

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

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
14. Oktober 2004 (14.10.2004)

PCT

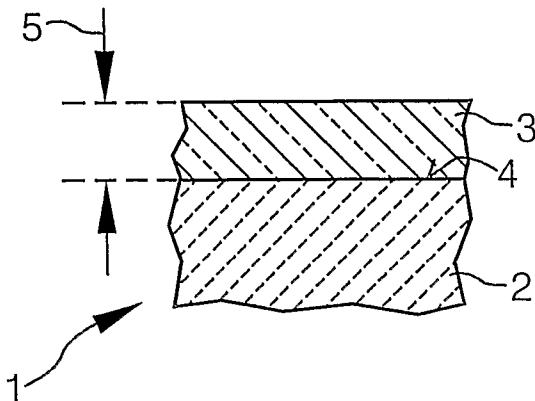
(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 2004/087831 A1

- (51) Internationale Patentklassifikation⁷: **C09K 11/08** (71) **Anmelder** (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): **OSRAM OPTO SEMICONDUCTORS GMBH** [DE/DE]; Wernerwerkstr. 2, 93040 Regensburg (DE).
- (21) Internationales Aktenzeichen: PCT/DE2004/000632
- (22) Internationales Anmeldedatum:
26. März 2004 (26.03.2004) (72) **Erfinder; und**
- (25) Einreichungssprache: Deutsch (75) **Erfinder/Anmelder** (nur für US): **GRAMPEIX, Helen** [FR/FR]; 39 la ribiere, F-23000 Saint Sulpice le Guere-tois (FR). **KOBUSCH, Manfred** [DE/DE]; Rudolf-Zorn-Str. 4, 81739 München (DE). **LIEPOLD, Ute** [DE/DE]; Mathilde-Boyen-Str. 3, 80939 München (DE).
- (26) Veröffentlichungssprache: Deutsch
- (30) Angaben zur Priorität:
103 14 168.5 28. März 2003 (28.03.2003) DE (74) **Anwalt: POKORNY, Gerd**; Osram GmbH, Postfach 22 16 43, 80506 München (DE).

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) **Title:** METHOD FOR PRODUCING A COATING ON THE SURFACE OF A PARTICLE OR ON A MATERIAL AND CORRESPONDING PRODUCT

(54) **Bezeichnung:** VERFAHREN ZUM HERSTELLEN EINER BESCHICHTUNG AUF DER OBERFLÄCHE EINES PARTIKELS ODER WERKSTOFFS UND ZUGEHÖRIGES PRODUKT



(57) **Abstract:** The invention relates to a method for producing at least one coating (3) on at least one section (4) of the surface of a body (2) by the chemical conversion of at least one constituent of the body into at least one constituent of the coating. The method is characterised in that a chemical, non-metallic compound forms the constituent of the body. The method can be described as an "intrinsic" coating method, as the coating process is not carried out by the external application of material to the surface section, but by the material conversion of the constituent of the body. The method permits the production of a body comprising at least one surface section with at least one coating that has been formed by the chemical conversion of at least one constituent of the body into at least one constituent of the coating. The body is

characterised in that the constituent of the body is a chemical, non-metallic compound, for example, a chloride silicate, which is used in the form of luminescent particles as a luminescent substance in a luminescent body (7) of a light-emitting diode (LED). The coating protects the luminescent substance against decomposition by hydration or hydrolysis. The luminescent substance is characterised by improved long-term stability in comparison with similar substances in prior art.

(57) **Zusammenfassung:** Die Erfindung betrifft ein Verfahren zum Herstellen mindestens einer Beschichtung (3) mindestens eines Oberflächenabschnitts (4) eines Körpers (2) durch chemisches Umwandeln mindestens eines Bestandteils des Körpers in mindestens einen Bestandteil der Beschichtung. Das Verfahren ist dadurch gekennzeichnet, dass als Bestandteil des Körpers eine chemische, nichtmetallische Verbindung verwendet wird. Das Verfahren kann als "intrinsisches" Beschichten (coating) bezeichnet werden, da das Beschichten nicht durch Materialauftragen auf den Oberflächenabschnitt von außen, sondern durch Materialumwandlung des Bestandteils des Körpers durchgeführt wird. Durch das Verfahren ist ein Körper mit mindestens einem Oberflächenabschnitt zugänglich, der mindestens eine Beschichtung aufweist, die durch chemisches Umwandeln mindestens eines Bestandteils des Körpers in mindestens einen Bestandteil der Beschichtung hergestellt ist. Der Körper ist dadurch gekennzeichnet, dass der Bestandteil des Körpers eine chemische, nichtmetallische Verbindung ist. Der Bestandteil des Körpers ist beispielsweise ein Chlorid-Silikat, das als Leuchtstoff in Form von Leuchtstoffpartikeln in einem Lumineszenzkonversionskörper (7) einer Licht emittierenden Diode (LED) eingesetzt wird. Die Beschichtung schützt den Leuchtstoff vor Zersetzung durch Hydratation bzw. Hydrolyse. Der

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

WO 2004/087831 A1



(81) **Bestimmungsstaaten** (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare nationale Schutzrechtsart): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) **Bestimmungsstaaten** (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare regionale Schutzrechtsart): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PL, PT,

RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Erklärung gemäß Regel 4.17:

- hinsichtlich der Berechtigung des Anmelders, die Priorität einer früheren Anmeldung zu beanspruchen (Regel 4.17 Ziffer iii) für alle Bestimmungsstaaten

Veröffentlicht:

- mit internationalem Recherchenbericht
- vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche geltenden Frist; Veröffentlichung wird wiederholt, falls Änderungen eintreffen

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

Titel

Verfahren zum Herstellen einer Beschichtung auf der
Oberfläche eines Partikels oder Werkstoffs und zugehöriges
5 Produkt

Technisches Gebiet

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zum Herstellen einer
10 Beschichtung auf der Oberfläche eines Partikels,
beispielsweise eines Leuchtstoffpartikels, oder eines
Werkstoffs, durch chemisches Umwandeln mindestens eines
Bestandteils des Leuchtstoffpartikels in mindestens einen
Bestandteil der Beschichtung. Daneben wird ein zugehöriges
15 Produkt, beispielsweise ein Leuchtstoffpulver mit mindestens
einer Beschichtung angegeben, die durch chemisches Umwandeln
mindestens eines Bestandteils des ursprünglichen Materials in
mindestens einen Bestandteil der Beschichtung hergestellt ist.
das Produkt ist ein Partikel bzw. ein Pulver aus Partikeln
20 oder ein Werkstoff.

Stand der Technik

Ein eingangs genanntes Verfahren und ein eingangs genannter
25 Körper sind beispielsweise aus der "Passivierung" von
Aluminium bekannt. Der Körper besteht dabei aus elementarem
Aluminium. An den Oberflächenabschnitten des Körpers, die mit
Sauerstoff in Kontakt gebracht werden, kommt es zur Oxidation
des elementaren Aluminiums zu Aluminiumoxid (Al_2O_3). Es wird
30 eine Beschichtung aus Aluminiumoxid gebildet. Aluminium, der
Bestandteil des Körpers, wird chemisch in Aluminiumoxid, den
Bestandteil der Beschichtung, umgewandelt. Die Beschichtung
schützt das Aluminium des Körpers vor der weiteren Oxidation
durch Sauerstoff.

35

Aus der EP 1 199 757 A2 ist ein Körper in Form eines
Leuchtstoffpartikels bekannt, der eine wasserbeständige

2

Beschichtung aufweist. Der Körper ist ein Leuchtstoffpartikel, der einen Leuchtstoff zum Umwandeln einer elektromagnetischen Primärstrahlung in eine elektromagnetische Sekundärstrahlung aufweist. Der Leuchtstoff absorbiert die von einer Licht emittierenden Diode (Light Emitting Diode, LED) ausgesandte Primärstrahlung und emittiert seinerseits die Sekundärstrahlung. Eine Vielzahl von Leuchtstoffpartikeln (Leuchtstoffpulver) ist dabei in ein Epoxid-Gehäuse der LED eingegossen.

10

Ein Bestandteil der Beschichtung des Leuchtstoffpartikels kann dabei ein organisches, ein anorganisches und ein glasartiges Material sein. Ein Bestandteil des Körpers kann aus der Gruppe Oxid-, Sulfid-, Aluminat-, Borat, Vanadat- und Silikat-Leuchtstoff ausgewählt sein. Die Beschichtung des Leuchtstoffpartikels ist jeweils ein wasserbeständiger Film, der den Angriff von Wasser und somit eine Degradation des Leuchtstoffs verhindert.

20

Zum Herstellen der Beschichtung werden die Bestandteile der Beschichtung oder Vorstufen der Bestandteile der Beschichtung von außen auf der Oberfläche des Leuchtstoffpartikels aufgetragen. Beispielsweise wird dazu ein Sol-Gel-Verfahren oder ein CVD (Chemical Vapour Deposition)-Verfahren angewandt.

25

Diese Verfahren zum Herstellen der Beschichtung sind zeit- und kostenintensiv. Zudem kann nicht immer sichergestellt werden, dass die Beschichtung die Oberfläche des Leuchtstoffpartikels vollständig belegt. In Folge davon kann es zu einer Verminderung der Lumineszenzfähigkeit des

30

Leuchtstoffpulvers kommen.

Aus den Schriften US-A 5 156 885, EP-A 753 545, US-A 6 447 908, US-A 5 593 782, US-A 4 585 673 und EP-A 928 826 sind beschichtete Leuchtstoffpartikel bekannt. Gemein sind allen Schriften, dass die Beschichtung von außen extra zugegeben wird. Das Material für die Beschichtung wird bestenfalls zusammen mit den Leuchtstoffpartikeln in einem einzigen

35

Reaktor erzeugt, es erfordert jedoch die Zugabe eigener Vorläufermaterialien.

Darstellung der Erfindung

5

Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es, ein Verfahren gemäß dem Oberbegriff des Anspruchs 1 anzugeben, das einfach und kostengünstig ist. eine weitere Aufgabe ist, aufzuzeigen, wie eine Beschichtung auf einem Leuchtstoffpartikel oder
10 Pigmentpartikel einfach und kostengünstig hergestellt werden kann.

Zur Lösung der Aufgaben werden die charakteristischen Merkmale des Anspruchs 1 herangezogen. Bevorzugte
15 Ausführungsformen finden sich in den Unteransprüchen. Insbesondere wird ein Verfahren zum Herstellen einer Beschichtung durch chemisches Umwandeln mindestens eines Bestandteils des Partikels in mindestens einen Bestandteil der Beschichtung angegeben. Das Verfahren ist dadurch
20 gekennzeichnet, dass als Bestandteil des Partikels eine chemische, nichtmetallische Verbindung verwendet wird.

Eine weitere Aufgabe ist, aufzuzeigen, wie eine Beschichtung auf einem Werkstoff einfach und kostengünstig hergestellt
25 werden kann.

Zur Lösung dieser Aufgabe werden die charakteristischen Merkmale des Anspruchs 19 herangezogen. Bevorzugte Ausführungsformen finden sich in den Unteransprüchen.

30

Insbesondere wird ein Verfahren zur Herstellung einer Beschichtung auf der Oberfläche von nichtmetallischen Werkstoffen angegeben, wobei diese Beschichtung bzw. ihre Vorstufe durch die Behandlung des Werkstoffes in einer
35 chemischen Reaktion mit einem reaktiven Medium in einem oder mehreren Schritten entsteht, wobei mindestens ein Bestandteil

des Werkstoffes in einen wesentlichen Bestandteil der Beschichtung umgewandelt wird.

