungsrelevanten optischen Eigenschaften der Verbindung der Formel II nicht nachteilig beeinflusst. Daher ist eine Mischung enthaltend eine Verbindung der Formel II, die erhältlich ist durch ein

Verfahren, bei dem in einem Schritt a) geeignete Edukte ausgewählt aus binären Nitriden, Halogeniden und Oxiden oder entsprechenden reaktiven Formen dazu gemischt werden und das Gemisch in einem Schritt b) unter reduktiven Bedingungen thermisch behandelt wird ein weiterer Erfindungsgegenstand.

In den erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel II steht A in bevorzugten Ausführungsformen für Sr, während x in bevorzugten Ausführungsformen steht für einen Wert aus dem Bereich von 0,01 bis 0,8, vorzugsweise aus dem Bereich 0,02 bis 0,7 und insbesondere bevorzugt aus dem Bereich 0,05 bis 0,6 und insbesondere bevorzugt aus dem Bereich 0,1 bis 0,4 und y in bevorzugten Ausführungsformen steht für einen Wert aus dem Bereich von 0,1 bis 2,5, vorzugsweise aus dem Bereich 0,2 bis 2 und insbesondere bevorzugt aus dem Bereich 0,22 bis 1,8.

Zur Herstellung von Leuchtstoffe der Formel II werden in einem Schritt a) geeignete Edukte ausgewählt aus binären Nitriden, Halogeniden und Oxiden oder entsprechenden reaktiven Formen dazu gemischt und das Gemisch in einem Schritt b) unter reduktiven Bedingungen thermisch behandelt. Bei der oben genannten thermischen Behandlung ist es bevorzugt, wenn diese zumindest teilweise unter reduzierenden Bedingungen durchgeführt wird. Im Schritt b) erfolgt die Umsetzung üblicherweise bei einer Temperatur oberhalb 800 C, vorzugsweise bei einer Temperatur oberhalb 1200°C und insbesondere bevorzugt im Bereich von 1400°C – 1800°C. Die reduktiven Bedingungen werden dabei z.B. mit Kohlenmonoxid, Formiergas oder Wasserstoff oder zumindest Vakuum oder Sauerstoffmangel-Atmosphäre eingestellt, bevorzugt im Stickstoffstrom, vorzugsweise im N₂/H₂-Strom und insbesondere bevorzugt im N₂/H₂/NH₃-Strom eingestellt. Soll die Verbindungen der Formel II rein hergestellt werden, so kann dies entweder über genaue Kontrolle der Eduktstöchiometrie oder durch mechanisches Abtrennen der Kristalle der Verbindungen der Formel II von den glasartigen Anteilen erfolgen. Die Abtrennung kann beispielsweise über die unterschiedliche Dichte, Partikelform oder Partikelgröße nach dem Fachmann bekannten Trennmethoden erfolgen.

Dabei liegen erfindungsgemäß der mindestens eine Leuchtstoff der Formel I und der mindestens eine rot emittierende Leuchtstoff üblicherweise im Gewichtsverhältnis 20:1 bis 1:1 vor. Erfindungsgemäß bevorzugt ist es, wenn der mindestens eine Leuchtstoff der Formel I und der mindestens eine rot emittierende Leuchtstoff im Gewichtsverhältnis 10:1 bis 3:1 und insbesondere bevorzugt 6:1 bis 4:1 vorliegen.

In einer weiteren Ausführungsform kann die Mischung zusätzlich mindestens einem weiteren der folgenden Leuchtstoffmaterialien enthalten:

Oxide, Molybdate, Wolframate, Vanadate, Granate, Silicate jeweils einzeln oder Gemischen derselben mit einem oder mehreren Aktivatorionen wie Ce, Eu, Mn, Cr und/oder Bi. Dies ist besonders dann von Vorteil, wenn bestimmte Farbräume eingestellt werden sollen.

Ein weiterer Erfindungsgegenstand ist ein Verfahren zur Herstellung einer Leuchtstoffmischung bei dem mindestens ein Leuchtstoff der Formel I mit mindestens einem rot emittierenden Leuchtstoff gemischt wird.

Das Absorptions- und Emissionsspektrum, das thermische Löschverhalten und die Abklingzeit $\tau_{1/e}$ lumineszierender Materialien gemäß der Formel I hängen stark von der exakten Zusammensetzung der trivalenten Kationen ab. Ausschlaggebend für die oben genannten spektroskopischen Eigenschaften ist die Kristallfeldstärke der Dodekaederposition auf der Ce^{3+} eingebaut bzw. der kovalente Charakter der Ce-O-Bindungen, d.h. die effektive negative Ladung der Sauerstoffanionen und der Überlappung der Anionen- und Metallorbitale.

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

In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform besitzen die Leuchtstoffe in Partikelform eine geschlossene Oberflächenbeschichtung, die aus SiO_2 , TiO_2 , Al_2O_3 , ZnO , ZrO_2 und/oder Y_2O_3 oder Mischoxide daraus besteht. Diese Oberflächenbeschichtung hat den Vorteil, dass durch eine geeignete Abstufung der Brechungsindices der Beschichtungsmaterialien eine Anpassung des Brechungsindex mit der Umgebung erzielt werden kann. In diesem Fall wird die Streuung des Lichtes an der Oberfläche des Leuchtstoffes verringert und ein größerer Anteil des Lichtes kann in den Leuchtstoff eindringen und dort absorbiert und konvertiert werden.

5

Außerdem ermöglicht es die Brechungsindex-angepasste Oberflächebeschichtung, dass mehr Licht aus dem Leuchtstoff ausgekoppelt wird, weil die interne Totalreflexion verringert wird.

10

Zudem ist eine geschlossene Schicht dann vorteilhaft, wenn der Leuchtstoff verkapselt werden muss. Dies kann erforderlich sein, um einer Empfindlichkeit des Leuchtstoffes oder Teilen davon gegen diffundierendes Wasser oder andere Materialien in der unmittelbaren Umgebung zu entgegnen. Ein weiterer Grund für die Verkapselung mit einer geschlossenen Hülle ist eine thermische Entkoppelung des eigentlichen Leuchtstoffes von der Wärme, die im Chip entsteht. Diese Wärme führt zu einer Verringerung der Fluoreszenzlichtausbeute des Leuchtstoffes und kann auch die Farbe des Fluoreszenzlichts beeinflussen. Schließlich ist es möglich durch eine solche Beschichtung die Effizienz des Leuchtstoffes zu erhöhen, indem im Leuchtstoff entstehende Gitterschwingungen in ihrer Ausbreitung an die Umgebung gehindert werden.

15

20

25

Außerdem bevorzugt ist es, wenn die Leuchtstoffe eine poröse Oberflächenbeschichtung besitzen, die aus SiO_2 , TiO_2 , Al_2O_3 , ZnO , ZrO_2 und/oder Y_2O_3 oder Mischoxide daraus oder aus der Leuchtstoffzusammensetzung besteht. Diese porösen Beschichtungen bieten die Möglichkeit, den Brechungsindex einer Einzelschicht weiter zu reduzieren. Die Herstellung solcher poröser Beschichtungen kann nach drei

30

herkömmlichen Methoden geschehen, wie sie in WO 03/027015 beschrieben werden, die voll umfänglich in den Kontext der vorliegenden Anmeldung durch Bezugnahme eingefügt wird: das Ätzen von Glas (z.B. Natron-Kalk-Gläser (siehe US 4019884)), das Aufbringen einer porösen Schicht und die Kombination aus poröser Schicht und einem Ätzvorgang.

