平成28年3月8日判決言渡 平成27年(行ケ)第10097号 審決取消請求事件 口頭弁論終結日 平成28年2月4日

判 決

原		告	パナソ	ニック	株式会	社
訴訟代	理人弁理	11	豊豆	岡	静	男
同			廣	瀬	文	雄
同			松	本	隆	芳
同			大	Щ	丈	_
同			安	武	成	記
被		告	Y			
	主	文				

- 1 特許庁が無効2014-800013号事件について平成27年4 月6日にした審決を取り消す。
- 2 訴訟費用は被告の負担とする。

事実及び理由

第1 請求

主文第1項と同旨

第2 事案の概要

- 1 特許庁における手続の経緯等
 - (1) 原告は、平成19年8月13日、平成16年12月15日に出願した特願2004-363534号の一部を分割して、発明の名称を「発光装置」とする発明について、新たな特許出願(特願2007-210888号、優先

件主張平成16年4月27日,同年6月21日及び同月30日。以下「本件出願」という。)をし、平成20年3月14日,特許第4094047号(請求項の数1。以下「本件特許」という。)として特許権の設定登録を受けた(甲18)。

(2) 被告は、平成26年1月22日、本件特許に対して特許無効審判を請求した。

特許庁は、上記請求を無効2014-800013号事件として審理を行い、同年9月24日付けで審決の予告(以下「本件審決予告」という。)をした(甲25)。

これに対し原告は、同年11月28日付けで、本件特許に係る特許請求の 範囲及び明細書について訂正請求(以下「本件訂正」といい、本件訂正後の 明細書及び図面を「本件訂正明細書」という。)をした(甲19)。

その後、特許庁は、平成27年4月6日、「請求のとおり訂正を認める。 特許第4094047号の請求項1に係る発明についての特許を無効とする。」との審決(以下「本件審決」という。)をし、その謄本は、同月16日、原告に送達された。

- (3) 原告は、平成27年5月15日、本件審決の取消しを求める本件訴訟を提起した。
- 2 特許請求の範囲の記載

本件訂正後の特許請求の範囲の請求項1の記載は、次のとおりである(以下、同請求項1に係る発明を「本件訂正発明」という。下線部は本件訂正による訂正箇所である。甲19)。

【請求項1】

赤色蛍光体と、緑色蛍光体とを含む蛍光体層と、発光素子とを備え、

前記赤色蛍光体が放つ赤色系の発光成分と,前記緑色蛍光体が放つ緑色系の 発光成分と,前記発光素子が放つ発光成分とを出力光に含む発光装置であって, 前記出力光が、白色光であり、

前記赤色蛍光体は,前記発光素子が放つ光によって励起されて,E u $^{2+}$ で付活され,かつ,600 n m以上660 n m未満の波長領域に発光ピークを有するニトリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体<u>(ただし,S r $_2$ S i $_4$ A 1 O N $_7$: E u $^{2+}$ を除く)であり,</u>

前記緑色蛍光体は,前記発光素子が放つ光によって励起されて,E u $^{2+}$ 又は C e $^{3+}$ で付活され,かつ,500 n m以上560 n m未満の波長領域に発光ピークを有する緑色蛍光体であり,

前記発光素子は、440nm以上500nm未満の波長領域に発光ピークを 有する光を放つ青色発光素子であり、

前記蛍光体層に含まれる蛍光体はE u $^{2+}$ 又はC e $^{3+}$ で付活された蛍光体のみを含み、

前記青色発光素子が放つ光励起下において前記赤色蛍光体は、内部量子効率が80%以上であり、

前記蛍光体層に含まれる蛍光体の励起スペクトルは,前記青色発光素子の放 つ光の波長よりも短波長域に励起ピークを有し,

前記蛍光体層は,窒化物蛍光体又は酸窒化物蛍光体以外の無機蛍光体を実質 的に含まないことを特徴とする発光装置。

3 本件審決の理由の要旨

(1) 本件審決の理由は、別紙審決書(写し)記載のとおりである。要するに、本件訂正発明は、当業者が、本件出願の優先日前に頒布された刊行物である甲3(特開2003-206481号公報)に記載された発明、甲3に記載された事項及び甲13(特開2003-124527号公報)に記載された事項又は周知の技術事項に基づいて容易に発明をすることができたものであるから、特許法29条2項の規定に違反してされたものであり、同法123条1項2号に該当するというものである。

(2) 本件審決が認定した甲3に記載された発明(以下「甲3発明」という。), 本件訂正発明と甲3発明の一致点及び相違点は、次のとおりである。

ア 甲3発明

「光源として少なくとも1つのLEDを備えた照明ユニットであって,このLEDは300~570nmの範囲内で一次放射を発し,この放射はLEDの一次放射にさらされる蛍光体によって部分的に又は完全により長波長の放射に変換され,前記の蛍光体の構造はニトリド又はその誘導体に基づく形式のものにおいて,前記の変換は少なくとも1種の蛍光体を用いて行われ,この蛍光体はカチオンM及び窒化ケイ素又はニトリドの誘導体から誘導され,この蛍光体は430~670nmでのピーク発光の波長で発光し,その際,カチオンは部分的にドーパントD,つまりEu²+又はCe³+により置き換えられており,この場合にカチオンMとして二価の金属Ba,Ca,Srの少なくとも1種及び/又は三価の金属Lu,La,Gd,Yの少なくとも1種が使用され,この蛍光体は次の種類:構造MSi₃N₅,M₂Si₄N¬,M₄Si₆N₁₁及びM₉Si₁₁N₂₃のニトリド,構造 M₁₆Si₁₅О₆N₃₂のオキシニトリド,構造MSia18 A l $_2$ O₁₈N₃6,MSi $_5$ A l $_2$ ON $_9$ 及びM $_3$ S i $_5$ A l ON $_1$ 0 のサイアロンから由来する.

光源として少なくとも1つのLEDを備え、

前記LEDの白色LEDでの使用のために、主成分としてシリコーン注入樹脂(又はエポキシ注入樹脂)及び赤及び緑に発光する2種のニトリド含有顔料を含有し、他のわずかな成分は、特にメチルエーテル又はエアロジル(Aerosil)である、凹設部に充填された注入材料を備え、

白色光を達成するために一緒に用いる赤及び緑に発光する2種のニトリド含有顔料としてSi/Al-N-ベースの蛍光体を使用でき、その中で少なくとも1つは前記少なくとも1種の蛍光体であり、

緑に発光するS i / A 1 - N - ベースのニトリド含有蛍光体として,例えば,組成がS r S i A 1_2 O $_3$ N $_2$: E u^{2+} で Ma x . Em. が 4 9 7 の蛍光体,組成がS r S i A 1_2 O $_3$ N $_2$: E u^{2+} で発光領域が 4 9 5 \sim 5 1 5 n m の蛍光体,組成がS r S i A 1_2 O $_3$ N $_2$: E u^{2+} で発光領域が 4 9 0 \sim 5 1 0 n m の蛍光体を選択肢として有し.

前記光源は、青色発光LEDである、

照明ユニット。」

イ 本件訂正発明と甲3発明の一致点及び相違点

(一致点)

「赤色蛍光体と、緑色蛍光体とを含む蛍光体層と、発光素子とを備え、

前記赤色蛍光体が放つ赤色系の発光成分と,前記緑色蛍光体が放つ緑色系の発光成分と,前記発光素子が放つ発光成分とを出力光に含む発光装置であって,

前記出力光が, 白色光であり,

前記蛍光体層は、窒化物蛍光体又は酸窒化物蛍光体以外の無機蛍光体を 実質的に含まない発光装置。」である点。

(相違点1)

本件訂正発明の「赤色蛍光体」は、「前記発光素子が放つ光によって励起されて、E u $^{2+}$ で付活され、かつ、600 n m以上660 n m未満の波長領域に発光ピークを有するニトリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体(ただし、S r $_2$ S i $_4$ A 1 O N $_7$: E u $^{2+}$ を除く)であ」るのに対し、甲3発明の「赤」に発光する「ニトリド含有顔料」は、そのようなものであるのか否か不明である点。

(相違点2)

本件訂正発明の「緑色蛍光体」は、「前記発光素子が放つ光によって励起されて、E u $^{2+}$ 又はC e $^{3+}$ で付活され、かつ、500 n m以上560 n m未満の波長領域に発光ピークを有する緑色蛍光体であ」るのに対し、甲3発明の「緑」に発光する「ニトリド含有顔料」は、そのようなものであるのか否か不明である点。

(相違点3)

本件訂正発明の「青色発光素子」は、「440nm以上500nm未満の波長領域に発光ピークを有する光を放つ青色発光素子」であるのに対し、甲3発明の「青色発光LED」は、そのようなものであるのか否か不明である点。

(相違点4)

本件訂正発明の「蛍光体層に含まれる蛍光体」は、「Eu²+又はCe³+で付活された蛍光体のみを含」むのに対し、甲3発明の「凹設部に充填された注入材料」が含有するニトリド含有顔料がそのようなものか否か不明である点。

(相違点5)

本件訂正発明の「赤色蛍光体」は、「前記青色発光素子が放つ光励起下において」「内部量子効率が80%以上であ」るのに対し、甲3発明の「赤」に発光する「ニトリド含有顔料」がそのようなものか否か不明である点。(相違点6)

本件訂正発明が「前記蛍光体層に含まれる蛍光体の励起スペクトルは、 前記青色発光素子の放つ光の波長よりも短波長域に励起ピークを有」する ものであるのに対し、甲3発明がそのようなものか否か不明である点。

第3 当事者の主張

1 原告の主張

- (1) 取消事由 1 (甲 3 発明の認定の誤り,一致点の認定の誤り等) ア 甲 3 発明の認定の誤り
 - (ア) 甲3の記載全体を参酌しても、甲3には、青色LEDの光源と、甲3の請求項1記載の蛍光体(「カチオンM及び窒化ケイ素又はニトリドの誘導体から誘導され、この蛍光体は430~670 n mでのピーク発光の波長で発光し、その際、カチオンは部分的にドーパントD、つまり E u $^{2+}$ 又はC e $^{3+}$ により置き換えられており、この場合にカチオンMとして二価の金属Ba、Ca、Srの少なくとも1種及び/又は三価の金属Lu、La、Gd、Yの少なくとも1種が使用され、この蛍光体は次の種類:構造MSi $_3$ N $_5$ 、 M_2 Si $_4$ N $_7$ 、 M_4 Si $_6$ N $_{11}$ 及び M_9 Si $_{11}$ N $_{23}$ 0 ニトリド、構造 M_{16} Si $_{15}$ O $_6$ N $_{32}$ 0 オキシニトリド、構造MSi $_1$ 1 A $_1$ 2 O $_2$ 1 N $_3$ 2 N $_4$ 3 N $_5$ 3 N $_5$ 5 N $_5$ 5 N $_5$ 5 N $_5$ 7 N $_5$ 8 N $_5$ 7 N $_5$ 8 N $_5$ 8 N $_5$ 9 N $_5$ 1 N $_5$ 1 N $_5$ 2 N $_5$ 2 N $_5$ 3 N $_5$ 5 N $_5$ 5 N $_5$ 7 N $_5$ 8 N $_5$ 9 N

この点に関し、本件審決は、甲3発明の認定の根拠として、①請求項 1、②段落【0053】ないし【0057】、③段落【0048】ない し【0050】、【0053】ないし【0055】等、④段落【006 0】ないし【0062】、表3、表4、図1及び図4、⑤段落【005 3】の各記載事項を挙げているが、以下のとおり、上記各記載事項から 甲3発明の各構成を認定することはできない。

a 請求項1について

本件審決は、甲3の請求項1の記載に基づいて、甲3発明のうち、「光源として少なくとも1つのLEDを備えた照明ユニットであっ

て、このLEDは $300\sim570$ nmの範囲内で一次放射を発し、こ の放射はLEDの一次放射にさらされる蛍光体によって部分的に又 は完全により長波長の放射に変換され、前記の蛍光体の構造はニトリ ド又はその誘導体に基づく形式のものにおいて、前記の変換は少なく とも1種の蛍光体を用いて行われ、この蛍光体はカチオンM及び窒化 ケイ素又はニトリドの誘導体から誘導され、この蛍光体は430~6 70 nmでのピーク発光の波長で発光し、その際、カチオンは部分的 にドーパントD. つまり E u $^{2+}$ 又は C e $^{3+}$ により置き換えられており. この場合にカチオンMとして二価の金属Ba、Ca、Srの少なくと も1種及び/又は三価の金属Lu, La, Gd, Yの少なくとも1種 が使用され、この蛍光体は次の種類:構造MSi₃N₅、M₂Si₄N₇、 M₄Si₆N₁₁及びM₉Si₁₁N₂₃のニトリド,構造M₁₆Si₁₅O₆N $_{39}$ のオキシニトリド、構造MSiAl $_{2}$ O $_{3}$ N $_{2}$ 、M $_{13}$ Si $_{18}$ Al $_{12}$ $O_{18}N_{36}$, MS i $_{5}A$ l $_{2}ON_{9}$ 及び M_{3} S i $_{5}A$ l ON_{10} のサイアロン から由来する」,「光源として少なくとも1つのLEDを備え」た「照 明ユニット」の構成(以下「甲3発明の構成①」という場合がある。) を認定した。

しかしながら、甲3の明細書には、請求項1に記載された特定の蛍 光体(甲3蛍光体)を青色発光光源と組み合わせて照明ユニットに使 用できることについての記載がないから、甲3には、甲3発明の構成 ①が実施可能に記載されているとはいえない。

したがって、本件審決の上記認定は誤りである。

b 段落【0053】ないし【0057】について

本件審決は、甲3の段落【0053】ないし【0057】の記載に基づいて、甲3発明のうち、「前記LEDの白色LEDでの使用のために、主成分としてシリコーン注入樹脂(又はエポキシ注入樹脂)及

び赤及び緑に発光する2種のニトリド含有顔料を含有し、他のわずかな成分は、特にメチルエーテル又はエアロジル(Aerosil)である、 凹設部に充填された注入材料を備え」との構成(以下「甲3発明の構成②」という場合がある。)を認定した。

本件審決認定の甲3発明は、「前記光源は、青色発光LEDである」 ことを前提とするものであるから、甲3発明の構成②の「前記LED」 とは、青色LEDの光源を意味するものといえる。

しかるところ、段落【0057】には、図1a(別紙2参照)の光源を用いた実施例について、「壁部7はチップ1の青色一次放射線用のリフレクタとして用いられる。」及び「この蛍光体顔料は、赤及び緑に発光する2種(又はそれ以上)のニトリド含有顔料からなる混合物である。」との記載があり、上記記載は、光源が青色に発光することを前提とした記載であるといえるが、一方で、段落【0057】には、「この光源は、…ピーク発光波長400nmを有するInGaNタイプの半導体デバイス(チップ1)」との記載があり、「ピーク発光波長400nm」の半導体デバイスは青色に発光するものといえないから、上記各記載は整合しない。

また、段落【0068】の「図5は、図3及び4からの青及び緑色に発光するサイアロン並びに公知の赤色発光 α -サイアロンS r_2 S i_5 N $_8$: E u(WO 01/39574参照)を使用した、図1aの実施例による360nmのピーク発光を示すInGaN-チップを用いた一次励起をベースとする白色LEDの発光スペクトルを示す。」との記載は、段落【0057】と同様に、図1aの光源を用いた実施例を示したものであるが、「360nmのピーク発光を示すInGaN-チップ」は青色に発光するものといえないから、段落【0057】の記載と整合しない。段落【0068】中に引用する図3及

び図4 (別紙2参照)を踏まえ、段落【0057】と段落【0068】を整合的に理解するとすれば、段落【0057】における「この蛍光体顔料は、赤及び緑に発光する2種(又はそれ以上)のニトリド含有顔料からなる混合物である。」との記載は、「この蛍光体顔料は、青及び緑並びに赤に発光する3種のニトリド含有顔料からなる混合物である。」の誤りである。そして、甲3の出願前に同一出願人によって出願された甲13 (特開2003-124527号公報)の段落【0017】の記載事項に照らすと、甲3の段落【0057】は、甲13の段落【0017】の記載を修文して作成したために、誤記のある不明瞭な記載となったものと考えられる。仮に【0057】の記載から赤及び緑に発光する2種のニトリド含有蛍光体顔料を認定できるとしても、これらの顔料は、「ピーク発光波長400nm」の光源により励起されており、青色発光光源に励起されるものではないから、「青色発光LED」の「光源」と組み合わせることはできない。

以上のとおり、段落【0057】の記載は、極めて不明瞭な記載であって、同段落の記載から、青色LEDの光源と、赤及び緑に発光する2種のニトリド含有蛍光体顔料からなる組合せが記載されていると認定することはできない。また、段落【0053】ないし【0056】の記載から、上記組合せが記載されているものと認定することもできない。

したがって、本件審決の上記認定は誤りである。

c 段落【0048】ないし【0050】,【0053】ないし【005555】等について

本件審決は、甲3の段落【0048】ないし【0050】, 【0053】ないし【0055】の記載など甲3の全体の記載からみて, 「白色光を達成するために一緒に用いる赤及び緑に発光する2種のニト

リド含有顔料としてSi/A1-N-ベースの蛍光体を使用でき、その中で少なくとも1つはニトリド含有蛍光体である甲<math>3蛍光体であること」(以下「甲3発明の構成3」という場合がある。)を理解できると認定し、また、その根拠として、段落【0068】の記載を引用した。

しかしながら、本件審決認定の甲3発明は、「前記光源は、青色発光LEDである」ことを前提とするものであるから、甲3発明の構成③は、青色光源と、甲3蛍光体を含む赤及び緑に発光する蛍光体を組み合わせて使用することにより白色光を得ることを前提とするものであるところ、段落【0048】ないし【0050】、【0053】ないし【0055】及び段落【0068】等には、青色光源と、甲3蛍光体を含む赤及び緑に発光する蛍光体を組み合わせて使用し、白色光を得る具体的な構成の記載はないから、本件審決の上記認定は誤りである。

d 段落【0060】ないし【0062】,表3,表4,図1及び図4 について

本件審決は、甲3の段落【0060】ないし【0062】,表3,表4,図1及び図4(別紙2参照)を引用した上で、「実施例」記載の表3及び表4に基づいて、甲3発明のうち、「赤に発光するSi/A1-N-ベースのニトリド含有蛍光体として、例えば、組成がSr $_2$ Si $_4$ А1О N_7 : E u $^2+$ で発光領域が625~640nmの蛍光体を選択肢として有し、緑に発光するSi/A1-N-ベースのニトリド含有蛍光体として、例えば、組成がSrSiА 1_2 О $_3$ N $_2$: E u $^2+$ で Ma x . Em. が497の蛍光体、組成がSrSiА 1_2 О $_3$ N $_2$: E u $^2+$ で発光領域が495~515nmの蛍光体、組成がSrSiA 1_2 О $_3$ N $_2$: E u $^2+$ で発光領域が495~515nmの蛍光体、組成がSrSiA 1_2 О $_3$ N $_2$: E u $^2+$ で発光領域が490~510nmの蛍光体を選択肢

として有し」との構成(以下「甲3発明の構成④」という場合がある。) を認定した。

しかしながら、本件審決認定の甲3発明は、「前記光源は、青色発光LEDである」ことを前提とするものであるから、甲3発明の構成 ④は、白色光を得るために、青色光源と、甲3蛍光体を含む赤及び緑に発光する蛍光体を組み合わせることを前提とするものであるところ、段落【0056】ないし【0059】及び図2(別紙2参照)の記載に照らすと、表3及び表4に挙げられた蛍光体は、光源のピーク発光波長が紫外光あるいは紫色光(例えば、図1aに基づく実施例では光源のピーク発光波長400nm、図2に基づく実施例では光源のピーク発光波長360nm)である、紫外光又は紫色光用の蛍光体と解され、青色光源用の蛍光体ではない。