Beispielsweise weist die Beschichtung einen Schutz des
5 Werkstoffes gegen seine vorgesehenen Einsatzbedingungen
und/oder vorteilhafte optische Eigenschaften, wie minimale
Reflektivitätszunahme, einen bevorzugten Absorptionsbereich
von elektromagnetischer Strahlung (Farbe) und/oder
10 Interferenzfarben und/oder eine verbesserte Affinität zu
einem Medium mit dem der Werkstoff beschichtet und/oder in
das er dispergiert werden soll, auf.

Dabei ist der Werkstoff insbesondere ein aus der Gruppe
Aluminat und/oder Borat und/oder Silikat ausgewählte
15 Verbindung, wie beispielsweise Alkali- und/oder
Erdalkalisilikate oder Alkali- und/oder Erdalkalialuminate
bzw. Mischungen davon. Die Alkali- und/oder Erdalkalielemente
können dabei durch Hauptgruppenelemente wie Sb, Sn und/oder
Pb, Nebengruppenelemente wie Mn, Zn und/oder Cd oder
20 Seltenerdelemente (SE) wie Europium teilweise oder
vollständig substituiert sein. Al oder Si der genannten
Silikate oder Aluminate können durch Ga oder In bzw. Ge, Sn,
P, Pb und/oder durch die Nebengruppenelemente Ti, Zr, V, Nb,
Ta, Cr, Mo und Wolfram teilweise oder vollständig
25 substituiert sein. Darüber hinaus kann O der genannten
Verbindungen durch N, P, PO_4^{3-} , S, SO_3^{2-} , SO_4^{2-} , F, Cl, Br,
oder I ganz oder teilweise ersetzt sein.

Das Verfahren kann jeweils als "intrinsisches" Beschichten
30 (coating) bezeichnet werden, da im Gegensatz zum bekannten
Stand der Technik das Beschichten nicht durch
Materialauftragen auf den Oberflächenabschnitt von außen,
sondern durch Materialumwandlung des Bestandteils des
Partikels durchgeführt wird. Dabei resultiert eine
35 Phasengrenze zwischen dem eigentlichen Partikel
(ursprüngliches Material) und der Beschichtung. Die
chemischen und/oder physikalischen Eigenschaften eines

Materials des Partikels und eines Materials der Beschichtung unterscheiden sich voneinander.

Zur Lösung der Aufgabe wird auch ein Pulver eines Pigments
5 oder Leuchtstoffs angegeben, das mindestens eine Beschichtung
aufweist, die durch chemisches Umwandeln mindestens eines
Bestandteils des ursprünglichen Materials in mindestens einen
Bestandteil der Beschichtung hergestellt ist. Das Pulver ist
dadurch gekennzeichnet, dass der Bestandteil eine chemische,
10 nichtmetallische Verbindung ist. dabei ist mit Leuchtstoff
ein Pigment gemeint, das die Wellenlänge des einfallenden
Lichts konvertieren kann, insbesondere durch den Zusatz eines
kleinen Anteils von Dotierstoffen, insbesondere im Bereich
ppm bis mehr als 10 % zum Basismaterial. beispielsweise ist
15 bei YAG:Ce der YAG das Basismaterial (reines Pigment) und Ce
der Dotierstoff. Beide Stoffe haben wirtschaftliche Bedeutung
als Pulver oder auch als Einkristall bzw. als Werkstoff.

Unter der chemischen, nichtmetallischen Verbindung ist ein
20 Stoff zu verstehen, dessen kleinste Einheit aus mindestens
zwei Atomen verschiedener chemischer Elemente zusammengesetzt
ist. Die Atome dieser chemischen Verbindung sind dabei über
kovalente und/oder ionische, also nichtmetallische Bindungen
miteinander verbunden. Denkbar ist eine organische oder
25 metallorganische Verbindung. Vorzugsweise werden aber
anorganische, nichtmetallische Verbindungen eingesetzt.

In einer besonderen Ausgestaltung ist die chemische,
nichtmetallische Verbindung mindestens ein aus der Gruppe
30 Aluminat und/oder Borat und/oder Silikat ausgewähltes
Mischoxid. Solche Verbindungen sind beispielsweise Alkali-
und/oder Erdalkalisilikate oder Alkali- und/oder
Erdalkalialuminate bzw. Mischungen davon. Die Alkali-
und/oder Erdalkalielemente können dabei durch
35 Hauptgruppenelemente wie Sb, Sn und/oder Pb,
Nebengruppenelemente wie Mn, Zn und/oder Cd oder
Seltenerdelemente (SE) wie Eu teilweise oder vollständig

substituiert sein. Al oder Si der genannten Silikate oder Aluminate können durch Ga oder In bzw. Ge, Sn, P, Pb und/oder durch die Nebengruppenelemente Ti, Zr, V, Nb, Ta, Cr, Mo und W teilweise oder vollständig substituiert sein. Darüber hinaus kann O der genannten Verbindungen durch N, P, S, F, Cl, Br oder I ersetzt sein. Die genannten Stoffklassen dieses Absatzes lassen sich insbesondere alle auch für Partikel und deren Beschichtung anwenden, sei es für Pigmente als auch für Leuchtstoffe.

Das chemische Umwandeln umfasst eine beliebige chemische Reaktion des Bestandteils des Körpers zum Bestandteil der Beschichtung. Als chemische Reaktion ist beispielsweise eine Oxidation oder eine Reduktion denkbar. Die chemische Reaktion kann auch eine Kondensation des Bestandteils des Körpers zum Bestandteil der Beschichtung sein. In jedem Fall kommt es zum Bruch und/oder zur Bildung von chemischen Bindungen.

Das chemische Umwandeln des Bestandteils des Körpers in den Bestandteil der Beschichtung kann in einem einzigen Schritt erfolgen. Vorzugsweise erfolgt das chemische Umwandeln über mindestens eine Zwischenstufe. In einer besonderen Ausgestaltung weist das chemische Umwandeln des Bestandteils des Körpers in den Bestandteil der Beschichtung folgende Schritte auf: a) Chemisches Umwandeln des Bestandteils des Körpers in mindestens eine Vorstufe des Bestandteils der Beschichtung und b) Chemisches Umwandeln der Vorstufe des Bestandteils der Beschichtung in den Bestandteil der Beschichtung. Das chemische Umwandeln des Bestandteils des Körpers findet über die Vorstufe des Bestandteils der Beschichtung als Zwischenstufe statt. Denkbar ist dabei, dass die chemische Umwandlung über mehrere derartiger Zwischenstufen verläuft.

Vorzugsweise erfolgt das chemische Umwandeln des Bestandteils des Körpers in die Vorstufe des Bestandteils der Beschichtung und/oder das chemische Umwandeln der Vorstufe des

Bestandteils der Beschichtung in den Bestandteil der Beschichtung in Gegenwart eines reaktiven Mediums. Das reaktive Medium oder ein Bestandteil des reaktiven Mediums reagiert mit dem Bestandteil des Körpers und/oder mit der Vorstufe des Bestandteils der Beschichtung. Das reaktive Medium kann flüssig oder gasförmig sein.

Beispielsweise ist der Körper ein Leuchtstoffpartikel aus einem Chlorid-Silikat. Durch Angriff einer Mineralsäure wie Salz- oder Salpetersäure oder einer organischen Säure wie Essigsäure werden oberflächlich Chlorid- und Erdalkali-Ionen aus dem Chlorid-Silikat herausgelöst. Für den beschriebenen Angriff besteht das reaktive Medium beispielsweise aus einer wässrigen Lösung der genannten Säuren. Die Lösung weist Wasser als Lösungsmittel auf. Denkbar ist insbesondere aber auch eine weitgehend wasserfreie Lösung mit einem protogenen (protischen), organischen Lösungsmittel wie Ethanol oder Ethylenglykol. Weitgehend wasserfrei bedeutet, dass der Anteil des Wassers an dem Lösungsmittel unter 5 Vol.% beträgt. Denkbar sind aber auch eine Mischung aus Wasser und/oder mehreren organischen, protogenen Lösungsmitteln. Dies beinhaltet mehrere Vorteile. Über eine Variation eines Anteils des Wassers und/oder eines Anteils des Lösungsmittels mit der höchsten Dissoziationskonstante kann eine Bildungsgeschwindigkeit der Schutzschicht gesteuert werden. Durch Zugabe von hochviskosen Lösungsmitteln kann die Viskosität der Mischung und damit eine Diffusionskonstante für die reaktive Substanz des Mediums eingestellt werden. Das chemische Umwandeln erfolgt dadurch weitgehend diffusionskontrolliert. Dadurch wird eine Erhebung am Oberflächenabschnitt des Körpers bevorzugt angegriffen und in Folge davon eingeebnet. Der Oberflächenabschnitt wird nicht nur mit einer Beschichtung versehen, er wird zudem poliert. Es resultiert eine besonders glatte Beschichtung. Eine glatte Beschichtung ist aufgrund der relativ kleinen reaktiven Oberfläche besonders stabil gegenüber dem Angriff einer reaktiven Substanz.

Durch das Herauslösen der Chlorid- und Erdalkali-Ionen entsteht am Oberflächenabschnitt des Körpers eine Schicht mit Orthokieselsäure (H_4SiO_4) oder kleineren Kondensationsprodukten (Oligomere) der Orthokieselsäure, beispielsweise Orthodikieselsäure ($\text{H}_6\text{Si}_2\text{O}_7$). Die Orthokieselsäure oder deren kleinere Kondensationsprodukte verbleiben als unlösliche bzw. schwerlösliche Schicht auf der Oberfläche des Körpers. Nachfolgend reagieren diese Substanzen unter Abspaltung von Wassermolekülen zu einer kondensierten Kieselsäure. Die kondensierte Kieselsäure ist beispielsweise Polykieselsäure ($\text{H}_{2n+2}\text{Si}_n\text{O}_{3n+1}$) oder Metakieselsäure $(\text{H}_2\text{SiO}_3)_n$. Es resultiert eine Beschichtung des Körpers aus kondensierter Kieselsäure. Aus dem Chlorid-Silikat, dem Bestandteil des Körpers, wird über die Orthokieselsäure, der Vorstufe des Bestandteils der Beschichtung, die kondensierte Kieselsäure, der Bestandteil der Beschichtung, gebildet.

Das beschriebene Verfahren kann bei längerem Einwirken des reaktiven Mediums zu einem Aufrauen des Oberflächenabschnitts des Körpers führen. Das Aufrauen wird dadurch verursacht, dass weitere Bestandteile des Körpers, der Beschichtung oder der Vorstufe der Beschichtung zum Teil im reaktiven Medium gelöst werden. Dadurch kann der Oberflächenabschnitt ungleichmäßig anodiert werden. Das Aufrauen kann erwünscht sein. Beispielsweise wird dadurch die Oberflächenbeschaffenheit der Beschichtung derart geändert, dass eine besonders gute Haftung (Adhäsion) zwischen der Beschichtung und einer Umgebung der Beschichtung erreicht wird. Beispielsweise wird ein Leuchtstoffpulver aus Leuchtstoffpartikeln in einem Epoxid-Harz eingegossen. Durch gezielte Beeinflussung der Rauheit der Beschichtung kann die Haftung zwischen dem Epoxid-Harz und den Leuchtstoffpartikeln verbessert werden. Dies kann zu einer verbesserten Langzeitstabilität des Verbundes aus Leuchtstoffpartikeln und Epoxid-Harz führen.