In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform besitzen die Leuchtstoffpartikel eine Oberfläche, die funktionelle Gruppen trägt, welche eine chemische Anbindung an die Umgebung, vorzugsweise bestehend aus Epoxy- oder Silikonharz ermöglicht. Diese funktionellen Gruppen können z.B. über Oxogruppen angebundene Ester oder andere Derivate sein, die mit Bestandteilen der Bindemittel auf Basis von Epoxiden und / oder Silikonen Verknüpfungen eingehen können. Solche Oberflächen haben den Vorteil, dass eine homogene Einmischung der Leuchtstoffe in das Bindemittel ermöglicht wird. Des Weiteren können dadurch die rheologischen Eigenschaften des Systems Leuchtstoff / Bindemittel und auch die Topfzeiten in einem gewissen Masse eingestellt werden. Damit wird die Verarbeitung der Gemische vereinfacht.

Da die auf dem LED Chip aufgebrachte erfindungsgemäße Leuchtstoffschicht vorzugsweise aus einem Gemisch von Silikon und homogenen Leuchtstoffpartikeln besteht, welches im Volumenguss aufgebracht wird, und das Silikon eine Oberflächenspannung aufweist, ist diese Leuchtstoffschicht auf mikroskopischer Ebene nicht einheitlich bzw. ist die Dicke der Schicht nicht durchweg konstant. Dies ist in der Regel auch der Fall wenn der Leuchtstoff nicht nach dem Volumengussverfahren, sondern im sogenannten Chip-Level-Konversionsverfahren, bei dem eine hochkonzentrierte, dünne Leuchtstoffschicht mit Hilfe von elektrostatischen Methoden direkt auf die Oberfläche des Chips appliziert wird, aufgebracht wird.

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

5 Die Herstellung von plättchenförmigen Leuchtstoffen als weitere bevorzugte Ausführungsform geschieht nach herkömmlichen Verfahren aus den entsprechenden Metall- und/oder Seltenerd-Salzen. Das Herstellverfahren ist in EP 763573 und DE 102006054331.9 ausführlich beschrieben, welche voll umfänglich in den Kontext der vorliegenden

10 Anmeldung durch Bezugnahme eingefügt werden. Diese plättchenförmigen Leuchtstoffe können hergestellt werden, indem ein natürlicher oder synthetisch hergestellter hoch stabiler Träger bzw. ein Substrat aus beispielsweise Glimmer-, SiO_2 -, Al_2O_3 -, ZrO_2 , Glas- oder TiO_2 -Plättchen, welches ein sehr großes Aspektverhältnis aufweist, eine atomar glatte

15 Oberfläche und eine einstellbare Dicke besitzt, durch Fällungsreaktion in wässriger Dispersion oder Suspension mit einer Leuchtstoffschicht beschichtet werden kann. Neben Glimmer, ZrO_2 , SiO_2 , Al_2O_3 , Glas oder TiO_2 oder Gemischen derselben können die Plättchen auch aus dem Leuchtstoffmaterial selbst bestehen, oder aus einem Material aufgebaut

20 sein. Falls das Plättchen selbst lediglich als Träger für die Leuchtstoffbeschichtung dient, muss diese aus einem Material bestehen, welches transparent für die Primärstrahlung der LED ist, oder die Primärstrahlung absorbiert und diese Energie auf die Leuchtstoffschicht überträgt. Die plättchenförmigen Leuchtstoffe werden in einem Harz (z.B.

25 Silikon- oder Epoxidharz), dispergiert und diese Dispersion wird auf dem LED Chip aufgebracht.

Die plättchenförmigen Leuchtstoffe können in Dicken von 50 nm bis zu etwa 20 μm , vorzugsweise zwischen 150 nm und 5 μm , grosstechnisch hergestellt werden. Der Durchmesser beträgt dabei von 50 nm bis 20 μm .

30 Er besitzt in der Regel ein Aspektverhältnis (Verhältnis des Durchmessers zur Teilchendicke) von 1 : 1 bis 400 : 1, und insbesondere 3 : 1 bis 100 : 1.

Die Plättchenausdehnung (Länge x Breite) ist von der Anordnung abhängig. Plättchen eignen sich auch als Streuzentren innerhalb der Konversionsschicht, insbesondere dann, wenn sie besonders kleine Abmessungen aufweisen.

5 Die dem LED Chip zugewandte Oberfläche des erfindungsgemäßen plättchenförmigen Leuchtstoffes kann mit einer Beschichtung versehen werden, welche entspiegelnd in Bezug auf die von dem LED Chip emittierte Primärstrahlung wirkt. Dies führt zu einer Verringerung der Rückstreuung der Primärstrahlung, wodurch diese besser in den erfindungsgemäßen Leuchtstoffkörper eingekoppelt werden kann.

10 Hierfür eignen sich beispielsweise brechzahlangepasste Beschichtungen, die eine folgende Dicke d aufweisen müssen: $d = [\text{Wellenlänge der Primärstrahlung des LED Chips} / (4 \cdot \text{Brechzahl der Leuchtstoffkeramik})]$, s. beispielsweise Gerthsen, Physik, Springer Verlag, 18. Auflage, 1995. Diese Beschichtung kann auch aus photonischen Kristallen bestehen. Wobei hierunter auch eine Strukturierung der Oberfläche des plättchenförmigen Leuchtstoffes fällt, um bestimmte Funktionalitäten zu erreichen.

20 Die Herstellung der erfindungsgemäßen Leuchtstoffe in Form von keramischen Körpern erfolgt analog nach dem in der DE 102006037730 (Merck) beschriebenen Verfahren, die voll umfänglich in den Kontext der vorliegenden Anmeldung durch Bezugnahme eingefügt wird. Dabei wird der Leuchtstoff durch Mischen der entsprechenden Edukte und Dotierstoffe nasschemisch hergestellt, anschließend isostatisch verpresst und in Form
25 eines homogenen dünnen und nicht porösen Plättchens direkt auf die Oberfläche des Chips aufgebracht. Somit findet keine ortsabhängige Variation der Anregung und Emission des Leuchtstoffes statt, wodurch die damit ausgerüstete LED einen homogenen und farbkonstanten Lichtkegel emittiert und über eine hohe Lichtleistung verfügt. Die keramischen
30 Leuchtstoffkörper können z.B. als Plättchen in Dicken von einigen 100 nm bis zu etwa 500 μm großtechnisch hergestellt werden. Die

Plättchenausdehnung (Länge x Breite) ist von der Anordnung abhängig. Bei direkter Aufbringung auf den Chip ist die Größe des Plättchens gemäß der Chipausdehnung (von ca. $100\ \mu\text{m} * 100\ \mu\text{m}$ bis zu mehreren mm^2) mit einem gewissen Übermaß von ca. 10% - zu 30% der Chipoberfläche bei geeigneter Chipanordnung (z.B. Flip-Chip-Anordnung) oder entsprechend zu wählen. Wird das Leuchtstoffplättchen über einer fertigen LED angebracht, so ist der austretende Lichtkegel vollständig vom Plättchen zu erfassen.

