

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2015-119172

(P2015-119172A)

(43) 公開日 平成27年6月25日(2015.6.25)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
<b>H01L 33/08 (2010.01)</b>	H01L 33/00 120	4H001
<b>C09K 11/00 (2006.01)</b>	C09K 11/00 A	5F141
<b>C09K 11/02 (2006.01)</b>	C09K 11/02 Z	5F241

審査請求 未請求 請求項の数 11 O L (全 19 頁)

(21) 出願番号	特願2014-226059 (P2014-226059)	(71) 出願人	391005824 株式会社日本セラテック
(22) 出願日	平成26年11月6日 (2014.11.6)		宮城県仙台市泉区明通3丁目5番
(31) 優先権主張番号	特願2013-234577 (P2013-234577)	(74) 代理人	100131026 弁理士 藤木 博
(32) 優先日	平成25年11月13日 (2013.11.13)	(74) 代理人	100194124 弁理士 吉川 まゆみ
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)	(72) 発明者	傳井 美史 宮城県仙台市泉区明通三丁目24番地1号 株式会社日本セラテック内
		(72) 発明者	阿部 晋史 宮城県仙台市泉区明通三丁目24番地1号 株式会社日本セラテック内

最終頁に続く

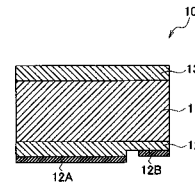
(54) 【発明の名称】 発光素子、発光装置、及びそれらの製造方法

(57) 【要約】

【課題】耐熱性を向上させることができ、かつ、小型化することができる発光素子及び発光装置を提供する。

【解決手段】発光素子10は、例えば、基板11の一面に配設された半導体発光素子12と、基板11の他面に配設された蛍光体膜13とを備えている。蛍光体膜13は、例えば、基板11の他面に、蛍光体材料と、加水分解あるいは酸化により酸化ケイ素となる酸化ケイ素前駆体などのバインダ原料とを含む蛍光体膜原料を塗布し、常温で反応させるか、又は、500以下の温度で熱処理することにより形成されたものである。

【選択図】 図1



## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

基板の一面に配設された半導体発光素子と、  
前記基板の他面に配設され、粒子状の蛍光体材料とバインダとを含む蛍光体膜とを備え

、  
前記蛍光体膜は、前記基板の他面に、前記蛍光体材料と、加水分解あるいは酸化により酸化ケイ素となる酸化ケイ素前駆体、ケイ酸化合物、シリカ、及び、アモルファスシリカからなる群のうちの少なくとも 1 種を含むバインダ原料とを含む蛍光体膜原料を塗布し、常温で反応させるか、又は、500 以下の温度で熱処理することにより形成されたことを特徴とする発光素子。

10

## 【請求項 2】

前記蛍光体材料の一次粒子の平均粒径は、1 μm 以上 20 μm 以下であることを特徴とする請求項 1 の発光素子。

## 【請求項 3】

前記蛍光体膜の表面粗さは、算術平均粗さ R<sub>a</sub> で 10 μm 以下であることを特徴とする請求項 1 又は請求項 2 記載の発光素子。

## 【請求項 4】

前記蛍光体膜の膜厚分布は、±10% 以内であることを特徴とする請求項 1 から請求項 3 のいずれか 1 に記載の発光素子。

## 【請求項 5】

請求項 1 から請求項 4 のいずれか 1 に記載の発光素子を備えたことを特徴とする発光装置。

20

## 【請求項 6】

半導体発光素子が一面に形成された基板の他面に、粒子状の蛍光体材料とバインダとを含む蛍光体膜を形成する蛍光体膜形成工程を含み、

前記蛍光体膜形成工程では、基板の他面に、粒子状の蛍光体材料と、加水分解あるいは酸化により酸化ケイ素となる酸化ケイ素前駆体、ケイ酸化合物、シリカ、及び、アモルファスシリカからなる群のうちの少なくとも 1 種を含むバインダ原料とを含む蛍光体膜原料を塗布し、常温で反応させるか、又は、500 以下の温度で熱処理することにより蛍光体膜を形成する

30

ことを特徴とする発光素子の製造方法。

## 【請求項 7】

基板の一面に半導体発光素子を形成する半導体発光素子形成工程と、基板の他面に粒子状の蛍光体材料とバインダとを含む蛍光体膜を形成する蛍光体膜形成工程を含み、

前記蛍光体膜形成工程では、基板の他面に、粒子状の蛍光体材料と、加水分解あるいは酸化により酸化ケイ素となる酸化ケイ素前駆体、ケイ酸化合物、シリカ、及び、アモルファスシリカからなる群のうちの少なくとも 1 種を含むバインダ原料とを含む蛍光体膜原料を塗布し、常温で反応させるか、又は、500 以下の温度で熱処理することにより蛍光体膜を形成する

40

ことを特徴とする発光素子の製造方法。

## 【請求項 8】

前記蛍光体膜形成工程の後、基板を切断し、チップ化するチップ化工程を含むことを特徴とする請求項 6 又は請求項 7 記載の発光素子の製造方法。

## 【請求項 9】

前記蛍光体膜形成工程では、基板の他面に、蛍光体膜原料を印刷法又はスプレー塗布法により塗布することを特徴とする請求項 6 から請求項 8 のいずれか 1 に記載の発光素子の製造方法。

## 【請求項 10】

半導体発光素子が一面に形成された基板の他面に、粒子状の蛍光体材料とバインダとを含む蛍光体膜を形成する蛍光体膜形成工程を含み、

50

前記蛍光体膜形成工程では、基板の他面に、粒子状の蛍光体材料と、加水分解あるいは酸化により酸化ケイ素となる酸化ケイ素前駆体、ケイ酸化合物、シリカ、及び、アモルファスシリカからなる群のうち少なくとも1種を含むバインダ原料とを含む蛍光体膜原料を塗布し、常温で反応させるか、又は、500 以下の温度で熱処理することにより蛍光体膜を形成する

ことを特徴とする発光装置の製造方法。

【請求項11】

基板の一面に半導体発光素子を形成する半導体発光素子形成工程と、基板の他面に粒子状の蛍光体材料とバインダとを含む蛍光体膜を形成する蛍光体膜形成工程を含み、

前記蛍光体膜形成工程では、基板の他面に、粒子状の蛍光体材料と、加水分解あるいは酸化により酸化ケイ素となる酸化ケイ素前駆体、ケイ酸化合物、シリカ、及び、アモルファスシリカからなる群のうち少なくとも1種を含むバインダ原料とを含む蛍光体膜原料を塗布し、常温で反応させるか、又は、500 以下の温度で熱処理することにより蛍光体膜を形成する

ことを特徴とする発光装置の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、蛍光体材料を用いた発光素子、発光装置、及びそれらの製造方法に関する。

【背景技術】

【0002】

蛍光体を用いた発光装置としては、例えば、蛍光体をエポキシ樹脂またはシリコン樹脂に分散させて配置したものが知られている（例えば、特許文献1または特許文献2参照）。しかし、この発光装置では、LEDの高出力化やLEDの発熱に伴い、エポキシ樹脂またはシリコン樹脂が劣化したり、変形、剥離したりして、高出力化を図ることが難しいという問題があった。その解決策として、エポキシ樹脂またはシリコン樹脂に代えて、例えば、ガラスに蛍光体を分散させた発光装置が開発されている（例えば、特許文献3から特許文献5参照）。この発光装置によれば、分散媒に無機材料を用いることにより構造的な耐熱性を向上させることができる。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0003】