Um das Aufrauen der Beschichtung gezielt zu beeinflussen, wird in einer besonderen Ausgestaltung ein reaktives Medium mit einem Hemmstoff verwendet, der ein weiteres chemisches
5 Umwandeln eines weiteren Bestandteils des Körpers, der Vorstufe des Bestandteils der Beschichtung und/oder des Bestandteils der Beschichtung hemmt. Der Hemmstoff ist vorzugsweise im reaktiven Medium löslich. Die Anwesenheit des Hemmstoffs führt zum einem weitgehenden Unterbinden des
10 weiteren chemischen Umwandelns. Dadurch kommt es zu einem gleichmäßigen Wachstum der Beschichtung. Es resultiert eine glatte Beschichtung. Beispielsweise ist der Hemmstoff der weitere Bestandteil der Beschichtung, die Vorstufe des Bestandteils der Beschichtung oder der Bestandteil der
15 Beschichtung bzw. ein Derivat davon. Das Derivat kann leicht in die genannten Bausteine überführt werden.

Bei einem Silikat sind die weiteren Bestandteile Siliziumoxid-Reste oder Kieselsäure. Vorzugsweise wird als
20 weiterer Bestandteil des Körpers ein Silikat und als Hemmstoff Kieselsäure, insbesondere Orthokieselsäure verwendet. Zur Bildung der Orthokieselsäure kann ein beliebiges, in einem wässrigen Medium lösliches Silikat verwendet werden. Vorzugsweise wird zur Bildung der
25 Orthokieselsäure als Hemmstoff Wasserglas verwendet. Wasserglas besteht aus Na_4SiO_4 und/oder K_4SiO_4 . Wasserglas bildet in wässriger Lösung mit Protonen des Wassers Orthokieselsäure. Die Bildung der Orthokieselsäure wird im sauren Medium begünstigt. Die Gegenwart der Orthokieselsäure
30 in dem reaktiven Medium kann dabei nicht nur das Herauslösen von Silikat-Resten des Körpers oder von Kieselsäure der Beschichtung hemmen. Die im reaktiven Medium vorhandene Orthokieselsäure kann zusätzlich auch in die Beschichtung eingelagert werden. Es wird ein reaktives Medium mit einem
35 Bestandteil verwendet wird, der in die Beschichtung eingebaut. Dabei resultiert eine besonders dichte und stabile Beschichtung.

In einer besonderen Ausgestaltung wird zum chemischen Umwandeln des Bestandteils des Körpers in die Vorstufe des Bestandteils der Beschichtung und/oder zum chemischen Umwandeln der Vorstufe des Bestandteils der Beschichtung in den Bestandteil der Beschichtung mindestens eine Wärmebehandlung des Körpers und/oder der Beschichtung durchgeführt. Beispielsweise wird der Oberflächenabschnitt des Körpers einem heißen reaktiven Medium ausgesetzt. Inhärent findet dabei eine Wärmebehandlung des Körpers statt. Im oben beschriebenen Beispiel kann das Herauslösen der Chlorid- und Erdalkali-Ionen aus dem Chlorid-Silikat durch Behandlung des Körpers mit einer heißen Lösung der Säuren beschleunigt werden. Gleichzeitig wird bei dieser Wärmebehandlung auch das Kondensieren der Orthokieselsäure zur Polykieselsäure beschleunigt.

Durch eine weitere Wärmebehandlung des Körpers nach dem Herauslösen der Chlorid- und Erdalkali-Ionen kann zusätzlich das Kondensieren der Orthokieselsäure zur Polykieselsäure beschleunigt werden. Diese weitere Wärmehandlung umfasst insbesondere ein Kalzinieren des Körpers aus Chlorid-Silikat mit einer Schicht aus Orthokieselsäure oder deren kleineren Kondensationsprodukten. Es resultiert eine dichte Schutzschicht des Körpers. Bei der Verwendung eines weitgehend wasserfreien Lösungsmittels kommt es unmittelbar durch die Bildung der Orthokieselsäure zur Bildung größerer Kondensationsprodukte der Orthokieselsäure auf dem Oberflächenabschnitt des Körpers. Es wird sofort eine relativ dichte Beschichtung gebildet, so dass das nachfolgende Kalzinieren bei niedrigeren Temperaturen durchgeführt oder unter Umständen unterbleiben kann. Dies hat den Vorteil, dass der Körper durch das Kalzinieren nicht beschädigt werden kann.

Vorzugsweise wird als chemische Verbindung ein Chlorid-Silikat und als Bestandteil der Beschichtung eine

kondensierte Kieselsäure verwendet. Insbesondere weist das Chlorid-Silikat eine formale Zusammensetzung $\text{Ca}_{8-x}\text{SE}_x\text{Mg}(\text{SiO}_4)_4\text{Cl}_2$ mit $0 \leq x \leq 1$ auf. Dabei ist SE ein beliebiges Seltenerdelement. Insbesondere ist das
5 Seltenerdelement Eu. In einer weiteren Ausgestaltung ist das Seltenerdelement zumindest teilweise durch Mn ersetzt.

Vorzugsweise umfasst der Oberflächenabschnitt des Körpers die gesamte Oberfläche des Körpers. Die Beschichtung ist auf der
10 gesamten Oberfläche des Körpers angeordnet. Dadurch, dass die Beschichtung nicht von außen aufgebracht wird, sondern aus dem Bestandteil des Körpers gebildet wird, ist auf einfache Weise eine über die gesamte Oberfläche des Körpers reichende Beschichtung zugänglich.

15 Insbesondere weist die Beschichtung eine aus den Nanometerbereich ausgewählte Schichtdicke auf. Dies bedeutet, dass die Beschichtung wenige Zehntel nm bis einige Hundert nm dick sein kann, insbesondere 50 bis 500 nm. Die Schichtdicke
20 kann über verschiedene Prozessparameter, beispielsweise dem reaktiven Medium, der Temperatur, der Reaktionsdauer, etc., beeinflusst werden. So ist es auch möglich, Schichtdicken aus dem Mikrometerbereich, also von wenigen Zehntel μm bis hin zu einigen Hundert μm zu erhalten.

25 Insbesondere ist die Beschichtung eine Schutzschicht zum Verhindern einer chemischen Reaktion des Bestandteils des Körpers und/oder eines weiteren Bestandteil des Körpers mit mindestens einem Bestandteil der Umgebung des Körpers. Die
30 Umgebung ist beispielsweise Luft, der Bestandteil der Luft ist Wasser und der Körper besteht aus einem hydrolysierbaren Material. Durch das Verfahren wird eine wasserabweisende Beschichtung auf der Oberfläche des Körpers hergestellt. Die wasserabweisende Beschichtung verhindert ein Hydratisieren
35 und eventuell nachfolgendes Hydrolysieren und damit Zersetzen des hydrolysierbaren Materials. Der Körper kann somit auch in einer feuchten Umgebung aufbewahrt bzw. eingesetzt werden.

In einer besonderen Ausgestaltung weist der Körper einen Leuchtstoff zum Umwandeln einer elektromagnetischen Primärstrahlung in eine elektromagnetische Sekundärstrahlung auf. Der Körper ist ein Leuchtstoffpartikel eines Leuchtstoffpulvers. Die Leuchtstoffpartikel des Leuchtstoffpulvers sind beispielsweise in eine Konversionsschicht einer LED aus einem Epoxidharz eingegossen. Die LED sendet die elektromagnetische Primärstrahlung aus, die von dem Leuchtstoff absorbiert und in die elektromagnetische Sekundärstrahlung umgewandelt wird. Die LED emittiert beispielsweise Primärstrahlung mit einer Wellenlänge aus dem UV- oder sichtbaren Spektralbereich. Denkbar ist insbesondere eine Primärstrahlung mit einer Wellenlänge aus dem blauen Spektralbereich. Eine LED mit einer derartigen Primärstrahlung weist beispielsweise als "aktive" Schicht eine Halbleiterschicht aus Galliumindiumnitrid (GaInN) auf. Ein Intensitätsmaximum der Primärstrahlung liegt bei etwa 450 nm.

Die Beschichtung der Leuchtstoffpartikel ist für die Primärstrahlung und die Sekundärstrahlung weitgehend transparent. Die Primärstrahlung und die Sekundärstrahlung kann durch die Beschichtung hindurchtreten. Dies wird insbesondere dadurch erreicht, dass gemäß dem vorgestellten Herstellverfahren sehr kleine Schichtdicken der Beschichtung zugänglich sind. Aufgrund der kleinen Schichtdicke ist die Absorbanz der Beschichtung für die Primär- und Sekundärstrahlung niedrig (die Transmission ist hoch).

Zusammenfassend ergeben sich mit der vorliegenden Erfindung folgende Vorteile:

- Die Bildung der Beschichtung erfolgt durch chemische Umwandlung eines Bestandteils des Körpers am Oberflächenabschnitt des Körpers. Dadurch ist eine im

Vergleich zum Stand der Technik homogenere Beschichtung des Oberflächenabschnitts des Körpers zugänglich.

- 5 • Es ist eine dünne, homogene und dichte Beschichtung mit einer Schichtdicke im Nanometerbereich zugänglich.
- 10 • Durch die dünne Beschichtung kann die chemische Beständigkeit (Inertheit) des Körpers gegenüber einem reaktiven Bestandteil einer Umgebung deutlich verbessert werden.
- 15 • Bei Verwendung eines reaktiven Mediums mit einem wasserarmen oder mit einem wasserfreien Lösungsmittel bzw. einem Hemmstoff kann die Oberflächenbeschaffenheit der Beschichtung gezielt beeinflusst werden.
- 20 • Das beschriebene Verfahren kann sehr einfach mit einem Verfahren zum Herstellen der Beschichtung des Oberflächenabschnitts eines Körpers kombiniert werden, bei dem die Beschichtung von außen auf der Oberfläche des Körpers aufgetragen wird.
- 25 • Es ist insbesondere ein Leuchtstoffpulver mit beschichteten Leuchtstoffpartikeln zugänglich. Die Leuchtstoffpartikel sind gegen Luftfeuchtigkeit beständig. Die Lumineszenzeigenschaft der Leuchtstoffpartikel wird durch die Beschichtung kaum beeinflusst und bleibt auch über einen längeren Zeitraum weitgehend unvermindert erhalten.
- 30 • Das Verfahren kann auf einfache Weise in ein bestehendes Herstellungsverfahren eines beliebigen Körpers integriert werden. Beispielsweise werden im Verlauf des Herstellens von Leuchtstoffpartikeln mehrmals Waschprozesse durchgeführt. Diese Waschprozesse können durch nasschemische Behandlungen der Leuchtstoffe ergänzt werden.
- 35

Kurze Beschreibung der Zeichnungen

Anhand mehrerer Ausführungsbeispiele und der dazugehörigen
5 Figuren werden ein Verfahren zum Herstellen der Beschichtung
auf einem Oberflächenabschnitt des Körpers und ein Körper mit
der Beschichtung vorgestellt. Die Figuren sind schematisch
und stellen keine maßstabsgetreuen Abbildungen dar.

10 Figur 1 zeigt einen Ausschnitt eines beschichteten
Leuchtstoffpartikels im Querschnitt.

Figur 2 zeigt einen Ausschnitt einer LED mit einer
Lumineszenzkonversionsschicht mit
15 Leuchtstoffpartikeln.

Figur 3 zeigt ein Verfahren zum Herstellen der Beschichtung
auf einem Oberflächenabschnitt eines
20 Leuchtstoffpartikels.