Die Seitenflächen des keramischen Leuchtstoffkörpers können mit einem Leicht- oder Edelmetall, vorzugsweise Aluminium oder Silber verspiegelt werden. Die Verspiegelung bewirkt, dass kein Licht lateral aus dem Leuchtstoffkörper austritt. Lateral austretendes Licht kann den aus der LED auszukoppelnden Lichtstrom verringern. Die Verspiegelung des keramischen Leuchtstoffkörpers erfolgt in einem Prozessschritt nach der isostatischen Verpressung zu Stangen oder Plättchen, wobei vor der Verspiegelung eventuell ein Schneider der Stangen oder Plättchen in die erforderliche Größe erfolgen kann. Die Seitenflächen werden hierzu z.B. mit einer Lösung aus Silbernitrat und Glucose benetzt und anschließend bei erhöhter Temperatur einer Ammoniak-Atmosphäre ausgesetzt. Hierbei bildet sich z.B. ein silberner Belag auf den Seitenflächen aus.

Alternativ bieten sich auch stromlose Metallisierungsverfahren an, siehe beispielsweise Hollemann-Wiberg, Lehrbuch der Anorganischen Chemie, Walter de Gruyter Verlag oder Ullmanns Enzyklopädie der chemischen Technologie.

Der keramische Leuchtstoffkörper kann, falls erforderlich, mit einer Wasserglaslösung auf dem Untergrund eines LED Chip fixiert werden.

In einer weiteren Ausführungsform besitzt der keramische Leuchtstoffkörper auf der, einem LED Chip entgegengesetzten Seite eine strukturierte (z.B. pyramidale) Oberfläche. Somit kann möglichst viel Licht aus dem Leuchtstoffkörper ausgekoppelt werden. Die strukturierte

Oberfläche auf dem Leuchtstoffkörper wird dadurch hergestellt, in dem beim isostatischen Verpressen das Presswerkzeug eine strukturierte Pressplatte aufweist und dadurch eine Struktur in die Oberfläche prägt. Strukturierte Oberflächen sind dann gewünscht, wenn möglichst dünne Leuchtstoffkörper bzw. Plättchen hergestellt werden sollen. Die Pressbedingungen sind dem Fachmann bekannt (siehe J. Kriegsmann, Technische keramische Werkstoffe, Kap. 4, Deutscher Wirtschaftsdienst, 1998). Wichtig ist, dass als Presstemperaturen $2/3$ bis zu $5/6$ der Schmelztemperatur des zu verpressenden Stoffes verwendet werden.

5

10

Die Anregbarkeit der erfindungsgemäßen Leuchtstoffe erstrecken sich zudem über einen weiten Bereich, der von etwa 410 nm bis 530 nm, bevorzugt 430 nm bis zu etwa 500 nm reicht. Damit sind diese Leuchtstoffe nicht nur zur Anregung durch UV oder blau emittierende Primärlichtquellen wie LEDs oder konventionelle Entladungslampen (z.B. auf Hg-Basis) geeignet, sondern auch für Lichtquellen wie solche, welche die blaue In^{3+} - Linie bei 451 nm ausnutzen.

15

Ein weiterer Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist eine Lichtquelle mit mindestens einer Primärlichtquelle, dadurch gekennzeichnet, dass die Lichtquelle mindestens einen Leuchtstoff nach Formel I und mindestens einen rot emittierenden Leuchtstoff enthält. Vorzugsweise ist diese Beleuchtungseinheit weiß emittierend oder emittiert Licht mit einem bestimmten Farbpunkt (Color-on-demand-Prinzip).

20

25

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

30

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

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

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

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

In erfindungsgemäß bevorzugten Lichtquellen sind die Leuchtstoffe so auf der Primärlichtquelle angeordnet, dass der rot emittierende Leuchtstoff im wesentlichen von Licht der Primärlichtquelle angestrahlt wird, während der Leuchtstoff gemäß Formel I im wesentlichen von Licht angestrahlt wird, welches bereits den rot emittierenden Leuchtstoff passiert hat bzw. von diesem gestreut wurde. In einer bevorzugten Ausführungsform wird dies

realisiert, indem der rot emittierende Leuchtstoff zwischen Primärlichtquelle und dem Leuchtstoff gemäß Formel I angebracht ist.

Weitere Erfindungsgegenstände sind eine Beleuchtungseinheit,
5 insbesondere zur Hintergrundbeleuchtung von Anzeigevorrichtungen, die dadurch gekennzeichnet ist, dass sie mindestens eine oben beschriebene Lichtquelle enthält und entsprechende Anzeigevorrichtungen, insbesondere Flüssigkristallanzeigevorrichtung (LC Display), mit einer
Hintergrundbeleuchtung, die dadurch gekennzeichnet sind, dass sie
10 mindestens eine solche Beleuchtungseinheit enthalten.

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

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

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

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

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

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

üblicherweise aber immer auf die Masse der angegebenen Teil- oder Gesamtmenge.

5 Auch ohne weitere Ausführungen wird davon ausgegangen, dass ein Fachmann die obige Beschreibung in weitestem Umfang nutzen kann. Die bevorzugten Ausführungsformen sind deswegen lediglich als beschreibende, keinesfalls als in irgendeiner Weise limitierende Offenbarung aufzufassen. Die vollständige Offenbarung aller vor- und nachstehend aufgeführten Anmeldungen und Veröffentlichungen sind durch
10 Bezugnahme in diese Anmeldung eingeführt. Die folgenden Beispiele sollen die vorliegende Erfindung verdeutlichen. Sie sind jedoch keinesfalls als limitierend zu betrachten. Alle Verbindungen oder Komponenten, die in den Zubereitungen verwendet werden können, sind entweder bekannt und käuflich erhältlich oder können nach bekannten Methoden synthetisiert
15 werden.

Beispiele

Beispiel 1: Herstellung des Granat-Leuchtstoffes

5

Beispiel 1A: Herstellung des Leuchtstoffes $\text{Lu}_{2,91}\text{Al}_4\text{GaO}_{12}:\text{Ce}_{0,09}$ („LuGaAG“)

10

387 g Ammoniumhydrogencarbonat werden innerhalb von 1h in 4,3 Litern
VE-Wasser gelöst. In 2,7l VE-Wasser werden 118 g Aluminiumchlorid-
Hexahydrat, 139 g Lutetiumchlorid-Hexahydrat, 3,4g Cerchlorid
Heptahydrat und 43,8 g Galliumnitrat gelöst und innerhalb von 0,75h zur
Hydrogencarbonatlösung zugetropft. Die Hydrogencarbonatlösung wird auf
pH 8 eingestellt. Der anfallende Niederschlag wird abgesaugt und
gewaschen. Danach wird er getrocknet und in einen Ofen überführt.
Der Niederschlag wird 3 Stunden bei 1100°C an Luft vorkalziniert und
anschließend 6 Stunden bei 1700 °C reduktiv kalziniert. Das
Emissionsspektrum der Verbindung ist in Figur 1 angegeben.

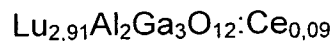
15

20

Analog werden durch geeignete Modifikation der Eduktverhältnisse bzw.
durch Verwendung des zusätzlichen Eduktes Yttriumchlorid-Hexahydrat
folgende Verbindungen erhalten:



25



Beispiel 1B: Herstellung des Leuchtstoffes $\text{Lu}_{2,97}\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}_{0,03}$ („LuAG“)

387 g Ammoniumhydrogencarbonat werden innerhalb von 1h in 4,3 Litern VE-Wasser gelöst. In 2,7l VE-Wasser werden 148 g Aluminiumchlorid-Hexahydrat, 135 g Lutetiumchlorid-Hexahydrat, und 0,86 g Cerchlorid Heptahydrat gelöst und innerhalb von 0,75h zur Hydrogencarbonatlösung zugetropft. Die Hydrogencarbonatlösung wird auf pH 8 eingestellt. Der anfallende Niederschlag wird abgesaugt und gewaschen. Danach wird er getrocknet und in einen Ofen überführt.

