



(12) BẢN MÔ TẢ SÁNG CHẾ THUỘC BẰNG ĐỘC QUYỀN SÁNG CHẾ

(19) Cộng hòa xã hội chủ nghĩa Việt Nam (VN)
CỤC SỞ HỮU TRÍ TUỆ

(11)



1-0041542

(51)^{2022.01} C09K 11/77; C01F 17/30; H01L 33/50; (13) B
C09K 11/88; C01B 19/00; C01G 15/00

(21) 1-2019-06552

(22) 05/03/2018

(86) PCT/US2018/020914 05/03/2018

(87) WO2018/200074 01/11/2018

(30) 62/491,552 28/04/2017 US; 15/591,629 10/05/2017 US

(45) 25/10/2024 439

(43) 25/02/2020 383A

(73) CURRENT LIGHTING SOLUTIONS, LLC (US)

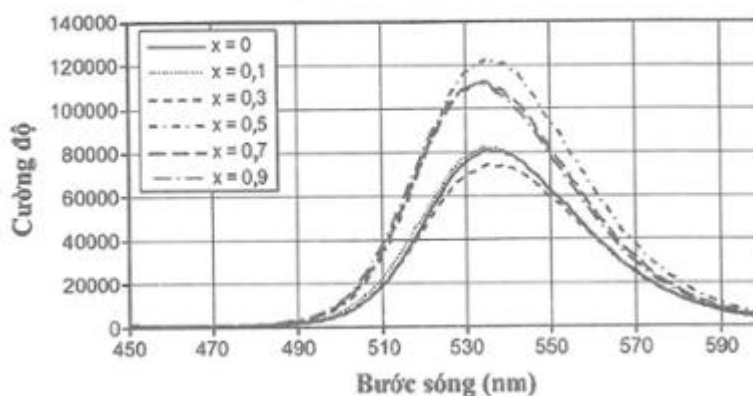
1975 Noble Rd, Building 338, Nela Park, East Cleveland, Ohio 44112, United States of America

(72) Evan THOMAS (US); Kristen BAROUDI (US); Yong Bok GO (US); Robert NORDSELL (US); Jonathan MELMAN (US).

(74) Công ty Luật TNHH T&G (TGVN)

(54) CHẾ PHẨM PHÁT QUANG, VÀ THIẾT BỊ PHÁT SÁNG CHỨA CHẾ PHẨM PHÁT QUANG

(57) Sáng chế đề cập tới chế phẩm phát quang của chất được đặc trưng bởi công thức $RE_{2+x}E_y$, trong đó RE có thể là một hoặc nhiều nguyên tố đất hiếm (ví dụ, Eu hoặc Gd), M có thể là một hoặc nhiều nguyên tố được chọn từ nhóm Al, Ga, B, In, Sc, Lu, và Y; E là một hoặc nhiều nguyên tố được chọn từ nhóm S, Se, O, và Te; x là lớn hơn không; và y có trị số đạt được cân bằng điện tích trong công thức, giả sử rằng E có điện tích là -2. Sáng chế còn đề cập tới thiết bị phát sáng chứa chế phẩm phát quang.



Lĩnh vực kỹ thuật được đề cập

Sáng chế này đề cập chung tới các chất huỳnh quang có việc phát xạ xanh lục hẹp.

Tình trạng kỹ thuật của sáng chế

Các chất huỳnh quang thiogalat kiềm thổ và thioaluminat kiềm thổ được kích hoạt với europium là đã biết trong tình trạng kỹ thuật cho cả các hệ thống điện phát quang và các hệ thống LED được biến đổi chất huỳnh quang. Các vật liệu này sẵn sàng để hấp thụ việc phát xạ từ các nguồn sáng phát sáng xanh lam, tím, hoặc cận UV như các diot phát sáng InGaN chung. Các vật liệu chất huỳnh quang xanh lục thông thường này có thể được sử dụng một cách độc lập để sinh ra ánh sáng xanh lục, hoặc chúng có thể được kết hợp với các vật liệu chất huỳnh quang khác để sinh ra ánh sáng trắng hoặc ánh sáng được tạo màu khác. Một cách tương tự, các vật liệu chất huỳnh quang xanh lục có thể được kết hợp, ví dụ, với LED xanh lam hoặc LED khác và chất huỳnh quang đỏ để sinh ra bộ phận chiếu sáng nền cho bộ phận hiển thị, như điện thoại di động, máy tính bảng, máy tính xách tay, màn hình, hoặc tivi.