Figur 4 zeigt die Hydrolysegeschwindigkeit eines
Leuchtstoffpulvers aus Leuchtstoffpartikeln ohne und
mit Beschichtung.

25 Figur 5 zeigt ein beschichtetes Leuchtstoffpulver in
unterschiedlicher Vergrößerung.

Figur 6 zeigt für ein beschichtetes Leuchtstoffpulver den
Vergleich der Quanteneffizienz und Reflektivität mit
30 einem unbeschichteten Leuchtstoffpulver.

Bevorzugte Ausführungsformen der Erfindung

Der beschichtete Körper 1 ist ein Leuchtstoffpartikel eines
35 Leuchtstoffpulvers (Figur 1). Der Körper
(Leuchtstoffpartikel) 2 weist auf dem Oberflächenabschnitt 4
die Beschichtung 3 auf. Der Oberflächenabschnitt umfasst die

gesamte Oberfläche des Körpers 2. Der Körper 2 ist vollständig von der Beschichtung 3 umgeben. Der Bestandteil des Körpers 2 ist die chemische Verbindung Chlorid-Silikat mit der formalen Zusammensetzung $\text{Ca}_{8-x}\text{Eu}_x\text{Mg}(\text{SiO}_4)_4\text{Cl}_2$ mit $0 \leq x \leq 1$. Die Beschichtung 3 besteht aus einer kondensierten Kieselsäure. Die Schichtdicke 5 der Beschichtung ist aus dem Nanometerbereich.

Die Bildung der Beschichtung 3 auf dem Oberflächenabschnitt 4 des Leuchtstoffpartikels 2 erfolgt durch chemisches Umwandeln des Chlorid-Silikats des Leuchtstoffpartikels 2 in eine Orthokieselsäure bzw. in ein kleineres Kondensationsprodukt der Orthokieselsäure (Vorstufe des Bestandteils der Beschichtung 3, vgl. Figur 3, Bezugszeichen 31). Dazu werden aus dem Chlorid-Silikat zunächst Ca-, Mg-, Eu- und Cl-Anteile durch Einwirken einer Säure herausgelöst. "In situ" bildet sich dabei auf dem Oberflächenabschnitt 4 des Leuchtstoffpartikels 2 eine Schicht aus Orthokieselsäure bzw. kleineren Kondensationsprodukten der Orthokieselsäure. Nachfolgend wird die Orthokieselsäure bzw. werden die kleineren Kondensationsprodukte der Orthokieselsäure in die Beschichtung 3 aus der kondensierten Kieselsäure umgesetzt (Vgl. Figur 3, Bezugszeichen 32). Als chemisches Umwandeln findet eine Kondensation der Vorstufe des Bestandteils der Beschichtung 3 statt. Die Kondensation wird durch ein Kalzinieren der mit der Vorstufe beschichteten Leuchtstoffpartikel 2 vorangetrieben.

Die beschichteten Leuchtstoffpartikel 1 werden in einem Lumineszenzkonversionskörper 7 einer LED 6 verwendet. Die aktive Halbleiterschicht der LED 6 ist GaInN. Der Lumineszenzkonversionskörper 7 besteht aus Epoxid-Harz, in dem die Leuchtstoffpartikel 1 eingebettet sind. Der Leuchtstoff der Leuchtstoffpartikel 1 absorbiert die von der LED emittierte elektromagnetische Primärstrahlung 8 aus dem blauen Spektralbereich (Emissionsmaximum bei ca. 450 nm) und emittiert seinerseits elektromagnetische

Sekundärstrahlung 9 aus dem grünen Spektralbereich. Da die Primärstrahlung 8 teilweise durch den Lumineszenzkonversionskörper 7 hindurchtritt, resultiert eine blau-grüne Mischfarbe aus der Primär- und Sekundärstrahlung.

5 Die Leuchtstoffpartikel 1 weisen aufgrund der Beschichtung 3 eine hohe Langzeitstabilität auf. Daher kommt es auch bei längerem Betrieb der LED 6 mit dem Lumineszenzkonversionskörper 7 zu nahezu keiner Farbortverschiebung. Für den Einsatz in einer weißen LED
10 zusammen mit einem GaInN-Chip wird beispielsweise ein Aufbau ähnlich wie in US 5 998 925 beschrieben verwendet.

Ausführungsbeispiel 1:

Zum Aufbringen der Beschichtung 3 werden 10 g des
15 Leuchtstoffpulvers in ein Glasgefäß mit Rührer zusammen mit 200 ml 80° C heißem Wasser gegeben. Bei dieser Temperatur erfolgt eine pH-Wert-Regelung durch Zugabe einer etwa 3 molaren Mineralsäure (Salzsäure). Alternativ dazu erfolgt das Einstellen des pH-Werts mit Hilfe einer organischen Säure
20 (Essigsäure). Der pH-Wert wird auf 8,3 gehalten. Nach etwa 2 ml Säure-Zugabe und 2 Minuten Behandlungsdauer wird der pH-Wert annähernd erreicht. Nun wird sehr langsam weitere Säure bei diesem pH-Wert zugegeben. Nach 20 Minuten wird die Behandlung abgebrochen. Das erhaltene Leuchtstoffpulver wird
25 abfiltriert und getrocknet. Anschließend erfolgt eine Wärmebehandlung des Leuchtstoffpulvers. Das Pulver wird zwei Stunden bei 300° C unter Vakuum kalziniert.

In Figur 4 ist gezeigt, wie sich der Anteil 40 an
30 hydrolysiertem Chlorid-Silikat in % mit der Reaktionszeit 41 (Dauer der Hydrolyse) in s ändert, wenn das Leuchtstoffpulver sich in einer wässrigen Umgebung befindet. Der Anteil 40 an hydrolysiertem Chlorid-Silikat ist ein Maß für die Hydrolysegeschwindigkeit und damit für die Langzeitstabilität
35 des Leuchtstoffpulvers. Aufgetragen sind die zeitliche Veränderung des Anteils 42 an hydrolysiertem Chlorid-Silikat unbeschichteter Leuchtstoffpartikel aus dem Chlorid-Silikat

und die zeitliche Veränderung des Anteils 43 an hydrolysiertem Chlorid-Silikat beschichteter Leuchtstoffpartikel aus dem Chlorid-Silikat. Die Hydrolysegeschwindigkeit ist durch die Beschichtung 3 deutlich reduziert. In Figur 5 ist ein beschichtetes Leuchtstoffpulver in verschiedener Vergrößerung gezeigt. Die Oberfläche ist nicht glatt und gleichmäßig, sondern aufgrund des Umwandelns und teilweisen Herauslösen der ursprünglichen Schicht ungleichmäßig strukturiert. Die resultierende Schicht erinnert an Wucherungen, die blumenkohlartig wirken. Die Schicht ist krümelig und rau und hat keine konstante Schichtdicke. Die hier angesprochenen Schichtdicken beziehen sich immer auf maximale Schichtdicken. Bei anderen Werkstoffen und Verwendung anderer Zusätze wie hier angegeben kann statt einer krümeligen Oberfläche auch eine mehr oder weniger glatte Oberfläche erzeugt werden. Die erzielbaren Schichtdicken liegen insgesamt bei bis zu 1000 nm.

Ausführungsbeispiel 2:

10 g des Leuchtstoffpulvers werden in ein Glasgefäß mit Rührer zusammen mit 200 ml 60° C heißem, wasserfreien Ethylenglykol gegeben. Unter kontinuierlicher Zugabe von geringen Mengen an wasserfreier Essigsäure wird die Bildung der Beschichtung 3 gesteuert. Die Gesamtmenge an Essigsäure wird so bemessen, dass etwa 10% des Leuchtstoffpulvers innerhalb von 30 min umgesetzt werden. Die nach Beendigung der Zugabe von Essigsäure erhaltenen Leuchtstoffpartikel 2 verfügen bereits über Beschichtungen 3. Diese beschichteten Leuchtstoffpartikel werden abfiltriert, mit Ethanol gespült, mehrere Stunden an Luft bei etwa 125°C und mehrere Stunden im Vakuum bei 250°C getrocknet.

Ausführungsbeispiel 3:

In Erweiterung des Ausführungsbeispiels 1 wird zusätzlich zur Salzsäure 1g bis 3 g 20%ige Wasserglaslösung zugegeben. Im reaktiven Medium liegt dadurch Orthokieselsäure vor, die als Hemmstoff das Ablösen der Kieselsäure vom

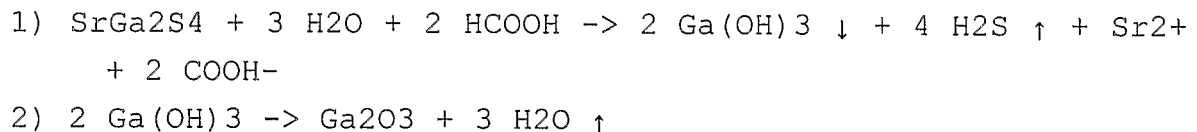
Oberflächenabschnitt der Leuchtstoffpartikel hemmt. Gleichzeitig wird die Orthokieselsäure in die Beschichtung 3 eingebaut. Dies begünstigt ein gleichmäßiges Wachstum der Beschichtung.

5

Ausführungsbeispiel 4:

Erzeugung eines intrinsischen Galliumoxid-Coatings auf einem Thiogallat-Leuchtstoff nach folgendem Grundprinzip. Unter definierten und kontrollierten pH-Bedingungen wird der Thiogallat-Leuchtstoff partiell oberflächlich hydrolysiert (schritt 1). Dabei entsteht auf der Oberfläche abhängig von den Behandlungsbedingungen eine definiert einstellbare Schichtdicke an Galliumhydroxid. Diese Schicht wird anschließend (Schritt 2) in einem Temperschritt in Galliumoxid umgewandelt:

15



20

Ausführung: In einem Reaktionsgefäß mit Gaseinleitung/Fritte, Rührer, Heizung und pH-Elektrode werden 500 ml 0,5 N Natriumacetat-Lösung gegeben und auf 40 - 80 °C vorzugsweise 55°C aufgeheizt. Nach Zugabe von 10 g Thiogallat-Leuchtstoff z.B. Strontiumthiogallat werden unter starkem Rühren und Gaseinleitung (Stickstoff) mit einer Dosiereinrichtung z.B. Ameisensäure (auch Essigsäure oder Salzsäure) zudosiert bis ein pH-Wert zwischen 3 und 6 vorzugsweise 4,6 erreicht ist. Die Zudosierung von Ameisensäure wird so eingestellt, dass ein pH-Wert zwischen 3,5 und 5,5, vorzugsweise zwischen 4,4 und 4,8 aufrechterhalten wird. Je nach gewünschter Schichtdicke (die durch die Beständigkeitsanforderung bei minimaler Reflektivitätszunahme gegeben ist) wird die Behandlung zwischen 15 Minuten und 6 Stunden, vorzugsweise zwischen 30 Minuten und 60 Minuten durchgeführt. Der so beschichtete Leuchtstoff wird abfiltriert, mit einem Alkohol,

35

vorzugsweise Ethanol 97%ig gewaschen und getrocknet zwischen 80° und 250° vorzugsweise bei 150° ggf. unter Vakuum.

Der getrocknete Leuchtstoff wird unter fließendem Schutzgas (vorzugsweise Stickstoff) bei einem Durchfluss zwischen 1 und 100 ml/min, vorzugsweise zwischen 10 und 20 ml/min, bei einer Temperatur zwischen 250° und 800° C, vorzugsweise zwischen 650 und 700°C, über 1 bis 12 Stunden, vorzugsweise zwischen 2 und 3 Stunden, geglüht. Der entstehende beschichtete Leuchtstoff ist dann bereits gebrauchsfertig.