Der Niederschlag wird 3 Stunden bei 1100°C an Luft vorkalziniert und anschließend 6 Stunden bei 1700 °C reduktiv kalziniert. Das Emissionsspektrum der Verbindung ist in Figur 1 angegeben.

Beispiel 2: Herstellung der nitridischen Leuchtstoffe**Beispiel 2A: Herstellung von $\text{Sr}_2\text{Si}_5\text{N}_{7,666}\text{O}_{0,5}:\text{Eu}$**

18,9 g Sr_3N_2 , 0,996 g EuN, 22,66 g Siliciumnitrid und 1,504 g Siliciumdioxid werden in einer mit Stickstoff gefüllten Glovebox eingewogen und vermischt. Das entstandene Gemisch wird in einen Bornitridtiegel gefüllt und in einen Rohrofen überführt. Anschließend wird das Gemisch 8 Stunden bei 1600 °C unter einer Stickstoff/Wasserstoffatmosphäre kalziniert. Nach Abkühlung wird der Rohleuchtstoff entnommen, kurz gemörsert und erneut in einen Molybdäntiegel gefüllt, der dann in einen Hochdruckofen überführt wird. In diesem wird der Leuchtstoff erneut 8 Stunden bei 1600 °C unter einem Stickstoffdruck von 65 bar kalziniert. Nach Abkühlung wird der Leuchtstoff entnommen und in 100 ml VE-Wasser suspendiert. Die entstehende Suspension wird 30 Minuten gerührt, anschließend wird der Rührer ausgeschaltet. Nach einigen Minuten wird der Überstand abgegossen, der verbleibende Rückstand wird erneut in VE-

Wasser aufgenommen, abgenutscht, mit VE-Wasser neutral gewaschen und getrocknet.

Beispiel 2B: Herstellung von $\text{Sr}_{1,6}\text{Ca}_{0,4}\text{Si}_5\text{N}_{7,666}\text{O}_{0,5}:\text{Eu}$

5

19,0 g Sr_3N_2 , 2,47 g Ca_3N_2 , 0,83 g EuN , 28,33 g Siliciumnitrid und 1,88 g Siliciumdioxid werden in einer mit Stickstoff gefüllten Glovebox eingewogen und vermischt. Das entstandene Gemisch wird in einen Bornitridtiegel gefüllt und in einen Rohrofen überführt. Anschließend wird das Gemisch 8 Stunden bei 1600 °C unter einer Stickstoff/Wasserstoffatmosphäre kalziniert. Nach Abkühlung wird der Rohleuchtstoff entnommen, kurz gemörsert und erneut in einen Molybdäntiegel gefüllt, der dann in einen Hochdruckofen überführt wird. In diesem wird der Leuchtstoff erneut 8 Stunden bei 1600 °C unter einem Stickstoffdruck von 65 bar kalziniert.

10

15

Nach Abkühlung wird der Leuchtstoff entnommen und in 100 ml VE-Wasser suspendiert. Die entstehende Suspension wird 30 Minuten gerührt, anschließend wird der Rührer ausgeschaltet. Nach einigen Minuten wird der Überstand abgegossen, der verbleibende Rückstand wird erneut in VE-Wasser aufgenommen, abgenutscht, mit VE-Wasser neutral gewaschen und getrocknet.

20

Beispiel 2C: Herstellung von $\text{Ba}_2\text{Si}_5\text{N}_{7,666}\text{O}_{0,5}:\text{Eu}$

14,446 g Ba_3N_2 , 0,332 g EuN , 11,33 g Siliciumnitrid und 0,433 g Siliciumdioxid werden in einer mit Stickstoff gefüllten Glovebox eingewogen und vermischt. Das entstandene Gemisch wird in einen Bornitridtiegel gefüllt und in einen Rohrofen überführt. Anschließend wird das Gemisch 8 Stunden bei 1600 °C unter einer Stickstoff/Wasserstoffatmosphäre kalziniert. Nach Abkühlung wird der Rohleuchtstoff entnommen, kurz gemörsert und erneut in einen Molybdäntiegel gefüllt, der dann in einen

25

30

Hochdruckofen überführt wird. In diesem wird der Leuchtstoff erneut 8 Stunden bei 1600 °C unter einem Stickstoffdruck von 65 bar kalziniert. Nach Abkühlung wird der Leuchtstoff entnommen und in 100 ml VE-Wasser suspendiert. Die entstehende Suspension wird 30 Minuten gerührt, anschließend wird der Rührer ausgeschaltet. Nach einigen Minuten wird der Überstand abgegossen, der verbleibende Rückstand wird erneut in VE-Wasser aufgenommen, abgenutscht, mit VE-Wasser neutral gewaschen und getrocknet.

5

10

Beispiel 2D: Herstellung des Leuchtstoffs $\text{Sr}_2\text{Si}_5\text{N}_8:\text{Eu}$

1,84 g Sr_3N_2 , 0,166 g EuN und 2,33 g Siliciumnitrid werden in einer mit Stickstoff gefüllten Glovebox eingewogen und vermischt. Das entstandene Gemisch wird in einen Bornitridtiegel gefüllt und in einen Rohrofen überführt. Anschließend wird das Gemisch 8 Stunden bei 1600 °C unter einer Stickstoff/Wasserstoffatmosphäre kalziniert. Nach Abkühlung wird der Rohleuchtstoff entnommen, kurz gemörsert und erneut in einen Molybdäntiegel gefüllt, der dann in einen Hochdruckofen überführt wird. In diesem wird der Leuchtstoff erneut 8 Stunden bei 1600 °C unter einem Stickstoffdruck von 65 bar kalziniert.

15

20

Nach Abkühlung wird der Leuchtstoff entnommen und in 100 ml VE-Wasser suspendiert. Die entstehende Suspension wird 30 Minuten gerührt, anschließend wird der Rührer ausgeschaltet. Nach einigen Minuten wird der Überstand abgegossen, der verbleibende Rückstand wird erneut in VE-Wasser aufgenommen, abgenutscht, mit VE-Wasser neutral gewaschen und getrocknet.

25

Beispiel 2E: Herstellung des Leuchtstoffs $(\text{Sr},\text{Ca})\text{AlSiN}_3:\text{Eu}$

2,22 g Sr_3N_2 , 0,33g Ca_3N_2 , 0,05 g EuN, 1,23 g AlN und 1,4 g Siliciumnitrid werden in einer mit Stickstoff gefüllten Glovebox eingewogen und

30

vermischt. Das entstandene Gemisch wird in einen Bornitridtiegel gefüllt und in eine heißisostatische Presse (HIP) überführt. Es wurde ein Stickstoffdruck von 500 bar eingestellt, anschließend wurde das Material auf 1700 °C erhitzt und 4 Stunden bei dieser Temperatur getempert, hierbei stieg der Druck auf 1740 bar. Nach Abkühlung und Ventilation wurde das Material entnommen und in 100 ml VE-Wasser suspendiert. Die entstehende Suspension wird 30 Minuten gerührt, anschließend wird der Rührer ausgeschaltet. Nach einigen Minuten wird der Überstand abgegossen, der verbleibende Rückstand wird erneut in VE-Wasser aufgenommen, abgenutscht, mit VE-Wasser neutral gewaschen und getrocknet.