また、本件出願の優先日当時、青色LEDと組み合わせる優れた赤色蛍光体としては、 M_2 S i $_5$ N $_8$: E u $^{2+}$ (M=C a,S r,B a) しか知られていなかったことからすると、甲 3 の表 4 記載の赤色蛍光体であるS r $_2$ S i $_4$ A 1 ON $_7$: E u $^{2+}$ は、青色LED用ではなく、紫外光又は紫色光用と解するほかない。実際にも、S r $_2$ S i $_4$ A 1 O N $_7$: E u $^{2+}$ は、青色光で励起可能なものではない。

したがって、表3及び表4には、青色光源用の蛍光体が示されているとはいえず、甲3には、青色光源と組み合わせて白色光を生じるための赤及び緑に発光する蛍光体の具体的な記載はないから、青色光源と組み合わせることを前提とした、本件審決の上記認定は誤りである。

e 段落【0053】について

本件審決は、甲3の段落【0053】の記載に基づいて、甲3発明のうち、「前記光源は、青色発光LEDである」との構成(以下「甲3発明の構成⑤」という場合がある。)を認定した。

しかしながら、段落【0053】には、甲3蛍光体及びαーサイアロン (GOーサイアロン)を用いて白色光が得られること、一般論として、白色光は青色LEDと2種の蛍光体を使用することで得られることが記載されているにすぎず、青色LEDと甲3蛍光体を含む赤及び緑に発光する2種の蛍光体を使用して白色光を得る具体的な構成の記載はないから、本件審決の上記認定は誤りである。

(イ) これに対し被告は、甲3の請求項10の記載を根拠に、本件審決の 甲3発明の認定に誤りはない旨主張する。

しかるところ,甲3の請求項10には,「白色光を発生させるために一次発光された放射が420~480nmの波長領域にあり,この一次発光された放射は,変換のために緑(495~540nm)及び赤(特に540~620nm)に最大発光を示す少なくとも2種の蛍光体にさらされる,請求項6記載の照明ユニット。」との記載があり,赤の蛍光体は540~620nmの波長領域に最大発光を示す旨の記載がある。

他方で、上記 $540\sim620$ n m は、甲3の表4記載の赤色蛍光体である $Sr_2Si_4A1ON_7$: Eu^{2+} の発光領域 $625\sim640$ n m から外れており、また、表4に記載されたものの中で、請求項10記載の蛍光体と発光領域が重なるものは、発光領域が550~570 n m である $CaSiA1_2O_3N_2$: Eu^{2+} 及び発光領域が570~595 n m である $CaSi_6A1ON_9$: Eu^{2+} のみであるが、550~570 n m 及び $570\sim595$ n m の発光領域はいずれも赤色領域ではないから、これらの蛍光体は、赤色蛍光体ではない。

したがって、請求項10に係る発明は、甲3の明細書に実施可能に記載されているとはいえず、請求項10の記載は、甲3発明認定の根拠にはならないから、被告の上記主張は失当である。

(ウ) 以上のとおり、本件審決がした甲3発明の認定は誤りである。

イ 一致点の認定の誤り及び相違点の認定の誤り

前記アのとおり、本件審決がした甲3発明の認定は誤りであるから、本件審決がした本件訂正発明と甲3発明との一致点の認定及び相違点の認定も当然に誤りである。

また、本件訂正発明は、青色発光素子の放つ光の波長よりも短波長領域に励起ピークを有する蛍光体において、E u ²+又はC e ³+で付活された蛍光体であって、青色発光素子の発光領域において内部量子効率が高い(赤色蛍光体は80%以上)ものは、青色発光素子と組み合わせて、高い光束と高い演色性を両立する白色発光装置を提供できることを特徴とするものであり、本件審決の認定した相違点1ないし相違点6は相互に密接に関連するにもかかわらず、本件審決が各相違点を分断して認定したのは誤りである。

ウ 小括

以上のとおり、本件審決には、甲3発明の認定の誤り、本件訂正発明と と甲3発明との一致点の認定の誤り及び相違点の認定の誤りがある。

(2) 取消事由2 (相違点の判断の誤り)

ア 相違点1の判断の誤り

本件審決は、相違点 1 に関し、緑に発光するS i / A 1 - N - ベースの 2 トリド含有蛍光体として「甲 3 蛍光体」を選択した上で、赤に発光する S i / A 1 - N - ベースのニトリド含有蛍光体として、甲 1 3 に記載された $M_{p/2}$ S i $_{12-p-q}$ A 1_{p+q} O_q N_{16-q} : E u $^{2+}$ の組成の「黄色 - オレン ジ色(G O)発光する蛍光体(発光:5 4 0 \sim 6 2 0 n m)」、 ないしは、甲 3 の組成が「S r_2 S i $_4$ A 1 O N_7 : E u $^{2+}$ 」の「S r 」の少なくとも一部を「C a」や「B a」に置換したニトリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体を採用すること、すなわち、「S r_2 S i $_4$ A 1 O N_7 : E u $^{2+}$ 」以外の組成のニトリドアルミノシリケート系の蛍光体を採用するこ

とに格別の困難性はないものと認められ、その際に発光ピークを「600 nm以上660nm未満」とすることも、格別の困難性はないものと認め られるから、甲3発明において、相違点1に係る本件訂正発明の構成を採 用することに格別の困難性はない旨判断した。

(ア) しかしながら、甲13に記載された $M_{p/2}$ S i $_{12-p-q}$ A l $_{p+q}$ O $_{q}$ N $_{16-q}$: E u $^{2+}$ の組成の「黄色-オレンジ色(GO)発光する蛍光体(発光: $540\sim620$ n m)」は、「赤色蛍光体」ではないし、 α ーサイアロンである。

そして、本件訂正明細書の段落【0012】及び【0017】の記載によれば、本件訂正明細書では、窒化物系蛍光体の中でニトリドシリケート系及びニトリドアルミノシリケート系蛍光体とサイアロン系蛍光体(α-サイアロン)とを区別して記載しているから、α-サイアロンは、本件訂正発明の「ニトリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体」に含まれない。

したがって、甲13に記載された $M_{p/2}$ S i_{12-p-q} A 1_{p+q} O_qN₁₆ $-_q$: E u^{2+} の組成の「黄色-オレンジ色(GO)発光する蛍光体(発光: $540\sim620$ n m)」(α -サイアロン)は、相違点1に係る本件訂正発明の「赤色蛍光体」の構成に相当するものとはいえない。

(イ) a 次に、本件審決は、甲3の請求項1及び段落【0033】、甲4、甲5の段落【0003】及び【0063】の記載事項を挙げて、「Sr」の少なくとも一部を「Ba」や「Ca」に置換した蛍光体もニトリドシリケート系の窒化物蛍光体として知られていたから、甲3記載の「Sr₂Si₄AlON₇: Eu²⁺」の「Sr」の少なくとも一部を「Ca」や「Ba」に置換したニトリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体の構成とすることに格別の困難がない旨判断した。

しかしながら、甲3の請求項1に記載された蛍光体には、「 Sr_2

 $Si_4A1ON_7:Eu^{2+}$ 」に相当するものはない。段落【0033】に α ーサイアロンを表す式として記載された,式 $M_{p/2}Si_{12-p-q}A$ $1_qN_{16-q}:Eu^{2+}$ (MはCa 単独であるか又は金属Sr 又はMg の少なくとも1 種と組み合わされており,q は $0\sim2$. 5 であり,p は $0.5\sim3$ である)は,p 及びq をどのように選択しても「 $Sr_2Si_4A1ON_7:Eu^{2+}$ 」とはならないし,Ca を必須とする点においても,「 $Sr_2Si_4A1ON_7:Eu^{2+}$ 」は上記式に含まれない。さらに,本件審決が挙げる甲4 の($Sr_{1-x-y}Ba_xCa_y$) $_2Si_5N_8:Eu$ (但し, $0\leq x<1$, $0\leq y<1$ である。),甲5 の段落【0003】の $M_xSi_yN_2:Eu$ (Mは,Ca,Sr,Ba,Zn のグループからなるアルカリ土類金属を少なくとも1つ以上含有する。Z は,Z=2/3X+4/3Yで表される)及び段落【0063】の Sr_1 、4 Ca_0 。6 $Si_5N_8:Eu$ について記載された箇所には,「 $Sr_2Si_4A1ON_7:Eu^{2+}$ 」の「Sr」の少なくとも一部を「Ba」や「Ca」に置換し得ることについての記載はない。

したがって、甲3ないし5の上記各記載事項は、「Sr」の少なくとも一部を「Ba」や「Ca」に置換した蛍光体もニトリドシリケート系の窒化物蛍光体として知られていたことの根拠にはならない。

b かえって、甲3発明において、甲3記載の「 $Sr_2Si_4AlON_7$: Eu^{2+} 」の「Sr」の少なくとも一部を「Ca」や「Ba」に置換したニトリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体の構成とすることには、阻害要因がある。

すなわち、蛍光体の構成元素のうち、一部が Eu^2 +で置き換えられる元素(例えば、「Sr」)を、「Ba」や「Ca」に置換すれば、発光スペクトル、励起スペクトル及び内部量子効率などが変化し、蛍光体の種類によっては大きく変化する。例えば、甲3の表4(別紙2

そして、50 n m以上も長波長側にシフトするのでは、「 $675 \sim 690 \text{ n m}$ 」の赤外の波長域になってしまい、当業者は、このような置換は考えないというべきである。ニトリドシリケート系の窒化物蛍光体において、「Sr」の少なくとも一部を「Ba」や「Ca」に置換し得るものがあったとしても、ニトリドアルミノシリケート系の「 $\text{Sr}_2\text{Si}_4\text{Alon}_7$: Eu^{2+} 」においては、「Sr」の少なくとも一部を「Ba」や「Ca」に置換することには阻害要因がある。

- c また、蛍光体の構成元素のうち、一部が Eu^{2+} で置き換えられる元素(例えば「Sr」)を、他の元素(例えば、「Ba」や「Ca」)に置換できる場合には、元素をMで表記し、「(M=Ca,Sr,Ba)」と記載するのが通常であるから(甲33037頁等)、甲30 「 $Sr_2Si_4A1ON_7:Eu^{2+}$ 」のように「Sr」のみが表記されていれば、他の元素に置換することは想定されていないと解するのが相当である。
- (ウ) 以上によれば、当業者が甲3発明において相違点1に係る本件訂正 発明の構成を採用することを容易に想到することができたものとはい えないから、本件審決における相違点1の判断には誤りがある。

イ 相違点6の判断の誤り

本件審決は、本件訂正発明の「前記蛍光体層に含まれる蛍光体の励起ス ペクトルは、前記青色発光素子の放つ光の波長よりも短波長域に励起ピー クを有」する構成(相違点6に係る本件訂正発明の構成)の技術上の意義 は、単に、使用する蛍光体に付随する特性を記載した程度のことと認めら れると認定し、この認定を前提として、①組成が「 $SrSiAl_2O_3N_2$: Eu²⁺」の緑色蛍光体の励起ピークは400nm未満の紫外域にあるもの と推定されること、一般に、Eu²⁺で付活されたニトリドアルミノシリケ ート系の赤色蛍光体の励起ピークは、青色発光素子の放つ光の波長よりも 短波長領域にあると考えられることに鑑みれば、甲3発明において、緑に 発光する蛍光体として、組成が「 $SrSiAl_2O_3N_2:Eu^{2+}$ 」の蛍光 体を、赤に発光する蛍光体として、組成が「Sr₂Si₄AlON₇: Eu² + | のニトリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体における「Sr | の 少なくとも一部を「Ca」や「Ba」に置換したニトリドアルミノシリケ ート系の窒化物蛍光体, ないしは、組成が「 $M_{p/2}Si_{12-p-q}Al_{p+q}O$ $_{q}$ $N_{\,1\,6\,-\,q}$: E $u^{\,2\,+}$ 」(MはC a 単独であるか又はS r 及び/又はM g と組 み合わせた形である。)の蛍光体を採用したものは、青色LEDの放つ光 の波長よりも短波長域に励起ピークを有すると認められる、②また、必ず しも、青色LEDの放つ光の波長よりも短波長域に励起ピークを有すると は限らないとしても、「前記蛍光体層に含まれる蛍光体の励起スペクトル は、前記青色発光素子の放つ光の波長よりも短波長域に励起ピークを有」 することに格別の作用効果があるとは認められない。③励起スペクトルの ピークは調整可能であるから、蛍光体の励起スペクトルのピークと青色発 光LEDの放つ光の波長との関係を如何なるものとするかは、設計事項の 域を超えるものではないとして、甲3発明において、相違点6に係る本件 訂正発明の構成を採用することに格別の困難性はない旨判断した。

(ア) しかしながら、「蛍光体の励起スペクトルは、前記青色発光素子の 放つ光の波長よりも短波長域に励起ピークを有」する構成(相違点6に 係る本件訂正発明の構成)の技術上の意義は、本件出願の優先日前は、 白色LED照明光源用蛍光体においても、ランプ用などと同様に、励起 光で効率よく励起されることが第1の条件であるとされ、蛍光体を効率 良く励起するために、光源の発光波長付近に励起スペクトルの励起ピー クを有する蛍光体を選定することが技術常識であり、励起スペクトルの 形状・ピーク波長を拠り所として、光源のLEDチップが放つ光励起下 で発光強度が最大となる蛍光体を選ぶ傾向にあり、近紫外光~紫色系光 に励起スペクトルのピークを有する蛍光体が多かったことから、近紫外 光~紫色系光発光素子と組み合わせた発光装置が大部分で、青色発光素 子と組み合わせることのできる蛍光体は極めて少なかったという状況 下において、白色LED照明光源と蛍光体の内部量子効率について調査 研究したところ, Eu^{2+} 又は Ce^{3+} で付活された蛍光体の中に, 一般的 に青色発光素子の励起下における励起スペクトルの強度は小さいが、内 部量子効率が高いものが多く存在することを発見したこと(本件訂正明 細書の段落【0012】ないし【0019】)と合わせて、内部量子効 率が高いことで、トップ水準の高い光束と高い演色性を両立する白色光 を得るために青色発光素子と組み合わせることのできる蛍光体として, 「青色発光素子の放つ光の波長よりも短波長域に励起ピークを有する 特定の蛍光体群」を選択可能とした点にあるから、上記技術上の意義が、 単に使用する蛍光体に付随する特性を記載した程度のことであるとの 本件審決の認定は誤りである。

したがって、相違点 6 に係る本件訂正発明の構成を採用することに格 別の困難性はないとした本件審決の判断は、その前提において誤りがあ る。 (イ) 次に、本件審決は、相違点6に係る本件訂正発明の構成を採用することに格別の困難性はないことの根拠として、「励起スペクトルのピークは調整可能であるから、蛍光体の励起スペクトルのピークと青色発光 LEDの放つ光の波長との関係を如何なるものとするかは、設計事項の域を超えるものではない」こと(上記③)を挙げている。

しかしながら、本件訂正発明は、励起スペクトルが青色発光素子の放つ光の波長よりも短波長域に励起ピークを有する蛍光体で、青色領域における励起スペクトルの強度が小さいから使用できないと考えられていたものであっても、Eu²+又はCe³+で付活された蛍光体の中に、青色領域における内部量子効率も高いものが多く存在することを見出し、励起ピークがずれていても、これらの蛍光体をそのまま青色発光素子と組み合わせる蛍光体として使用できることを規定した発明であって、蛍光体の励起スペクトルのピークを調整して、青色発光素子の放つ光の波長よりも短波長域に励起ピークをわざわざ移動させた発明ではない。

したがって、本件審決の上記③に係る判断は、失当である。

- (ウ) 以上によれば、当業者が甲3発明において相違点6に係る本件訂正 発明の構成を採用することを容易に想到することができたものとはい えないから、本件審決における相違点6の判断には誤りがある。
- (エ) a この点に関し被告は、甲3の図4の反射率のデータによれば、励起ピークはLEDの発光ピークよりも短波長側にあり、青色LEDを用いて励起することが可能であるから、相違点に係る本件訂正発明の構成は、何ら格別なものではない旨主張する。

しかしながら、本件出願の優先日当時、蛍光体の選択は、励起光となるLEDの発光ピーク波長に、蛍光体の励起スペクトル強度が十分にあるものを選択するのが通常であったものであり、450nmの励

起光を約45%しか吸収しない蛍光体を、発光ピークが450nmの LED用の蛍光体として使用できるとは考えられていなかったから、 被告の上記主張は失当である。

b また,被告は,乙2(特開2004-67837号公報)によれば, 「波長よりも短波長域に励起ピークを有」する事項が公知であった旨 主張する。

しかしながら、乙2の段落【0007】の記載は、蛍光体の励起スペクトルのピーク波長が窒素含有量によって変化するから、窒素含有量を制御することにより、蛍光体の励起スペクトルのピーク波長を青色LED光の波長に一致させることができるというものであり、蛍光体の励起スペクトルのピーク波長は光源であるLED光の波長に一致することが望ましいことを前提として、窒素含有量を制御することでそのことが実現できることを説明しているものといえる。これに対し、本件訂正発明は、内部量子効率が高ければ、励起スペクトルが青色発光素子の放つ光の波長よりも短波長域に励起ピークを有するものであっても使用できるというものであって、蛍光体の励起ピークを青色側にシフトさせようとするものではないから、乙2とは技術思想が全く異なるものである。

したがって、被告の上記主張は失当である。

ウ 相違点5の判断の誤り

本件審決は、相違点5に関し、照明ユニットにおいて効率を高めることは一般的な課題であり、効率を高めるために、製造条件の最適化等により内部量子効率ができるだけ高められた蛍光体を用いることは、当業者の通常の創作能力の発揮の範囲内のことであるとして、内部量子効率がどの程度以上の蛍光体を用いるかは、目標とする効率や蛍光体の入手・製造の容易性などを勘案して、当業者が適宜設定すべき設計事項にすぎない旨判断

した。

しかしながら、本件出願の優先日当時は、発光素子の発光ピーク近傍に励起スペクトルのピークがある蛍光体を選択し、発光ピークにおける励起スペクトルの強度を大きくすることで高い効率を得ようとしていたものであり(前記イ(ア))、内部量子効率と励起波長との関係に着目し、その測定結果に基づいて蛍光体を選択しようとする試みはなく、また、紫外領域に励起ピークを有する窒化物蛍光体について、青色領域における内部量子効率を、紫外領域と同等の効率水準(80%以上の実用水準)にしようとすることは、誰も考えもしないことであった。

したがって、甲3発明において、高い効率を得るために、内部量子効率 と励起波長との関係に着目し、赤色蛍光体の青色領域における内部量子効 率を80%以上にしようとする構成(相違点5に係る本件訂正発明の構成) を採用する動機付けはないから、本件審決の上記判断は誤りである。

エ 小括

以上のとおり、本件審決には、本件訂正発明と甲3発明の相違点1、5 及び6の判断に誤りがあり、その結果、本件訂正発明は、甲3に記載され た発明(甲3発明)、甲3に記載された事項及び甲13に記載された事項 又は周知の技術事項に基づいて容易に発明をすることができたものであ るとした判断に誤りがある。

(3) 取消事由3 (手続違背)