【特許文献1】特許第3364229号公報

【特許文献2】特許第3824917号公報

【特許文献3】特開2009-91546号公報

【特許文献4】特開2008-143978号公報

【特許文献5】特開2008-115223号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0004】

しかしながら、一般的な低融点ガラスは、実質500 以上で加熱しなければ蛍光体を分散させることができる程度に軟化させることは難しい（引用文献4実施例参照）。例えば、鉛などの重金属を加えることで低融点化することはできるものの、それらの元素が許容される用途は環境や人体への影響の観点から現在では極めて少ない。そのため、蛍光体によっては、熱の影響により性能が劣化してしまう場合があるという問題があった。

【0005】

また、ガラスに蛍光体を分散させる場合には、母材となるガラスの強度を維持するために蛍光体の充填率を高くすることができず、LEDの高輝度化に伴い、必要以上に励起光が透過してしまうという問題が生じていた。この透過を抑制するには、蛍光体を分散させたガラスの厚みを厚くしなければならない。その結果、発光装置の薄型化を図ることがで

10

20

30

40

50

きず、また、ガラスの厚みが増すことで光透過性が低下してしまい、更に、放熱が阻害されてしまうなどの問題もあった。

【0006】

本発明は、このような問題に基づきなされたものであり、耐熱性を向上させることができ、かつ、小型化することができる発光素子及び発光装置を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0007】

本発明の発光素子は、基板の一面に配設された半導体発光素子と、基板の他面に配設され、粒子状の蛍光体材料とバインダとを含む蛍光体膜とを備え、蛍光体膜は、前記基板の他面に、前記蛍光体材料と、加水分解あるいは酸化により酸化ケイ素となる酸化ケイ素前駆体、ケイ酸化合物、シリカ、及び、アモルファスシリカからなる群のうちの少なくとも1種を含むバインダ原料とを含む蛍光体膜原料を塗布し、常温で反応させるか、又は、500以下の温度で熱処理することにより形成されたものである。

10

【0008】

本発明の発光装置は、本発明の発光素子を備えたものである。

【0009】

本発明の発光素子の製造方法及び発光装置の製造方法は、半導体発光素子が一面に形成された基板の他面に、粒子状の蛍光体材料とバインダとを含む蛍光体膜を形成する蛍光体膜形成工程を含み、蛍光体膜形成工程では、基板の他面に、粒子状の蛍光体材料と、加水分解あるいは酸化により酸化ケイ素となる酸化ケイ素前駆体、ケイ酸化合物、シリカ、及び、アモルファスシリカからなる群のうちの少なくとも1種を含むバインダ原料とを含む蛍光体膜原料を塗布し、常温で反応させるか、又は、500以下の温度で熱処理することにより蛍光体膜を形成するものである。

20

【0010】

本発明の他の発光素子の製造方法及び発光装置の製造方法は、基板の一面に半導体発光素子を形成する半導体発光素子形成工程と、基板の他面に粒子状の蛍光体材料とバインダとを含む蛍光体膜を形成する蛍光体膜形成工程を含み、蛍光体膜形成工程では、基板の他面に、粒子状の蛍光体材料と、加水分解あるいは酸化により酸化ケイ素となる酸化ケイ素前駆体、ケイ酸化合物、シリカ、及び、アモルファスシリカからなる群のうちの少なくとも1種を含むバインダ原料とを含む蛍光体膜原料を塗布し、常温で反応させるか、又は、500以下の温度で熱処理することにより蛍光体膜を形成するものである。

30

【発明の効果】

【0011】

本発明によれば、蛍光体膜に、主として無機材料よりなるバインダを用いるようにしたので、半導体発光素子から発生する熱に対する耐熱性を向上させることができ、高出力化及び高輝度化を図ることができる。また、蛍光体膜は、蛍光体材料と、加水分解あるいは酸化により酸化ケイ素となる酸化ケイ素前駆体、ケイ酸化合物、シリカ、及び、アモルファスシリカからなる群のうちの少なくとも1種を含むバインダ原料とを含む蛍光体膜原料を塗布して形成するようにしたので、蛍光体膜における蛍光体材料の充填率を高くすることができ、蛍光体膜の厚みを薄くすることができる。更に、基板の一面に半導体発光素子を形成し、基板の他面に蛍光体膜を形成するようにしたので、発光素子及び発光装置をより小型化できると共に、蛍光体材料から発生した熱が半導体発光素子を介して放散され、放熱性を向上させることができる。加えて、蛍光体膜は、常温で反応又は500以下の温度で熱処理することにより得られるので、低温で形成することができ、蛍光体材料の特性劣化を抑制することができる。

40

【0012】

更にまた、蛍光体材料の一次粒子の平均粒径を1 $\mu$ m以上20 $\mu$ m以下とするようにすれば、又は、蛍光体膜の表面粗さを算術平均粗さRaで10 $\mu$ m以下とするようにすれば、又は、蛍光体膜の膜厚分布を $\pm$ 10%以内とするようにすれば、色むらを抑制し、均一化して、性能を安定化させることができる。

50

## 【0013】

加えてまた、基板の他面に蛍光体膜を形成したのち、基板を切断し、チップ化するようにすれば、容易に本発明の発光素子及び発光装置を製造することができると共に、製造効率を向上させることができる。

## 【図面の簡単な説明】

## 【0014】

【図1】本発明の一実施の形態に係る発光素子の構成を表す図である。

【図2】本発明の一実施の形態に係る発光素子の製造工程を表す流れ図である。

【図3】図1に示した発光素子を用いた発光装置の構成を表す図である。

【図4】85、85%RHの高温高湿度環境下の曝露試験における輝度の経時変化を表す特性図である。

10

【図5】150の乾燥高温環境下の曝露試験における輝度の経時変化を表す特性図である。

【図6】200の乾燥高温環境下の曝露試験における輝度の経時変化を表す特性図である。

【図7】乾燥高温環境下の曝露試験における曝露温度と24時間後の発光輝度との関係を表す特性図である。

## 【発明を実施するための形態】

## 【0015】

以下、本発明の実施の形態について、図面を参照して詳細に説明する。

20

## 【0016】

図1は、本発明の一実施の形態に係る発光素子10の構成を表わすものである。この発光素子10は、例えば、基板11の一面に配設された半導体発光素子12と、基板11の他面に配設された蛍光体膜13とを備えている。なお、図において、各構成要素の大きさは概念的に表したものであり、実際の寸法比率を表すものではない。

## 【0017】

基板11は、例えば、半導体発光素子12が形成されたサファイアウェハ、GaNウェハ、Siウェハにより構成することが好ましく、例えば400nmから800nmの波長域における光透過率が高くなるほど好ましい。また、基板11は、例えば、サファイアを用いた場合には、光を散乱させるために半導体発光素子12が形成された面の他面をすりガラス状、梨地状、又は、エンボス状に表面を荒らすようにしてもよい。基板11の厚みは、例えば、サファイアウェハにおいて0.2mm以上1.0mm以下のものが一般的に用いられる。

30

## 【0018】

なお、基板11は、半導体発光素子12を形成する際に用いた形成基板をそのまま用いてもよいが、形成基板とは別のものであってもよい。例えば、半導体発光素子12を形成基板に形成したのち、形成基板を分離あるいは除去し、又は、形成基板の厚みを薄くして、半導体発光素子12を形成基板とは別の基板11に対して配設するようにしてもよい。