Beispiel 3: Herstellung der Leuchtstoffmischungen

Beispiel 3.1: „LuAG – Nitrid“

10 g des Leuchtstoffes aus Beispiel 1B werden mit 1 g des Leuchtstoffes aus Beispiel 2D innig vermischt.

Analog wird eine Mischung enthaltend die Leuchtstoffe aus Beispiel 1B und 2A bzw. 1B und 2B bzw. 1B und 2C bzw. 1B und 2E. hergestellt.

Beispiel 3.2: „LuGaAG – Nitrid“

6 g des LuGaAG Leuchtstoffes aus Beispiel 1A werden mit 1 g des Leuchtstoffes aus Beispiel 2A innig vermischt.

Analog wird eine Mischung enthaltend die Leuchtstoffe aus Beispiel 1A und 2B bzw. 1A und 2C bzw. 1A und 2D bzw. 1A und 2E. hergestellt..

Beispiel 4: Herstellung einer Leuchtdiode („LuAG-Nitrid“)

Die Leuchtstoffmischung aus Beispiel 3.1 wird in einem Taumelmischer mit einem 2-Komponenten Silikon (OE 6550 der Fa. Dow Corning) gemischt, so dass gleiche Mengen der Leuchtstoffmischung in den beiden

5 Komponenten des Silikons dispergiert sind; die Gesamtkonzentration der Leuchtstoffmischung im Silikon beträgt 8 Gew.-%.

5 ml jeder der beiden Leuchtstoff enthaltenden Silikon Komponenten werden homogen miteinander gemischt und in einen Dispenser überführt. Mit Hilfe des Dispensers werden leere LED packages von der Fa. OSA optoelectronics, Berlin, welche einen 100 μm^2 großen GaN Chip enthalten, befüllt. Danach werden die LEDs in eine Wärmekammer gestellt, um über

10 1 h bei 150°C das Silikon zu verfestigen.

Beispiel 5: Herstellung einer Leuchtdiode („LuGaAG-Nitrid“)

Der Leuchtstoffmischung aus Beispiel 3.2 wird in einem Taumelmischer mit einem 2-Komponenten Silikon (OE 6550 der Fa. Dow Corning) gemischt, so dass gleiche Mengen der Leuchtstoffmischung in den beiden

20 Komponenten des Silikons dispergiert sind; die Gesamtkonzentration der Leuchtstoffmischung im Silikon beträgt 5 Gew.-%.

5 ml jeder der beiden Leuchtstoff enthaltenden Silikon Komponenten werden homogen miteinander gemischt und in einen Dispenser überführt. Mit Hilfe des Dispensers werden leere LED packages von der Fa. OSA optoelectronics, Berlin, welche einen 100 μm^2 großen GaN Chip enthalten, befüllt. Danach werden die LEDs in eine Wärmekammer gestellt, um über

25 1 h bei 150°C das Silikon zu verfestigen.

Die Emissionsspektren der beiden LEDs nach Beispiel 4 und 5 sind in Figur 2 angegeben. Beiden LEDs weisen annähernd identische Kennwerte auf:

	CRI	CCT	Lumenäquivalent	Lumen	CIE x	CIE y
Bsp. 5	96,0	3145,0	279,23	3,63	0,4259	0,3979
Bsp. 4	97,0	3262,0	270,77	3,52	0,4179	0,3937

5

„CRI“ steht für den sog. „Color Rendering Index“, dies ist eine dem Fachmann geläufige, einheitslose lichttechnische Größe, welche die Farbwiedergabetreue einer künstlichen Lichtquelle mit derjenigen des Sonnenlichtes bzw. und Filamentlichtquellen vergleicht (die beiden

10 letztgenannten besitzen einen CRI von 100).

„CCT“ steht für die sog. „Correlated Color Temperature“, dies ist eine dem Fachmann geläufige, lichttechnische Größe mit der Einheit Kelvin. Je höher der Zahlenwert, desto kälter erscheint dem Betrachter das Weißlicht einer

15 künstlichen Strahlungsquelle. Die CCT folgt dem Konzept des Schwarzlichtstrahlers, dessen Farbtemperatur der sog. Planckschen Kurve im CIE Diagramm verläuft.

Das Lumenäquivalent ist eine dem Fachmann geläufige lichttechnische

20 Größe mit der Einheit lm/W, die beschreibt, wie groß der photometrische Lichtstrom in Lumen einer Lichtquelle bei einer bestimmten radiometrischen Strahlungsleistung mit der Einheit Watt, ist. Je höher das Lumenäquivalent ist, desto effizienter ist eine Lichtquelle.

25

Das Lumen ist eine dem Fachmann geläufige, photometrische lichttechnische Größe, welche den Lichtstrom einer Lichtquelle, der ein Maß für die gesamte von einer Strahlungsquelle ausgesandte sichtbare Strahlung ist, beschreibt. Je größer der Lichtstrom, desto heller erscheint die Lichtquelle dem Beobachter.

CIE x und CIE y stehen für die Koordinaten im dem dem Fachmann geläufigen CIE Normfarbdiagramm (hier Normalbeobachter 1931), mit denen die Farbe einer Lichtquelle beschrieben wird.

5 Alle oben aufgeführten Größen werden nach dem Fachmann geläufigen Methoden aus Emissionsspektren der Lichtquelle berechnet.

10 Die Zusammensetzung der Leuchtstoffmischung in der LED „LuAG-Nitrid“ beträgt 10 Massenanteile LuAG LGA 553 100 : 1 Massenanteil Nitrid. Die Konzentration der Leuchtstoffmischung in der LED beträgt 8 wt-% (im Silikon). Die Zusammensetzung der Leuchtstoffmischung in der LED „LuGaAG-Nitrid“ beträgt 6 Massenanteile LuGaAG : 1 Massenanteil Nitrid. Die Konzentration der Leuchtstoffmischung in der LED beträgt 5 wt-% (im Silikon). D.h. trotz geringerer Leuchtstoffeinsatzkonzentration (hier: 15 LuGaAG Konzentration) werden nahezu identische LED Kennwerte erhalten.

Beispiel 6: Herstellung einer Leuchtdiode in welcher die Leuchtstoffe so auf der Primärlichtquelle angeordnet sind, dass der rot emittierende Leuchtstoff im wesentlichen von Licht der Primärlichtquelle angestrahlt wird, während der grün emittierende Leuchtstoff im wesentlichen von Licht angestrahlt wird, welches bereits den rot emittierenden Leuchtstoff passiert hat bzw. von diesem gestreut wurde

25 Der Leuchtstoff aus Beispiel 1A bzw. der Leuchtstoff aus Beispiel 1B wird in einem Taumelmischer mit einem 2-Komponenten Silikon (OE 6550 der Fa. Dow Corning) gemischt, so dass gleiche Mengen der Leuchtstoffmischung in den beiden Komponenten des Silikons dispergiert sind. Die Konzentration des grünen Leuchtstoffes im Silikon beträgt 5 30 Gew.-% LuGaAG (Pre-Mix A1) bzw. 8 Gew.-% LuAG (Pre-Mix A2).