本件審決予告(甲25)は、相違点1について、「甲3発明は、赤に発光するニトリド含有蛍光体として、例えば、組成が $\mathrm{Sr}_2\mathrm{Si}_4\mathrm{AlON}_7$: E u^{2+} で発光領域が $625\sim640\mathrm{nm}$ の蛍光体を選択肢として有しており、当該蛍光体は、本件発明の「ニトリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体」に該当するものである。」、「緑に発光するニトリド含有蛍光体として「甲3蛍光体」を選択した上で、赤に発光するニトリド含有蛍光体として、上記

「組成が $\mathrm{Sr}_2\mathrm{Si}_4\mathrm{Alon}_7$: Eu^{2+} で発光領域が $625\sim640\,\mathrm{nm}$ の 蛍光体」を採用し、相違点1に係る発明特定事項と為すことに格別の困難性はない。」と判断したため、原告は、本件訂正前の請求項1の「赤色蛍光体は、…ニトリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体」であるとの記載を「赤色蛍光体は、…ニトリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体(ただし、 $\mathrm{Sr}_2\mathrm{Si}_4\mathrm{Alon}_7$: Eu^{2+} を除く。)」との記載に訂正する本件訂正をした。

2 被告の主張

- (1) 取消事由 1 (甲 3 発明の認定の誤り,一致点の認定の誤り等) に対し ア 甲 3 発明の認定の誤りに対し
 - (ア) 甲3発明の構成①について

原告は、甲3の記載全体を参酌しても、甲3には、青色LEDの光源と、甲3の請求項1記載の蛍光体(甲3蛍光体)を含む赤及び緑に発光する2種のニトリド含有蛍光体顔料を用いた蛍光体を使用して白色光を得る具体的な構成の記載はないから、甲3には、甲3発明の構成①が実施可能に記載されているとはいえない旨主張する。

しかしながら、甲3には、「青色に一次発光するLEDをベースとする」(段落【0001】)白色発光装置の提供を意図し(段落【000

5】),具体的な態様として、請求項1には、300~570nmの範囲内で一次放射を発する「LED」が記載され、上記範囲には「青色発光光源」の発光領域(波長領域)である420~480nmが含まれており、請求項10には、「複数のニトリド含有蛍光体だけを使用する」(請求項6)態様の下でより具体的な「白色光を発生させるために一次発光された放射が420~480nmの波長領域にあり、この一次発光された放射は、変換のために緑(495~540nm)及び赤(特に540~620nm)に最大発光を示す少なくとも2種の蛍光体にさらされる」照明ユニットに関する発明が明記されているから、「青色発光光源」を包含する技術思想が開示されている。

また、段落【0053】に「LEDのUV線を用いた励起により有色の光源を発生させる他に、特にこれらの蛍光体を用いて白色光が生じることは有利である。これは、一次光源としてUV発光LEDの場合に少なくとも3種の蛍光体を使用して達成され、一次光源として青色発光LEDの場合には少なくとも2種の蛍光体を使用して達成される。」と記載され、一次光源として青色発光LEDを使用することについての示唆がある。

さらに、段落【0057】の実施例においては、発光波長が400nmの紫色発光素子を使用して白色発光装置を構成しているが、単に発光素子の波長領域のわずかな差異(請求項10で規定する波長領域との相違はわずかに20nmである。)があるだけである。

以上によれば、「白色に発光」する照明ユニットを得るために、紫色発光素子に替えて、ピーク発光波長が「420~480nm」の青色発光素子を使用することは、甲3に記載されている事項又は記載されているのも同然の事項であるといえるから、甲3には、青色発光光源と請求項1に記載された特定の蛍光体(甲3蛍光体)とを組み合わせた照明ユ

ニットが実施可能に記載され、本件審決認定の甲3発明が開示されているというべきである。

したがって, 原告の上記主張は理由がない。

(イ) 甲3発明の構成②について

原告は、甲3発明の構成②に関し、甲3には、LEDの光源と、青、緑及び赤の3種のニトリド含有蛍光体顔料を組み合わせた構成が記載されているが、青色LEDの光源と、赤及び緑に発光する2種のニトリド含有蛍光体顔料を組み合わせた構成の記載はないから、本件審決における甲3発明の構成②の認定には誤りがある旨主張する。

しかしながら、甲3の段落【0053】には、「LEDのUV線を用 いた励起により有色の光源を発生させる他に、特にこれらの蛍光体を用 いて白色光が生じることは有利である。これは、一次光源としてUV発 光LEDの場合に少なくとも3種の蛍光体を使用して達成され、一次光 源として青色発光LEDの場合には少なくとも2種の蛍光体を使用し て達成される。」と記載され、UV発光LEDの場合に3種の蛍光体を 使用する場合と、青色発光LEDの場合には2種の蛍光体を使用する場 合との2態様が示されている。そして、これを具体化したものとして、 請求項9には、「白色光を発生させるために一次発光された放射が36 0~420nmの波長領域にあり、この一次発光された放射は、変換の ために青 $(430\sim470$ nm),緑 $(495\sim540$ nm)及び赤(特 に540~620nm) に最大発光を示す3種の蛍光体にさらされる」 照明ユニットに係る発明が開示されており、この発明は、原告がいう「青 に発光する蛍光体をも備えた」3種の蛍光体を使用するものであるのに 対し、請求項10には、緑及び赤の2種の蛍光体と420~480nm の波長領域にある発光素子(青色発光素子)とを組み合わせた白色の照 明ユニットに係る発明が開示されている。

したがって, 原告の上記主張は理由がない。

(ウ) 甲3発明の構成④について

原告は、甲3発明の構成④に関し、本件出願の優先日当時には、青色 LEDと組み合わせる優れた赤色蛍光体は M_2 S i $_5$ N $_8$: E u $^{2+}$ (M=Ca, Sr, Ba) しか知られていなかったから、甲3に記載された赤色蛍光体であるSr $_2$ S i $_4$ AlON $_7$: E u $^{2+}$ は、青色LED用ではなく、紫外光又は紫色光用と解するほかない旨主張する。

しかしながら,原告を出願人とする乙1(特開2005-336450号公報)によれば,本件出願の優先日当時,「青色光で励起可能」な赤色蛍光体として, $Sr_2Si_4AlON_7:Eu^{2+}$ のほか,例えば,「 $CaSi_6AlON_9:Eu^{2+}$ 」が知られていたことからすると,光源を紫外光発光LEDから青色発光LEDに変更し,白色光の発光装置として使用する程度のことは,当業者の技術常識であったものといえるから,原告の上記主張は失当である。

イ 一致点の認定の誤り及び相違点の認定の誤りに対し

原告は、本件審決がした甲3発明の認定は誤りであるから、本件審決が した本件訂正発明と甲3発明との一致点の認定及び相違点の認定も当然 に誤りである旨主張する。

しかしながら,前記アのとおり,本件審決がした甲3発明の認定に誤り がない以上,原告の上記主張は理由がない。

ウ 小括

以上のとおり、本件審決における甲3発明の認定、本件訂正発明と甲3 発明の一致点の認定及び相違点の認定に誤りはないから、原告主張の取消 事由1は理由がない。

(2) 取消事由 2 (相違点の判断の誤り) に対し

ア 相違点1の判断の誤りに対し

(ア) a 原告は,甲13に記載された $M_{p/2}S$ i $_{12-p-q}A$ l $_{p+q}O_qN_{16}$ $_{-q}$: E u $^{2+}$ は,本件訂正発明における「赤色蛍光体」に当たらない旨主張する。

しかしながら、 $M_{p/2}$ S i $_{12-p-q}$ A l $_{p+q}$ O $_{q}$ N $_{16-q}$: E u $^{2+}$ のピーク発光の波長は $540\sim620$ n mであり、この波長範囲は、本件訂正発明における「赤色蛍光体」の「600 n m以上 660 n m未満の波長領域」に含まれるから、原告の上記主張は理由がない。

b 原告は、甲13記載の α ーサイアロンである $M_{p/2}$ S i $_{12-p-q}$ A l $_{p+q}$ O $_{q}$ N $_{16-q}$: E u $^{2+}$ は、本件訂正発明のニトリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体に含まれない旨主張する。

しかしながら,「ニトリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体」とは,N(ニトリド),A1(アルミノ)及びSi(シリケート)を含む蛍光体の意味である。これに対し,サイアロンとは,「Si,A1,O,Nの元素を主な構成元素とするセラミックス」であり($\mathbb Z$ 5),N(ニトリド),A1(アルミノ)及びSi(シリケート)を含む蛍光体であるから,サイアロンが「ニトリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体」に含まれることは明らかである。サイアロンのうち,「 α ーサイアロン」(M_X Si_{12-(m+n)}A1_{m+n}O_nN_{16-n})や「 β -サイアロン」なる称呼は,結晶構造に注目した称呼であり,その一般式からも,「ニトリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体」の概念に含まれる。

仮に本件訂正発明の「ニトリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体」から「 α ーサイアロン」を除外するのであれば、本件訂正発明は、

「前記蛍光体層は、窒化物蛍光体又は酸窒化物蛍光体(ただしサイアロンは除く)以外の無機蛍光体を実質的に含まない」と訂正されるべきであったが、このような訂正はされていないから、αーサイアロン

が本件訂正発明のニトリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体に 含まれないということはできない。

むしろ、本件訂正明細書の段落【0012】には、サイアロン蛍光体である $Sr_2Si_4A1ON_7$: Eu^{2+} について、「ニトリドシリケート系、ニトリドアルミノシリケート系等」の赤色蛍光体と記載され、ニトリドアルミノシリケート系とサイアロン蛍光体とを区別して呼称していないから、サイアロンは、本件訂正発明における「ニトリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体」に含まれ、さらに、 α ーサイアロンもこれに含まれるというべきである。

したがって、原告の上記主張は理由がない。

- (イ) 原告は、甲3発明において、甲3記載の「 $Sr_2Si_4A1ON_7$: Eu^{2+} 」の「Sr」の少なくとも一部を「Ba」や「Ca」に置換した「ニトリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体」の構成とすることには、阻害要因がある旨主張する。
 - a しかしながら、甲3の請求項1には、「カチオンM及び窒化ケイ素 又はニトリドの誘導体から誘導され、この蛍光体は430~670 n mでのピーク発光の波長で発光」する蛍光体として、「構造MSi₃ N₅、M₂Si₄N₇、M₄Si₆N₁₁及びM₉Si₁₁N₂₃のニトリド、 構造M₁₆Si₁₅O₆N₃₂のオキシニトリド、構造MSiAl₂O₃N₂、 M₁₃Si₁₈Al₁₂O₁₈N₃₆、MSi₅Al₂ON₉及びM₃Si₅Al ON₁₀のサイアロン」が例示されるとともに、「この場合にカチオン Mとして二価の金属Ba、Ca、Srの少なくとも1種…が使用され」 るものであることが明記されているから、甲3蛍光体、特にサイアロン蛍光体において、「二価の金属Ba、Ca、Sr」が選択肢として明示されている。

そして、甲3の段落【0033】には、「Eu活性化されたサイア

ロンの他の有望な代表物は α ーサイアロンであり,これは式 $M_{p/2}$ S i $_{12-p-q}$ A l $_{q}$ N $_{16-q}$: E u $^{2+}$ に従い,前記式中,MはC a 単独であるか又は金属 S r 又はM g の少なくとも 1 種と組み合わされており…」と記載されていることからすると,甲 3 には,「S r 」が「C a 」や「B a 」に置換可能であることが記載されているといえる。

また、甲3における組成が「 $Sr_2Si_4A1ON_7:Eu^{2+}$ 」のニトリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体において、「Sr」の少なくとも一部を「Ca」や「Ba」に置換したニトリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体は、「ニトリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体は、「ニトリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体(ただし、 $Sr_2Si_4A1ON_7:Eu^{2+}$ を除く)」に該当することは、当業者であれば当然に理解し得るものである。

したがって、当業者にとって、甲3記載の「 $Sr_2Si_4A1ON_7$: Eu^{2+} 」の「Sr」の少なくとも一部を「Ba」や「Ca」に置換することに格別の困難はない。

b 加えて、本件訂正明細書には、「(ただし、 $\operatorname{Sr}_2\operatorname{Si}_4\operatorname{AlON}_7$: Eu^{2+} を除く)」ことの技術的意義について何らの記載もなく、むしろ、本件訂正明細書の段落【 O 1 2 1】には、「組成式($\operatorname{M}_{1-x}\operatorname{Eu}_x$) AlSiN_3 で表される赤色蛍光体であり、 Mid 、 Mg , Ca , Sr , Ba ,及び Z n から選ばれる少なくとも1つの元素であり、 x は、式 O . O 0 5 \leq x \leq 0. 3 を満たす数値であれば、特に限定されるものではない。例えば、 Ca AlSiN_3 : Eu^{2+} 赤色蛍光体にも、同様の作用効果が認められる。」と記載され、置換によっても同様の作用効果を奏することが記載されており、 $\operatorname{Sr}_2\operatorname{Si}_4\operatorname{AlON}_7$: Eu^2 Lo +」を除くクレームとすることの技術的意義を見出すことができない。そして、甲13記載の $\operatorname{M}_{\operatorname{p/2}}\operatorname{Si}_{12-\operatorname{p-q}}\operatorname{Al}_{\operatorname{p+q}}\operatorname{O}_{\operatorname{q}}\operatorname{N}_{16-\operatorname{q}}$: Eu^{2+} は、「(MidC a 単独であるか又は Sr 及び/又は Mg と組み合わ

せた形である。)」ことも踏まえれば、甲3には、「Sr」の少なくとも一部を「Ca」や「Ba」に置換することが示唆されている。

c 以上によれば、甲3記載の「 $Sr_2Si_4A1ON_7:Eu^{2+}$ 」の「 $Sr_2Si_4A1ON_7:Eu^{2+}$ 」の「Sr

イ 相違点6の判断の誤りに対し

原告は、本件訂正発明の「前記蛍光体層に含まれる蛍光体の励起スペクトルは、前記青色発光素子の放つ光の波長よりも短波長域に励起ピークを有」することの技術的意義は高い旨主張する。

しかしながら,甲3の図4(別紙2参照)によれば,組成が「 $SrSiA1_2O_3N_2$: Eu^{2+} 」の緑色蛍光体の励起ピークは,反射率の最も低い波長域である約350nmと予測され,この蛍光体に対して,発光ピークが例えば450nmの青色LEDを用いて励起することが可能であると推定されるから,「前記蛍光体層に含まれる蛍光体の励起スペクトルは,前記青色発光素子の放つ光の波長よりも短波長域に励起ピークを有」する構成は,何ら格別なものではない。

そして、一般に、蛍光体を励起するためには、励起光の波長における励起効率がある程度高ければよく、蛍光体の励起スペクトルのピークと励起光の波長は一致するのが好ましいとしても、必ずしも完全に一致させなければならないものでもない。このことは、例えば、甲4(400nm付近に励起ピークを有する蛍光体を青色LEDで励起している。)や甲5(375nm付近に励起ピークを有する実施例6~7の窒化物蛍光体が波長460nmで励起でき、公知の青色発光ダイオードと組み合わせることができる旨が記載されている。)において、「前記蛍光体層に含まれる蛍光体の励起スペクトルは、前記青色発光素子の放つ光の波長よりも短波長域に励起ピークを有」する構成とすることが行われていることからも明らか

である。そうすると「蛍光体の励起ピークが青色発光素子の放つ光の波長より、短波長域に励起ピークを有する」か否かが、青色発光素子を備えた 白色発光装置の蛍光体として採用できるか否かに関する要件となるもの でもない。

さらに、乙2の段落【0007】に、「窒素含有量を制御すると、励起スペクトルのピーク波長を青色LED光の波長に一致させることができる点が記載されている。」と記載されていることなどからすると、制御によって、当然に「励起スペクトルのピーク波長を」「波長よりも短波長域に励起ピークを有」することができることは公知であったものである。

以上によれば、原告の上記主張は理由がない。

ウ 相違点5の判断の誤りに対し

原告は、本件出願の優先日当時は、発光素子の発光ピーク近傍に励起スペクトルのピークがある蛍光体を選択し、発光ピークにおける励起スペクトルの強度を大きくすることで高い効率を得ようとしていたものであり、内部量子効率と励起波長との関係に着目し、その測定結果に基づいて蛍光体を選択しようとする試みはなく、甲3発明において、高い効率を得るために、内部量子効率と励起波長との関係に着目し、青色領域における内部量子効率を80%以上にしようとする構成(相違点5に係る本件訂正発明の構成)は誰も考えもしなかったことであるから、甲3発明において、上記構成を採用する動機付けはないなどと主張する。

しかしながら、外部量子効率(発光効率)は、「内部量子効率×蛍光体による励起光の吸収率」によって求められるところ、乙5に「発光効率(外部量子効率)を高めるためには、内部量子効率、光取り出し効率など種々の要因が関わっている。内部量子効率を高めるために、蛍光体では、母体結晶と発光中心の組み合せによる最適な材料設計、濃度消光の抑制、増感作用の利用…の探索が行われている。」と記載されているように、内部量子効率が高

いことが望ましく、その解決手段として「母体結晶と発光中心の組み合せによる最適な材料設計」があることが知られていたことは、明らかである。

このように内部量子効率が高いことが望ましいことは、本件出願の優先 目前における技術常識であったから、内部量子効率ができるだけ高められ た蛍光体を用いることは、当業者の通常の創作能力の発揮の範囲内のこと である。

そして、本件出願の優先日前において、「ニトリドシリケート系の窒化物蛍光体」(α ーサイアロン蛍光体を含む。)の内部量子効率が80%以上のものを製造できる可能性を、技術常識に基づいて想定できたものといえる。

一方、甲3によれば、本件訂正発明と同じように青色発光LEDとニトリドアルミノシリケート系の窒化物赤色蛍光体を使用して照明装置を構成することが知られ、あるいは少なくとも甲3又は甲13及び技術常識に基づき当業者が容易に想到し得る構成が予想されていたものであり、かかる構成の下で、内部量子効率を80%以上とすることは、単に内部量子効率の下限を設定しただけのものであり、本件訂正明細書には、数値限定の意味及び作用効果の記載はないから、本件訂正発明の内部量子効率の技術的意義は何ら格別のものではない。

したがって、内部量子効率がどの程度以上の蛍光体を用いるかは、目標とする効率や蛍光体の入手・製造の容易性などを勘案して、当業者が適宜設定すべき設計事項にすぎず、当業者は、甲3発明において相違点5に係る本件訂正発明の構成を採用することを容易に想到することができたから、原告の上記主張は、理由がない。

エ 小括

以上のとおり、本件審決における相違点1,5及び6の判断に誤りはないから、原告主張の取消事由2は理由がない。

(3) 取消事由3 (手続違背) に対し

被告は,原告が本件審決予告に対して本件訂正を行ったことから,平成27年1月7日付け上申書(甲27。以下「甲27上申書」という。)とともに甲13を提出し,甲27上申書において,「式 $M_{p/2}$ S i_{12-p-q} A l_{p+q} O $_{q}$ N $_{16-q}$: E u^{2+} 」の蛍光体とLEDを組み合わせた照明ユニットが公知であることを明らかにした。甲27上申書は,原告に意見を申し立てる機会を与えるために送達され,原告は,同年2月20日付けで審判事件答弁書(甲28)を提出した。

そして、本件審決は、甲13記載の蛍光体は、「ニトリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体(ただし、 $Sr_2Si_4A1ON_7:Eu^{2+}を除く$)」に該当するとした上、この蛍光体ないしは甲3記載の「 $Sr_2Si_4A1ON_7:Eu^{2+}$ 」のニトリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体における「 $Sr_2Si_4A1ON_7:Eu^{2+}$ 」のニトリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体における「 $Sr_2Si_4A1ON_7:Eu^{2+}$ 」の二トリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体を採用することに格別の困難性はない旨判断したが、本件審決の上記判断は、被告の甲27上申書記載の主張と同旨のものであり、被告が申し立てない無効理由について判断したものではない。