Ein konkretes Beispiel ist in Figur 6 gezeigt, wo die Quanteneffizienz und Reflektivität eines Leuchtstoffs vom Typ (Ba,Ca,Mg)-Thiogallat gezeigt ist und zwar zum einen ein Vergleich des Emissionsspektrums (unbeschichtet und beschichtet) und des Reflexionsspektrums (ebenfalls unbeschichtet und beschichtet). Die Beschichtung verbessert die Leuchtstoffeigenschaften folgendermaßen: die Effizienz steigt von 82,1 % auf 84,9 %, bezogen auf die Anregung mit 400 nm; die Reflektivität steigt von 15,4 % auf 27 %, wieder bezogen auf die Anregung mit 400 nm.

Ausführungsbeispiel 5:

Analog wie bei einem Silikathaltigen Leuchtstoffpartikel, insbesondere auf Basis Chloridsilikat, sich eine Schutzschicht aus SiO₂ gewinnen lässt, kann bei einem Aluminathaltigen Leuchtstoffpartikel eine Schutzschicht aus Al₂O₃ erzeugt werden. Im Falle eines Borats lässt sich Boroxid als Schicht erzeugen.

Patentansprüche

1. Verfahren zum Herstellen einer Beschichtung (3) auf der
Oberfläche (4) eines Pigment- oder Leuchtstoffpartikels
5 (2), **dadurch gekennzeichnet**, dass die Herstellung der
Beschichtung durch chemisches Umwandeln mindestens eines
ursprünglichen Bestandteils des Leuchtstoffpartikels (2)
in mindestens einen Bestandteil der Beschichtung (3)
erfolgt, wobei als ursprünglicher Bestandteil des
10 Leuchtstoffpartikels (2) eine chemische,
nichtmetallische Verbindung verwendet wird.
2. Verfahren nach Anspruch 1, wobei das chemische Umwandeln
des Bestandteils des Partikels (2) in den Bestandteil
15 der Beschichtung (3) folgende Schritte aufweist:
 - a) Chemisches Umwandeln des Bestandteils des Partikels in
mindestens eine Vorstufe des Bestandteils der
Beschichtung (31) und
 - b) Chemisches Umwandeln der Vorstufe des Bestandteils der
20 Beschichtung in den Bestandteil der Beschichtung (32).
3. Verfahren nach Anspruch 2, wobei das chemische Umwandeln
des Bestandteils des Partikels in die Vorstufe des
Bestandteils der Beschichtung und/oder das chemische
25 Umwandeln der Vorstufe des Bestandteils der Beschichtung
in den Bestandteil der Beschichtung in Gegenwart eines
reaktiven Mediums erfolgt.
4. Verfahren nach Anspruch 1, wobei zum chemische Umwandeln
30 des Bestandteils des Partikels in die Vorstufe des
Bestandteils der Beschichtung und/oder zum chemischen
Umwandeln der Vorstufe des Bestandteils der Beschichtung
in den Bestandteil der Beschichtung mindestens eine
Wärmebehandlung, insbesondere Temperung, des Partikels
35 und/oder der Beschichtung durchgeführt wird.

5. Verfahren nach Anspruch 3, wobei ein reaktives Medium zusammen mit einem Hemmstoff verwendet wird, der ein weiteres chemisches Umwandeln eines weiteren Bestandteils des Körpers, der Vorstufe des Bestandteils der Beschichtung und/oder der Beschichtung hemmt.
6. Verfahren nach Anspruch 5, wobei als Bestandteil des Partikels ein Silikat und als Hemmstoff Kieselsäure verwendet wird.
7. Verfahren nach Anspruch 3, wobei ein reaktives Medium mit einem Bestandteil verwendet wird, der in die Beschichtung eingebaut wird.
8. Pulver, bestehend aus Partikeln eines Pigments oder Leuchtstoffs mit einer Beschichtung (3), die durch chemisches Umwandeln mindestens eines Bestandteils des Körpers (2) in mindestens einen Bestandteil der Beschichtung (3) hergestellt ist, **dadurch gekennzeichnet**, dass der Bestandteil des Partikels (2) eine chemische, nichtmetallische Verbindung ist.
9. Pulver nach Anspruch 8, wobei die gesamte Oberfläche der Partikel mit einer Beschichtung mit wechselnder Schichtdicke bedeckt ist, und die Struktur der Beschichtung insbesondere ähnlich rauh und krümelig wie bei einem Blumenkohl ist.
10. Pulver nach Anspruch 8, wobei die Beschichtung (3) eine aus dem nm-Bereich ausgewählte Schichtdicke (5) aufweist, insbesondere 50 bis 1000 nm, insbesondere bis 500 nm.
11. Pulver nach Anspruch 8, wobei die Beschichtung (3) eine Schutzschicht ist.

12. Pulver nach Anspruch 8, wobei die chemische, nichtmetallische Verbindung mindestens ein aus der Gruppe Aluminat und/oder Borat und/oder Silikat ausgewähltes Mischoxid ist.
- 5 13. Pulver nach Anspruch 12, wobei das Silikat ein Chlorid-Silikat ist.
- 10 14. Pulver nach Anspruch 13, wobei das Chlorid-Silikat eine formale Zusammensetzung $\text{Ca}_{8-x}\text{SE}_x\text{Mg}(\text{SiO}_4)_4\text{Cl}_2$ mit $0 \leq x \leq 1$ aufweist, bei dem SE ein Seltenerdelement ist.
- 15 15. Pulver nach Anspruch 14, wobei das Seltenerdelement SE zumindest teilweise durch Mn ersetzt ist.
16. Pulver nach Anspruch 15, wobei das Seltenerdelement Eu ist.
- 20 17. Pulver nach Anspruch 8, wobei der Bestandteil der Beschichtung (3) kondensierte Kieselsäure ist.
- 25 18. LED mit einem Leuchtstoffpulver nach einem der Ansprüche 8 bis 17, wobei der Leuchtstoff einer elektromagnetischen Primärstrahlung ausgesetzt ist und zum teilweisen oder vollständigen Umwandeln der Primärstrahlung (8) der LED in eine elektromagnetische Sekundärstrahlung (9) dient.
- 30 19. Verfahren zum Herstellen einer Beschichtung (3) auf der Oberfläche (4) von nichtmetallischen Werkstoffen, wobei diese Beschichtung bzw. ihre Vorstufe durch die Behandlung des Werkstoffes in einer chemischen Reaktion mit einem reaktiven Medium in einem oder mehreren Schritten entsteht **dadurch gekennzeichnet**, mindestens ein Bestandteil des Werkstoffes in einen wesentlichen Bestandteil der Beschichtung umgewandelt wird.
- 35

20. Verfahren nach Anspruch 19, dadurch gekennzeichnet, dass die Herstellung der Beschichtung durch chemisches Umwandeln mindestens eines ursprünglichen Bestandteils der Oberfläche des Werkstoffs (2) in mindestens einen Bestandteil der Beschichtung (3) erfolgt, wobei als ursprünglicher Bestandteil des Leuchtstoffpartikels (2) eine chemische, nichtmetallische Verbindung verwendet wird.
21. Verfahren nach Anspruch 19, dadurch gekennzeichnet, dass der Werkstoff eine aus der Gruppe Aluminat und/oder Borat und/oder Silikat ausgewählte Verbindung ist, insbesondere Alkali- und/oder Erdalkalisilikate oder Alkali- und/oder Erdalkalialuminate bzw. Mischungen davon.
22. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, dass Alkali- und/oder Erdalkalielemente durch Hauptgruppenelemente wie Sb, Sn und/oder Pb, Nebengruppenelemente wie Mn, Zn und/oder Cd oder Seltenerdelemente (SE) wie Europium teilweise oder vollständig substituiert sind.
23. Verfahren nach Anspruch 21, dadurch gekennzeichnet, dass Al oder Si der genannten Silikate oder Aluminate durch Ga oder In bzw. Ge, Sn, P, Pb und/oder durch die Nebengruppenelemente Ti, Zr, V, Nb, Ta, Cr, Mo und Wolfram teilweise oder vollständig substituiert sind.
24. Verfahren nach Anspruch 21, dadurch gekennzeichnet, dass der Sauerstoff O der genannten Verbindungen durch N, P, PO_4^{3-} , S, SO_3^{2-} , SO_4^{2-} , F, Cl, Br, oder I ganz oder teilweise ersetzt ist.

FIG 1

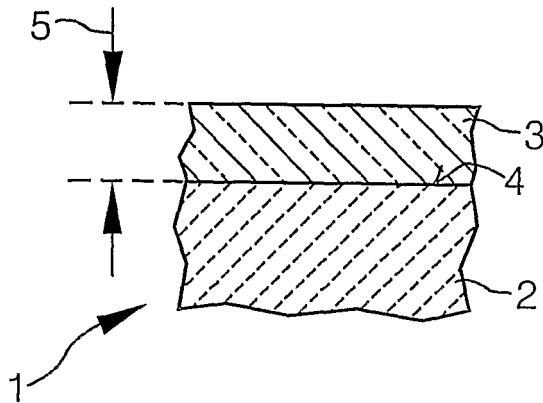


FIG 2

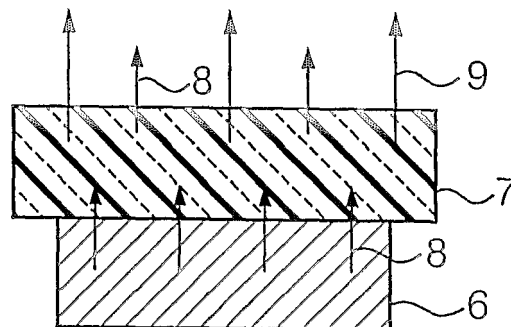
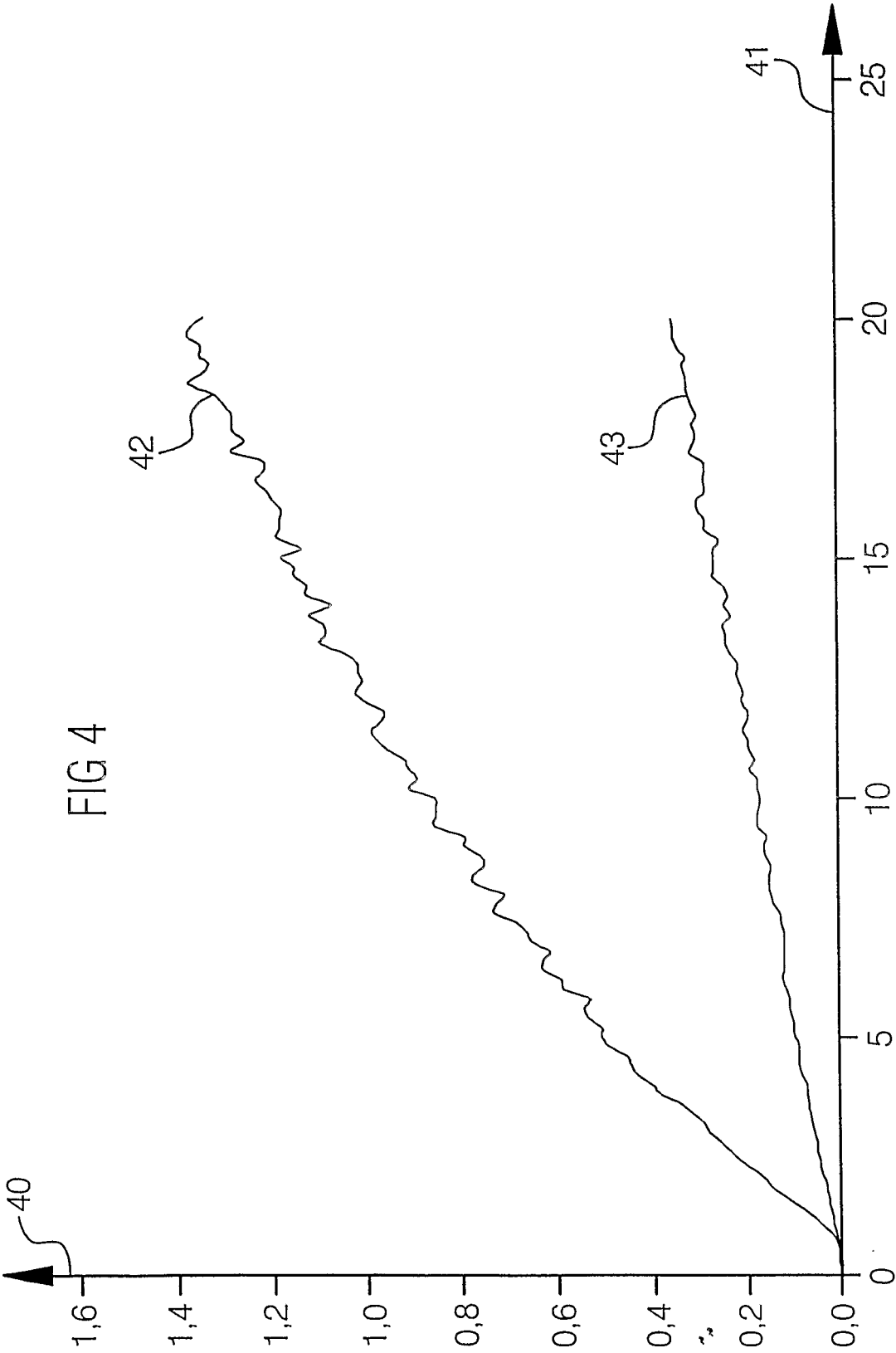