Der rot emittierende aus Beispiel 2A bzw. 2B bzw. 2C wird jeweils in einem Taumelmischer mit einem 2-Komponenten Silikon (OE 6550 der Fa. Dow Corning) gemischt, so dass gleiche Mengen der Leuchtstoffmischung in
5 den beiden Komponenten des Silikons dispergiert sind. Die Konzentration des roten Leuchtstoffes im Silikon beträgt 1 Gew.-% (Pre-Mix B1 – Pre-Mix B3).

10 5 ml jeder der beiden Leuchtstoff enthaltenden Silikon Komponenten eines pre-Mixes werden homogen miteinander gemischt und in einen Dispenser überführt. Mit Hilfe des Dispensers werden leere LED packages von der Fa. OSA optoelectronics, Berlin, welche einen $100 \mu\text{m}^2$ großen GaN Chip enthalten, befüllt. Zuerst wird der Pre-Mix B eingefüllt, anschließend die LEDs in eine Wärmekammer gestellt, um über 1 h bei 150°C das Silikon zu
15 verfestigen. Danach wird Pre-Mix A (A1 bzw. A2) eingefüllt und die LEDs erneut in eine Wärmekammer gestellt, um über 1 h bei 150°C das Silikon zu verfestigen.

Beschreibung der Figuren

5 **Fig. 1:** Die Emissionsspektren eines niedrig dotierten LuAG aus Beispiel 2 (durchgezogene Linie, Peak bei 525 nm) und die Emissionskurve eines hoch dotierten LuGaAG aus Beispiel 1 weisen annähernd identische Farbeigenschaften auf. (Die Emissionsmessung wurde an einer optisch unendlich dicken Schicht des Leuchtstoffes bei einer Anregung von 450 nm
10 mit einem Edinburgh Instruments Spektrometer OC290 bei Raumtemperatur durchgeführt.)

Fig. 2: Emissionsspektren der Leuchtdioden aus Beispiel 4 und 5
Die durchgezogene Linie repräsentiert die LED aus Vergleichsbeispiel 4
15 (Massenanteile LuAG : Nitrid = 10:1). Die gestrichelte Linie repräsentiert eine LED gemäß Beispiel 5, welche mit der Leuchtstoffmischung, bestehend aus LuGaAG:Ce und einem bei 638 nm emittierenden 2-5-8-Nitrid gebaut worden ist (Massenanteile LuGaAG : Nitrid = 6:1). (Die Emissionsmessung wurde mit einem Instrument Systems CAS 140
20 Spektrometer in einer Integrationskugel der Fa. Instrument Systems ISP 250 mit Hilfe der Stromquelle der Fa. Keithley, Modell 2601 durchgeführt. Die LED wurde kontinuierlich mit 20 mA bei Raumtemperatur stabilisiert angesteuert.)

25

Patentansprüche

- 5 1. Mischung enthaltend mindestens einen Leuchtstoff der Formel I,
 $A_a Lu_c Ce_x Al_l Ga_m O_{12}$ (I)
wobei
A steht für ein oder mehrere Elemente ausgewählt aus Y, Gd, Se, Sm, Tb, Pr,
Th, Ir, Sb, Bi und
10 a steht für einen Wert aus dem Bereich von 0 bis 2,895 und
c steht für einen Wert aus dem Bereich von 0,1 bis 2,995 und
x steht für einen Wert aus dem Bereich von 0,005 bis 1 und
wobei a, c und x so gewählt sind, dass gilt $a + c + x = 3$ und
l steht für einen Wert aus dem Bereich von 0 bis 4,99 und
15 m steht für einen Wert aus dem Bereich von 0,01 bis 5, wobei l und m so
gewählt sind, dass gilt $l + m = 5$ und
und mindestens einen rot emittierenden Leuchtstoff.
- 20 2. Mischung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet dass die Mischung
mindestens einen Leuchtstoff der Formel I enthält, der dadurch
gekennzeichnet ist, dass a steht für einen Wert aus dem Bereich von 0 bis
0,5, vorzugsweise aus dem Bereich 0 bis 0,3 und wobei insbesondere
bevorzugt gilt $a = 0$ bis 0,2.
- 25 3. Mischung nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 oder 2, dadurch
gekennzeichnet dass die Mischung mindestens einen Leuchtstoff der Formel I
enthält, der dadurch gekennzeichnet ist, dass x steht für einen Wert aus dem
Bereich von 0,01 bis 0,5, vorzugsweise aus dem Bereich 0,015 bis 0,2 und
insbesondere bevorzugt aus dem Bereich 0,02 bis 0,1.

4. Mischung nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet dass die Mischung mindestens einen Leuchtstoff der Formel I enthält, der dadurch gekennzeichnet ist, dass m steht für einen Wert aus dem Bereich von 0,05 bis 3, vorzugsweise aus dem Bereich 0,1 bis 2 und insbesondere bevorzugt aus dem Bereich 0,5 bis 1,5.
5. Mischung nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet dass mindestens ein rot emittierender Leuchtstoff ausgewählt ist aus Ce-dotierten Granaten, Eu-dotierten Thiogallaten, Eu-dotierten Sulfoseleniden und Eu- und/oder Ce-dotierten Nitriden, Oxynitriden, Alumonitriden und /oder Mn(IV) dotierten Oxiden und/oder Fluoriden.
6. Mischung nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet dass mindestens ein rot emittierender Leuchtstoff ausgewählt ist aus den nitridischen Leuchtstoffen, vorzugsweise $(\text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba})_2\text{Si}_5\text{N}_8:\text{Eu}$, $(\text{Ca}, \text{Sr})\text{AlSiN}_3:\text{Eu}$, $(\text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba})\text{SiN}_2:\text{Eu}$, $(\text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba})_6\text{Si}_3\text{O}_6\text{N}_4:\text{Eu}$, $(\text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba})_{2-x/2}\text{Si}_5\text{N}_{8-x}\text{O}_x:\text{Eu}$, wobei x steht für eine Zahl aus dem Bereich 0,01 bis 3, oder Varianten der genannten Verbindungen, bei denen einzelne Gitterpositionen durch andere chemische Elemente, wie Alkalimetalle, Aluminium, Gallium, oder Gadolinium, substituiert sind bzw. solche weitere Elemente als Dotierstoff Fehlstellen besetzen.
7. Mischung nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, dass der mindestens eine Leuchtstoff der Formel I und der mindestens eine rot emittierende Leuchtstoff im Gewichtsverhältnis 20:1 bis 1:1, vorzugsweise 10:1 bis 3:1 und insbesondere bevorzugt 6:1 bis 4:1 vorliegen.
8. Verfahren zur Herstellung einer Leuchtstoffmischung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, dass mindestens ein Leuchtstoff der Formel I mit mindestens einem rot emittierenden Leuchtstoff gemischt wird.