加えて、原告には、甲13について精査・検討する十分な時間が与えられ、 意見を申し立てる機会が与えられたから、本件審決には、原告の主張する手 続違背は存在しない。

したがって、原告主張の取消事由3は理由がない。

第4 当裁判所の判断

- 1 取消事由1 (甲3発明の認定の誤り、一致点の認定の誤り等) について
 - (1) 本件訂正明細書の記載事項等
 - ア 本件訂正発明の特許請求の範囲(請求項1)の記載は、前記第2の2のとおりである。
 - イ 本件訂正明細書の「発明の詳細な説明」には、次の記載がある(甲19。

下記記載中に引用する図1ないし3, 12ないし18, 23については別 紙1を参照)。

(ア) 【技術分野】

[0001]

本発明は、窒化物蛍光体と発光素子とを組み合わせてなる発光装置、 特に、例えば暖色系の白色光を放つ発光装置に関する。

(イ) 【背景技術】

[0002]

従来、赤色系光を放つ窒化物蛍光体として、630nm付近の波長領域に発光ピークを有する $CaSiN_2$: Eu^{2+} 蛍光体が知られている。この蛍光体は、370nm付近の波長領域に励起スペクトルのピークを有し、360nm以上420nm未満の波長領域の近紫外光~紫色系光による励起で高出力の赤色系光を放つため、上記近紫外光~紫色系光を放つ発光素子と組み合わせた発光装置への応用が有望視されている(…)。赤色系光を放つ窒化物蛍光体は、上記 $CaSiN_2$: Eu^{2+} 蛍光体以外にも、例えば、 $Sr_2Si_5N_8$: Eu^{2+} 蛍光体(…)が見出されている。

[0003]

また、波長500nm以上600nm未満の緑~黄~橙色領域に発光ピークを有する蛍光体として、発光中心イオンにEu²+を含む、窒化物蛍光体、酸窒化物蛍光体及びアルカリ土類金属オルト珪酸塩蛍光体等が知られている。これらの蛍光体は、400nm付近の波長領域に励起ピークを有し、上述の近紫外光~紫色系光による励起によって高出力の緑~黄~橙色系光を放つ。このため、上記近紫外光~紫色系光を放つ発光素子と組み合わせた発光装置への応用が有望視されている。さらに、上記波長領域に発光ピークを有する蛍光体として、発光中心イオンにEu

²⁺を含むチオガレート蛍光体や, C e ³⁺を含むガーネット構造を有する 蛍光体等も知られている (…)。

[0004]

一方,従来から,波長360nm以上420nm未満の近紫外~紫色領域に発光ピークを有する発光素子(以下,紫色発光素子という。),又は,波長420nm以上500nm未満の青色領域に発光ピークを有する発光素子(以下,青色発光素子という。)と,上記発光素子が放つ光によって励起する蛍光体とを組み合わせてなる発光装置が知られている(…)。

[0005]

上記紫色発光素子を用い,かつ,高い光東と高い演色性とを両立させる発光装置には,暖色系の白色光を放つ発光装置として, $La_2O_2S:Eu^3+$ 蛍光体や $Y_2O_2S:Eu^3+$ 蛍光体等の赤色系光を放つ酸硫化物蛍光体を多用した発光装置がある。また,白色光を放つ発光装置として,上記酸硫化物蛍光体と緑~黄~橙色系光を放つ蛍光体とを組み合わせて用いた発光装置や,さらに青色系光を放つ蛍光体を組み合わせた発光装置もある。上記緑~黄~橙色系光を放つ蛍光体としては, Eu^2+ で付活されたアルカリ土類金属オルト珪酸塩蛍光体や硫化亜鉛蛍光体等が用いられ,上記青色系光を放つ蛍光体としては, Eu^2+ で付活されたアルミン酸塩蛍光体や Eu^2+ で付活されたハロ燐酸塩蛍光体等が用いられている (\cdots) 。

[0006]

上記青色発光素子を用いた発光装置には、暖色系の白色光を放ち、かつ、高い光束と高い演色性とを両立させる発光装置として、赤色系光を放つ $\mathrm{Sr}_2\mathrm{Si}_5\mathrm{N}_8$: Eu^{2+} 蛍光体や CaS : Eu^{2+} 蛍光体を用いた発光装置がある。また、上記赤色蛍光体と他の蛍光体とを組み合わせて用

いた発光装置もある。上記他の蛍光体としては,例えば, $SrGa_2S_4$: Eu^2+ 緑色蛍光体, $SrAl_2O_4$: Eu^2+ 緑色蛍光体及び $Y_3Al_5O_1$ 。: Ce^3+ 黄色蛍光体が知られている(…)。

(ウ) 【発明が解決しようとする課題】

[0008]

しかし、上述した発光素子と蛍光体とを備えた発光装置には、高い光 束と高い演色性とを両立させるものが少ないのが現状である。一方、発 光装置に求められる要求は年々多様化しており、特に暖色系の白色光を 放つ発光装置の開発が期待されている。

[0009]

本発明は、このような課題を解決するためになされたものであり、高い光東と高い演色性とを両立する発光装置、特に、暖色系の白色光を放っ発光装置を提供するものである。

(エ) 【課題を解決するための手段】

[0010]

本発明は、赤色蛍光体と、緑色蛍光体とを含む蛍光体層と、発光素子とを備え、前記赤色蛍光体が放つ赤色系の発光成分と、前記緑色蛍光体が放つ緑色系の発光成分とを出力光に含む発光装置であって、前記出力光が、白色光であり、前記赤色蛍光体は、前記発光素子が放つ光によって励起されて、 Eu^{2+} で付活され、かつ、600nm以上660nm未満の波長領域に発光ピークを有するニトリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体(ただし、 $Sr_2Si_4A1ON_7:Eu^{2+}$ を除く)であり、前記緑色蛍光体は、前記発光素子が放つ光によって励起されて、 Eu^{2+} 又は Ce^{3+} で付活され、かつ、500nm以上560nm未満の波長領域に発光ピークを有する緑色蛍光体であり、前記発光素子は、440nm以上500nm未満の波長領域に

発光ピークを有する光を放つ青色発光素子であり、前記蛍光体層に含まれる蛍光体はEu²+又はCe³+で付活された蛍光体のみを含み、前記青色発光素子が放つ光励起下において前記赤色蛍光体は、内部量子効率が80%以上であり、前記蛍光体層に含まれる蛍光体の励起スペクトルは、前記青色発光素子の放つ光の波長よりも短波長域に励起ピークを有し、前記蛍光体層は、窒化物蛍光体又は酸窒化物蛍光体以外の無機蛍光体を実質的に含まない発光装置を提供する。

(オ) 【発明の効果】

[0011]

本発明によれば、高い光束と高い演色性とを両立する発光装置、特に、 暖色系の白色光を放つ発光装置を提供できる。

(カ) 【発明を実施するための最良の形態】

[0012]

E u^{2+} で付活された蛍光体の特性を詳細に調べたところ,以下(1) ~(3)に示す蛍光体は,波長360nm以上420nm未満の近紫外~紫色領域に発光ピークを有する紫色発光素子の励起下における内部量子効率だけでなく,波長420nm以上500nm未満,特に,波長440nm以上500nm未満の青色領域に発光ピークを有する青色発光素子の励起下における内部量子効率も高く,良好なものは,その内部量子効率が90%~100%であることが見出された。

(1) $\mathrm{E}\,\mathrm{u}^{2+}$ で付活され, $500\,\mathrm{n}\,\mathrm{m}$ 以上 $560\,\mathrm{n}\,\mathrm{m}$ 未満の波長領域に発光ピークを有するアルカリ土類金属オルト珪酸塩系,チオガレート系,アルミン酸塩系及び窒化物系(ニトリドシリケート系やサイアロン系等)の緑色蛍光体,例えば,(Ba,Sr) $_2$ SiO $_4$: $\mathrm{E}\,\mathrm{u}^{2+}$,SrG a_2 S $_4$: $\mathrm{E}\,\mathrm{u}^{2+}$,SrAl $_2$ O $_4$: $\mathrm{E}\,\mathrm{u}^{2+}$,BaSiN $_2$: $\mathrm{E}\,\mathrm{u}^{2+}$,Sr

- (3) $\mathrm{E}\,\mathrm{u}^{2+}$ で付活され, $600\,\mathrm{n}\,\mathrm{m}$ 以上 $660\,\mathrm{n}\,\mathrm{m}$ 未満の波長領域に発光ピークを有する窒化物系(ニトリドシリケート系,ニトリドアルミノシリケート系等)の赤色蛍光体,例えば, $\mathrm{S}\,\mathrm{r}_2\,\mathrm{S}\,\mathrm{i}_5\,\mathrm{N}_8:\mathrm{E}\,\mathrm{u}^{2+},$ $\mathrm{S}\,\mathrm{r}\,\mathrm{S}\,\mathrm{i}\,\mathrm{N}_2:\mathrm{E}\,\mathrm{u}^{2+},$ $\mathrm{S}\,\mathrm{r}\,\mathrm{A}\,\mathrm{I}\,\mathrm{S}\,\mathrm{i}\,\mathrm{N}_3:\mathrm{E}\,\mathrm{u}^{2+},$ $\mathrm{C}\,\mathrm{a}\,\mathrm{A}\,\mathrm{I}\,\mathrm{S}\,\mathrm{i}\,\mathrm{N}_3:\mathrm{E}\,\mathrm{u}^{2+},$ $\mathrm{C}\,\mathrm{a}\,\mathrm{A}\,\mathrm{I}\,\mathrm{S}\,\mathrm{i}\,\mathrm{N}_3:\mathrm{E}\,\mathrm{u}^{2+},$ $\mathrm{E}\,\mathrm{u}^{2+},$ $\mathrm{S}\,\mathrm{r}_2\,\mathrm{S}\,\mathrm{i}_4\,\mathrm{A}\,\mathrm{I}\,\mathrm{O}\,\mathrm{N}_7:\mathrm{E}\,\mathrm{u}^{2+}$ 等の蛍光体。

[0013]

これらの蛍光体の励起スペクトルは、上記青色発光素子の放つ光の波長よりも短波長領域に、多くは波長360nm以上420nm未満の近紫外~紫色領域に励起ピークを有するため、上記青色発光素子の励起下における外部量子効率は必ずしも高くない。しかし内部量子効率は、励起スペクトルから予想される以上に高い70%以上、特に良好な場合は90%~100%であることがわかった。

[0014]

一例として,図12に,SrSiN₂:Eu²+赤色蛍光体の内部量子効率16,外部量子効率17及び励起スペクトル18を示し,また,参考のため,蛍光体の発光スペクトル19も示した。また,図13~図18には,SrA1SiN₃:Eu²+赤色蛍光体(図13),Sr₂Si $_5$ N $_8$:Eu $_2$ +赤色蛍光体(図14),(Ba,Sr) $_2$ SiО $_4$:Eu $_2$ +

緑色蛍光体(図15),(Sr,Ba) $_2$ SiO $_4$: Eu 2 +黄色蛍光体(図16),(Sr,Ca) $_2$ SiO $_4$: Eu 2 +黄色蛍光体(図17),0.75(Ca $_{0...9}$ Eu $_{0...1}$)O・2.25AlN・3.25Si $_3$ N $_4$: Eu 2 +黄色蛍光体(図18)について,図12と同様に示した。例えば,図16に示した,Eu 2 +で付活されたアルカリ土類金属オルト珪酸塩蛍光体である(Sr,Ba) $_2$ SiO $_4$: Eu 2 +黄色蛍光体の外部量子効率は,波長440nmの青色発光素子の励起下において約75%,波長460nmにおいて約67%,波長470nmにおいて約60%である。しかし内部量子効率は,波長440nm以上500nm未満の青色領域において,いずれも励起スペクトルから予想される以上に高い85%以上であり,特に良好な場合は約94%であることがわかった。

[0016]

図12~図22より、各蛍光体の外部量子効率の励起波長依存性は、励起スペクトルの形状と類似し、励起スペクトルのピークよりも長波長の光の励起下において、例えば、上記青色発光素子の励起下において外部量子効率は必ずしも高い数値でないが、内部量子効率は上記青色発光素子の励起下においても高い数値を示すことがわかる。また、図12~図18及び図20~22より、各蛍光体は、上記紫色発光素子の励起下における内部量子効率が高く、良好なものは90%~100%であることもわかる。

[0017]

さらに調べたところ、上記(1)~(3)以外の蛍光体にも、以下(4)及び(5)に示す蛍光体は、上記紫色発光素子の励起下における内部量子効率が高いことがわかった。

(4) E u $^{2+}$ 又はC e $^{3+}$ で付活され、490 n m以上550 n m以下の波長領域に発光ピークを有する窒化物系(ニトリドシリケート系、サイ

アロン系等)の青緑色又は緑色蛍光体,例えば, $Sr_2Si_5N_8:Ce^3+$, $SrSiAl_2O_3N_2:Eu^2+$, $Ca_{1.5}Al_3Si_9N_{16}:Ce^{3+}$ 等の蛍光体。

(5) Eu^{2+} で付活され、420nm以上500nm未満の波長領域に発光ピークを有するアルカリ土類金属オルト珪酸塩系、ハロ燐酸塩系の青緑又は青色蛍光体、例えば、 $Ba_3MgSi_2O_8:Eu^{2+}$ 、(Sr, Ca) $_{10}$ (PO_4) $_6Cl_2:Eu^{2+}$ 等の蛍光体。

[0019]

一例として、図23に、従来上記紫色発光素子と組み合わせて多用されているLa₂O₂S:Eu³⁺赤色蛍光体の内部量子効率16,外部量子効率17,及び励起スペクトル18を示し、また、参考のため、蛍光体の発光スペクトル19も示した。図23からわかるように、上記La₂O₂S:Eu³⁺赤色蛍光体の内部量子効率と外部量子効率は、励起スペクトルのピークが380nm以上420nm未満の紫色領域、しかも、約360~380nm程度以上の励起波長では、励起波長の増加とともに急激に低下する。例えば、励起波長が、380nm以上420nm未満の紫色領域において、励起波長を次第に長くした場合、内部量子効率は、約80%(380nm)、約62%(400nm)、約25%(420nm)と、低い水準で大きく変化する。

[0021]

すなわち,従来上記紫色発光素子と組み合わせて多用されているLa $_2$ O $_2$ S: E u $^{3+}$ 赤色蛍光体及びY $_2$ O $_2$ S: E u $^{3+}$ 赤色蛍光体は,波長 3 6 0 n m以上 4 2 0 n m未満の近紫外~紫色領域,特に波長 3 8 0 n m以上 4 2 0 n m未満の紫色領域に発光ピークを有する発光素子の放 つ光を高い変換効率で赤色光に波長変換することが,材料物性上困難な 蛍光体であることがわかる。

[0024]

ここで、内部量子効率とは、蛍光体に吸収された励起光の量子数に対して、蛍光体から放射される光の量子数の割合を示し、外部量子効率とは、蛍光体を照射する励起光の量子数に対して、蛍光体から放射される光の量子数の割合を示す。つまり、高い量子効率は、励起光が効率よく光変換されていることを表す。量子効率の測定方法は、既に確立されており、上述した非特許文献2に詳しい。

[0025]

内部量子効率が高い蛍光体に吸収された発光素子の放つ光は、効率よく光変換されて放出される。一方、蛍光体に吸収されなかった発光素子の放つ光は、そのまま放出される。そのため、上述した波長領域に発光ピークを有する発光素子と、その発光素子の放つ光の励起下において内部量子効率が高い蛍光体とを備えた発光装置は、光エネルギーを効率よく使用できることになる。従って、上記(1)~(5)の蛍光体と上記発光素子とを、少なくとも組み合わせることによって、高光束かつ高演色の発光装置とすることができる。

[0026]

一方,上述した波長領域に発光ピークを有する発光素子と,その発光素子の放つ光の励起下において内部量子効率が低い蛍光体とを備えた発光装置は,発光素子が放つ光エネルギーを効率よく変換できないために,光束が低い発光装置になる。

(キ) 【0029】

(実施形態1)

本発明の発光装置の一例は、窒化物蛍光体を含む蛍光体層と発光素子とを備え、上記発光素子は、360nm以上500nm未満の波長領域に発光ピークを有し、上記窒化物蛍光体は、上記発光素子が放つ光によ

って励起されて発光し、上記室化物蛍光体が放つ発光成分を出力光として少なくとも含む発光装置である。また、上記室化物蛍光体は、E u $^{2+}$ で付活され、かつ、組成式(M_{1-x} E u $_x$) A l S i N $_3$ で表される蛍光体であり、上記Mは、M g、C a、S r 、B a 及び Z n から選ばれる少なくとも 1 つの元素であり、上記 x は、式 0 . 0 0 5 \leq x \leq 0 . 3 を満たす数値である。

[0030]

上記発光素子は、電気エネルギーを光に換える光電変換素子であり、360nm以上420nm未満又は420nm以上500nm未満,より好ましくは380nm以上420nm未満又は440nm以上500nm未満のいずれかの波長領域に発光ピークを有する光を放つものであれば特に限定されず、例えば、発光ダイオード(LED)、レーザーダイオード(LD)、面発光LD、無機エレクトロルミネッセンス(EL)素子、有機EL素子等を用いることができる。

[0031]

なお、発光素子として、GaN系化合物を発光層としたLEDやLDを用いる場合には、高い出力が得られる理由で、好ましくは380nm以上420nm未満、より好ましくは395nm以上415nm以下の波長領域に発光ピークを有する光を放つ紫色発光素子、又は、好ましくは440nm以上500nm未満、より好ましくは450nm以上480nm以下の波長領域に発光ピークを有する光を放つ青色発光素子にするとよい。

[0032]

上記出力光は、上記発光素子が放つ発光成分を含むことが好ましい。 特に、上記発光素子が、青色系領域に発光ピークを有する発光素子である場合、上記窒化物蛍光体が放つ発光成分と、上記発光素子が放つ発光 成分とを出力光に含めば、より高い演色性を有する白色光が得られ、より好ましい。

[0033]

上記室化物蛍光体は,600nm以上660nm未満の波長領域に発光ピークを有する暖色系光,好ましくは610nm以上650nm以下の波長領域に発光ピークを有する赤色系光を放つ上記組成式(M_{1-x} E u_x) A 1 S i N $_3$ で表される窒化物蛍光体であり,上述した 3 60 nm以上 500nm未満の波長領域の励起光下における内部量子効率が高い窒化物蛍光体,例えば,図 1 3 に示した 1 S i N $_3$: E i

[0034]

内部量子効率が高い窒化物蛍光体を含む蛍光体層と,上記発光素子とを少なくとも備えた発光装置は,光エネルギーを効率よく出力することができる。上記のように構成された発光装置は,暖色系発光成分の強度が強く,特殊演色評価数R9の数値が大きな装置になる。これはLa2O₂S: Eu³+蛍光体を用いた従来の発光装置やSr₂Si₅N₈: Eu²+蛍光体とYAG(イットリウム・アルミニウム・ガーネット):Ce系蛍光体とを組み合わせて用いた従来の発光装置に匹敵する,高い光束と高い演色性とをもつ。

[0036]

この中でも、上記白色LEDが特に好ましい。一般に従来のLEDは、その発光原理から、特定の波長の光を放つ単色光源の発光素子である。つまり、従来のLEDからは白色系光を放つ発光素子は得られない。これに対して、本実施形態の白色LEDは、例えば、従来のLEDと蛍光体とを組み合わせる方法によって白色蛍光を得ることができる。