FIG 3

Umwandeln des Bestandteils des Körpers in
eine Vorstufe des Bestandteils der Beschichtung 31

Umwandeln der Vorstufe des Bestandteils der
Beschichtung in den Bestandteil der Beschichtung 32



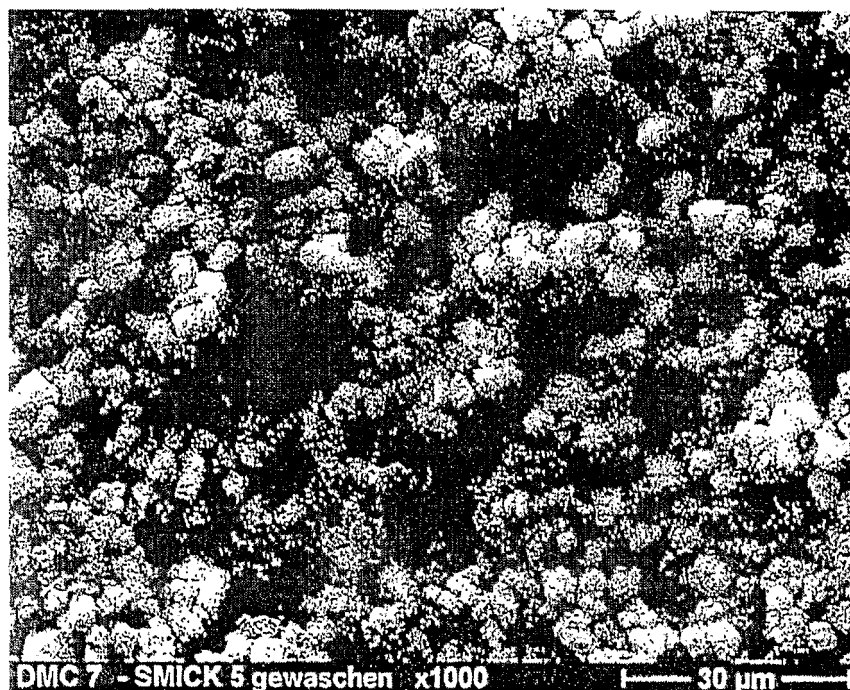


FIG 5a

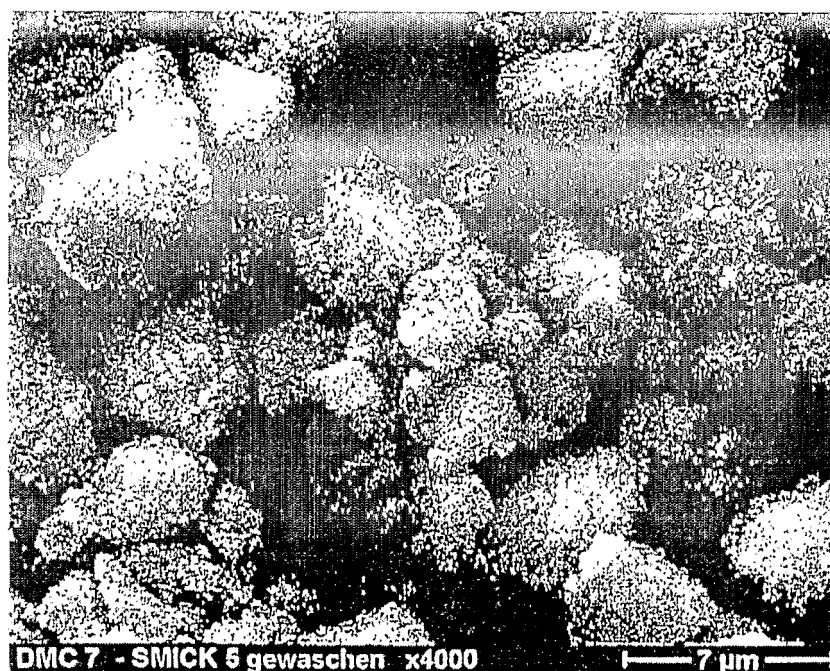


FIG 5b

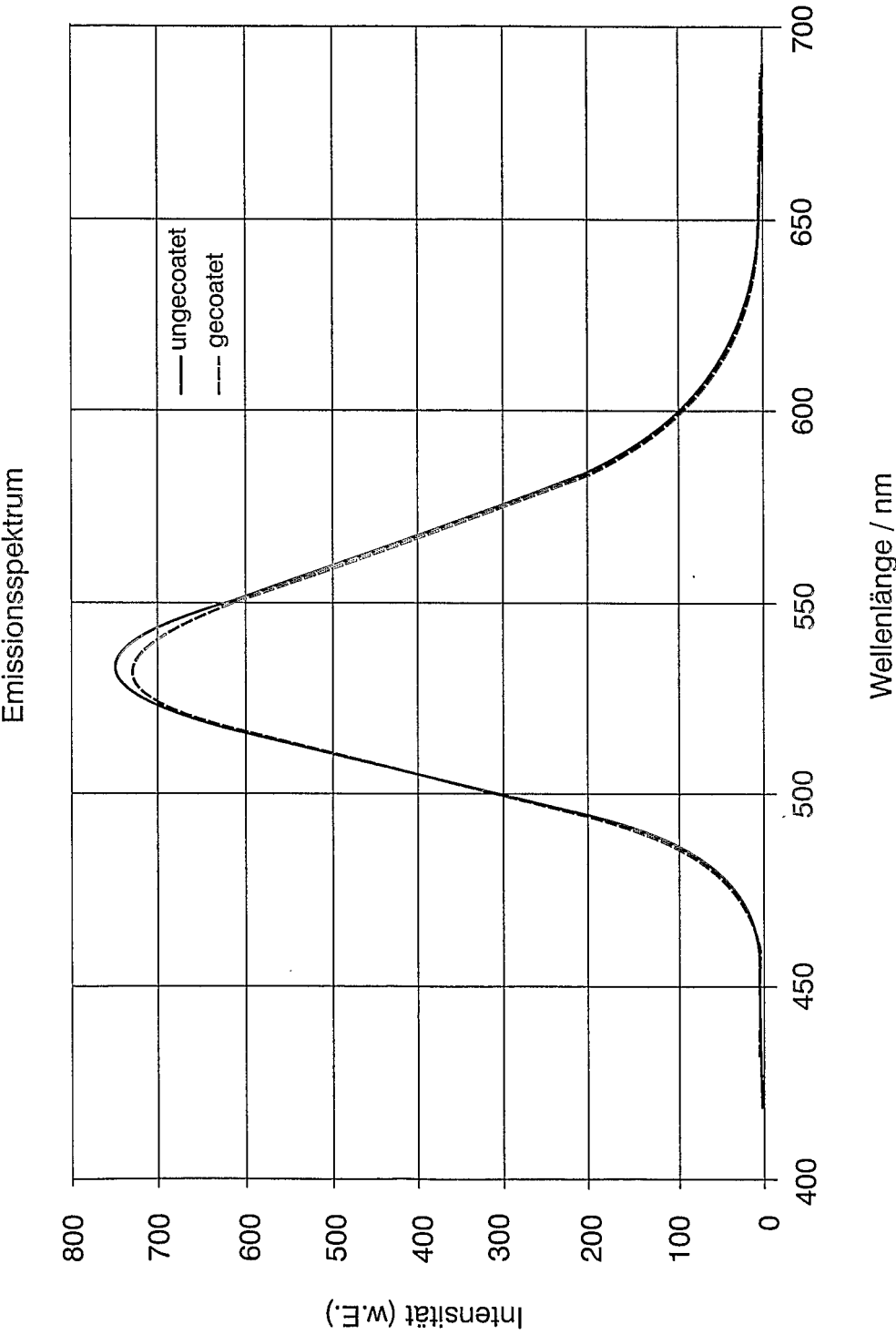


FIG 6a

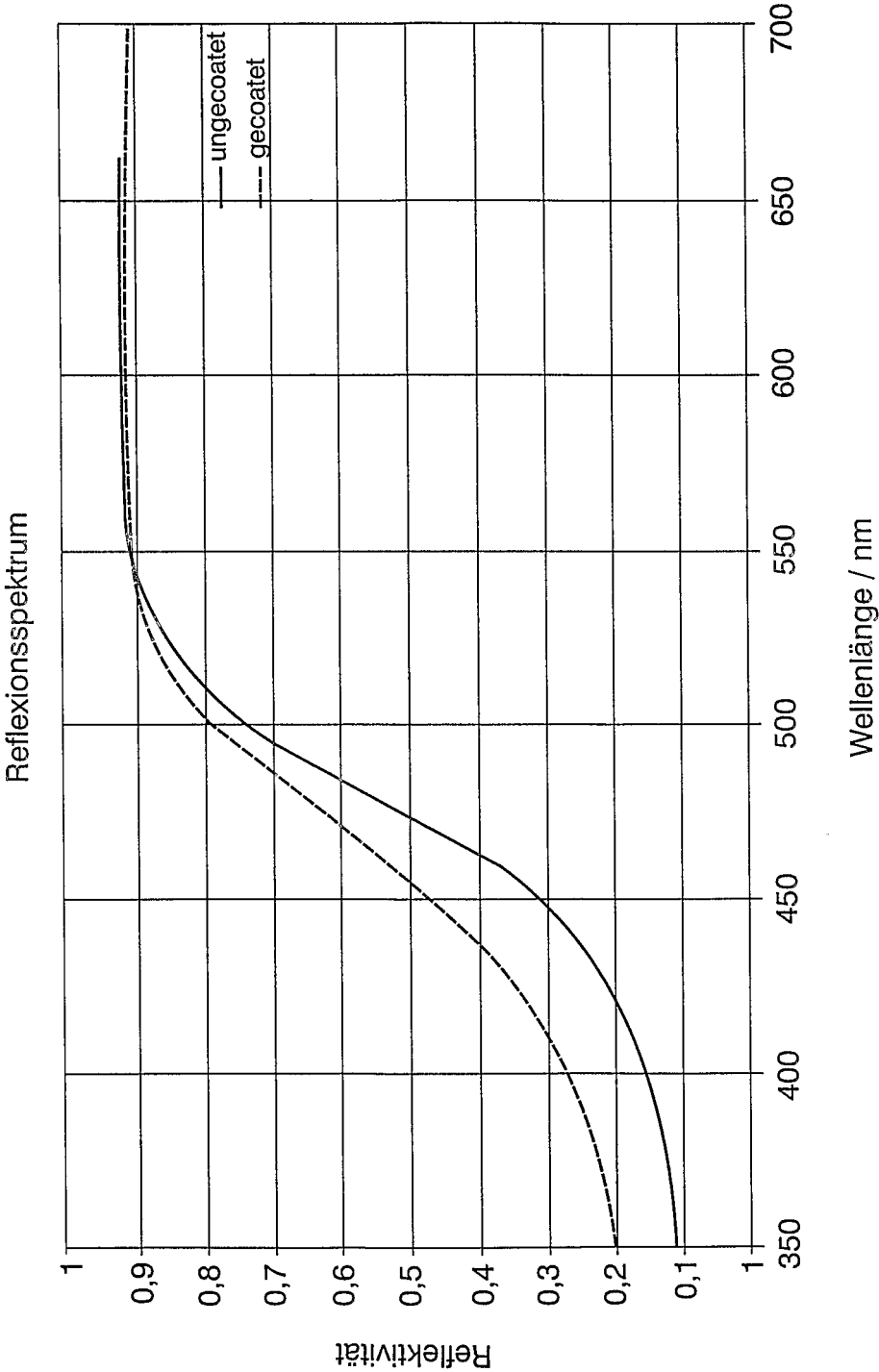


FIG 6b

PCT-ANTRAG

Original (für EINREICHUNG)

VIII-3-1	Erklärung: Berechtigung, Priorität zu beanspruchen Erklärung hinsichtlich der Berechtigung des Anmelders, zum Zeitpunkt des internationalen Anmeldedatums, eine Priorität zu beanspruchen, in Fällen, in denen der Anmelder nicht der Anmelder der früheren Anmeldung, deren Priorität beansprucht wird, ist oder in Fällen, in denen sich der Name des Anmelders seit dem Einreichen der früheren Anmeldung geändert hat (Regeln 4.17 Ziffer iii und 51bis.1 Absatz a Ziffer iii): Name	In bezug auf diese internationale Anmeldung OSRAM OPTO SEMICONDUCTORS GMBH ist kraft des nachfolgend Aufgeführten berechtigt, die Priorität der früheren Anmeldung Nr. 103 14 168.5 zu beanspruchen:
VIII-3-1(vii)		Übertragung der Berechtigung von SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT an OSRAM OPTO SEMICONDUCTORS GMBH im Wege der(des) Prioritätsrechtsübertragung, datiert 25. Februar 2004 (25.02.2004)
VIII-3-1(x)	Diese Erklärung wird abgegeben im Hinblick auf	alle Bestimmungsstaaten

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/DE2004/000632

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC 7 C09K11/08

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 C09K

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

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ, INSPEC, COMPENDEX, CHEM ABS Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	US 2003/006469 A1 (JERMANN FRANK ET AL) 9 January 2003 (2003-01-09) the whole document	12-17, 21-24
Y	WO 01/93341 A (PATRA PATENT TREUHAND ; JERMANN FRANK (DE); ELLENS ANDRIES (DE); OSRAM) 6 December 2001 (2001-12-06) the whole document	12-17, 21-24
Y	LIN H ET AL: "Sensitized luminescence and energy transfer in Ce<3+> and Eu<2+> codoped calcium magnesium chlorosilicate" OPTICAL MATERIALS, ELSEVIER SCIENCE PUBLISHERS B.V. AMSTERDAM, NL, vol. 18, no. 4, January 2002 (2002-01), pages 397-401, XP004324304 ISSN: 0925-3467 the whole document	12-17, 21-24
	----- -/--	

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

A document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

E earlier document but published on or after the international filing date

L document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

O document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

P document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

T later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

X document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

Y document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

G document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

3 September 2004

Date of mailing of the international search report

14/09/2004

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Doslik, N

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/DE2004/000632

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	KR 93 009 265 B (SAMSUNG ELECTRONIC DEVICES) 25 September 1993 (1993-09-25) abstract -----	12-17, 21-24
Y	EP 1 288 265 A (SICPA HOLDING SA) 5 March 2003 (2003-03-05) the whole document -----	12-17, 21-24
Y	D.F. PEPPARD ET. AL.: "Preparation and synthetic applications of alkyl chlorosilicates" J. AM. CHEM. SOC., vol. 68, 1946, pages 70-72, XP002292434 the whole document -----	12-17, 21-24
A	US 6 193 908 B1 (KODAS TOIVO T ET AL) 27 February 2001 (2001-02-27) the whole document -----	12-17, 21-24

Continuation of Box II.2

Claims 1-11 and 18-20

The current claims 1-11 and 18-20 relate to an inordinately large number of possible compounds/products/methods. In fact the number of alternatives and possible permutations is such that the claims are too unclear and too broadly worded (PCT Article 6) to allow a meaningful search to be carried out. The search was therefore directed to the parts of the claims that can be considered clear and concise, namely dependent claims 12-17 and 21-24, particularly in conjunction with the examples disclosed in the description, although with the exception of exemplary embodiment 4 the examples too are inadequately disclosed because the "luminous substance powder" is not defined in terms of its chemistry.