## 【0019】

半導体発光素子12は、例えば、発光層を含む複数の半導体層を積層した構造を有し、一对の電極12A、12Bが配設されている。半導体発光素子12は、例えば、LEDであり、励起光として紫外光、青色光、又は緑色光を発するように構成されることが好ましい。中でも、半導体発光素子12としては、青色光を発するものが好ましい。容易に白色を得ることができると共に、紫外光は周囲の部材を劣化させる等の影響があるのに対して、青色光はそのような影響が小さいからである。この半導体発光素子12は、例えば、基板11の側が発光面となるように構成されていることが好ましい。

40

## 【0020】

蛍光体膜13は、例えば、基板11の他面に直接配設されている。蛍光体膜13は、例えば、粒子状の蛍光体材料と、この蛍光体材料を接着するバインダとを含んでおり、必要に応じて、フィラーを含んでいてもよい。また、蛍光体膜13は、基板11の他面に、蛍

50

光体材料と、バインダ原料とを含む蛍光体膜原料を塗布し、常温で反応させるか、又は、500 以下の温度で熱処理することにより形成されたものである。塗布の方法としては、例えば、印刷法、スプレー法、ディスペンサーによる描画法、又はインクジェット法が挙げられる。中でも好ましいのは、印刷法又はスプレー法であり、より好ましいのは印刷法である。

#### 【0021】

蛍光体材料は、例えば、蛍光体粒子を含んでおり、蛍光体粒子の表面に被覆層が形成されていてもよい。蛍光体粒子は、例えば、半導体発光素子12から発光された励起光により蛍光を発するものであり、半導体発光素子12の種類等に応じて選択される。蛍光体材料には、1種または2種以上の蛍光体粒子が用いられ、複数種を用いる場合には、混合して用いてもよく、また、複数層に分けて積層するようにしてもよい。

10

#### 【0022】

蛍光体粒子としては、例えば、 $BaMgAl_{10}O_{17}:Eu$ 、 $ZnS:Ag, Cl$ 、 $BaAl_2S_4:Eu$ あるいは $CaMgSi_2O_6:Eu$ などの青色系蛍光体、 $Zn_2SiO_4:Mn$ 、 $(Y, Gd)BO_3:Tb$ 、 $ZnS:Cu, Al$ 、 $(M1)_2SiO_4:Eu$ 、 $(M1)(M2)_2S:Eu$ 、 $(M3)_3Al_5O_{12}:Ce$ 、 $SiAlON:Eu$ 、 $CaSiAlON:Eu$ 、 $(M1)Si_2O_2N:Eu$ あるいは $(Ba, Sr, Mg)_2SiO_4:Eu$ 、 $Mn$ などの黄色または緑色系蛍光体、 $(M1)_3SiO_5:Eu$ あるいは $(M1)S:Eu$ などの黄色、橙色または赤色系蛍光体、 $(Y, Gd)BO_3:Eu$ 、 $Y_2O_2S:Eu$ 、 $(M1)_2Si_5N_8:Eu$ 、 $(M1)AlSiN_3:Eu$ あるいは $YPVO_4:Eu$ などの赤色系蛍光体が挙げられる。なお、上記化学式において、M1は、Ba, Ca, SrおよびMgからなる群のうち少なくとも1つが含まれ、M2は、GaおよびAlのうち少なくとも1つが含まれ、M3は、Y, Gd, LuおよびTeからなる群のうち少なくとも1つが含まれる。

20

#### 【0023】

中でも、蛍光体膜13の耐熱性を考慮すると、蛍光体粒子は、 $(M3)_3Al_5O_{12}:Ce$ 、 $SiAlON:Eu$ 、 $CaSiAlON:Eu$ 、 $(M1)Si_2O_2N:Eu$ 、 $(M1)_2Si_5N_8:Eu$ 、あるいは $(M1)AlSiN_3:Eu$ により構成されることが好ましい。M1およびM3は上述した通りである。

#### 【0024】

蛍光体粒子の被覆層は、例えば、希土類酸化物、酸化ジルコニウム、酸化チタン、酸化亜鉛、酸化アルミニウム、イットリウム・アルミニウム・ガーネットなどのイットリウムとアルミニウムの複合酸化物、酸化マグネシウム、および $MgAl_2O_4$ などのアルミニウムとマグネシウムの複合酸化物からなる群のうち少なくとも1種の金属酸化物を主成分として含んでいることが好ましい。耐水性および耐紫外光などの特性を向上させることができるからである。中でも、希土類酸化物又は酸化ジルコニウムが好ましい。希土類酸化物としては、イットリウム、ガドリニウム、セリウムおよびランタンからなる群のうち少なくとも1種の元素を含むものより好ましく、また、酸化ジルコニウムを用いれば更に好ましい。より高い効果を得ることができ、また、コストを抑制することができるからである。

30

40

#### 【0025】

蛍光体材料の一次粒子の平均粒径は、例えば、1 $\mu m$ 以上20 $\mu m$ 以下とすることが好ましい。平均粒径を小さくすることにより、色むらを抑制して、均一化することができるからである。但し、小さくし過ぎると、蛍光体材料自体の光学特性が低下してしまう場合が多く、また、1 $\mu m$ よりも小さい粒子は二次凝集し、微小化の効果が失われてしまうことが多いため、1 $\mu m$ 以上とすることが好ましい。

#### 【0026】

バインダは、加水分解あるいは酸化により酸化ケイ素となる酸化ケイ素前駆体、ケイ酸化合物、シリカ、及び、アモルファスシリカからなる群のうち少なくとも1種を含むバインダ原料を、常温で反応させるか、又は、500 以下の温度で熱処理することにより

50

得られたものである。酸化ケイ素前駆体としては、例えば、ペルヒドロポリシラザン、エチルシリケート、メチルシリケートを主成分としたものが好ましく挙げられる。これらの酸化ケイ素前駆体は、常温あるいは熱処理における加水分解あるいは酸化により容易に二酸化ケイ素などの酸化ケイ素となり、バインダとして機能させることができるからである。なお、バインダとしては、酸化ケイ素前駆体が反応して完全に酸化ケイ素となっている必要はなく、未反応部分や不完全反応部分を含んでいてもよい。

#### 【0027】

また、ケイ酸化合物としては、例えば、ケイ酸ナトリウムが好ましく挙げられる。ケイ酸化合物は、脱水状態のものを用いても、水和物を用いてもよい。シリカ又はアモルファスシリカとしては、例えば、ナノサイズの超微粒子粉末を用い、例えば、一次粒子径としての平均粒子径が5 nm以上100 nm以下の超微粒子粉末を用いることが好ましく、5 nm以上50 nm以下の超微粒子粉末を用いればより好ましい。これらケイ酸化合物、シリカ、又は、アモルファスシリカは、溶媒に溶解又は分散させて熱処理、乾燥させることにより固形化し、バインダとして機能させることができる。

10

#### 【0028】

バインダ原料の熱処理温度は、基板11、半導体発光素子12、及び、蛍光体材料への熱的影響を小さくするために500以下とすることが好ましく、熱的影響をより小さくする必要がある場合には300以下とすればより好ましく、200以下とすれば更に好ましい。また、バインダ原料を常温で反応させるようにすれば、熱的影響がないのでより好ましい。基板11、半導体発光素子12、及び、蛍光体材料の耐熱特性に応じて、バインダ原料の種類を選択し、それによりバインダ原料を常温で反応させるのか、又は、何度で熱処理するのかを調節することが好ましい。また、熱処理の際の雰囲気は、蛍光体材料が熱により酸化して劣化しやすい場合には、窒素雰囲気などの非酸化雰囲気とすることが好ましい。