[0037]

本実施形態において、上記室化物蛍光体は、上記元素Mの主成分をSr又はCaとすると、良好な色調と強い発光強度を得られ、より好ましい。なお、主成分をSr又はCaとするとは、元素Mの50原子%以上がSr又はCaのいずれか1つの元素であることをいう。また、元素Mの80原子%以上がSr又はCaのいずれか1つの元素であることが好ましく、元素Mの全原子がSr又はCaのいずれか1つの元素であることが好ましく、元素Mの全原子がSr又はCaのいずれか1つの元素であることがより好ましい。

(ク) 【0039】

(実施形態2)

本発明の発光装置の他の一例としては、上述した実施形態1の蛍光体層に、Eu²+又はCe³+で付活され、かつ、500nm以上560nm未満の波長領域に発光ピークを有する緑色蛍光体を、さらに含む構成にしてもよい。上記緑色蛍光体は、実施形態1で説明した発光素子が放つ光によって励起されて、500nm以上560nm未満の波長領域に、好ましくは510nm以上550nm以下の波長領域、より好ましくは525nm以上550nm以下の波長領域に発光ピークを有する光を放つ蛍光体であれば、特に限定されない。

[0040]

例えば、青色発光素子を用いる場合、励起スペクトルの最長波長側の励起ピークが420nm以上500nm未満の波長領域にない緑色蛍光体、すなわち、励起スペクトルの最長波長側の励起ピークが420nm未満の波長領域にある緑色蛍光体であっても構わない。

[0041]

上記緑色蛍光体は、上述した 360 n m以上 500 n m未満の波長領域の励起光下における内部量子効率が高い蛍光体、例えば、図 15 に示した(Ba, Sr) $_2$ SiO $_4$: Eu 2 +緑色蛍光体等に該当する。この蛍

光体を少なくとも含む蛍光体層と、上記発光素子とを少なくとも備えた発光装置は、光エネルギーを効率よく出力するので好ましい。この発光装置は、出力光に含まれる緑色系の発光強度が強くなり、演色性が向上する。また、緑色系光は視感度が高く、光束はより高くなる。特に、蛍光体層に含まれる蛍光体の組み合わせによっては、平均演色評価数(Ra)が90以上の、高い演色性をもつ出力光を得ることが可能である。

[0042]

上記緑色蛍光体を, E u 2+で付活された窒化物蛍光体又は酸窒化物蛍 光体, 例えばBaSiN₂: Eu²⁺, Sr_{1,5}Al₃Si₉N₁₆: Eu²⁺, $C\;a_{\;1.\;\;5}\;A\;l_{\;3}\;S\;i_{\;9}\;N_{\;1\;6}:\;E\;u^{\;2\;+}\text{,}\;\;C\;a\;S\;i\;A\;l_{\;2}\;O_{\;3}\;N_{\;2}:\;E\;u^{\;2\;+}\text{,}\;\;S$ r S i A l ₂O₃N₂: E u ²⁺, C a S i ₂O₂N₂: E u ²⁺, S r S i ₂ $O_{9}N_{9}$: E u ²⁺, B a S i $_{9}O_{9}N_{9}$: E u ²⁺等, E u ²⁺で付活されたア ルカリ土類金属オルト珪酸塩蛍光体, 例えば(Ba, Sr)。SiO4: Eu²⁺, (Ba, Ca)₂SiO₄: Eu²⁺等, Eu²⁺で付活されたチ オガレート蛍光体, 例えばSrGa₂S₄: Eu²⁺等, Eu²⁺で付活さ れたアルミン酸塩蛍光体,例えばSrAl₂O₄:Eu²⁺等,Eu²⁺と Mn^{2+} で共付活されたアルミン酸塩蛍光体、例えば $BaMgAl_{10}O_1$ 7: E u²⁺, M n²⁺等, C e³⁺で付活された窒化物蛍光体又は酸窒化物 蛍光体, 例えば, Sr₂Si₅N₈: Ce³⁺, Ca_{1,5}Al₃Si₉N₁₆: Ce^{3+} , $Ca_2Si_5N_8$: Ce^{3+} 等, 及び, Ce^{3+} で付活されたガーネ ット構造を有する蛍光体, 例えばY₃ (A1, Ga)₅O₁₉: Ce³⁺, $Y_{3}Al_{5}O_{12}: Ce^{3+}, BaY_{2}SiAl_{4}O_{12}: Ce^{3+}, Ca_{3}Sc_{2}$ S i $_3$ O $_{12}$: C e $^{3+}$ 等にすると、上記発光素子の励起下における内部量 子効率が高くなり、 さらに好ましい。

[0043]

従って,本実施形態の発光装置は,実施形態1の窒化物蛍光体と上記

緑色蛍光体とを少なくとも含む蛍光体層と、実施形態1の発光素子とを備え、上記窒化物蛍光体が放つ赤色系の発光成分と上記緑色蛍光体が放つ緑色系の発光成分とを出力光に含む発光装置である。

(ケ) 【0052】

実施形態1~4において、上記蛍光体層に含まれる蛍光体は、高い光 東を得るために、Eu²⁺又はCe³⁺で付活された蛍光体以外の蛍光体を 実質的に含まない構成にするのが好ましく、窒化物蛍光体又は酸窒化物 蛍光体以外の無機蛍光体を実質的に含まない構成にするのが好ましい。 上記蛍光体を, E u 2+又はC e 3+で付活された蛍光体以外の蛍光体を実 質的に含まない構成にするとは、蛍光体層に含まれる蛍光体の90重 量%以上、好ましくは95重量%以上、より好ましくは98重量%以上 の蛍光体が、 $E u^{2+}$ 又は $C e^{3+}$ で付活された蛍光体であることを意味す る。また、窒化物蛍光体又は酸窒化物蛍光体以外の無機蛍光体を実質的 に含まない構成にするとは、蛍光体層に含まれる蛍光体の90重量%以 上、好ましくは95重量%以上、より好ましくは98重量%以上の蛍光 体が、窒化物蛍光体又は酸窒化物蛍光体であることを意味する。上記窒 化物蛍光体及び酸窒化物蛍光体は、100℃~150℃の動作温度下及 び周囲温度下においても、比較的高い内部量子効率を保持し、かつ、発 光スペクトルの波長のピークが、例えば前述のアルカリ土類金属オルト 珪酸塩蛍光体又はガーネット構造を有する蛍光体のように短波長側へ シフトしない。そのため,上述の構成をした発光装置は,投入電力を増 やして励起光強度を強めても、あるいは高温雰囲気下で使用しても、発 光色変動が少なく、安定した出力光が得られ好ましい。

[0053]

なお,高い光束を放つ発光装置を得るためには,蛍光体層に実質的に 含まれる蛍光体の中で,発光素子が放つ光励起下において最も内部量子 効率が低い蛍光体は、内部量子効率(絶対値)が、80%以上、好ましくは85%以上、より好ましくは90%以上の蛍光体とする。

(3) [0070]

図1は、サブマウント素子4の上に、少なくとも1つの発光素子1を 導通搭載し、蛍光体2を含む蛍光体層3を兼ねる母材によって封止した 構造の半導体発光素子を示す。図2は、リードフレーム5のマウント・ リードに設けたカップ6に、少なくとも1つの発光素子1を導通搭載し、 さらにカップ6内に蛍光体2を含む蛍光体層3を設け、全体を、例えば 樹脂等の封止材7を用いて封止した構造の半導体発光素子を示す。図3 は、筐体8内に、少なくとも1つの発光素子1を導通搭載し、さらに蛍 光体2を含む蛍光体層3を設けた構造の、チップタイプの半導体発光素 子を示す。

(サ) 【0082】

本実施形態の半導体発光素子において、上記青色発光素子の励起下に おける外部量子効率は必ずしも高くないが内部量子効率は高い蛍光体 を用いるので、例えば、青色発光素子が放つ光と蛍光体が放つ光の混色 によって、所望の白色系光を得ようとした場合、比較的多くの蛍光体を 必要とする。従って、所望の白色系光を得ようとすると、必然的に蛍光 体層の厚みを増す必要がある。一方、蛍光体層の厚さが増加すると、白 色系光の色むらが少ない発光装置になるメリットもある。

[0088]

本実施形態の照明・表示装置は、上記発光素子の励起下における内部 量子効率が高い蛍光体を用い、特に赤色系の発光成分の強度が強く、演 色性の良好な半導体発光素子を用いて構成しているので、従来の照明・ 表示装置に対して同等以上に優れた、高い光束と、特に赤色系の発光成 分の強度が強く高い演色性とを両立する照明・表示装置になる。

(≥) 【0098】

実施例1は、銅電極29に、半導体発光素子21を32個直列接続した2つの半導体発光素子群に各々40mA程度、合わせて80mA程度の電流を流すことによって、半導体発光素子21を駆動させ、出力光を得た。この出力光は、上記青色LEDチップ26が放つ光と、この光によって励起されて発光した、蛍光体層3に含まれる蛍光体が放つ光の混色光である。さらに、この出力光は、LEDチップ及び蛍光体の種類と量を適宜選択することにより、任意の白色光を得られた。

[0100]

蛍光体層 3 は,蛍光体を添加したエポキシ樹脂を乾固して形成した。 実施例 1 では,蛍光体として,波長 6 2 5 n m付近に発光ピークを有する S r A 1 S i N $_3$: E u 2 + 赤色蛍光体(中心粒径: 2 . 2 μ m,最大内部量子効率: 6 0 %)と,波長 5 5 5 n m付近に発光ピークを有する(B a , S r) $_2$ S i O $_4$: E u 2 + 緑色蛍光体(中心粒径: 1 2 . 7 μ m,最大内部量子効率: 9 1 %)の 2 種類を用い,エポキシ樹脂には,ビスフェノールA型液状エポキシ樹脂を主成分とするエポキシ樹脂(連化材)の二液混合型のエポキシ樹脂を用いた。 S r A 1 S i N $_3$: E u 2 + 赤色蛍光体と(B a , S r) $_2$ S i O $_4$: E u 2 + 緑色蛍光体とは重量割合,約 1 : 1 0 で混合し,この混合蛍光体とエポキシ樹脂とは重量割合,約 1 : 3 (蛍光体 濃度 = 2 5 重量%)で混合した。

(ス) 【実施例2】

[0113]

実施例1の $(Ba, Sr)_2SiO_4:Eu^2+$ 緑色蛍光体を,波長55 5nm付近に発光ピークを有する蛍光体から,波長535nm付近に発光ピークを有する蛍光体に変更し,duvを0として相関色温度を変化

させた発光装置を構成し実施例2とした。

[0118]

図33には、特に好ましい相関色温度4000K(duv=0)の暖 色系白色光を放つ実施例2の発光装置の、発光スペクトルのシミュレー ションデータを示した。この発光スペクトルの場合、色度(x,y)は (0.3805, 0.3768) であり、Raが86、R9が95であ る。この発光スペクトルの形状は、青色LEDによる460~480n mの波長領域の発光ピークと、希土類イオンの5d-4f電子遷移に基 づく発光を放つ実施例2の緑色蛍光体による520~550nmの波 長領域の発光ピークと、希土類イオンの5d-4f電子遷移に基づく発 光を放つ実施例2の赤色蛍光体による610~640mmの波長領域 の発光ピークとの強度の比率, 460~480nm:520~550n $m: 610 \sim 640 n m が、 24 \sim 28: 12 \sim 15: 16 \sim 20$ であ る。本発明の好ましい形態の一つは、発光ピークが上記比率の発光スペ クトルの形状を有する暖色系白色光を放つことを特徴とする発光装置 である。なお、上述の希土類イオンの5d-4f電子遷移に基づく発光 を放つ蛍光体とは、主にEu²⁺又はCe³⁺の希土類イオンを発光中心イ オンとして含む蛍光体を示す。このような蛍光体は、発光ピークの波長 が同じ場合、蛍光体母体の種類に関わらず、似通った発光スペクトルの 形状になる。

(セ) 【0121】

なお,実施例1及び実施例2は, $SrAlSiN_3: Eu^{2+}$ 赤色蛍光体を用いたが,組成式($M_{1-x}Eu_x$) $AlSiN_3$ で表される赤色蛍光体であり,Mは,Mg,Ca,Sr,Ba,B0、B0、B1 を満たす数値であれば,特に限定されるものではない。例えば,B1 に B2 に B3 に B3 に B3 に B4 に B5 に B5 に B6 に B7 に B8 に B9 に B9

Eu²⁺赤色蛍光体にも,同様の作用効果が認められる。

[0122]

また, $SrAlSiN_3: Eu^2+$ 赤色蛍光体の代わりに,例えば,類似の発光特性を示す,公知の窒化物蛍光体又は酸窒化物蛍光体,例えば,組成式($M_{1-x}Eu_x$)SiN2あるいは組成式($M_{1-x}Eu_x$) $_2Si_5N_8$ 等で表されるニトリドシリケート蛍光体や,組成式($M_{1-x}Eu_x$) $_2Si_4AlON_7$ で表されるオクソニトリドアルミノシリケート蛍光体等を用いた場合でも,同様の作用効果が認められる。但し,上記組成式のMは,Mg,Ca,Sr,Ba及びZnから選ばれる少なくとも1つの元素であり,xは,式 $0.005 \le x \le 0.3$ を満たす数値である。

[0123]

また、緑色蛍光体及び黄色蛍光体は上述の実施例で使用したものに限定されず、525 n m以上600 n m未満の波長領域に発光ピークを有する光を放つ蛍光体であれば、例えば、420 n m未満の波長領域に励起スペクトルの最長波長側の励起ピークを有する蛍光体を使用することもできる。なお、白色LEDに用いられる蛍光体として公知な Y A G: Ce 系蛍光体、例えば、 $(Y_3(A1,Ga)_5O_{12}:Ce^{3+}$ 緑色蛍光体、 $(Y,Gd)_3A1_5O_{12}:Ce^{3+}$ 最色蛍光体、 $(Y,Gd)_3A1_5O_{12}:Ce^{3+}$ 是記緑色蛍光体又は黄色蛍光体としても、同様の作用効果が認められる。

[0151]

なお、 $SrAlSiN_3: Eu^{2+}$ 赤色蛍光体の特性は、従来の赤色蛍光体、例えば、 $SrSiN_2: Eu^{2+}$ 、 $Sr_2Si_5N_8: Eu^{2+}$ 、 $Sr_2Si_4AlON_7: Eu^{2+}$ 等の窒化物蛍光体又は酸窒化物蛍光体と似通っているので、実施例2又は実施例3において、 $SrAlSiN_3: Eu^{2+}$ +赤色蛍光体に代えて、上記従来の窒化物蛍光体又は酸窒化物蛍光体を

用いた場合でも,同様の作用効果が認められる。

(ソ) 【産業上の利用可能性】

[0158]

以上説明したように、本発明によれば、高い演色性と高光束を両立する、白色発光を放つ発光装置を提供することができる。特に、暖色系の白色発光を放つ、赤色系発光成分の強度の強いLED光源等の発光装置を提供でき、その工業的価値は大きい。

- ウ 前記ア及びイによれば、本件訂正明細書には、本件訂正発明に関し、次 のような開示があることが認められる。
 - (ア) 従来から,波長 420 n m以上 500 n m未満の青色領域に発光ピークを有する青色発光素子と,上記発光素子が放つ光によって励起する 蛍光体とを組み合わせた発光装置には,暖色系の白色光を放ち,かつ,高い光束と高い演色性とを両立させる発光装置として,赤色系光を放つ $Sr_2Si_5N_8: Eu^2+$ 蛍光体や $CaS: Eu^2+$ 蛍光体を用いた発光装置,上記赤色蛍光体と他の蛍光体(例えば, $SrGa_2S_4: Eu^2+$ 緑色 蛍光体, $SrAl_2O_4: Eu^2+$ 緑色蛍光体及び $Y_3Al_5O_{12}: Ce^{3+}$ 黄色蛍光体)とを組み合わせて用いた発光装置が知られているが,これらの発光装置には,高い光束と高い演色性とを両立させるものが少ないのが現状であり,特に暖色系の白色光を放つ発光装置の開発が期待されていた(段落【0002】,【0006】,【0008】)
 - (イ) 「本発明」は、高い光束と高い演色性とを両立する発光装置、特に、暖色系の白色光を放つ発光装置を提供することを課題とするものであり(段落【0008】)、 Eu^{2+} で付活された蛍光体の特性を詳細に調べたところ、(1) Eu^{2+} で付活され、 $500nm以上560nm未満の波長領域に発光ピークを有する窒化物系(ニトリドシリケート系やサイアロン系等)などの緑色蛍光体、(2) <math>Eu^{2+}$ で付活され、560n

m以上600nm未満の波長領域に発光ピークを有する窒化物系 (ニト リドシリケート系やサイアロン系等)などの黄色蛍光体,(3)Eu²⁺ で付活され、600mm以上660mm未満の波長領域に発光ピークを 有するなどの窒化物系(ニトリドシリケート系、ニトリドアルミノシリ ケート系等)の赤色蛍光体(例えば、Sr₂Si₄AlON₇: Eu²⁺等 の蛍光体)は、波長360nm以上420nm未満の近紫外~紫色領域 に励起ピークを有するため、波長420nm以上500nm未満、特に、 波長440nm以上500nm未満の青色領域に発光ピークを有する 青色発光素子の励起下における外部量子効率(蛍光体を照射する励起光 の量子数に対して、蛍光体から放射される光の量子数の割合)は必ずし も高くないものの、内部量子効率(蛍光体に吸収された励起光の量子数 に対して、蛍光体から放射される光の量子数の割合)は、励起スペクト ルから予想される以上に高く、良好なものは、その内部量子効率が9 0%~100%であることを見出したこと(段落【0012】ないし【0 014】,【0016】,【0024】),内部量子効率が高い蛍光体 に吸収された発光素子の放つ光は、効率よく光変換されて放出される一 方、蛍光体に吸収されなかった発光素子の放つ光は、そのまま放出され るため、上記波長領域に発光ピークを有する発光素子と、上記発光素子 の放つ光の励起下において内部量子効率が高い蛍光体とを備えた発光 装置は、光エネルギーを効率よく使用できること(段落【0025】)、 青色発光素子の励起下における外部量子効率は必ずしも高くないが、内 部量子効率が高い蛍光体を用いて, 所望の白色系光を得ようとした場合, 比較的多くの蛍光体を必要とし、必然的に蛍光体層の厚みを増すことに なるが、蛍光体層の厚さの増加により、白色系光の色むらが少ない発光 装置になるメリットもあること(段落【0082】)から、上記課題を 解決するための手段として、赤色蛍光体と緑色蛍光体を含む蛍光体層と

発光素子を備えた、白色光を出力光とする発光装置において、発光素子として、440nm以上500nm未満の波長領域に発光ピークを有する光を放つ青色発光素子を用い、赤色蛍光体として、Eu²+で付活され、かつ、600nm以上660nm未満の波長領域に発光ピークを有するニトリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体(ただし、Sr₂Si₄A1ON7: Eu²+を除く)を用い、緑色蛍光体として、Eu²+又はCe³+で付活され、かつ、500nm以上560nm未満の波長領域に発光ピークを有する緑色蛍光体を用い、前記蛍光体層に含まれる蛍光体はEu²+又はCe³+で付活された蛍光体のみを含み、前記青色発光素子が放つ光励起下において前記赤色蛍光体は、内部量子効率が80%以上であり、前記蛍光体層に含まれる蛍光体の励起スペクトルは、前記青色発光素子の放つ光の波長よりも短波長域に励起ピークを有し、前記蛍光体層は、窒化物蛍光体又は酸窒化物蛍光体以外の無機蛍光体を実質的に含まない発光装置の構成を採用した(段落【0010】)。