Dependent claim 9 relates to the following parameter: "the texture of the coating is rough and crumbly like that of a cauliflower". In this context the inclusion of such a parameter must be seen as resulting in a lack of clarity (PCT Article 6). The parameter chosen by the applicant cannot be compared with what is disclosed by the prior art in this respect. The lack of clarity is such that it is also unclear whether visually similar agrarian products (e.g. broccoli and calabrese) would also fall within the scope of protection. If so, then parameters which become apparent in relation to the decay of the agrarian product over time would also have to be taken into consideration.

The applicant is advised that claims relating to inventions in respect of which no international search report has been established cannot normally be the subject of an international preliminary examination (PCT Rule 66.1(e)). In its capacity as International Preliminary Examining Authority the EPO generally will not carry out a preliminary examination for subjects that have not been searched. This also applies to cases where the claims were amended after receipt of the international search report (PCT Article 19) or where the applicant submits new claims in the course of the procedure under PCT Chapter II. However, after entry into the regional phase before the EPO an additional search may be carried out in the course of the examination (cf. EPO Guidelines, Part C, VI, 8.5) if the deficiencies that led to the declaration under PCT Article 17(2) have been corrected.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No
PCT/DE2004/000632

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 2003006469 A1	09-01-2003	DE 10026435 A1	18-04-2002
		DE 20108013 U1	02-08-2001
		CA 2380444 A1	06-12-2001
		CA 2410668 A1	27-11-2002
		CN 1381072 T	20-11-2002
		CN 1432198 T	23-07-2003
		WO 0193341 A1	06-12-2001
		WO 0193342 A1	06-12-2001
		EP 1285467 A1	26-02-2003
		EP 1206802 A1	22-05-2002
		JP 2003535477 T	25-11-2003
		JP 2003535478 T	25-11-2003
		TW 554030 B	21-09-2003
		TW 555832 B	01-10-2003
		US 2003146690 A1	07-08-2003
WO 0193341 A	06-12-2001	DE 10026435 A1	18-04-2002
		CA 2380444 A1	06-12-2001
		CA 2410668 A1	27-11-2002
		CN 1381072 T	20-11-2002
		CN 1432198 T	23-07-2003
		WO 0193341 A1	06-12-2001
		WO 0193342 A1	06-12-2001
		EP 1285467 A1	26-02-2003
		EP 1206802 A1	22-05-2002
		JP 2003535477 T	25-11-2003
		JP 2003535478 T	25-11-2003
		TW 554030 B	21-09-2003
		TW 555832 B	01-10-2003
		US 2003006469 A1	09-01-2003
		US 2003146690 A1	07-08-2003
KR 93009265 B		NONE	
EP 1288265 A	05-03-2003	EP 1288265 A1	05-03-2003
		CA 2457862 A1	13-03-2003
		WO 03020834 A1	13-03-2003
		EP 1421143 A1	26-05-2004
US 6193908 B1	27-02-2001	US 6180029 B1	30-01-2001
		US 6153123 A	28-11-2000
		US 6338809 B1	15-01-2002
		AU 6021299 A	21-03-2000
		CA 2345300 A1	09-03-2000
		EP 1127098 A1	29-08-2001
		JP 2002523610 T	30-07-2002
		WO 0012649 A1	09-03-2000
		US 2001052589 A1	20-12-2001
		US 6197218 B1	06-03-2001
		US 6168731 B1	02-01-2001
		US 2004080256 A1	29-04-2004
		US 2001042853 A1	22-11-2001
		US 2003168635 A1	11-09-2003
		US 6210604 B1	03-04-2001
		US 6645398 B1	11-11-2003
		AU 2973499 A	06-09-1999
		US 2002160685 A1	31-10-2002
		WO 9942200 A1	26-08-1999

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/DE2004/000632

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 6193908	B1	US 6360562 B1	26-03-2002
		US 6103393 A	15-08-2000
		US 2002189400 A1	19-12-2002
		US 2002192540 A1	19-12-2002
		US 2002192368 A1	19-12-2002
		US 2003006517 A1	09-01-2003
		US 2003181321 A1	25-09-2003
		US 2003013606 A1	16-01-2003
		US 2003144134 A1	31-07-2003
		US 2003130114 A1	10-07-2003
		US 2003054218 A1	20-03-2003
		US 2003064265 A1	03-04-2003
		US 2003118884 A1	26-06-2003
		US 6660680 B1	09-12-2003
		US 6753108 B1	22-06-2004
		US 6780350 B1	24-08-2004
		US 6635348 B1	21-10-2003
		US 2002168570 A1	14-11-2002

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE2004/000632

A. KLASSTIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 C09K11/08

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

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 C09K

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

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

EPO-Internal, WPI Data, PAJ, INSPEC, COMPENDEX, CHEM ABS Data

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie ^o	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	US 2003/006469 A1 (JERMANN FRANK ET AL) 9. Januar 2003 (2003-01-09) das ganze Dokument	12-17, 21-24
Y	WO 01/93341 A (PATRA PATENT TREUHAND ; JERMANN FRANK (DE); ELLENS ANDRIES (DE); OSRAM) 6. Dezember 2001 (2001-12-06) das ganze Dokument	12-17, 21-24
Y	LIN H ET AL: "Sensitized luminescence and energy transfer in Ce<3+> and Eu<2+> codoped calcium magnesium chlorosilicate" OPTICAL MATERIALS, ELSEVIER SCIENCE PUBLISHERS B.V. AMSTERDAM, NL, Bd. 18, Nr. 4, Januar 2002 (2002-01), Seiten 397-401, XP004324304 ISSN: 0925-3467 das ganze Dokument	12-17, 21-24
-/--		