Trong việc chiếu sáng chung, thường mong muốn để có các phổ phát xạ rộng để cải thiện chỉ số phục hồi màu hoặc chất lượng của các thông số ánh sáng khác, như CQS hoặc TM-30-15. Tuy nhiên, đôi khi trong việc chiếu sáng, mong muốn tạo ra ánh sáng phụ trong các vùng bước sóng cụ thể để nhấn một số đặc điểm cụ thể; ví dụ, các vỏ hiển thị của cửa hàng tạp phẩm cho thịt bò có thể chứa ánh sáng phụ trong vùng đỏ của phổ, một cách tương tự, rau spinach hoặc các giấy xanh lục có thể trông hấp dẫn hơn khi việc chiếu sáng tạo thêm ánh sáng phụ trong các bước sóng xanh lục cụ thể.

Trong việc chiếu sáng nền bộ phận hiển thị, mong đợi hơn là có bước sóng phát xạ hẹp để màu (a) xuất hiện bão hòa hơn và làm rộng đỉnh xanh lục của gam màu, và (b) duy trì các tổn thất ít hơn khi đi qua bộ lọc xanh lục của hệ thống bộ lọc LCD

thông thường, do phần lớn cường độ của nó được sắp thẳng với độ truyền qua cao nhất của bộ lọc.

Bản chất kỹ thuật của sáng chế

Các chất huỳnh quang theo sáng chế này giải quyết thách thức của việc trợ giúp việc làm bão hòa, theo cách ưu tiên, cho các vùng xanh lục cụ thể của các phổ phát xạ cho các ứng dụng chiếu sáng và để cải thiện điểm gam màu xanh lục của bộ phận đèn nền bộ phận hiển thị bằng cách tạo ra hợp phần chất huỳnh quang với các phổ phát xạ xanh lục tương đối hẹp.

Mô tả vắn tắt các hình vẽ

Fig.1 là đồ thị thể hiện các điểm màu xy CIE của các chất huỳnh quang sẵn có trên thị trường làm ví dụ, các điểm gam màu xanh lục từ gam màu NTSC và gam màu DCI-P3, và việc phát xạ từ các chất huỳnh quang làm ví dụ của sáng chế này đạt đỉnh tại 530 nm và 537 nm.

Các hình vẽ từ Fig.2A đến Fig.2C một cách tương ứng, thể hiện các phổ phát xạ, các phổ kích thích, và mẫu nhiễu xạ bột tia X cho $\text{EuAl}_{2,133}\text{B}_{0,567}\text{S}_{5,05}$.

Các hình vẽ Fig.3A và Fig.3B một cách tương ứng thể hiện các phổ phát xạ và các phổ kích thích cho $\text{EuAl}_{2,322}\text{Lu}_{0,378}\text{S}_{5,05}$.

Các hình vẽ từ Fig.4A đến Fig.4C một cách tương ứng thể hiện, phổ phát xạ, phổ kích thích, và các mẫu nhiễu xạ bột tia X cho $\text{Eu}(\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6})_{2+x}\text{S}_y$ với $x = 0, 0,1, 0,3, 0,5, 0,7, \text{ và } 0,9$.

Các hình vẽ Fig.5A và Fig.5B một cách tương ứng thể hiện phổ phát xạ và phổ kích thích cho EuAl_2Se_4 , $\text{EuAl}_{2,4}\text{Se}_{4,6}$, $\text{EuAl}_{2,4}\text{Se}_{3,6}\text{S}$, và $\text{EuAl}_{2,7}\text{Se}_{5,05}$.

Fig.6 thể hiện các phổ phát xạ cho $\text{EuAl}_{2,07}\text{In}_{0,23}\text{S}_{4,45}$.

Fig.7 thể hiện các phổ phát xạ cho $\text{EuAl}_{1,84}\text{In}_{0,46}\text{S}_{4,45}$.

Fig.8 thể hiện các phổ phát xạ cho $\text{EuAl}_{1,61}\text{Ga}_{0,23}\text{In}_{0,46}\text{S}_{4,45}$.

Fig.9 thể hiện các phổ phát xạ cho LED được biến đổi chất huỳnh quang làm ví dụ.

Fig.10 thể hiện các phổ phát xạ cho LED được biến đổi chất huỳnh quang làm ví dụ khác.

Fig.11 thể hiện các phổ phát xạ cho LED được biến đổi chất huỳnh quang làm ví dụ khác.