これにより、「本発明」は、高い光束と高い演色性とを両立する発光 装置、特に、暖色系の白色光を放つ、赤色発光成分の強度の強いLED 光源等の発光装置を提供することができる(段落【0011】、【01 58】)。

(2) 甲3の記載事項について

甲3には、次のような記載がある(下記記載中に引用する図面及び表については、別紙2を参照)。

ア 特許請求の範囲

(ア) 【請求項1】光源として少なくとも1つのLEDを備えた照明ユニットであって、このLEDは300~570nmの範囲内で一次放射を発し、この放射はLEDの一次放射にさらされる蛍光体によって部分的に又は完全により長波長の放射に変換され、前記の蛍光体の構造はニト

リド又はその誘導体に基づく形式のものにおいて、前記の変換は少なくとも1種の蛍光体を用いて行われ、この蛍光体はカチオンM及び窒化ケイ素又はニトリドの誘導体から誘導され、この蛍光体は430~670 nmでのピーク発光の波長で発光し、その際、カチオンは部分的にドーパントD、つまり E u $^{2+}$ 又は C e $^{3+}$ により置き換えられており、この場合にカチオンMとして二価の金属 B a、C a、S r の少なくとも1種及び/又は三価の金属 L u、L a、G d、Y の少なくとも1種が使用され、この蛍光体は次の種類:構造MS i $_3$ N $_5$ 、M $_2$ S i $_4$ N $_7$ 、M $_4$ S i $_6$ N $_{11}$ 及び M $_9$ S i $_{11}$ N $_2$ 3 の ニトリド、構造 M $_1$ 6 S i $_{15}$ O $_6$ N $_3$ 2 の オキシニトリド、構造 M S i A l $_2$ O $_3$ N $_2$ N $_1$ 3 S i $_{18}$ A l $_1$ 2 O $_1$ 8 N $_3$ 6 M S i $_5$ A l O N $_1$ 0 の サイア ロンから 由来することを特徴とする、光源として少なくとも l つの L E D を備えた 照明 ユニット。

- (イ) 【請求項6】特に白色に発光する照明ユニットを実現するために、 複数のニトリド含有蛍光体を一緒に、特に複数のニトリド含有蛍光体だ けを使用する、請求項1記載の照明ユニット。
- (ウ) 【請求項9】白色光を発生させるために一次発光された放射が36 $0\sim420$ nmの波長領域にあり、この一次発光された放射は、変換のために青(430 ~470 nm)、緑(495 ~540 nm)及び赤(特に540 ~620 nm)に最大発光を示す少なくとも3種の蛍光体にさらされる、請求項6記載の照明ユニット。
- (エ) 【請求項10】白色光を発生させるために一次発光された放射が4 20~480nmの波長領域にあり、この一次発光された放射は、変換 のために緑(495~540nm)及び赤(特に540~620nm) に最大発光を示す少なくとも2種の蛍光体にさらされる、請求項6記載 の照明ユニット。

イ 発明の詳細な説明

(*P*) [0001]

【発明の属する技術分野】本発明は光源として請求項1の上位概念に記載された少なくとも1つのLEDを備えた照明ユニットに関する。特に、UV又は青色に一次発光するLEDをベースとする可視光又は白色光を発光するLEDである。

[0002]

【従来の技術】例えば白色光を放射する照明ユニットは、現在では主に約460nmで青色に発光するGa(In)NーLEDと、黄色に発光するYAG:Ce³+蛍光体との組み合わせによって実現されている(US5998925及びEP862794)。この場合、良好な色再現のためにWO-A01/08453に記載されたような2種の異なる黄色-蛍光体が使用される。この場合、双方の蛍光体は、その構造が類似している場合であっても、しばしば異なる温度特性を示すことが問題である。公知の例は、黄色に発光するCe-ドープされたYーガーネット(YAG:Ce)及びそれと比べてより長波長で発光する(Y、Gd)ーガーネットである。これは、運転温度が異なる場合に色座標の変動及び色再現の変化を引き起こす。

(イ) 【0005】

【発明が解決しようとする課題】本発明の課題は、運転温度が変化する場合でも高い不変性を特徴とする、光源として請求項1の上位概念に記載の照明ユニットを提供することである。もう一つの課題は、白色に発光しかつ特に高い色再現及び高い効率を有する照明ユニットを提供することである。

(ウ)【0006】

【課題を解決するための手段】前記課題は、請求項1の特徴部により解決される。特に有利な実施態様は、引用形式請求項に記載されている。

【0007】本発明の場合に、LED用の蛍光体として、複数のニトリドベースの蛍光体種類からなる蛍光体が使用される。

【0008】これらは特定の種類のニトリド及びその誘導体のオキシニトリド及びサイアロンである。カチオンM及び窒化ケイ素又はニトリドの誘導体から誘導される蛍光体は、 $430\sim670$ n mのピーク発光の波長で放射し、その際、このカチオンはドーパントD、つまり E u ²⁺又はC e ³⁺により部分的に置き換えられており、カチオンとしてMは二価の金属Ba、Ca、Srの少なくとも1種及び/又は三価の金属Lu、La、Gd、Yの少なくとも1種が使用され、その際、蛍光体は次の種類から由来する:構造MSi₃N₅、M₂Si₄N₇、M₄Si₆N₁₁及びM₉Si₁₁N₂₃のニトリド、構造M₁₆Si₁₅O₆N₃₂のオキシニトリド、構造MSiAl₂O₃N₂、M₁₃Si₁₈Al₁₂O₁₈N₃₆、MSi₅Al₂ON₉及びM₃Si₅AlON₁₀のサイアロン。

(エ) 【0024】さらに、これは特定の種類のサイアロン、つまりタイプMS i AlON: Dの種類である。これらは、二価又は三価のカチオンM"として、金属Ba、Sr、Ca、La、Gd、Lu又はYの少なくとも1種を使用する。このカチオンはドーパントD、つまりEu $^{2+}$ 又はCe $^{3+}$ により部分的に置き換えられている。次の特別な蛍光体が特に有利である:

7. $M' S i A l_2 O_3 N_2 : D$

その際、M' はSr 単独であるか又はBa 及び/又はCa $^{2+}$ と組み合わされている;Ba の割合はC0 M0 1%までであり、Ca の割合はC0 M0 1%までである。

【0025】具体的例はSrSiAl₂O₃N₂: Euである。

【 0 0 2 6 】 8 . $M'_{3}M''_{10}$ S i_{18} A l_{12} O_{18} N_{36} : D その際,M' は S r 単独であるか又は B a 及び/又は C a と組み合わさ

れている; B a の割合はこの場合に50mo1%までであり, C a の割合は20mo1%までである。

 $[0\ 0\ 2\ 8]\ 9.\ M''\ S\ i_{5}Al_{2}ON_{9}: Ce^{3+}$

M'' は L a 単独であるか又は G d 及び/又は L u と組み合わされている; 具体的例は L a A 1_2 S i_5 O N_9 : C e である。

 $[0\ 0\ 2\ 9]\ 1\ 0.\ M''_{3}\ S\ i_{5}\ A\ l\ O\ N_{10}:\ C\ e^{3+}$

M'' は L a 単独であるか又は G d 及び/又は L u と組み合わされている; 有利に M'' は L a $^{3+}$ である。

【0030】具体的例はLa₃Si₅AlON₁₀:Ceである。

【0031】カチオンMの一部を置き換えるドーパントの割合(つまり Euー割合もしくはCeー割合)は、Mーカチオンの0.5~15%、有利に1~10%であるのが好ましく、それにより、発光波長の特に正確な選択を行うことができ、発光効率を最適化することができる。ドーパント含有量が増加すると、一般にピーク発光がより長波長にシフトすることになる。意外にも、カチオンMの濃度を変化させることでもピーク発光の波長がシフトすることが明らかになった。Mーカチオンが比較的低い濃度の場合、Mーカチオンの5~10%に前記ドーパントの割合を選択することによりドーパントによる良好な吸光を得ることができる。

【0032】この新規の光学活性材料は、昼光発光を示す顔料、特に蛍光体として分類することができる。従って、この材料は、顔料として又は光変換系として、たとえばディスプレー、ランプ又はLEDの使用のため、又はその両方の目的のために適していると考えられる。

(オ) 【0033】 E u 活性化されたサイアロンの他の有望な代表物は α ーサイアロンであり、これは式 $M_{p/2}$ S i $_{12-p-q}$ A l $_q$ N_{16-q} : E u^2 $^+$ に従い、前記式中、Mは C a 単独であるか又は金属 S r 又はM g の少

なくとも1種と組み合わされており、qは0~2.5であり、pは0.5~3であり、以後これをGO-サイアロンと表す。

(カ) 【0053】LEDのUV線を用いた励起により有色の光源を発生させる他に、特にこれらの蛍光体を用いて白色光が生じることは有利である。これは、一次光源としてUV発光LEDの場合に少なくとも3種の蛍光体を使用して達成され、一次光源として青色発光LEDの場合には少なくとも2種の蛍光体を使用して達成される。

【0054】良好な色再現を示す白色光は,UV-LED(たとえば300~470nmで一次発光)を2種~3種の蛍光体と組み合わせることにより達成され,前記の蛍光体の中で少なくとも1つは本発明によるニトリド含有蛍光体である。

【0055】ニトリド含有蛍光体の著しい利点は、熱い酸、アルカリに対する優れた安定性並びに熱的及び機械的安定性である。

(キ) 【0056】

【実施例】次に、本発明を複数の実施例を用いて詳細に説明する。

【0057】InGaNーチップを一緒に備えた白色LEDでの使用のために、例えば米国特許第5998925号明細書に記載されたと同様の構造を使用する。この種の白色光のための光源の構造を図1aに例示的に示した。この光源は、第1及び第2の電気接続部2、3を備えた、ピーク発光波長400nmを有するInGaNタイプの半導体デバイス(チップ1)であり、これは光透過性基体容器8中で凹設部9の範囲内に埋め込まれている。接続部3の一方は、ボンディングワイヤ14を介してチップ1と接続されている。この凹設部は壁部7を有し、この壁部7はチップ1の青色一次放射線用のリフレクタとして用いられる。この凹設部9は注入材料5で充填されており、この注入材料5は主成分としてシリコーン注入樹脂(又はエポキシ注入樹脂)(80~90質量%)

及び蛍光体顔料 6 (15質量%未満)を含有する。他のわずかな成分は、特にメチルエーテル又はエアロジル (Aerosil) である。この蛍光体顔料は、赤及び緑に発光する 2種 (又はそれ以上) のニトリド含有顔料からなる混合物である。

【0058】図1bにおいて、半導体デバイス10の一実施態様が示されており、この場合、白色光への変換は変換層16を用いて行われ、この層は米国特許第5813752号明細書に記載されたと同様に個々のチップ上に直接塗布されている。基板11上に接触層12、鏡13、LED14、フィルタ15並びに一次放射により励起可能で、長波長の可視放射へ変換するための蛍光体層16が設けられている。この構造単位はプラスチックレンズ17によって取り囲まれている。2つのオーム抵抗の内で上方のコンタクト18だけが示されている。

【0059】図2では、照明ユニットとしての平板型照明20部分図を示す。この照明ユニットは、長方体の外部ケーシング22を接着した共通の支持体21からなる。その上側は共通のカバー23が設けられている。この長方体のケーシングは空所を有し、その空所内に個々の半導体一構成デバイス24が取り付けられている。これは360nmのピーク発光を示すUV発光ダイオードである。白色光への変換は変換層25を用いて行われ、この変換層は全てのUV放射が当たる面に設けられている。これには、ケーシングの壁部の内部にある表面、カバー及び底部が挙げられる。変換層25は3種の蛍光体からなり、この蛍光体は、本発明による蛍光体を利用して赤色、緑色及び青色のスペクトル領域で発光する。

(ク) 【0060】本発明による蛍光体は表3にまとめられている。これは多様な配位数のサイアロン及びニトリドである。

【0061】図4は,詳細に記載されているニトリド含有蛍光体の典型

的な蛍光領域 (nm) を示す。これらの蛍光体は青から赤までの広いスペクトルをカバーする。

【0062】図3及び4は波長の関数として多様なニトリド含有蛍光体の発光特性及び反射特性を示す。

【0063】詳細には,図3aは390nmによる励起の際のサイアロンSrSiAl₂O₃N₂: Ce³⁺(4%)(つまりカチオンSrに関するCeの割合4mol%)(試験番号TF23A/01)の発光スペクトルを示す。この最大値は青色で466nmであり,平均波長は493nmである。反射率(図3b)は400nmで約R400=60%であり,370nmで約R370=37%である。

【0064】サイアロンTF23A/01の合成を次に例示的に詳細に 説明する。

【0066】個々の成分を良好に混合させた後,この粉末を約1400℃で約15h還元性の雰囲気(N_2/H_2)中で加熱し,かつ反応させて上記の化合物にした。

【0067】図4は400nmによる励起の際のサイアロンSrSiA 1_2 O $_3$ N $_2$: Eu $^{2+}$ (4%) (試験番号TF31A/01) の発光スペクトルを示す。この最大値は緑色で534nmであり、平均波長は553nmである。量子効率QEは43%である。反射率(図4b)は400nmで約R400=31%であり、370nmで約R370=22%である。

【0068】図5は、図3及び4からの青及び緑色に発光するサイアロン並びに公知の赤色発光 α ーサイアロンS r $_2$ S i $_5$ N $_8$: E u(WO 01/39574参照)を使用した、図1 a の実施例による360 n mのピーク発光を示す I n G a N ーチップを用いた一次励起をベースとする白色LEDの発光スペクトルを示す。適当な混合の際に白色点にすぐ近くの x = 0. 331, y = 0. 330 の色座標を示す。

【0069】これは、発光変換LEDに、この場合、他の温度安定性蛍 光体と一緒の蛍光体-混合物に使用するために、ニトリドベースのサイ アロンが特に適していることを示す。

[0070]

【表3】…

[0071]

【表4】…

(3) 甲3発明の認定の誤りの有無について

原告は、甲3の全体を参酌しても、青色LEDの光源と、甲3蛍光体(甲3の請求項1記載の蛍光体)を含む赤及び緑に発光する2種のニトリド含有蛍光体顔料を用いた蛍光体を使用して白色光を得る具体的な構成は記載されていないから、本件審決が甲3に甲3発明が記載されていると認定したのは誤りである旨主張するので、以下において判断する。

ア 甲3の請求項10は、請求項1の記載を引用した請求項6の記載を更に引用した従属項であること(前記(2)ア)からすると、請求項10記載の照明ユニットは、「光源として少なくとも1つのLEDを備えた照明ユニットであって、このLEDは300~570nmの範囲内で一次放射を発し、この放射はLEDの一次放射にさらされる蛍光体によって部分的に又は完全により長波長の放射に変換され、前記の蛍光体の構造はニトリド又はその誘導体に基づく形式のものにおいて、前記の変換は少なくとも1種

の蛍光体を用いて行われ、この蛍光体はカチオンM及び窒化ケイ素又はニトリドの誘導体から誘導され、この蛍光体は430~670 n m でのピーク発光の波長で発光し、その際、カチオンは部分的にドーパントD、つまり E u $^{2+}$ 又はC e $^{3+}$ により置き換えられており、この場合にカチオンMとして二価の金属 B a、C a、S r の少なくとも1種及び/又は三価の金属 L u、L a、G d、Yの少なくとも1種が使用され、この蛍光体は次の種類:構造MSi $_3$ N $_5$ 、M $_2$ S i $_4$ N $_7$ 、M $_4$ S i $_6$ N $_1$ 1及びM $_9$ S i $_{11}$ N $_{23}$ の ニトリド、構造M $_1$ 6 S i $_{15}$ O $_6$ N $_{32}$ のオキシニトリド、構造M S i A l $_2$ O $_3$ N $_2$ 、M $_1$ 3 S i $_{18}$ A l $_{12}$ O $_{18}$ N $_3$ 6 ,M S i $_5$ A l $_2$ O N $_9$ 及びM $_3$ S i $_5$ A l O N $_1$ の サイアロンから由来」(請求項1)し(甲3発明の構成①)、「白色光を発生させるために一次発光された放射が 420~480 n m の波長領域にあり、この一次発光された放射は、変換のために緑(495~540 n m)及び赤(特に540~620 n m)に最大発光を示す少なくとも2種の蛍光体にさらされる」(請求項10)構成を備えていること

そして、請求項10記載の照明ユニットは、「白色光を発生させるために一次発光された放射が420~480nmの波長領域」にあり、この波長域は「青(430~470nm)」(請求項9)を含むことからすると、その光源は青色発光LED(甲3発明の構成⑤)であって、白色光を発生させるために、青色発光LEDと、「緑(495~540nm)」及び「赤(特に540~620nm)」の少なくとも2種の蛍光体を組み合わせて使用していることを理解することができる。

が認められる。

イ 次に、甲3には、白色光を発生させるための蛍光体の組合せに関し、「一次光源としてUV発光LEDの場合に少なくとも3種の蛍光体を使用して達成され、一次光源として青色発光LEDの場合には少なくとも2種の蛍光体を使用して達成される」こと(段落【0053】)、「良好な色再

現を示す白色光は、UV-LED(たとえば300~470nmで一次発光)を2種~3種の蛍光体と組み合わせることにより達成され、前記の蛍光体の中で少なくとも1つは本発明によるニトリド含有蛍光体である」こと(段落【0054】)の記載がある。上記記載は、白色光を発生させるために、一次光源が青色発光LEDの場合には、少なくとも緑色及び赤色の2種の蛍光体を組み合わせて使用し、使用される蛍光体の中の少なくとも1つは、「本発明によるニトリド含有蛍光体」すなわち請求項1記載の蛍光体(甲3蛍光体)である必要があることを示したものといえる。

また、甲3の段落【0057】には、「本発明」の実施例について、「こ の種の白色光のための光源の構造を図1 a に例示的に示した。この光源は、 第1及び第2の電気接続部2,3を備えた,ピーク発光波長400nmを 有する In Ga Nタイプの半導体デバイス (チップ1) であり、…光透過 性基体容器8中で凹設部9の範囲内に埋め込まれている。…この凹設部は 壁部7を有し、この壁部7はチップ1の青色一次放射線用のリフレクタと して用いられる。この凹設部9は注入材料5で充填されており、この注入 材料5は主成分としてシリコーン注入樹脂(又はエポキシ注入樹脂) ○○90質量%)及び蛍光体顔料6(15質量%未満)を含有する。他の わずかな成分は、特にメチルエーテル又はエアロジル (Aerosil) である。 この蛍光体顔料は、赤及び緑に発光する2種(又はそれ以上)のニトリド |含有顔料からなる混合物である。| との記載がある。上記記載は、「ピー ク発光波長400nmを有するInGaNタイプの半導体デバイス(チッ プ1)」すなわち紫色ないしUV発光LEDを用いた光源の構造を例示し、 上記光源と、赤及び緑に発光する2種(又はそれ以上)のニトリド含有顔 料からなる蛍光体顔料が組み合わせて使用されることを説明したものと いえるが,一方で,「凹設部」の「壁部7」は,「チップ1の青色一次放 射線用のリフレクタとして用いられる。」との記載があることに照らすと、

「青色一次放射線用」すなわち青色発光LED用の光源についても、上記 光源と同様の構造を有し、同様の蛍光体顔料を組み合わせて使用されるこ とを示唆するものといえる。