9. Lichtquelle mit mindestens einer Primärlichtquelle, dadurch gekennzeichnet, dass die Lichtquelle mindestens einen Leuchtstoff nach Formel I gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 7 und mindestens einen rot emittierenden Leuchtstoff enthält.
- 5
10. Lichtquelle nach Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, dass es sich bei der Primärlichtquelle um ein lumineszentes IndiumAluminiumGalliumNitrid, insbesondere der Formel $\text{In}_i\text{Ga}_j\text{Al}_k\text{N}$, wobei $0 \leq i$, $0 \leq j$, $0 \leq k$, und $i+j+k=1$ handelt.
- 10
11. Lichtquelle nach einem oder mehreren der Ansprüche 9 oder 10, dadurch gekennzeichnet, dass die Leuchtstoffe so auf der Primärlichtquelle angeordnet sind, dass der rot emittierende Leuchtstoff im wesentlichen von Licht der Primärlichtquelle angestrahlt wird, während der Leuchtstoff gemäß Formel I im wesentlichen von Licht angestrahlt wird, welches bereits den rot emittierenden Leuchtstoff passiert hat bzw. von diesem gestreut wurde.
- 15
12. Lichtquelle nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, dass der rot emittierende Leuchtstoff zwischen Primärlichtquelle und dem Leuchtstoff gemäß Formel I angebracht ist.
- 20
13. Beleuchtungseinheit, insbesondere zur Hintergrundbeleuchtung von Anzeigevorrichtungen, dadurch gekennzeichnet, dass sie mindestens eine Lichtquelle nach einem oder mehreren der Ansprüche 9 bis 12 enthält.
- 25
14. Beleuchtungseinheit nach Anspruch 13, dadurch gekennzeichnet, dass die optische Ankopplung zwischen dem Leuchtstoff und der Primärlichtquelle durch eine lichtleitende Anordnung realisiert ist.

15. Anzeigevorrichtung, insbesondere Flüssigkristallanzeigevorrichtung (LC Display), mit einer Hintergrundbeleuchtung, dadurch gekennzeichnet, dass sie mindestens eine Beleuchtungseinheit gemäß Anspruch 13 oder 14 enthält.
- 5 16. Verwendung einer Mischung nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 7 als Konversions-Leuchtstoff zur teilweisen oder vollständigen Konversion der blauen oder im nahen UV-liegenden Emission einer Lumineszenzdiode.

Fig. 1

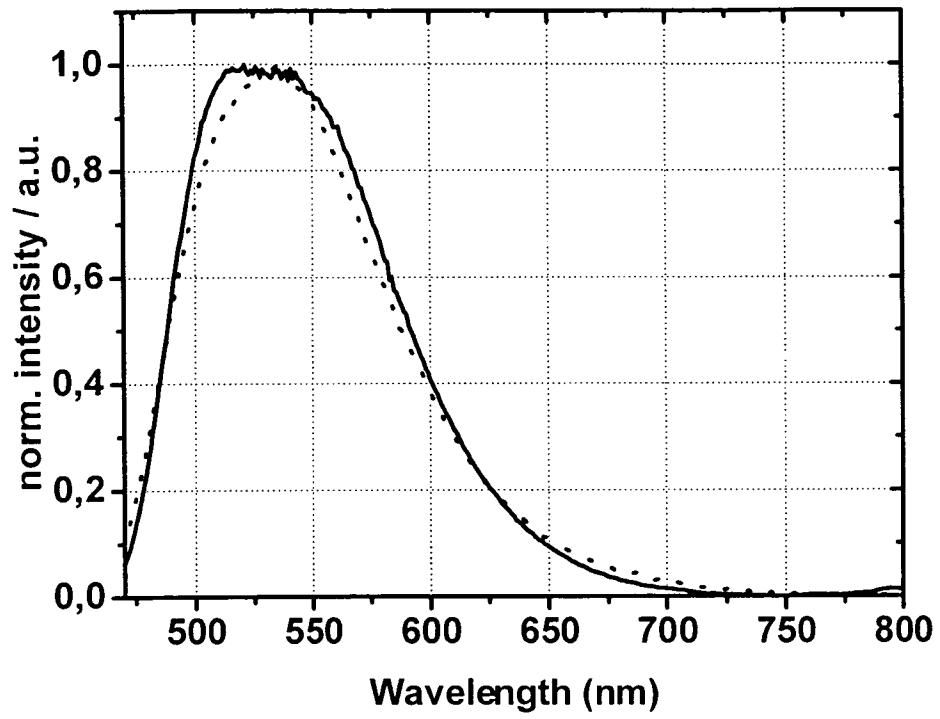
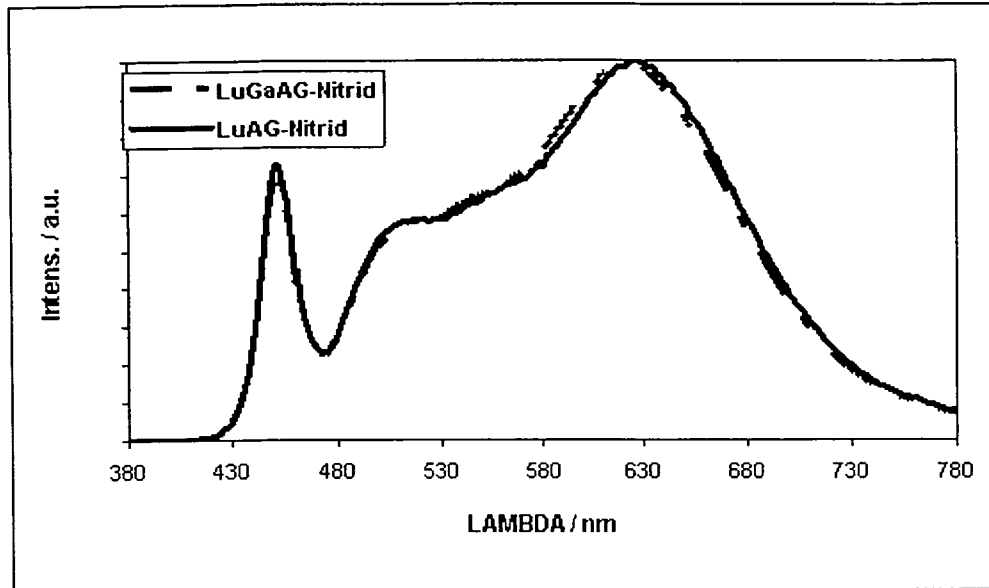


Fig. 2



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/EP2011/002084

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
INV. C09K11/77
ADD.
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
C09K

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

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)
EPO-Internal, WPI Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 1 854 863 A1 (MITSUBISHI CHEM CORP [JP]) 14 November 2007 (2007-11-14)	1,4-16
Y	example 19	2,3
A	----- EP 1 710 289 A1 (GEN ELECTRIC [US]) 11 October 2006 (2006-10-11) paragraphs [0018], [0019]	2
Y	----- CN 1 927 996 A (BEIJING YUJI SCIENCE AND TECHN [CN]) 14 March 2007 (2007-03-14) example 14	2
	----- -/--	

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

* Special categories of cited documents :

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

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

Date of the actual completion of the international search 15 July 2011	Date of mailing of the international search report 21/07/2011
Name and mailing address of the ISA/ European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016	Authorized officer Ziegler, Jan