Fig.12 thể hiện các phổ phát xạ cho LED được biến đổi chất huỳnh quang làm ví dụ trên Fig.11 được phủ với các bộ lọc màu làm ví dụ.

Mô tả chi tiết sáng chế

Phần mô tả chi tiết dưới đây nên được đọc với tham khảo tới các hình vẽ, vốn mô tả các phương án thực hiện chọn lọc và không nhằm làm hạn chế phạm vi bảo hộ của sáng chế. Phần mô tả chi tiết minh họa theo cách làm ví dụ, không theo cách làm hạn chế, các nguyên tắc của sáng chế. Phần mô tả này sẽ rõ ràng là cho phép người có hiểu biết trung bình về lĩnh vực này tạo và sử dụng sáng chế, và mô tả nhiều phương án thực hiện, các phương án tương thích, các thay đổi, các phương án thay thế và các sử dụng khác nhau của sáng chế, bao gồm phần hiện được tin là phương án thực hiện được ưu tiên để thực hiện sáng chế. Như được sử dụng trong bản mô tả này và trong các yêu cầu bảo hộ kèm theo, các dạng số ít “một,” “cái,” và “chiếc” chứa cả các tham chiếu số nhiều, trừ khi văn cảnh chỉ ra rõ ràng theo cách khác.

Các chất huỳnh quang theo sáng chế này phát ánh sáng xanh lục qua khoảng giới hạn tương đối hẹp của các bước sóng phát xạ đáp lại việc kích thích với, ví dụ, ánh sáng cực tím, tím, xanh lam, hoặc xanh lục bước sóng ngắn. Việc phát xạ hẹp của chúng có thể xuất hiện được bão hòa hơn và làm rộng đỉnh xanh lục của gam màu khi so sánh với các chất huỳnh quang xanh lục sẵn có trên thị trường. Như là một ví dụ của ưu điểm này, Fig.1 thể hiện các điểm màu xy CIE của các chất huỳnh quang sẵn có trên thị trường làm ví dụ như LuAGs và các silicat đạt đỉnh tại 525 nm, 530 nm, và 540 nm (như ví dụ sẵn có từ Intematix Corporation, Fremont, CA, theo các số sản phẩm GAL525, GAL530, GAL540, EG2762, EG3261, và EG3759), các điểm gam màu xanh lục từ gam màu NTSC và gam màu DCI-P3, và việc phát xạ từ các chất huỳnh quang làm ví dụ của sáng chế đạt đỉnh tại 530 nm và 537 nm.

Các chất huỳnh quang theo sáng chế có chế phẩm thực nghiệm $REM_{2+x}E_y$, trong

đó RE có thể là một hoặc nhiều nguyên tố đất hiếm (ví dụ, Eu hoặc Gd), M có thể là một hoặc nhiều nguyên tố được chọn từ nhóm Al, Ga, B, In, Sc, Lu hoặc Y, E có thể là một hoặc nhiều nguyên tố được chọn từ nhóm S, Se, O, hoặc Te, x là lớn hơn không, hoặc lớn hơn hoặc bằng với 0,1, hoặc lớn hơn hoặc bằng với 0,3, hoặc lớn hơn hoặc bằng với 0,7. Ví dụ, trị số của x cũng có thể nhỏ hơn hoặc bằng với 0,9. Chỉ số dưới y có trị số đạt được cân bằng điện tích trong công thức, giả sử rằng E có điện tích là -2. (Trong các ví dụ thực nghiệm được mô tả trong bản mô tả này, các phản ứng thường diễn ra với lượng dư chalcogen, cho phép phản ứng tận dụng phần cần thiết để tạo thành hợp phần được cân bằng điện tích). Một số thay thế thành phần nhỏ cũng có thể xuất hiện từ việc sử dụng của các chất thúc đẩy phản ứng, bao gồm nhưng không hạn chế ở AlCl_3 hoặc I_2 . Các chất huỳnh quang có thể có cùng một cấu trúc tinh thể giả trực thoi cơ bản như REM_2E_4 (ví dụ, EuGa_2S_4). Các chất huỳnh quang có thể bao gồm hỗn hợp của pha tinh thể REM_2E_4 và một hoặc nhiều pha tinh thể chalcogen nhị nguyên như ví dụ là pha tinh thể M_2E_3 (ví dụ, Ga_2S_3) hoặc pha tinh thể ME (ví dụ, GaS). Theo một số biến thể, chế phẩm được đặc trưng bởi công thức $\text{Eu}(\text{Al,Ga})_{2+x}\text{S}_y$, và tỉ lệ của Al so với Ga là giữa khoảng 1:3 và khoảng 2:1.