上記各記載事項を総合すると、甲3には、「本発明によるニトリド含有 蛍光体」すなわち請求項1記載の蛍光体(甲3蛍光体)は、一次光源が青 色発光LED又はUV発光LEDのいずれの場合にも使用されることに ついての開示があるものと認められる。

そして,甲3には,「本発明による蛍光体」(段落【0060】)あるいは「ニトリド含有蛍光体」(段落【0061】。判決注・同段落の「図4」は「表4」の誤記と認める。)の具体例として,赤に発光するSi/ A1-N-ベースのニトリド含有蛍光体である,組成が「 Sr_2Si_4A1 $ON_7: Eu^{2+}$ 」で発光領域が625~640nmの蛍光体(表4)が挙げられ,緑に発光するSi/A1-N-ベースのニトリド含有蛍光体である,組成が「 $SrSiA1_2O_3N_2: Eu^{2+}$ 」で Max. Em.が497の蛍光体(表3),組成が「Max Max M

そうすると、甲3には、光源が青色発光LEDである請求項10記載の照明ユニットにおいて、白色光を発生させるために、赤に発光するニトリド含有蛍光体として、組成が「 $Sr_2Si_4A1ON_7:Eu^{2+}$ 」で発光領域が625~640nmの蛍光体と、緑に発光するニトリド含有蛍光体として、組成が「 $SrSiAl_2O_3N_2:Eu^{2+}$ 」で Max. Em.が497の蛍光体(表3)、組成が「 $SrSiAl_2O_3N_2:Eu^{2+}$ 」で発光領域が495~515nmの蛍光体(表4)又は組成が「 $SrSiAl_2O_3N_2:Eu^{2+}$ 」で発光領域が4

3発明の構成④)についての開示があるものと認められる。

加えて、甲3の段落【0054】及び【0057】の上記記載によれば、甲3には、光源が青色発光LEDである請求項10記載の照明ユニットにおいては、「前記LEDの白色LEDでの使用のために、主成分としてシリコーン注入樹脂(又はエポキシ注入樹脂)及び赤及び緑に発光する2種のニトリド含有顔料を含有し、他のわずかな成分は、特にメチルエーテル又はエアロジル(Aerosil)である、凹設部に充填された注入材料を備え」との構成(甲3発明の構成②)及び「白色光を達成するために一緒に用いる赤及び緑に発光する2種のニトリド含有顔料としてSi/Al-Nーベースの蛍光体を使用でき、その中で少なくとも1つは前記少なくとも1種の蛍光体」の構成(甲3発明の構成③)を備えることができることについての開示があるものと認められる。

- ウ 前記ア及びイによれば、甲3には、甲3発明の構成①ないし⑤を有する 照明ユニットの開示があるものと認められるから、本件審決における甲3 発明の認定に誤りはない。
- エ これに対し原告は、①甲3には、請求項1に記載された特定の蛍光体(甲3蛍光体)を青色発光光源と組み合わせて照明ユニットに使用できることについての記載がない、②甲3の段落【0057】には、図1aの光源を用いた実施例について、「壁部7はチップ1の青色一次放射線用のリフレクタとして用いられる。」及び「この蛍光体顔料は、赤及び緑に発光する2種(又はそれ以上)のニトリド含有顔料からなる混合物である。」との記載があり、上記記載は、光源が青色に発光することを前提とした記載であるといえるが、一方で、同段落には、「この光源は、…ピーク発光波長400nmを有するInGaNタイプの半導体デバイス(チップ1)」との記載があり、「ピーク発光波長400nm」の半導体デバイスは青色に発光するものといえないから、上記各記載は整合せず、段落【0057】

の記載は、極めて不明瞭な記載であって、同段落の記載から、青色LEDの光源と、赤及び緑に発光する2種のニトリド含有蛍光体顔料からなる組合せが記載されていると認定することはできない、③甲3の表3及び表4に挙げられた蛍光体は、光源のピーク発光波長が紫外光あるいは紫色光(例えば、図1aに基づく実施例では光源のピーク発光波長400nm、図2に基づく実施例では光源のピーク発光波長360nm)である、紫外光又は紫色光用の蛍光体と解され、青色光源用の蛍光体ではない、④本件出願の優先日当時、青色LEDと組み合わせる優れた赤色蛍光体としては、 M_2 Si $_5$ N $_8$: Eu 2 + (M=Ca, Sr, Ba) しか知られていなかったから、甲3の表4記載の赤色蛍光体であるSr $_2$ Si $_4$ AlON $_7$: Eu 2 +は、青色LED用ではなく、紫外光又は紫色光用と解するほかないし、実際にも、Sr $_2$ Si $_4$ AlON $_7$: Eu 2 +は、青色LED用ではなく、紫外光又は紫色光用と解するほかないし、実際にも、Sr $_2$ Si $_4$ AlON $_7$: Eu 2 +は、青色光で励起可能なものではないなどとして、甲3には、光源が青色発光LEDであること及びこれを前提とした甲3発明の構成①ないし⑤の記載がないから、本件審決における甲3発明の認定は誤りである旨主張する。

しかしながら、前記イで説示したとおり、甲3には、「本発明によるニトリド含有蛍光体」すなわち請求項1記載の蛍光体(甲3蛍光体)は、一次光源が青色発光LED又はUV発光LEDのいずれの場合にも使用されることについての開示があり、また、光源が青色発光LEDである請求項10記載の照明ユニットにおいて、白色光を発生させるために、甲3蛍光体を含む赤及び緑に発光する2種のニトリド含有蛍光体顔料からなる組合せが記載されているものと認められる。

また、 $Sr_2Si_4AlON_7: Eu^{2+}$ は、青色光で励起可能なものではないことを認めるに足りる証拠はない。

したがって,原告の上記主張は,その前提を欠くものであり,採用する ことができない。 (4) 本件訂正発明と甲3発明の一致点の認定等の誤りの有無について

原告は、①本件審決がした甲3発明の認定は誤りであるから、本件審決がした本件訂正発明と甲3発明との一致点の認定及び相違点の認定も当然に誤りである、②本件訂正発明は、青色発光素子の放つ光の波長よりも短波長領域に励起ピークを有する蛍光体において、Eu²+又はCe³+で付活された蛍光体であって、青色発光素子の発光領域において内部量子効率が高い(赤色蛍光体は80%以上)ものは、青色発光素子と組み合わせて、高い光束と高い演色性を両立する白色発光装置を提供できることを特徴とするものであり、本件審決の認定した相違点1ないし相違点6は相互に密接に関連するにもかかわらず、本件審決が各相違点を分断して認定したのは誤りである旨主張する。

しかしながら、前記(3)認定のとおり、本件審決がした甲3発明の認定に 誤りはないから、上記①の点は理由がない。

また、相違点1ないし相違点6は相互に密接に関連するといえるとしても、そのことから直ちにこれらをひとまとまりの相違点として認定すべきものであるということはできないし、上記のとおり、本件審決における甲3発明の認定に誤りはなく、各相違点の認定に誤りがあるものと認めることもできないから、上記②の点は理由がない。

したがって、原告の上記主張は理由がない。

(5) 小括

以上のとおり、本件審決における甲3発明の認定、本件訂正発明と甲3発明の一致点の認定及び相違点の認定に誤りはないから、原告主張の取消事由 1は理由がない。

- 2 取消事由2(相違点の判断の誤り)について
 - (1) 相違点1の判断の誤りの有無について

原告は、本件審決が、相違点1に関し、緑に発光するSi/Al-N-ベ

ースのニトリド含有蛍光体として「甲3蛍光体」を選択した上で、赤に発光するSi/A1 -N -ベースのニトリド含有蛍光体として、①甲13に記載された $M_{p/2}$ Si $_{12-p-q}$ A1 $_{p+q}$ O $_{q}$ N $_{16-q}$: E u $^{2+}$ の組成の「黄色ーオレンジ色(GO)発光する蛍光体(発光:5 4 0 \sim 6 2 0 n m)」、ないしは、②甲3の組成が「S r_{2} S i $_{4}$ A 1 O N_{7} : E u $^{2+}$ 」の「S r 」の少なくとも一部を「C a 」や「B a 」に置換したニトリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体を採用すること、すなわち、「S r_{2} S i $_{4}$ A 1 O N_{7} : E u $^{2+}$ 」以外の組成のニトリドアルミノシリケート系の蛍光体を採用することにも格別の困難性はないとして、甲3発明において、相違点1に係る本件訂正発明の構成を採用することに格別の困難性はない旨判断したのは誤りである旨主張するので、以下において判断する。

ア 甲13記載の蛍光体(上記①) との組合せについて

原告は,甲13に記載された $M_{p/2}$ Si $_{12-p-q}$ A 1_{p+q} O $_{q}$ N $_{16-q}$: Eu $^{2+}$ の組成の「黄色-オレンジ色(GO)発光する蛍光体(発光:540~620nm)」は,「赤色蛍光体」とはいえないし,また, α -サイアロンであって,「ニトリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体」に含まれず,相違点1に係る本件訂正発明の構成に相当するものではないから,甲13記載の蛍光体を組み合わせることを前提に,甲3発明において相違点1に係る本件訂正発明の構成を採用することに格別の困難性はないとした本件審決の判断は誤りである旨主張する。

そこで検討するに、甲13には、①請求項1に「光源として少なくとも 1つのLEDを備え、このLEDが300~485 n mの領域内の一次放 射を発光し、このLEDの一次放射にさらされる蛍光体によって、この放 射は部分的に又は完全に長波長の放射に変換される照明ユニットにおいて、 この変換が少なくとも、540~620 n m のピーク発光の波長を有する 黄ーオレンジに発光しかつE u ー活性化されたサイアロンの種類に由来す る蛍光体を用いて行われ、前記のサイアロンは式 $M_{p/2}$ Si $_{12-p-q}$ Al $_{p+q}$ O $_q$ N $_{16-q}$: Eu $^{2+}$ で表され、前記式中、MはCa単独又は金属Sr又はMgの少なくとも1つと組み合わせたCaを表し、qは0~2.5であり、pは0.5~3であることを特徴とする、光源として少なくとも1つのLEDを備えた照明ユニット。」と記載され、②段落【0011】に「良好な色再現性を有する白色光は、青色LED(例えば450~485 nmでの一次発光)、緑色蛍光体(490~525 nmの発光)及び黄色ーオレンジ色(GO)発光する蛍光体(発光:540~620 nm)との組み合わせによっても達成される。」との記載がある。上記記載中の「540~620 nmのピーク発光の波長を有する黄ーオレンジに発光しかつEuー活性化されたサイアロンの種類に由来する蛍光体」(請求項1)のピーク発光波長は、本件訂正発明の「600 nm以上660 nm未満の波長領域」に発光ピークを有する「赤色蛍光体」のピーク発光波長と一部重複するが、甲13では、「黄色ーオレンジ色(GO)発光する蛍光体」として記載されている。

また、甲13には、「実施例」として、段落【0022】、【0023】、【0027】、【0028】及び表1(別紙3参照)に組成の異なる複数の具体的な蛍光体が列挙されているが、その発光スペクトルの最大値(ピーク発光波長)(「Max.Em」)は、いずれも512nmから594nmまでの間にあり、本件訂正発明の「600nm以上660nm未満の波長領域」に発光ピークを有する「赤色蛍光体」であるということはできない。他に甲13には「600nm以上660nm未満の波長領域」に発光ピークを有する「赤色蛍光体」の具体的な記載はない。

そうすると、甲3発明に甲13記載の蛍光体を採用することにより、相 違点1に係る本件訂正発明の構成に容易に想到し得るということはできな いから、これと異なる本件審決の判断には誤りがある。 イ 「 $Sr_2Si_4AlON_7:Eu^{2+}$ 」の「Sr」の少なくとも一部を置換したニトリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体(上記②)との組合せについて

次に,原告は,本件審決は,「Sr」の少なくとも一部を「Ba」や「Ca」に置換した蛍光体もニトリドシリケート系の窒化物蛍光体として知られていたから,甲3記載の「 $Sr_2Si_4A1ON_7:Eu^{2+}$ 」の「Sr」の少なくとも一部を「Ca」や「Ba」に置換したニトリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体の構成とすることに格別の困難がないとして,甲3発明において相違点1に係る本件訂正発明の構成を採用することに格別の困難性はない旨判断したが,「Sr」の少なくとも一部を「Ba」や「Ca」に置換した蛍光体がニトリドシリケート系の窒化物蛍光体として知られていたものとはいえないし,また,「 $Sr_2Si_4A1ON_7:Eu^2$ +」においては,「Sr」の少なくとも一部を「Ba」や「Ca」に置換することに阻害要因があるから,本件審決の上記判断は誤りである旨主張する。

(ア) 甲3の記載事項について

甲3には、①請求項1において、「カチオンMとして二価の金属Ba、Ca、Srの少なくとも1種及び/又は三価の金属Lu、La、Gd、Yの少なくとも1種が使用され、」、②段落【0007】及び【0008】に「本発明の場合に、LED用の蛍光体として、複数のニトリドベースの蛍光体種類からなる蛍光体が使用される。」、「これらは特定の種類のニトリド及びその誘導体のオキシニトリド及びサイアロンである。…カチオンMとして二価の金属Ba、Ca、Srの少なくとも1種及び/又は三価の金属Lu、La、Gd、Yの少なくとも1種が使用され、」、③段落【0033】に「Eu活性化されたサイアロンの他の有望な代表物は α -サイアロンであり、これは式 $M_{N/2}$ Si_{12-N-2}Al₂N₁₆₋₂:

E u $^{2+}$ に従い,前記式中,MはC a 単独であるか又は金属S r 又はM g の少なくとも 1 種と組み合わされており, q は $0 \sim 2$. 5 であり, p は 0. $5 \sim 3$ であり,以後これをGO ーサイアロンと表す。」(判決注・「式 $M_{p/2}$ S i $_{12-p-q}$ A l $_q$ N $_{16-q}$: E u $^{2+}$ 」は「式 $M_{p/2}$ S i $_{12-p-q}$ A l $_q$ N $_{16-q}$: E u $^{2+}$ 」は「式 $M_{p/2}$ S i $_{12-p-q}$ A l $_q$ N $_{16-q}$: E u $^{2+}$ 」の誤記と認める。)との記載がある。上記記載は,甲 3 発明に使用される蛍光体組成物におけるカチオンとして S r , B a , C a , M g の うち 1 種を単独で,又は数種を混合して用いることができることを示唆するものと認められる。

(イ) 周知技術について

a 甲5 (特開2003-277746号公報) には、次のような記載 がある(下記記載中に引用する表5については別紙4を参照)。

【0001】本発明は、蛍光表示管、ディスプレイ、PDP、CRT、FL、FED及び投写管等、特に、青色発光ダイオード又は紫外発光ダイオードを光源とする発光特性に極めて優れた白色の発光装置等に使用される窒化物蛍光体及びその製造方法等に関する。また、本願発明に係る窒化物蛍光体を有する白色の発光装置は、店頭のディスプレイ用の照明、医療現場用の照明などの蛍光ランプに使用することができる他、携帯電話のバックライト、発光ダイオード(LED)の分野などにも応用することができる。

【0003】青色発光ダイオードを光源に用いた白色に発光する蛍光体として、国際公開番号01/40403 (…)が、すでに知られている。この蛍光体は、 $M_XSi_YN_Z$: Eu (Mは、Ca、Sr、Ba、Znのグループからなるアルカリ土類金属を少なくとも1つ以上含有する。 Zは、Z=2/3X+4/3 Yで表される)で表される組成を有する蛍光体である。この蛍光体は、可視光領域における $250\sim4$ 50nmの短波長を吸収し、 $450\sim500$ nm以上の波長で強く反

射する。従って,この蛍光体は,可視光の藍色,青色から青緑色の短波長を吸収するため,緑色,黄色,赤色などの波長側で,強く反射する。この特性を利用して,たとえば青色発光ダイオードと組み合わせることにより,やや赤みを帯びた白色光が得られるという性質を持つ。【0060】<実施例8及び9>実施例8は,蛍光体 $Sr_{1...97}Eu_{0...03}Si_5N_8$ である。原料の配合比率は,窒化カルシウム Sr_3N_2 :窒化ケイ素 Si_3N_4 :酸化ユウロピウム Eu_2O_3 =1...97:5:0.03である。この3化合物原料を,BNるつぼに入れ,管状炉で, $800\sim1000$ ℃で3時間焼成し,その後, $1250\sim1350$ ℃で5時間焼成を行い,5時間かけて室温まで,徐々に冷却を行った。アンモニアガスは,11/minの割合で,終始流し続けた。この結果,体色がピンク,365nmの光照射を行うと,肉眼でピンクに発光している窒化物蛍光体が得られた。実施例80窒化物蛍光体の200℃における温度特性は,87.7%と極めて高い温度特性を示している。表5は,本発明に係る窒化物蛍光体の実施例8及び9を示す。

【0063】実施例9は,蛍光体 $Sr_{1..4}Ca_{0..6}Si_5N_8$: Euである。実施例9は,実施例8と同様の焼成条件で焼成を行った。図10は,実施例9を,Ex=460nmで励起したときの発光スペクトルを示す図である。図10から明らかなように,Ex=460nmの発光スペクトルの光を照射したところ,II 価のSr を単独で用いたときよりも,Sr とCa を組み合わせたときの方が,長波長側にシフトした。発光スペクトルのピークは,655 nmである。これにより,青色発光素子と実施例9の蛍光体とを組み合わせると赤みを帯びた白色に発光する蛍光体を得ることができる。また,実施例9の蛍光体 $Sr_{1..4}Ca_{0..6}Si_5N_8$: Eu の量子効率は,86..7%と,良好である。

b 甲40 (特表2003-515655号公報) には,次のような記載がある(下記記載中に引用する第2表については別紙5を参照)。

【請求項1】 一次光源の放射線を少なくとも部分的に変換する黄色から赤色を放射する蛍光体を用いる光源において、前記蛍光体がニトリドシリケートタイプ M_x Si $_y$ N $_z$: Eu [ここで、MはCa、Sr、Ba、Znの群から選択される少なくとも1つのアルカリ土類金属であり、かつz=2/3x+4/3yである]のホスト格子を有することを特徴とする、黄色から赤色を放射する蛍光体を用いる光源。

【請求項4】 Mがストロンチウムである,請求項1記載の光源。【請求項5】 Mが前記群の少なくとも2つの金属の混合物である,請求項1記載の光源。

[0009]

詳細には、黄色から赤色を放射する蛍光体を用いる新しい光源は、ニトリドシリケートタイプ M_x Si $_y$ N $_z$: Eu [ここで、MはCa、Sr、Baの群から選択される少なくとも1つのアルカリ土類金属でありかつ z=2/3 x+4/3 y である]のホスト格子を使用する。窒素の組み込みは、共有結合及び配位子場分裂の割合を増大させる。結果として、これは酸化物格子と比較してより長波長に励起及び放射バンドの著しいシフトをもたらす。

【0010】好ましくは、蛍光体はx=2及びy=5であるタイプのものである。好ましい別の実施態様において、蛍光体はx=1及びy=7であるタイプのものである。

[0011]

好ましくは、蛍光体中の金属Mはストロンチウムである、それというのも、生じる蛍光体が、黄色から赤色の相対的に短い波長を放射しているからである。こうして、効率は他の選択された金属Mの大部分と

比較してかなり高い。

[0012]

別の実施態様において、蛍光体は成分Mとして異なる金属の混合物、例えばCa(10原子%)をBa(バランス)と一緒に、使用する。

[0036]