20

#### 【0029】

フィラーは、例えば、蛍光体材料の充填率を調整するためのものであり、透光性を有する無機材料よりなるものが好ましく、酸化ケイ素粒子、酸化アルミニウム粒子、または、酸化ジルコニウム粒子などが挙げられる。より好ましくは酸化ケイ素粒子が好ましく、その形態は、結晶でもガラスでもよい。フィラーの平均粒子径は、例えば、蛍光体材料と同じ1 µmから20 µm程度が好ましい。

30

#### 【0030】

蛍光体膜13の厚みは、例えば、10 µm以上1 mm以下であることが好ましく、20 µm以上500 µm以下であればより好ましい。薄すぎると蛍光体材料の量が少なくなり、色の調整が難しくなってしまう、厚すぎると光の散乱が増えすぎて光の吸収が顕著となり、外部に光が取り出しにくくなってしまふからである。蛍光体膜13の表面粗さ、すなわち、蛍光体膜13の基板11と反対側の表面の表面粗さは、算術平均粗さRaで10 µm以下とすることが好ましく、また、蛍光体膜13の膜厚分布は、±10%以内とすることが好ましい。色むらを抑制し、均一化して、性能を安定化させることができるからである。蛍光体膜13の表面粗さ、又は、蛍光体膜13の膜厚分布は、例えば、蛍光体膜13を形成したのち、表面を研磨又は研削することにより調整するようにしてもよい。

40

#### 【0031】

この発光素子10は、例えば、次のようにして製造することができる。図2は、この発光素子10の製造工程の一例を表す流れ図である。まず、例えば、複数の発光素子10を形成することができる大きさの基板11を用意し、基板11の一面に複数の半導体発光素子12を形成する(ステップS101;半導体発光素子形成工程)。その際、半導体発光素子12は、基板11の一面に直接形成してもよく、また、基板11とは別の形成基板の上に形成したのち、形成基板を分離あるいは除去し、又は、形成基板の厚みを薄くして、半導体発光素子12を基板11の一面に配設するようにしてもよい。

#### 【0032】

次いで、例えば、半導体発光素子12を形成した基板11の他面に、蛍光体膜13を形

50

成する（ステップS 1 0 2；蛍光体膜形成工程）。具体的には、まず、基板 1 1 の他面に、蛍光体材料と、バインダ原料とを含む蛍光体膜原料を塗布する。例えば、印刷法を用いる場合であれば、1種又は2種以上の蛍光体材料と、バインダ原料と、希釈溶媒と、必要に応じてフィラーとを混合してペースト状の蛍光体膜原料とし、基板 1 1 の他面に印刷法、例えば、スクリーン印刷により塗布する。スクリーン印刷により塗布するようにすれば、蛍光体膜 1 3 の面内の膜厚分布の均一性を高くすることができるので好ましい。また、例えば、スプレー法を用いる場合であれば、1種又は2種以上の蛍光体材料と、バインダ原料と、希釈溶媒と、必要に応じてフィラーとを混合してスラリー状の蛍光体膜原料とし、基板 1 1 の他面にスプレーガンを用いて噴霧ガスと共に塗布する。スプレーの噴霧径を調節し、スプレーガンを一定の速度でトラバースさせながら均一に移動させることにより、蛍光体膜 1 3 の面内の膜厚分布の均一性を高くすることができるので好ましい。塗布は、必要な膜厚となるまで繰り返し行ってもよい。

10

#### 【0033】

なお、スプレー法は局所排気装置内で行うので、噴霧の際に蛍光体膜原料が排気されてしまい収率が悪いのに対して、スクリーン印刷法ではそのような問題がなく、蛍光体膜原料の利用効率を高くすることができるので好ましい。また、スクリーン印刷法は、基板側にマスキングをせずに、スクリーン側のマスクにより繰り返し同じパターンニングをすることができ、更に、必要な個所にのみ塗布することができ、不必要な部分に付着することがなく、治具等への付着もないので、治具の連続使用が可能で、量産時の生産性を高めることができるので好ましい。

20

#### 【0034】

次いで、例えば、塗布した蛍光体膜原料を乾燥させて希釈溶媒を除去する。その際、必要に応じて500以下、より好ましくは300以下、更には200以下の範囲で加熱してもよい。これにより、バインダ原料が常温あるいは熱処理により反応し、又は、熱処理により固化する。なお、蛍光体膜 1 3 は、基板 1 1 の全面に形成してもよく、また、一面に配置した複数の半導体発光素子 1 2 に対応してパターンニングして形成してもよい。続いて、半導体発光素子 1 2 及び蛍光体膜 1 3 を配設した基板 1 1 を、例えば、半導体発光素子 1 2 毎に切断し、チップ化する（ステップS 1 0 3；チップ化工程）。これにより発光素子 1 0 が得られる。

30

#### 【0035】

なお、上述した発光素子 1 0 の製造工程では、基板 1 1 の一面に半導体発光素子 1 2 を形成したのち、基板 1 1 の他面に蛍光体膜 1 3 を形成する場合について説明したが、基板 1 1 の他面に蛍光体膜 1 3 を形成したのちに、基板 1 1 の一面に半導体発光素子 1 2 を形成するようにしてもよい。

#### 【0036】

図 3 は、この発光素子 1 0 を用いた発光装置 2 0 の一構成例を表わすものである。この発光装置 2 0 は、配線基板 2 1 の上に発光素子 1 0 が搭載されている。配線基板 2 1 の上には、例えば、配線 2 1 A，2 1 B が配設されている。発光素子 1 0 は、例えば、半導体発光素子 1 2 を配線基板 2 1 の側とし、電極 1 2 A，1 2 B と配線 2 1 A，2 1 B とを対応させて、配線基板 2 1 の上にパンプ 2 2 A，2 2 B 等によりフリップチップ実装されている。発光素子 1 0 の周りには例えばリフレクタ枠 2 3 が形成されている。発光素子 1 0 の周りは、封止剤を配設しなくてもよい。樹脂の封止剤で覆うと放熱性が低下してしまうからである。また、図示しないが、発光素子 1 0 の側部に封止剤を配置し、配線基板 2 1 上の配線を保護するようにしてもよい。更に、図示しないが、発光素子 1 0 の上面も覆うように封止剤を配置してもよい。外部からの水分や有害なガスが直接接触することによる影響を軽減することができるからである。なお、この発光装置 2 0 は、例えば、上述したようにして製造された発光素子 1 0 を用いて製造することができる。

40

#### 【0037】

このように本実施の形態によれば、蛍光体膜 1 3 に、主として無機材料よりなるバインダを用いるようにしたので、半導体発光素子 1 2 から発生する熱に対する耐熱性を向上さ

50



せることができ、高出力化及び高輝度化を図ることができる。また、蛍光体膜 13 は、蛍光体材料と、加水分解あるいは酸化により酸化ケイ素となる酸化ケイ素前駆体、ケイ酸化合物、シリカ、及び、アモルファスシリカからなる群のうち少なくとも 1 種を含むバインダ原料とを含む蛍光体膜原料を塗布して形成するようにしたので、蛍光体膜 13 における蛍光体材料の充填率を高くすることができ、蛍光体膜 13 の厚みを薄くすることができる。更に、基板 11 の一面に半導体発光素子 12 を形成し、基板 11 の他面に蛍光体膜 13 を形成するようにしたので、発光素子 10 及び発光装置 20 をより小型化することができると共に、蛍光体材料から発生した熱が半導体発光素子 12 を介して放散され、放熱性を向上させることができる。加えて、蛍光体膜 13 は、常温で反応又は 500 以下の温度で熱処理することにより得られるので、低温で形成することができ、蛍光体材料の特性劣化を抑制することができる。