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/EP2011/002084

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	LI ET AL: "Luminescent properties of LuAG:Ce phosphors with different Ce contents prepared by a sol-gel combustion method", OPTICAL MATERIALS, ELSEVIER SCIENCE PUBLISHERS B.V. AMSTERDAM, NL, vol. 29, no. 9, 29 March 2007 (2007-03-29), pages 1138-1142, XP022003629, ISSN: 0925-3467, DOI: DOI:10.1016/J.OPTMAT.2006.05.002 figure 4	3
A	----- WO 2005/103199 A1 (MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD [JP]; OSHIO SHOZO) 3 November 2005 (2005-11-03) page 57, line 24 - line 28; compound CaAlSiN ₃ :Eu ²⁺	5,6
A	----- WO 2006/006099 A1 (PHILIPS INTELLECTUAL PROPERTY [DE]; KONINKL PHILIPS ELECTRONICS NV [NL]) 19 January 2006 (2006-01-19) claim 6	2
X	----- US 4 807 241 A (BERKSTRESSER GEORGE W [US] ET AL) 21 February 1989 (1989-02-21) example 1	1
A		2-16
X	----- CN 1 169 587 A (ELECTRONICS SCIENCE AND TECHNO [CN]) 7 January 1998 (1998-01-07) compound	1
A		2-16
X	----- WU J L ET AL: "SPECTRAL PROPERTIES OF VARIOUS CERIUM DOPED GARNET PHOSPHORS FOR APPLICATION IN WHITE GAN-BASED LEDS", STRUCTURE AND MECHANICAL BEHAVIOR OF BIOLOGICAL MATERIALS : SYMPOSIUM HELD MARCH 29 - 31, 2005, SAN FRANCISCO, CALIFORNIA, U.S.A; [MATERIALS RESEARCH SOCIETY SYMPOSIUM PROCEEDINGS], WARRENDALE, PA. : MATERIALS RESEARCH SOCIETY, US, vol. 658, 1 January 2001 (2001-01-01), pages GG11.8.1-GG11.8.6, XP009036120, ISBN: 978-1-55899-828-5	1
A	figures 3,6,7	2-16

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No PCT/EP2011/002084

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 1854863	A1	14-11-2007	CN 101128563 A
			WO 2006093015 A1
			JP 4325733 B2
			JP 2009001809 A
			KR 20070106536 A
			US 2009008663 A1
EP 1710289	A1	11-10-2006	CN 1840606 A
			JP 2006282996 A
			US 2006222757 A1
CN 1927996	A	14-03-2007	NONE
WO 2005103199	A1	03-11-2005	EP 1749074 A1
			EP 1980605 A2
			EP 2113549 A2
			KR 20070004101 A
			KR 20070087049 A
			KR 20080037118 A
			KR 20080043370 A
			KR 20080041714 A
			KR 20080067010 A
			KR 20090077968 A
			US 2008211389 A1
			US 2008182127 A1
			US 2008191610 A1
			US 2008258110 A1
			US 2009250663 A1
			US 2009295272 A1
			US 2007259206 A1
			US 2008128654 A1
WO 2006006099	A1	19-01-2006	CN 1997723 A
			EP 1763567 A1
			JP 2008505477 A
			US 2007252513 A1
US 4807241	A	21-02-1989	NONE
CN 1169587	A	07-01-1998	NONE

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
 INV. C09K11/77
 ADD.

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

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
 C09K

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

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

EPO-Internal, WPI Data

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	EP 1 854 863 A1 (MITSUBISHI CHEM CORP [JP]) 14. November 2007 (2007-11-14)	1,4-16
Y	Beispiel 19	2,3

A	EP 1 710 289 A1 (GEN ELECTRIC [US]) 11. Oktober 2006 (2006-10-11) Absätze [0018], [0019]	2

Y	CN 1 927 996 A (BEIJING YUJI SCIENCE AND TECHN [CN]) 14. März 2007 (2007-03-14) Beispiel 14	2

	-/--	



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

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

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

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

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

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

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

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

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

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

15. Juli 2011

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

21/07/2011

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

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

Bevollmächtigter Bediensteter

Ziegler, Jan

C. (Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	LI ET AL: "Luminescent properties of LuAG:Ce phosphors with different Ce contents prepared by a sol-gel combustion method", OPTICAL MATERIALS, ELSEVIER SCIENCE PUBLISHERS B.V. AMSTERDAM, NL, Bd. 29, Nr. 9, 29. März 2007 (2007-03-29), Seiten 1138-1142, XP022003629, ISSN: 0925-3467, DOI: DOI:10.1016/J.OPTMAT.2006.05.002 Abbildung 4	3
A	----- WO 2005/103199 A1 (MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD [JP]; OSHIO SHOZO) 3. November 2005 (2005-11-03) Seite 57, Zeile 24 - Zeile 28; Verbindung CaAlSiN ₃ :Eu ²⁺	5,6
A	----- WO 2006/006099 A1 (PHILIPS INTELLECTUAL PROPERTY [DE]; KONINKL PHILIPS ELECTRONICS NV [NL]) 19. Januar 2006 (2006-01-19) Anspruch 6	2
X	----- US 4 807 241 A (BERKSTRESSER GEORGE W [US] ET AL) 21. Februar 1989 (1989-02-21)	1
A	Beispiel 1	2-16
X	----- CN 1 169 587 A (ELECTRONICS SCIENCE AND TECHNO [CN]) 7. Januar 1998 (1998-01-07)	1
A	Verbindung Y ₂ .177Ce _{0.014} Tb _{0.042} Lu _{0.860} Al ₄ .321Ga _{0.582}	2-16
X	----- WU J L ET AL: "SPECTRAL PROPERTIES OF VARIOUS CERIUM DOPED GARNET PHOSPHORS FOR APPLICATION IN WHITE GAN-BASED LEDS", STRUCTURE AND MECHANICAL BEHAVIOR OF BIOLOGICAL MATERIALS : SYMPOSIUM HELD MARCH 29 - 31, 2005, SAN FRANCISCO, CALIFORNIA, U.S.A; [MATERIALS RESEARCH SOCIETY SYMPOSIUM PROCEEDINGS], WARRENDALE, PA. : MATERIALS RESEARCH SOCIETY, US, Bd. 658, 1. Januar 2001 (2001-01-01), Seiten GG11.8.1-GG11.8.6, XP009036120, ISBN: 978-1-55899-828-5	1
A	Abbildungen 3,6,7	2-16

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2011/002084

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 1854863	A1	14-11-2007	CN 101128563 A 20-02-2008
			WO 2006093015 A1 08-09-2006
			JP 4325733 B2 02-09-2009
			JP 2009001809 A 08-01-2009
			KR 20070106536 A 01-11-2007
			US 2009008663 A1 08-01-2009

EP 1710289	A1	11-10-2006	CN 1840606 A 04-10-2006
			JP 2006282996 A 19-10-2006
			US 2006222757 A1 05-10-2006
-----	-----	-----	-----
CN 1927996	A	14-03-2007	KEINE
-----	-----	-----	-----
WO 2005103199	A1	03-11-2005	EP 1749074 A1 07-02-2007
			EP 1980605 A2 15-10-2008
			EP 2113549 A2 04-11-2009
			KR 20070004101 A 05-01-2007
			KR 20070087049 A 27-08-2007
			KR 20080037118 A 29-04-2008
			KR 20080043370 A 16-05-2008
			KR 20080041714 A 13-05-2008
			KR 20080067010 A 17-07-2008
			KR 20090077968 A 16-07-2009
			US 2008211389 A1 04-09-2008
			US 2008182127 A1 31-07-2008
			US 2008191610 A1 14-08-2008
			US 2008258110 A1 23-10-2008
			US 2009250663 A1 08-10-2009
			US 2009295272 A1 03-12-2009
US 2007259206 A1 08-11-2007			
US 2008128654 A1 05-06-2008			
-----	-----	-----	-----
WO 2006006099	A1	19-01-2006	CN 1997723 A 11-07-2007
			EP 1763567 A1 21-03-2007
			JP 2008505477 A 21-02-2008
			US 2007252513 A1 01-11-2007
-----	-----	-----	-----
US 4807241	A	21-02-1989	KEINE
-----	-----	-----	-----
CN 1169587	A	07-01-1998	KEINE
-----	-----	-----	-----