Các chất huỳnh quang theo sáng chế này có thể thể hiện cải thiện vượt quá các chất huỳnh quang thiogalat kiềm thổ đã biết bằng cách tạo ra các phổ phát xạ hẹp hơn so với phổ đã được cung cấp bởi các chất huỳnh quang thiogalat trong tình trạng kỹ thuật của sáng chế. Các chất huỳnh quang theo sáng chế này có thể thể hiện cải thiện về độ sáng vượt quá các chế phẩm EuM_2E_4 , ví dụ như EuAl_2S_4 , EuAl_2Se_4 , và EuGa_2S_4 được bộc lộ bởi Thi và cộng sự. “*Materials Science & Engineering B14* (1992), No 4, pp. 393-397, Donohue US Patent 3,801,702” (phát hành 2 tháng 4 năm 1974), và Donohue và Hanlon, “*Journal của Electrochemical Society: Solid-State Science và Technology* (1974), Vol. 121, No. 1, pp. 137-142”.

Cụ thể, các chất huỳnh quang có công thức thực nghiệm $\text{REM}_{2+x}\text{E}_y$ với $x > 0$ được mô tả ở trên có thể tạo ra việc tăng đáng kể trong cường độ tương đối của đỉnh phát xạ của chất huỳnh quang, trong một số trường hợp là lớn hơn hai lần, khi so sánh với các chất huỳnh quang có chế phẩm REM_2E_4 . Trị số tối ưu của x có thể thay đổi với hợp phần chính xác của hệ thống. Tuy nhiên, $x = 0,7$ xuất hiện tại hoặc gần trị số tối đa

cho nhiều lựa chọn của M, ví dụ như cho RE = Eu và M = 1/3 Al, 2/3 Ga.

Các chất huỳnh quang theo sáng chế này có thể được điều chỉnh qua khoảng giới hạn bước sóng dựa trên các yêu cầu ứng dụng bằng cách thay đổi các thành phần M và E của chế phẩm. Ví dụ, với các chất huỳnh quang có công thức thực nghiệm $\text{Eu}(\text{Al,Ga})_{2+x}(\text{S,Se})_y$, khoảng giới hạn bước sóng phát xạ có thể mở rộng, ví dụ từ bước sóng phát xạ đỉnh quanh 490 nm cho $\text{EuAl}_{2+x}\text{Se}_y$ tới bước sóng phát xạ đỉnh quanh 550 nm cho $\text{EuGa}_{2+x}\text{S}_y$. Thậm chí có thể thu được các bước sóng phát xạ dài hơn nữa bằng cách tích hợp indi hoặc oxi. Với các chất huỳnh quang có công thức thực nghiệm $\text{Eu}(\text{Al,Ga})_{2+x}\text{S}_y$, bước sóng phát xạ đỉnh có thể thay đổi với phần trăm Ga một cách xấp xỉ là như sau: 0% Ga, 505 nm; 5% Ga, 509 nm; 14% Ga, 512 nm; 25% Ga, 517 nm; 50% Ga, 527nm; 55% Ga, 530 nm; 60% Ga, 533 nm; 65% Ga, 533 nm; 70% Ga, 535 nm; 75% Ga, 541 nm; 100% Ga, 545 nm. Với các chất huỳnh quang có công thức thực nghiệm $\text{Eu}(\text{Al,Ga})_{2+x}(\text{S,Se})_y$, phần trăm của Ga có thể, ví dụ là, $\geq 0\%$, $\geq 5\%$, $\geq 10\%$, $\geq 15\%$, $\geq 20\%$, $\geq 25\%$, $\geq 30\%$, $\geq 35\%$, $\geq 40\%$, $\geq 45\%$, $\geq 50\%$, $\geq 55\%$, $\geq 60\%$, $\geq 65\%$, $\geq 70\%$, $\geq 75\%$, $\geq 80\%$, $\geq 85\%$, $\geq 90\%$, $\geq 95\%$, 0% tới 5%, 5% tới 10%, 10% tới 15%, 15% tới 20%, 20% tới 25%, 25% tới 30%, 30% tới 35%, 35% tới 40%, 40% tới 45%, 45% tới 50%, 50% tới 55%, 55% tới 60%, 60% tới 65%, 65% tới 70%, 70% tới 75%, 75% tới 80%, 80% tới 85%, 85% tới 90%, 90% tới 95%, 95% tới 100%, hoặc 50% tới 75%.