10

#### 【0038】

更にまた、蛍光体材料の一次粒子の平均粒径を  $1\ \mu\text{m}$  以上  $20\ \mu\text{m}$  以下とするようにすれば、又は、蛍光体膜 13 の表面粗さを算術平均粗さ  $R_a$  で  $10\ \mu\text{m}$  以下とするようにすれば、又は、蛍光体膜 13 の膜厚分布を  $\pm 10\%$  以内とするようにすれば、色むらを抑制し、均一化して、性能を安定化させることができる。

#### 【0039】

加えてまた、基板 11 の他面に蛍光体膜 13 を形成したのち、基板 11 を切断し、チップ化するようにすれば、容易に本実施の形態の発光素子 10 及び発光装置 20 を製造することができると共に、製造効率を向上させることができる。

20

#### 【実施例】

#### 【0040】

(実施例 1 - 1 ~ 1 - 4)

まず、半導体発光素子 12 を一面に形成した基板 11 を用意した。半導体発光素子 12 には、窒化物系半導体よりなる青色 LED を使い、基板 11 には、厚みが  $0.6\ \text{mm}$  のサファイア基板を用いた。

#### 【0041】

次いで、蛍光体材料と、バインダ原料と、フィラーと、希釈溶媒とを混合し、蛍光体膜原料を作製した。蛍光体材料としては、一次粒子の平均粒径がそれぞれ  $15\ \mu\text{m}$  程度の  $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$  よりなる蛍光体粒子と  $\text{CaAlSiN}_3:\text{Eu}$  よりなる蛍光体粒子とを用いた。バインダ原料としては、実施例 1 - 1 ではエチルシリケート、実施例 1 - 2 ではペルヒドロポリシラザン、実施例 1 - 3 ではケイ酸ナトリウムの水和物、又は、実施例 1 - 4 ではシリカあるいはアモルファスシリカの超微粒子粉末を溶剤で懸濁化したものをそれぞれ用いた。フィラーとしては、平均粒径が  $15\ \mu\text{m}$  程度の二酸化ケイ素粒子を用いた。希釈溶媒としては、テルピネオールを用いた。

30

#### 【0042】

続いて、基板 11 の他面に、作製した蛍光体膜原料を印刷し、必要な厚みとなるように塗布した。そののち、 $150^\circ\text{C}$  で乾燥させることにより、希釈溶媒を除去した。これにより、各実施例について、基板 11 の他面に、厚みが約  $80\ \mu\text{m}$  の蛍光体膜 13 が形成された白色を発光する発光素子 10 を得た。作製した蛍光体膜 13 の表面粗さを測定したところ、算術平均粗さ  $R_a$  は  $10\ \mu\text{m}$  以下であった。蛍光体膜 13 の膜厚分布についても測定したところ、 $\pm 10\%$  以内であった。また、作製した各実施例の発光素子 10 について、通電を行い、発光試験を行った結果、いずれについても良好な白色の発光が得られた。

40

#### 【0043】

(実施例 2 - 1 ~ 2 - 33, 比較例 2 - 1 ~ 2 - 4)

まず、蛍光体材料と、バインダ原料と、場合により希釈溶媒と、場合によりフィラーとを混合し、蛍光体膜原料を作製した。各実施例及び各比較例における蛍光体材料の蛍光体粒子の材質・蛍光体粒子の平均粒径(粒径)・添加量、フィラーの材質・平均粒径(粒径)・添加量、バインダ原料の材質・添加量を表 1 ~ 4 に示す。なお、蛍光体材料としては、蛍光体材料 A と蛍光体材料 B の両方、又は、どちらか一方を用いた。希釈溶媒とし

50

ては、 $\alpha$ -テルピネオールを用いた。

【0044】

次に、100mm角のサファイア板よりなる基板11の他面に、作製した蛍光体膜原料を塗布し、熱処理又は室温で処理し、所定の厚さの蛍光体膜13を形成したのち、基板11の一面に半導体発光素子12を形成し、発光素子10を得た。各実施例及び各比較例における蛍光体膜原料の塗布法、熱処理温度、蛍光体膜13の平均膜厚、蛍光体膜13の膜厚分布、及び、蛍光体膜13の算術平均粗さRaを表2, 4に示す。表2, 4に記載した塗布法の印刷というのは、具体的には、スクリーン印刷である。

【0045】

なお、蛍光体膜13の膜厚の測定は、事前に基板11の厚みを測定しておき、蛍光体膜13を形成した後の厚みを測定して、その差を膜厚とした。平均膜厚は、100mm角の基板11について、縦5列、横5行の計25点を測定し、その膜厚の平均値を平均膜厚とした。また、蛍光体膜13の膜厚分布は次の計算式により算出した。なお、最大膜厚は測定した25点の膜厚のうちの最大値であり、最小膜厚は測定した25点の膜厚のうちの最小値である。

10

$$\text{膜厚分布(\%)} = \{ (\text{最大膜厚} - \text{最小膜厚}) / (\text{最大膜厚} + \text{最小膜厚}) \} \times 100$$

蛍光体膜13の算術平均粗さRaは、触針式表面粗さ測定器により測定した。

【0046】

表1, 2に示したように、蛍光体粒子及びフィラーの平均粒子径を20 $\mu$ m以下とした実施例2-1~2-33によれば、蛍光体膜13の膜厚分布を $\pm 10\%$ 以内、算術平均粗さRaを10 $\mu$ m以下とすることができた。

20

【0047】

【表 1】

	蛍光体材料A			蛍光体材料B		
	蛍光体粒子 材質	粒径 ( $\mu\text{m}$ )	添加量 (vol%)	蛍光体粒子材質	粒径 ( $\mu\text{m}$ )	添加量 (vol%)
実施例 2-1	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	15	30	$\text{CaAlSiN}_3:\text{Eu}$	15	7
実施例 2-2	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	15	30	$\text{CaAlSiN}_3:\text{Eu}$	15	7
実施例 2-3	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	15	30	$\text{CaAlSiN}_3:\text{Eu}$	15	7
実施例 2-4	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	15	30	$\text{CaAlSiN}_3:\text{Eu}$	15	7
実施例 2-5	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	5	60	-	-	-
実施例 2-6	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	12	55	-	-	-
実施例 2-7	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	18	52	-	-	-
実施例 2-8	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	5	60	-	-	-
実施例 2-9	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	12	55	-	-	-
実施例 2-10	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	18	52	-	-	-
実施例 2-11	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	5	60	-	-	-
実施例 2-12	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	12	55	-	-	-
実施例 2-13	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	18	52	-	-	-
実施例 2-14	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	5	60	-	-	-
実施例 2-15	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	12	55	-	-	-
実施例 2-16	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	18	52	-	-	-
実施例 2-17	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	5	60	-	-	-
実施例 2-18	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	12	55	-	-	-
実施例 2-19	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	18	52	-	-	-
実施例 2-20	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	5	30	-	-	-
実施例 2-21	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	12	27	-	-	-
実施例 2-22	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	18	25	-	-	-
実施例 2-23	$\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	5	60	-	-	-
実施例 2-24	$\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	10	55	-	-	-
実施例 2-25	$\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	18	52	-	-	-
実施例 2-26	$\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	10	32	$\text{SrCaAlSiN}_3:\text{Eu}$	10	10
実施例 2-27	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	15	30	$\text{SrCaAlSiN}_3:\text{Eu}$	10	10
実施例 2-28	$\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	10	32	$\text{SrCaAlSiN}_3:\text{Eu}$	19	7
実施例 2-29	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	15	30	$\text{SrCaAlSiN}_3:\text{Eu}$	19	7
実施例 2-30	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	12	15	-	-	-
実施例 2-31	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	12	15	-	-	-
実施例 2-32	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	12	10	-	-	-
実施例 2-33	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	12	5	-	-	-
実施例 2-34	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	25	51	-	-	-
実施例 2-35	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	30	48	-	-	-
実施例 2-36	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	40	47	-	-	-