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

^o Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

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

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

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

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

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

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

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

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

Z Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

3. September 2004

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

14/09/2004

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Doslik, N

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE2004/000632

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	KR 93 009 265 B (SAMSUNG ELECTRONIC DEVICES) 25. September 1993 (1993-09-25) Zusammenfassung -----	12-17, 21-24
Y	EP 1 288 265 A (SICPA HOLDING SA) 5. März 2003 (2003-03-05) das ganze Dokument -----	12-17, 21-24
Y	D.F. PEPPARD ET. AL.: "Preparation and synthetic applications of alkyl chlorosilicates" J. AM. CHEM. SOC., Bd. 68, 1946, Seiten 70-72, XP002292434 das ganze Dokument -----	12-17, 21-24
A	US 6 193 908 B1 (KODAS TOIVO T ET AL) 27. Februar 2001 (2001-02-27) das ganze Dokument -----	12-17, 21-24

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

internationales Aktenzeichen
PCT/DE2004/000632

Feld II Bemerkungen zu den Ansprüchen, die sich als nicht recherchierbar erwiesen haben (Fortsetzung von Punkt 2 auf Blatt 1)

Gemäß Artikel 17(2)a) wurde aus folgenden Gründen für bestimmte Ansprüche kein Recherchenbericht erstellt:

1. ☐ Ansprüche Nr.
weil sie sich auf Gegenstände beziehen, zu deren Recherche die Behörde nicht verpflichtet ist, nämlich
2. ☒ Ansprüche Nr. 1-11, 18-20
weil sie sich auf Teile der internationalen Anmeldung beziehen, die den vorgeschriebenen Anforderungen so wenig entsprechen, daß eine sinnvolle internationale Recherche nicht durchgeführt werden kann, nämlich
siehe BEIBLATT PCT/ISA/210
3. ☐ Ansprüche Nr.
weil es sich dabei um abhängige Ansprüche handelt, die nicht entsprechend Satz 2 und 3 der Regel 6.4 a) abgefaßt sind.

Feld III Bemerkungen bei mangelnder Einheitlichkeit der Erfindung (Fortsetzung von Punkt 3 auf Blatt 1)

Die internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, daß diese internationale Anmeldung mehrere Erfindungen enthält:

1. ☐ Da der Anmelder alle erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht auf alle recherchierbaren Ansprüche.
2. ☐ Da für alle recherchierbaren Ansprüche die Recherche ohne einen Arbeitsaufwand durchgeführt werden konnte, der eine zusätzliche Recherchegebühr gerechtfertigt hätte, hat die Behörde nicht zur Zahlung einer solchen Gebühr aufgefordert.
3. ☐ Da der Anmelder nur einige der erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht nur auf die Ansprüche, für die Gebühren entrichtet worden sind, nämlich auf die Ansprüche Nr.
4. ☐ Der Anmelder hat die erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren nicht rechtzeitig entrichtet. Der internationale Recherchenbericht beschränkt sich daher auf die in den Ansprüchen zuerst erwähnte Erfindung; diese ist in folgenden Ansprüchen erfaßt:

Bemerkungen hinsichtlich eines Widerspruchs

- ☐ Die zusätzlichen Gebühren wurden vom Anmelder unter Widerspruch gezahlt.
- ☐ Die Zahlung zusätzlicher Recherchegebühren erfolgte ohne Widerspruch.

WEITERE ANGABEN

PCT/ISA/ 210

Fortsetzung von Feld II.2

Ansprüche Nr.: 1-11,18-20

Die geltenden Patentansprüche 1-11 und 18-20 beziehen sich auf eine unverhältnismässig grosse Zahl möglicher Verbindungen/Produkte/Verfahren. In der Tat umfassen sie so viele Wahlmöglichkeiten und mögliche Permutationen, dass sie im Sinne von Artikels 6 PCT in einer solchen Masse unklar oder zu weitläufig gefasst erscheinen, als dass sie eine sinnvolle Recherche ermöglichen.

Daher wurde die Recherche auf die Teile der Patentansprüche gerichtet, die als klar und knapp gefasst gelten können, nämlich die abhängigen Ansprüche 12-17 und 21-24 – diese jedoch vor allem im Hinblick auf die in der Beschreibung offenbarten Beispiele. Jedoch sind auch die Beispiele, ausser Ausführungsbeispiel Nr.4, nicht ausreichend offenbart, da das "Leuchtstoffpulver" nicht näher chemisch definiert ist.

Der abhängige Patentanspruch 9 bezieht sich auf folgenden Parameter: "die Struktur der Beschichtung ist ähnlich rau und krümelig wie bei einem Blumenkohl".

Die Verwendung dieses Parameter muss im gegebenen Zusammenhang als Mangel an Klarheit im Sinne von Artikels 6 PCT erscheinen. Es ist unmöglich, die vom Anmelder gewählten Parameter mit dem zu vergleichen, was der Stand der Technik hierzu offenbart. Der Mangel an Klarheit ist dergestalt, dass es auch unklar ist, ob visuell artverwandte Agrarprodukte wie z.B. Brokkoli oder Calabrese auch in den Schutzbereich fallen würden. In diesem Falle wären Parameter, die sich in der Relation zum zeitabhängigen Schwundverhalten des Agrarprodukts manifestieren, ebenfalls zwingend in Betracht zu ziehen.

Der Anmelder wird darauf hingewiesen, dass Patentansprüche auf Erfindungen, für die kein internationaler Recherchenbericht erstellt wurde, normalerweise nicht Gegenstand einer internationalen vorläufigen Prüfung sein können (Regel 66.1(e) PCT). In seiner Eigenschaft als mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragte Behörde wird das EPA also in der Regel keine vorläufige Prüfung für Gegenstände durchführen, zu denen keine Recherche vorliegt. Dies gilt auch für den Fall, dass die Patentansprüche nach Erhalt des internationalen Recherchenberichtes geändert wurden (Art. 19 PCT), oder für den Fall, dass der Anmelder im Zuge des Verfahrens gemäss Kapitel II PCT neue Patentansprüche vorlegt. Nach Eintritt in die regionale Phase vor dem EPA kann jedoch im Zuge der Prüfung eine weitere Recherche durchgeführt werden (Vgl. EPA-Richtlinien C-VI, 8.5), sollten die Mängel behoben sein, die zu der Erklärung gemäss Art. 17 (2) PCT geführt haben.

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE2004/000632

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 2003006469 A1	09-01-2003	DE 10026435 A1	18-04-2002
		DE 20108013 U1	02-08-2001
		CA 2380444 A1	06-12-2001
		CA 2410668 A1	27-11-2002
		CN 1381072 T	20-11-2002
		CN 1432198 T	23-07-2003
		WO 0193341 A1	06-12-2001
		WO 0193342 A1	06-12-2001
		EP 1285467 A1	26-02-2003
		EP 1206802 A1	22-05-2002
		JP 2003535477 T	25-11-2003
		JP 2003535478 T	25-11-2003
		TW 554030 B	21-09-2003
		TW 555832 B	01-10-2003
		US 2003146690 A1	07-08-2003
WO 0193341 A	06-12-2001	DE 10026435 A1	18-04-2002
		CA 2380444 A1	06-12-2001
		CA 2410668 A1	27-11-2002
		CN 1381072 T	20-11-2002
		CN 1432198 T	23-07-2003
		WO 0193341 A1	06-12-2001
		WO 0193342 A1	06-12-2001
		EP 1285467 A1	26-02-2003
		EP 1206802 A1	22-05-2002
		JP 2003535477 T	25-11-2003
		JP 2003535478 T	25-11-2003
		TW 554030 B	21-09-2003
		TW 555832 B	01-10-2003
		US 2003006469 A1	09-01-2003
		US 2003146690 A1	07-08-2003
KR 93009265 B		KEINE	
EP 1288265 A	05-03-2003	EP 1288265 A1	05-03-2003
		CA 2457862 A1	13-03-2003
		WO 03020834 A1	13-03-2003
		EP 1421143 A1	26-05-2004
US 6193908 B1	27-02-2001	US 6180029 B1	30-01-2001
		US 6153123 A	28-11-2000
		US 6338809 B1	15-01-2002
		AU 6021299 A	21-03-2000
		CA 2345300 A1	09-03-2000
		EP 1127098 A1	29-08-2001
		JP 2002523610 T	30-07-2002
		WO 0012649 A1	09-03-2000
		US 2001052589 A1	20-12-2001
		US 6197218 B1	06-03-2001
		US 6168731 B1	02-01-2001
		US 2004080256 A1	29-04-2004
		US 2001042853 A1	22-11-2001
		US 2003168635 A1	11-09-2003
		US 6210604 B1	03-04-2001
		US 6645398 B1	11-11-2003
		AU 2973499 A	06-09-1999
		US 2002160685 A1	31-10-2002
		WO 9942200 A1	26-08-1999

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE2004/000632

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 6193908	B1	US 6360562 B1	26-03-2002
		US 6103393 A	15-08-2000
		US 2002189400 A1	19-12-2002
		US 2002192540 A1	19-12-2002
		US 2002192368 A1	19-12-2002
		US 2003006517 A1	09-01-2003
		US 2003181321 A1	25-09-2003
		US 2003013606 A1	16-01-2003
		US 2003144134 A1	31-07-2003
		US 2003130114 A1	10-07-2003
		US 2003054218 A1	20-03-2003
		US 2003064265 A1	03-04-2003
		US 2003118884 A1	26-06-2003
		US 6660680 B1	09-12-2003
		US 6753108 B1	22-06-2004
		US 6780350 B1	24-08-2004
		US 6635348 B1	21-10-2003
		US 2002168570 A1	14-11-2002

专利名称(译)	在颗粒表面或材料表面上制备涂层的方法和相应的产品		
公开(公告)号	EP1608720A1	公开(公告)日	2005-12-28
申请号	EP2004723505	申请日	2004-03-26
[标]申请(专利权)人(译)	奥斯拉姆奥普托半导体有限责任公司		
申请(专利权)人(译)	欧司朗光电半导体公司		
当前申请(专利权)人(译)	欧司朗光电半导体公司		
[标]发明人	GRAMPEIX HELEN KOBUSCH MANFRED LIEPOLD UTE		
发明人	GRAMPEIX, HELEN KOBUSCH, MANFRED LIEPOLD, UTE		
IPC分类号	C09K11/08 H01L33/50		
CPC分类号	C09K11/08 H01L33/502 H01L2933/0041 Y10T428/2991		
优先权	10314168 2003-03-28 DE		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

本发明涉及一种通过将至少一种身体成分化学转化为至少一种成分的方法，在身体 (2) 的表面的至少一个部分 (4) 上制备至少一个涂层 (3) 的方法。涂层。该方法的特征在于化学非金属化合物形成身体的组成部分。该方法可以描述为“固有的”涂覆方法，因为涂覆过程不是通过将材料外部施加到表面部分，而是通过主体成分的材料转化来进行的。该方法允许生产包括至少一个表面部分的主体，该表面具有至少一个涂层，该涂层通过将主体的至少一种成分化学转化成涂层的至少一种成分而形成。该主体的特征在于，主体的成分是化学非金属化合物，例如氯化硅酸盐，其以发光颗粒的形式用作发光体 (7) 中的发光物质。 - 发光二极管 (LED)。该涂层通过水合或水解保护发光物质免于分解。与现有技术中的类似物质相比，发光物质的特征在于改善的长期稳定性。