第2表からは、純粋なCa 試料がSr 試料ほど有利でないことが引き出されうる。Sr-Ca 化合物が、純粋なSr 化合物のそれよりも大きい放射波長を有することは意外である。

c 前記 a 及び b の各記載によれば、本件出願の優先日当時、ニトリドシリケート系蛍光体組成物における S r カチオンの一部を、 C a や B a などと混合して用いる構成は、 周知であったものと認められる。

(ウ) 相違点の容易想到性について

前記(ア)及び(イ)によれば、甲3に接した当業者は、甲3発明に使用される蛍光体組成物におけるカチオンとしてSr,Ba,Ca,Mgのうち1種を単独で、又は数種を混合して用いることができることを理解し、「白色に発光しかつ特に高い色再現及び高い効率を有する照明ユニット」(段落【0005】)を得るために、甲3発明において、赤に発光するSi/A1-N-ベースのニトリド含有蛍光体として選択肢に挙げられた、組成がSr₂Si₄A1ON $_7$: Eu $^{2+}$ で発光領域が625~640nmの蛍光体について、そのSrの少なくとも一部をBaやCaに置換することを試みる動機付けがあるものと認められるから、上記置換をした「Eu $^{2+}$ で付活され、かつ、600nm以上660nm未満の波長領域に発光ピークを有するニトリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体(ただし、Sr $_2$ Si $_4$ А1ON $_7$: Eu $^{2+}$ を除く)」である「赤色蛍光体」(相違点1に係る本件訂正発明の構成)を採用することを容易に想到することができたものと認められる。

(エ) 原告の主張について

これに沿うように甲38(Aの見解書)には、本件出願の優先日当時の専門家の常識的な理解は、 $Sr_2Si_4AlON_7:Eu^{2+}$ のSrをCaに置換すると、その発光は長波長領域に少なくとも30nm以上、おそらく50nm程度はシフトした近赤外発光となると考えられる旨の記載がある。

しかしながら、甲3には、 $Sr_2Si_4A1ON_7:Eu^2+oSr$ をCa又はBaに置換した場合の発光波長の変化に関する具体的な記載はないのみならず、ニトリドアルミノシリケート系の蛍光体組成物におけるSro一部のみをCa又はBaに置換した場合の発光波長の変化に係るデータの記載もない。また、甲38にも、Sro少なくとも一部を置換した場合における発光波長の変化の程度について、具体的なデータ等に

基づいて言及した記載はない。

そして、カチオンS r をC a に置換した場合の発光波長の変化については、蛍光体の具体的な組成や置換の割合等に応じて様々であると考えられるから、「S r $_2$ S i $_4$ A 1 O N $_7$: E u $^{2+}$ $_1$ の「S r $_1$ の少なくとも一部を「B a $_1$ や「C a $_2$ に置換した場合に、当然に発光スペクトルが 5 0 n m 程度長波長となるということはできず、上記置換をすることに阻害要因があるということはできない。

したがって、原告の上記主張は採用することができない。

ウ 小括

以上によれば、当業者は、甲3発明において、 $Sr_2Si_4A1ON_7$: Eu^2+ 蛍光体のSrの少なくとも一部をBaやCaに置換したニトリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体である赤色蛍光体を採用することを容易に想到することができたものと認められるから、本件審決における相違点1の容易想到性の判断に誤りはない。

(2) 相違点5の判断の誤りの有無について

ア 原告は、相違点5に関し、照明ユニットにおいて効率を高めるために、 製造条件の最適化等により内部量子効率ができるだけ高められた蛍光体を 用いることは、当業者の通常の創作能力の発揮の範囲内のことであり、甲 3発明において、蛍光体の内部量子効率がどの程度以上の蛍光体を用いる かは設計事項にすぎないとした本件審決の判断は誤りである旨主張する。

そこで検討するに、甲5の段落【0012】に「窒化物蛍光体中は、… 基本構成元素の他に、原料中に含まれる不純物も残存する。例えば、Co、 Mo、Ni、Cu、Feなどである。これらの不純物は、発光輝度を低下 させたり、賦活剤の活用を阻害したりする原因にもなるため、できるだけ 系外に除去することが好ましい。」、段落【0035】に「原料のII価 のLも、酸化されやすい。…このOは、不純物となり、発光劣化を引き起 こすため、極力、系外へ除去することが好ましい。…」との記載などに鑑みると、本件出願の優先日当時、照明ユニットにおいて発光効率を高めるために、不純物の除去等の製造条件の最適化等により、蛍光体の内部量子効率をできるだけ高めることは、当業者の技術常識であったことが認められる。

しかしながら、他方で、不純物の除去等の製造条件の最適化等により、 蛍光体の内部量子効率を高めることについても、自ずと限界があることは 自明であり、出発点となる内部量子効率の数値が低ければ、上記の最適化 等により内部量子効率を80%以上とすることは困難であり、内部量子効 率を80%以上とすることができるかどうかは、出発点となる内部量子効 率の数値にも大きく依存するものと考えられる。

しかるところ,甲3には,量子効率に関し,別紙2の表3に3種の化合物の「量子効率(QE)」が「29」%,「51」%,「30」%であること,段落【0067】に,「サイアロンSrSiA1 $_2$ О $_3$ N $_2$: E u $^{2+}$ (4%)(試験番号TF31A/01)」について「量子効率QEは43%」であることの記載があるだけであり,これ以外には,量子効率,外部量子効率又は内部量子効率について述べた記載はないし,別紙2の表4記載の赤色蛍光体である「Sr $_2$ Si $_4$ А1ON $_7$: E u $^{2+}$ 」の内部量子効率についての記載もない。また,甲3には,「Sr $_2$ Si $_4$ А1ON $_7$: E u $^{2+}$ 」の「Sr $_2$ 」を「Сa」又は「Ba」に置換した蛍光体の内部量子効率についての記載もない。

このほか,別紙 2 の表 4 記載の赤色蛍光体である「 $Sr_2Si_4A1ON_7$: Eu^{2+} 」, さらには「 $Sr_2Si_4A1ON_7$: Eu^{2+} 」の「 Sr_2 」を「Ca」又は「Ba」に置換した蛍光体の内部量子効率がどの程度であるのかをうかがわせる証拠はない。

以上によれば、甲3に接した当業者は、甲3発明において、Sr $_2$ Si $_4$

 $A 1 O N_7 : E u^2 +$ 蛍光体のS r の少なくとも一部をB a やC a に置換したニトリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体を採用した上で, さらに, 青色発光素子が放つ光励起下におけるその内部量子効率を8 0 %以上とする構成(相違点5 に係る本件訂正発明の構成)を容易に想到することができたものと認めることはできない。

したがって、本件審決における本件訂正発明と甲3発明の相違点5の容易想到性の判断には誤りがある。

イ これに対し被告は、内部量子効率が高いことが望ましいことは、本件出願の優先日前の技術常識であったから、内部量子効率ができるだけ高められた蛍光体を用いることは、当業者の通常の創作能力の発揮の範囲内のことである、本件出願の優先日前において、「ニトリドシリケート系の窒化物蛍光体」(αーサイアロン蛍光体を含む。)の内部量子効率が80%以上のものを製造できる可能性を、技術常識に基づいて想定できたものといえるなどとして、内部量子効率がどの程度以上の蛍光体を用いるかは、目標とする効率や蛍光体の入手・製造の容易性などを勘案して、当業者が適宜設定すべき設計事項にすぎないから、当業者は、甲3発明において、相違点5に係る本件訂正発明の構成を採用することを容易に想到することができた旨主張する。

しかしながら,一般論として,本件出願の優先日前において,青色発光素子が放つ光励起下における「ニトリドシリケート系の窒化物蛍光体」(α ーサイアロン蛍光体を含む。)の内部量子効率が80%以上のものを製造できる可能性を技術常識に基づいて想定できたとしても,甲3に接した当業者が,甲3の記載事項を出発点として,甲3発明において, $\mathrm{Sr}_2\mathrm{Si}_4$ Alon_7 : Eu^2 +蛍光体の Sr の少なくとも一部を Ba や Ca に置換したニトリドアルミノシリケート系の窒化物蛍光体を採用した上で,さらに,青色発光素子が放つ光励起下におけるその内部量子効率を80%以上とす

る構成に容易に想到することができたかどうかは別問題であり、被告の上記主張は、甲3の具体的な記載事項を踏まえたものではないから、採用することができない。

(3) 小括

以上のとおり、本件審決には、本件訂正発明と甲3発明の相違点5の容易 想到性の判断に誤りがあるから、その余の相違点について判断するまでもな く、本件訂正発明は、甲3に記載された発明(甲3発明)、甲3に記載され た事項及び甲13に記載された事項又は周知の技術事項に基づいて容易に 発明をすることができたものであるとした本件審決の判断は誤りである。

したがって、原告主張の取消事由2は理由がある。

3 結論

以上のとおり、原告主張の取消事由1は理由がないが、取消事由2は理由が あるから、その余の取消事由について判断するまでもなく、本件審決は取消し を免れない。

よって,原告の請求を認容することとし,主文のとおり判決する。

知的財產高等裁判所第3部

裁判長裁判官 大鷹 一郎

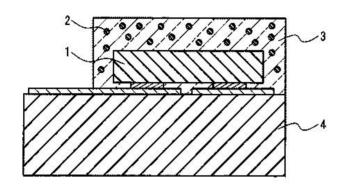
裁判官 田中正哉

裁判官 神 谷 厚 毅

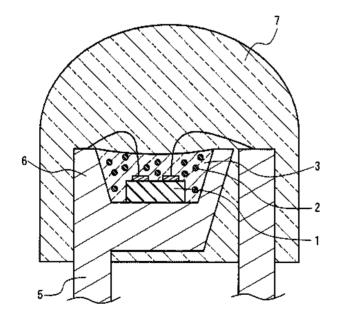
(別紙1)

本件訂正明細書の図面

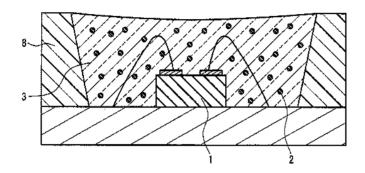
【図1】



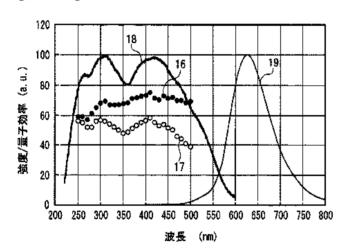
【図2】



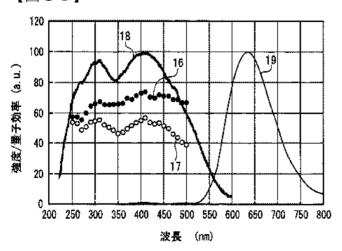
【図3】

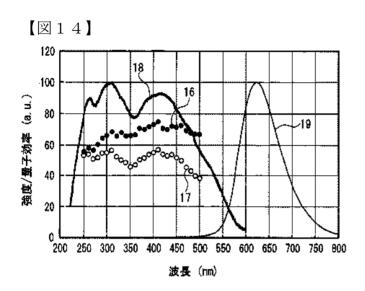


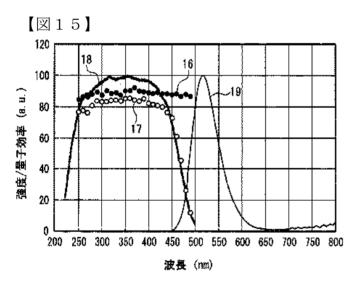
【図12】

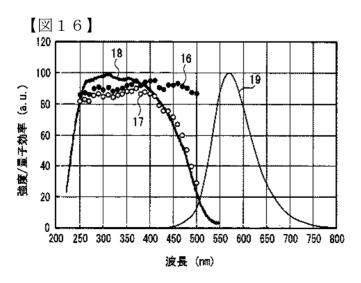


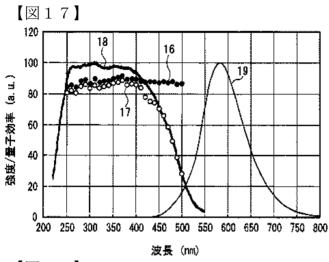
【図13】

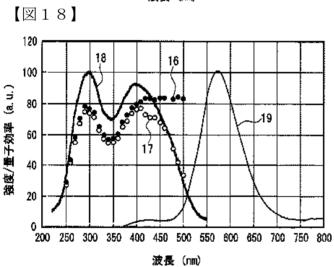


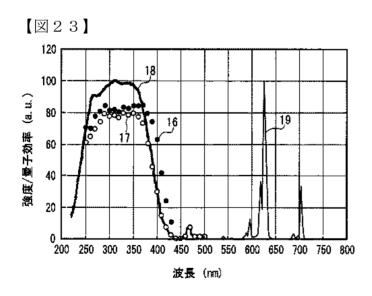








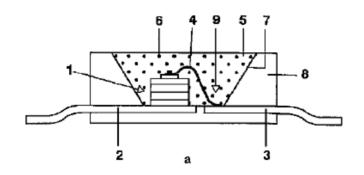


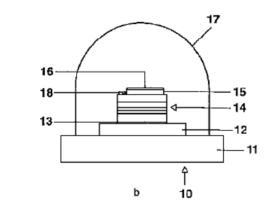


(別紙2)

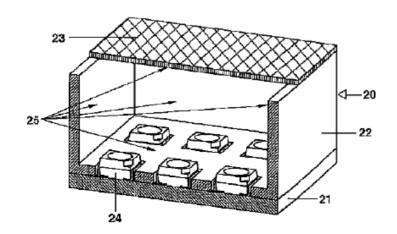
甲3の図面及び表

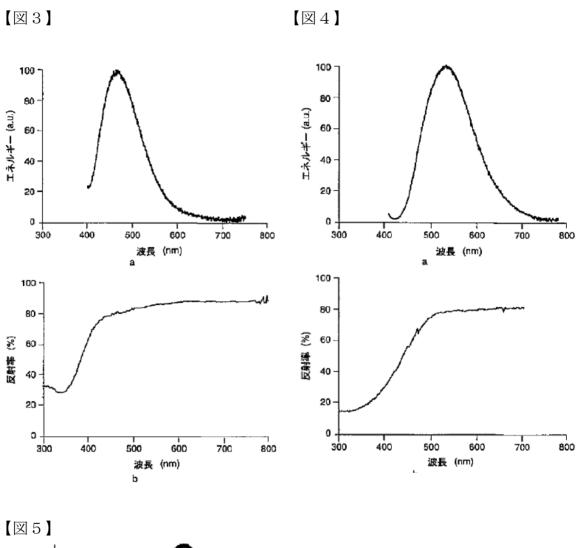
【図1】

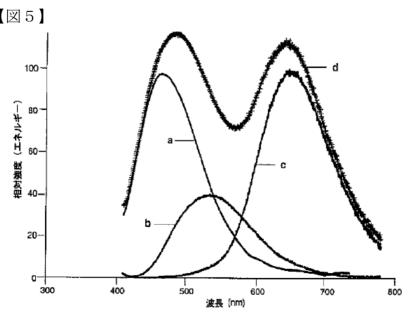




【図2】







【表3】

化合物	QE	R360	R400	Max. Em,	x	у
SrSiAl2O3N2;Ce3+	29	30	60	466	0,182	0,232
SrSiAl2O3N2:Eu2+	51	25	42	497	0,304	0,432
La3Si6N11;Ce3+	30	13	39	4 51	0,157	0,145

【表4】

蛍光体	ドット (カチオン のmol%)	発光領域
SrSiAl ₂ O ₃ N ₂ ; Eu ²⁺	2 ~ 10	495 ~ 515 nm
CaSiAl ₂ O ₃ N ₂ : Eu ²⁺	2 ~ 6	550 ~ 570 nm
SrSIAI2O3N2: Ce3+	2 ~ 6	455 ~ 480 nm
SrSiAl ₂ O ₃ N ₂ ; Eu ²⁺	1 ~ 5	490 ~ 510 nm
CaSi6AlON9:Eu²'	3 ∼ 6	570 ~ 595 nm
La ₃ Si ₆ N ₁₁ :Ce3+	2 ~ 5	435 ~ 452 nm
Sr ₂ Si ₄ AlON ₇ :Eu ²⁺	2 ~ 4	625 ~ 640 nm

(別紙3)

甲 1 3 の 表

【表1】

化合物	省略形	QE	R370	R400	R460	Max. Em.	x	у
Ca1.5Al3Si9N16:Eu2+ (2%)	HU13/01	79		51	64	580	0,498	0,490
Ca1.5Al3Si9N16:Eu2+ (4%)	HU14/01	76		40	54	588	0,515	0,477
Ca1.5Al3Si9N16:Eu2+ (4%)	HU16/01	75		41	57	583	0,510	0,481
Ca1.5Al3Si9N16:Eu2+ (6%)	HU33/01	76		39	54	587	0,518	0,474
Ca1.5Al3Si9N16:Eu2+ (8%)	HU34/01	70		36	48	588	0,525	0,468
CaAl2Si10N16:Eu2+ (6%)	HU54/01	81	56	57	71	576	0,479	0,504
CaSr0.5At3Si9N16:Eu2+ (4%)	HU15/01	70		36	50	588	0,508	0,479
Ca1,5Al3.5Si8.5O0.5N15,5:Eu2+ (4%)	HU56/01	64	55	55	67	582	0,488	0,496
Ca1.5Al2.7Ga0.3Sl9N16:Eu2+ (8%)	TF39/01	43	16	18	30	594	0,530	0,463
Sr1.5Al3Si9N16:Eu2+ (4%)	HU19/01	41	44	49	62	512	0,307	0,509

(別紙4)

甲 5 の 表

【表5】

			結果					
	基本構成元素	原料混合比	焼成パターン	雰囲気	形状	原料(g)	体色	目視発光 (365nm)
実施例8	Sr _{1,97} Si ₅ N ₈ :Eu _{8,93}	Sr/Si/Eu =1.97/5/0.03	2段階 800~1900°C×3h、 1250~1350°C×5h	NH ₃	BNるつぼ	4,47	ビンク	ピンク
実施例9	Sr _{1.4} Ca _{0.6} Si ₅ N ₆ :Eu	Sr/Ga/Si/Eu =1.26/0.54/5/0.2	2段階 800~1000°C×3h、 1250~1350°C×5h	NH ₃	BNるつぼ	8.8	濃橙色	赤橙色

		温度特性				
	色調 X	色調y	輝度 (%)	エネルギー 効率 (%)	置子効率 (%)	200°C
実施例8	0.625	0.373	58.4	62.4	62.9	87.7
実施例9	0.663	0.336	35.5	81.3	86.7	92.3

(別紙5)

甲 4 0 の 表

【表 3 】 第 2 表:(Ca,Sr)₂Si₅N₅:Eu²+ 試料の光学的データ

コード	Ca/Sr	Eu ²⁺ (%)	放射 極大 (nm)	反射 400 (%)	反射 460 (%)	QE (%)	x	у
EC/HU 31/00	Ca	10	619	12	19	26	0.600	0.396
EC/HU 42/00	Ca	1	603	47	58	37	0.555	0.435
EC/HU 41/00	Ca0.4 Sri.4	10	660	17	22	59	0.636	0.,354
EC/HU 62/00	Sr	1	609	5 3	58	70	0.602	0.393
EC/Hu 63/00	Sr	2	618	43	48	73	0.615	0.381
EC/Hu 64/00	Sr	3	621	36	41	72	0.622	0.374
EC/Hu 65/00	Sr	5	624	26	32	67	0.632	0.365
EC/HU 66/00	Sr	8	636	21	26	67	0.641	0.356
EC/HU 67/00	Sr	10	644	17	22	64	0.642	0.354