10

20

30

40

【表 2】

	ファイラー			バインダ原料		塗布法	熱処理 温度 (°C)	平均 膜厚 ( $\mu\text{m}$ )	膜厚 分布 ( $\pm\%$ )	Ra ( $\mu\text{m}$ )
	材質	粒径 ( $\mu\text{m}$ )	添加量 (vol%)	材質	添加量 (vol%)					
実施例 2-1	SiO <sub>2</sub>	15	18	エチルシリケート	45	印刷	150	80	6	2.5
実施例 2-2	SiO <sub>2</sub>	15	18	ペルヒト'ロポリシラザン	45	印刷	150	80	4	2.8
実施例 2-3	SiO <sub>2</sub>	15	18	ケイ酸ナトリウム水和物	45	印刷	150	80	4	2.7
実施例 2-4	SiO <sub>2</sub>	15	18	シリカ, アモルファスシリカ	45	印刷	150	80	5	2.6
実施例 2-5	-	-	-	エチルシリケート	40	印刷	室温	31	4	1.7
実施例 2-6	-	-	-	エチルシリケート	45	印刷	室温	42	5	2.3
実施例 2-7	-	-	-	エチルシリケート	48	印刷	室温	49	5	6.6
実施例 2-8	-	-	-	エチルシリケート	40	印刷	150	32	4	1.8
実施例 2-9	-	-	-	エチルシリケート	45	印刷	150	41	4	2.6
実施例 2-10	-	-	-	エチルシリケート	48	印刷	150	50	3	6.5
実施例 2-11	-	-	-	エチルシリケート	40	印刷	250	33	3	1.3
実施例 2-12	-	-	-	エチルシリケート	45	印刷	250	42	5	2.0
実施例 2-13	-	-	-	エチルシリケート	48	印刷	250	48	4	6.2
実施例 2-14	-	-	-	エチルシリケート	40	印刷	350	29	5	1.5
実施例 2-15	-	-	-	エチルシリケート	45	印刷	350	42	6	2.2
実施例 2-16	-	-	-	エチルシリケート	48	印刷	350	51	5	6.7
実施例 2-17	-	-	-	エチルシリケート	40	印刷	500	32	5	1.8
実施例 2-18	-	-	-	エチルシリケート	45	印刷	500	40	6	2.7
実施例 2-19	-	-	-	エチルシリケート	48	印刷	500	52	7	7.1
実施例 2-20	SiO <sub>2</sub>	10	30	エチルシリケート	40	印刷	室温	50	5	2.1
実施例 2-21	SiO <sub>2</sub>	15	28	エチルシリケート	45	印刷	300	102	4	3.2
実施例 2-22	SiO <sub>2</sub>	20	27	エチルシリケート	48	印刷	400	148	4	7.8
実施例 2-23	-	-	-	エチルシリケート	40	印刷	200	19	5	1.5
実施例 2-24	-	-	-	エチルシリケート	45	印刷	250	40	5	2.2
実施例 2-25	-	-	-	エチルシリケート	48	印刷	300	63	6	6.5
実施例 2-26	SiO <sub>2</sub>	15	15	エチルシリケート	43	印刷	150	91	5	3.4
実施例 2-27	SiO <sub>2</sub>	15	18	エチルシリケート	42	印刷	150	85	5	3.7
実施例 2-28	SiO <sub>2</sub>	15	15	エチルシリケート	46	印刷	150	93	4	7.6
実施例 2-29	SiO <sub>2</sub>	15	18	エチルシリケート	45	印刷	150	90	5	7.9
実施例 2-30	SiO <sub>2</sub>	15	40	エチルシリケート	45	印刷	150	210	5	5.1
実施例 2-31	SiO <sub>2</sub>	15	40	エチルシリケート	45	印刷	150	298	4	6.7
実施例 2-32	SiO <sub>2</sub>	15	50	エチルシリケート	40	印刷	150	411	5	7.4
実施例 2-33	SiO <sub>2</sub>	15	50	エチルシリケート	45	印刷	150	508	4	8.2
実施例 2-34	-	-	-	エチルシリケート	49	印刷	150	52	11	10.4
実施例 2-35	-	-	-	エチルシリケート	52	印刷	150	49	13	12.8
実施例 2-36	-	-	-	エチルシリケート	53	印刷	150	50	16	15.3

10

20

30

40

【表 3】

	蛍光体材料A			蛍光体材料B		
	蛍光体粒子 材質	粒径 ( $\mu\text{m}$ )	添加量 (vol%)	蛍光体粒子材質	粒径 ( $\mu\text{m}$ )	添加量 (vol%)
比較例 2-1	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	15	28	$\text{SrCaAlSiN}_3:\text{Eu}$	15	6
比較例 2-2	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	15	60	-	-	-
比較例 2-3	$\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	10	55	-	-	-
比較例 2-4	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	15	52	-	-	-

10

【0050】

【表 4】

	ファイラー			バインダ原料		塗布法	熱処理 温度 ( $^{\circ}\text{C}$ )	平均 膜厚 ( $\mu\text{m}$ )	膜厚 分布 ( $\pm\%$ )	Ra ( $\mu\text{m}$ )
	材質	粒径 ( $\mu\text{m}$ )	添加量 (vol%)	材質	添加量 (vol%)					
比較例 2-1	-	-	-	シリコーン樹脂	66	印刷	150	204	7	0.5
比較例 2-2	-	-	-	エチルシケート	40	印刷	550	70	6	5.1
比較例 2-3	-	-	-	エチルシケート	45	印刷	550	72	4	5.3
比較例 2-4	-	-	-	エチルシケート	48	印刷	600	65	7	6.1

20

【0051】

各実施例及び各比較例で作製した蛍光体膜 1 3 について、初期特性として初期の発光輝度を調べた。また、高温高湿試験として、85%RH、85%RHの高温高湿度環境下における曝露試験を行い、2000時間経過後の発光輝度の低下率を調べた。更に、乾燥高温試験として、150 $^{\circ}\text{C}$ 又は200 $^{\circ}\text{C}$ の乾燥高温環境下における曝露試験を行い、2000時間経過後の発光輝度の低下率を調べた。得られた結果を表5、6に示す。表5、6において、初期特性の発光輝度は実施例 2 - 27の発光輝度を100とした場合の相対発光輝度である。高温高湿試験及び乾燥高温試験における発光輝度の低下率は、各実施例及び各比較例における初期特性の発光輝度からの低下率である。

30

【0052】

また、得られた結果のうち実施例 2 - 1及び比較例 2 - 1の結果を図4~6に示す。図4は、85%RH、85%RHの高温高湿度環境下における曝露試験の結果であり、図5は、150 $^{\circ}\text{C}$ の乾燥高温環境下における曝露試験の結果、図6は、200 $^{\circ}\text{C}$ の乾燥高温環境下における曝露試験の結果である。図4から図6において縦軸は、それぞれの初期輝度を100とした場合の相対的な輝度値である。

40

【0053】

更に、実施例 2 - 1~2 - 4及び比較例 2 - 1の蛍光体膜 1 3を大気オープンで加熱し、100 $^{\circ}\text{C}$ から500 $^{\circ}\text{C}$ までの乾燥高温環境曝露試験を行い、輝度の経時変化を調べた。また、200 $^{\circ}\text{C}$ を超える高温領域では蛍光体膜 1 3が破壊するなどの可能性があるため、目視での外観確認も同時に行った。各温度の曝露時間は24時間とした。得られた結果のうち実施例 2 - 1及び比較例 2 - 1の結果を図7に示す。図7において縦軸は、それぞれの初期輝度を100とした場合の相対的な輝度値である。なお、図示しないが、実施例 2 - 2~2 - 4についても、実施例 2 - 1と同様の結果が得られた。

50

【 0 0 5 4 】

【 表 5 】

	初期特性 相对発光輝度(%)	高温高湿試験 発光輝度低下率(%)	150°C×2000h暴露試験 発光輝度低下率(%)	200°C×2000h暴露試験 発光輝度低下率(%)
実施例 2-1	100	1	1	1
実施例 2-2	98	2	1	2
実施例 2-3	95	1	2	3
実施例 2-4	97	3	1	2
実施例 2-5	90	1	2	3
実施例 2-6	116	2	2	3
実施例 2-7	114	3	1	2
実施例 2-8	114	2	1	2
実施例 2-9	118	2	1	1
実施例 2-10	117	3	2	2
実施例 2-11	118	2	1	2
実施例 2-12	122	1	1	1
実施例 2-13	120	2	1	1
実施例 2-14	115	1	2	2
実施例 2-15	119	2	1	2
実施例 2-16	117	2	2	2
実施例 2-17	113	2	2	1
実施例 2-18	117	3	3	3
実施例 2-19	115	4	1	2
実施例 2-20	116	2	2	2
実施例 2-21	114	1	1	2
実施例 2-22	111	2	1	2
実施例 2-23	105	1	1	1
実施例 2-24	120	2	2	3
実施例 2-25	118	1	1	2
実施例 2-26	99	3	2	2
実施例 2-27	100	2	2	2
実施例 2-28	97	2	1	2
実施例 2-29	98	1	1	1
実施例 2-30	94	3	2	2
実施例 2-31	93	5	2	3
実施例 2-32	91	4	3	2
実施例 2-33	92	7	2	2
実施例 2-34	88	-	-	-
実施例 2-35	85	-	-	-
実施例 2-36	83	-	-	-

10

20

30

40

50

【 0 0 5 5 】

【表 6】

	初期特性 相対発光輝度(%)	高温高湿試験 発光輝度低下率(%)	150℃×2000h暴露試験 発光輝度低下率(%)	200℃×2000h暴露試験 発光輝度低下率(%)
比較例 2-1	100	15	12	33(1000h)
比較例 2-2	70	-	-	-
比較例 2-3	65	-	-	-
比較例 2-4	55	-	-	-

10

【 0 0 5 6 】

表 5 , 6 に示したように、本実施例によれば、初期特性としての相対発光輝度は 8 0 % 以上であったが、5 5 0 以上で熱処理した比較例 2 - 2 ~ 2 - 4 では、7 0 % 以下と低かった。

【 0 0 5 7 】

また、表 5 , 6 及び図 4 ~ 6 に示したように、シリコン樹脂を用いた比較例 2 - 1 では、高温高湿試験における発光輝度低下率が 1 5 %、1 5 0 の高温乾燥試験における発光輝度低下率が 1 2 %、2 0 0 の乾燥高温試験では 1 2 0 0 時間後には蛍光体膜が剥離し、1 0 0 0 時間後における発光輝度低下率が 3 3 % であった。これに対して、本実施例によれば、高温高湿試験、1 5 0 の高温乾燥試験、及び、2 0 0 の乾燥高温試験のいずれにおいても、発光輝度低下率は 7 % 以下と大幅に改善することができた。

20

【 0 0 5 8 】

更に、図 7 に示したように、シリコン樹脂を用いた比較例 2 - 1 では、温度が高くなるにつれ輝度維持率が低下し、3 0 0 以上では熱による化学変化により蛍光体膜が粉々に剥離した。これに対して、実施例 3 - 1 ~ 3 - 4 では、外観上の変化は無く、輝度維持率の低下も見られなかった。

【 0 0 5 9 】

加えて、表 1 , 2 , 5 に示したように、蛍光体粒子の平均粒子径が 2 0  $\mu\text{m}$  よりも大きく、蛍光体膜 1 3 の膜厚分布が  $\pm 1 0 \%$  よりも大きく、算術平均粗さ R a が 1 0  $\mu\text{m}$  よりも大きかった実施例 2 - 3 4 ~ 2 - 3 6 に比べて、蛍光体粒子及びフィラーの平均粒子径を 2 0  $\mu\text{m}$  以下とし、蛍光体膜 1 3 の膜厚分布を  $\pm 1 0 \%$  以内、算術平均粗さ R a を 1 0  $\mu\text{m}$  以下とした実施例 2 - 1 ~ 2 - 3 3 によれば、初期特性としての相対発光輝度を高くすることができた。

30

【 0 0 6 0 】

(実施例 3 - 1 , 3 - 2 )

まず、蛍光体材料と、バインダ原料と、フィラーと、希釈溶媒とを混合し、蛍光体膜原料を作製した。各実施例における蛍光体材料の蛍光体粒子の材質・蛍光体粒子の平均粒子径(粒径)・添加量、フィラーの材質・平均粒子径(粒径)・添加量、バインダ原料の材質・添加量を表 7 , 8 に示す。希釈溶媒としては、 $\gamma$ -テルピネオールを用いた。次に、1 0 0 mm 角のサファイア板よりなる基板 1 1 の他面に、作製した蛍光体膜原料をスプレー法又はハケにより塗布し、熱処理又は室温で処理し、所定の厚さの蛍光体膜 1 3 を形成した。各実施例における蛍光体膜原料の塗布法、熱処理温度、蛍光体膜 1 3 の平均膜厚、蛍光体膜 1 3 の膜厚分布、及び、蛍光体膜 1 3 の算術平均粗さ R a を表 8 に示す。表 8 に記載した塗布法の印刷というのは、具体的には、スクリーン印刷である。なお、表 7 , 8 には、実施例 2 - 1 の値も合わせて示した。

40

【 0 0 6 1 】

【表 7】

	蛍光体材料A			蛍光体材料B			ファイラー		
	蛍光体粒子 材質	粒径 ( $\mu\text{m}$ )	添加量 (vol%)	蛍光体粒子材質	粒径 ( $\mu\text{m}$ )	添加量 (vol%)	材質	粒径 ( $\mu\text{m}$ )	添加量 (vol%)
実施例 2-1	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	15	30	$\text{CaAlSiN}_3:\text{Eu}$	15	7	$\text{SiO}_2$	15	18
実施例 3-1	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	15	30	$\text{SrCaAlSiN}_3:\text{Eu}$	10	10	$\text{SiO}_2$	15	18
実施例 3-2	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	15	30	$\text{SrCaAlSiN}_3:\text{Eu}$	10	10	$\text{SiO}_2$	15	18

10

【0062】

【表 8】

	バインダ原料		塗布法	熱処理 温度 ( $^{\circ}\text{C}$ )	平均 膜厚 ( $\mu\text{m}$ )	膜厚 分布 ( $\pm\%$ )	Ra ( $\mu\text{m}$ )	初期特性 相対発光輝度(%)
	材質	添加量 (vol%)						
実施例 2-1	エチルシリケート	45	印刷	150	80	6	2.5	100
実施例 3-1	エチルシリケート	42	スプレー	150	82	14	5.6	97
実施例 3-2	エチルシリケート	42	ハケ	150	112	22	7.2	94

20

【0063】

表 7, 8 に示したように、印刷法により塗布した実施例 2 - 1 比べて、スプレー法又はハケで塗布した実施例 3 - 1, 3 - 2 では、蛍光体膜 1 3 の膜厚分布及び算術平均粗さ Ra が大きくなり、初期特性としての相対発光輝度が低下した。すなわち、蛍光体膜 1 3 を印刷法により塗布するようにすれば、好ましいことが分かった。

【0064】

以上、実施の形態を挙げて本発明を説明したが、本発明は上記実施の形態に限定されるものではなく、種々変形可能である。例えば、上記実施の形態では、発光素子 1 0 及び発光装置 2 0 の構造について具体的に説明したが、他の構造を有するように構成してもよい。

30

【0065】

また、上記実施の形態では、基板 1 1 の他面に、1 種又は 2 種以上の蛍光体材料を含む蛍光体膜 1 3 を形成する場合について説明したが、2 種の蛍光体材料を混合して用いるのではなく、基板 1 1 の他面に、異なる蛍光体材料を含む蛍光体膜を積層して形成するようにしてもよい。

【0066】

更に、上記実施の形態では、半導体発光素子 1 2 として、LED を用いる場合について説明したが、レーザー発光ダイオードなどの他の半導体発光素子を用いるようにしてもよい。特に、本発明によれば、高出力化を図ることができるので、高出力を必要とする用途、例えば、レーザープロジェクタ、LED ヘッドライト、又は、レーザーヘッドライトに好ましく用いることができる。

40

【産業上の利用可能性】

【0067】

LED やレーザー発光ダイオードなどの半導体発光素子を用いた発光素子及び発光装置に用いることができる。

【符号の説明】

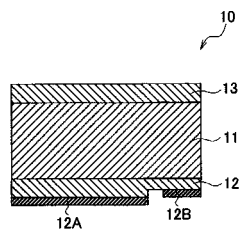
【0068】

50

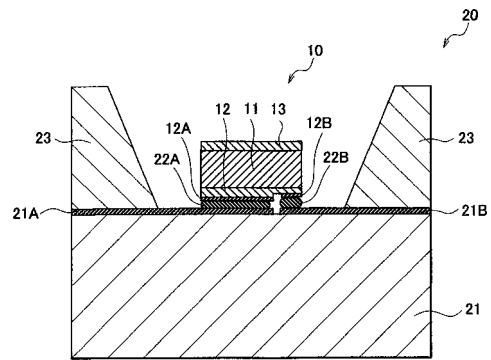


10 ... 発光素子、11 ... 基板、12 ... 半導体発光素子、12A, 12B ... 電極、13 ... 蛍光体膜、20 ... 発光装置、21 ... 配線基板、21A, 21B ... 配線、22A, 22B ... バンプ、23 ... リフレクタ枠

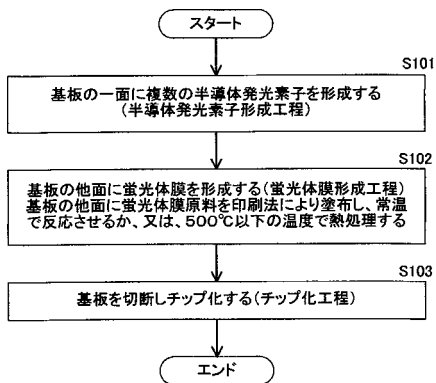
【図1】



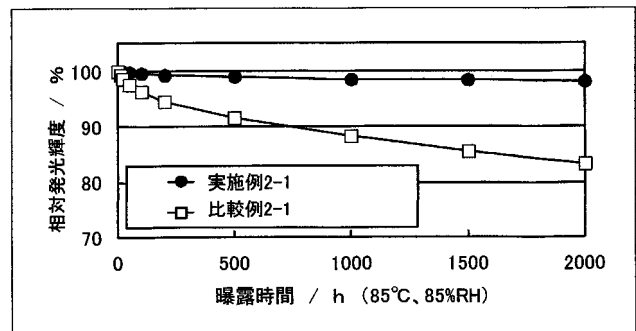
【図3】



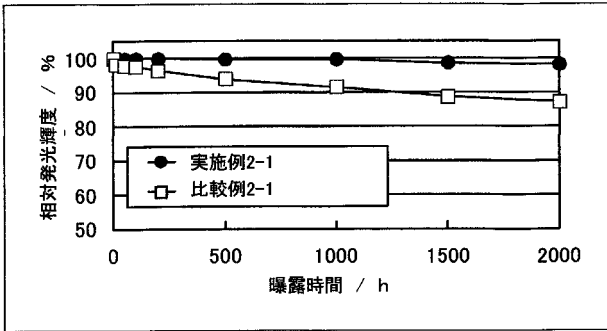
【図2】



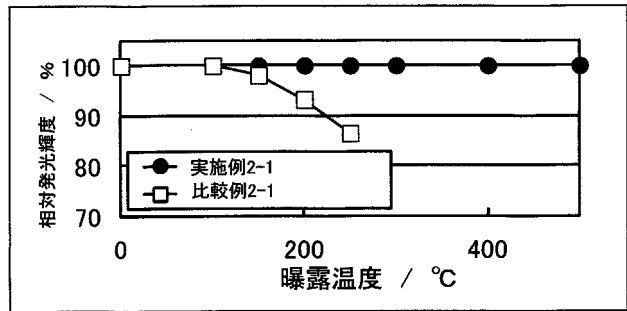
【図4】



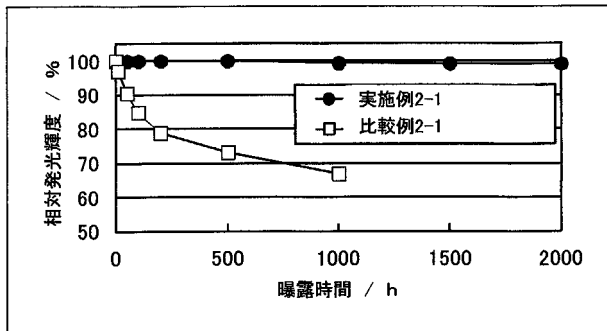
【 図 5 】



【 図 7 】



【 図 6 】



---

フロントページの続き

(72)発明者 佐藤 豊

宮城県仙台市泉区明通三丁目2番地1号 株式会社日本セラテック内

Fターム(参考) 4H001 CA01 CC11

5F141 AA04 AA33 AA43 AA47 CA40 CA77 CB36 FF11

5F241 AA04 AA33 AA43 AA47 CA40 CA77 CB36 FF11