Nhiều chất pha loãng/chất thúc đẩy phản ứng đã được khảo sát, như ví dụ I_2 , AlF_3 , AlCl_3 , AlBr_3 , GaCl_3 , GaBr_3 , BaF_2 , EuCl_3 , EuI_2 , và Na_2S . Việc sử dụng của các chất thúc đẩy với các cation khác với các cation trong sản phẩm cuối cùng được nhắm tới (ví dụ, Ba và Na) tạo thành việc hình thành của các pha thay thế, không đáp ứng các tính chất mong muốn của sáng chế.

Các chất huỳnh quang theo sáng chế này có thể được ghép nối quang học với nguồn kích thích theo cách thông thường. Một trong các phương pháp thông thường là kết hợp các chất huỳnh quang, như chất huỳnh quang xanh lục được bộc lộ ở đây, với chất huỳnh quang đỏ và tùy chọn là các chất huỳnh quang xanh lam và/hoặc vàng. Các chất huỳnh quang có thể được kết hợp với nhau và sau đó được thêm vào chất bao bọc, như silicon, epoxy, hoặc một số polyme khác, hoặc các chất huỳnh quang có thể được

kết hợp trong quá trình thêm vào của chúng vào chất bao bọc. Chất bao bọc được tải chất huỳnh quang sau đó có thể được đặt vào vị trí trong đường quang học của nguồn kích thích. Một phương pháp thông thường là để lắng đọng bột nhão chất huỳnh quang hoặc các chất huỳnh quang vào trong gói LED (điốt phát sáng) chứa khuôn LED. Bột nhão sau đó được lưu hóa để tạo thành gói LED được bao. Các phương pháp khác bao gồm việc tạo thành phần bao thành hình dạng hoặc phủ phần bao lên trên để vốn có thể đã ở trong hình dạng cụ thể, hoặc sau đó có thể được tạo thành hình dạng cụ thể. Ngoài ra, chất huỳnh quang chứa chất bao bọc có thể được phủ trên vùng ghép nối vào của phần dẫn hướng ánh sáng, hoặc trên vùng ghép nối ra của phần dẫn hướng ánh sáng, như phần dẫn hướng ánh sáng nhằm để sử dụng trong bộ phận hiển thị. Tổ hợp của nguồn kích thích và các chất huỳnh quang theo sáng chế này có thể được sử dụng trong việc chiếu sáng chung, các ứng dụng chiếu sáng hốc, chiếu sáng nền bộ phận hiển thị, hoặc các ứng dụng chiếu sáng khác.

Người nộp đơn đã tạo ra và định rõ đặc điểm nhiều mẫu chất huỳnh quang làm ví dụ có chế phẩm thực nghiệm $REM_{2+x}E_y$ được mô tả ở trên. Việc chuẩn bị và định rõ đặc điểm của các ví dụ này được mô tả bên dưới và được tổng hợp trong Bảng 1. Với một số mẫu, một hoặc nhiều pha tinh thể được quan sát bởi nhiễu xạ bột tia X: được báo cáo cùng với chế phẩm thực nghiệm. Phổ phát xạ được đo sử dụng phổ kế flo Fluorolog-3 với đèn xenon hoặc phổ kế Ocean Optics được sử dụng cùng với nguồn kích thích LED xanh lục hoặc tím bên ngoài. Phổ kích thích được đo sử dụng phổ kế flo Fluorolog-3 với đèn xenon. Phổ nhiễu xạ tia X bột được đo sử dụng thiết bị Rigaku MiniFlex600.

Ví dụ 1 $EuAl_{2,133}B_{0,567}S_{5,05}$ (số mẫu KB3-063-406), $x = 0,7$

Tỉ lệ 1:2,133:0,567:4,4 của Eu:Al:B:S được nghiền trong hộp có găng tay, được nạp agon và được bít kín trong ống silic đioxit được nung chảy. Mẫu được gia nhiệt tại 400°C trong 6 giờ, sau đó nhiệt độ được tăng và được giữ tại 800°C trong 12 giờ. Mẫu được làm nguội tới nhiệt độ phòng tại tốc độ khoảng 130°C/giờ. Mẫu được mở trong hộp có găng tay được nạp agon, nghiền với 10 % khối lượng lưu huỳnh bổ sung và được bít kín trong ống silic đioxit được nung chảy và được gia nhiệt lần hai với cùng một biên dạng gia nhiệt.

Fig.2A thể hiện các phổ phát xạ từ ví dụ này với việc kích thích tại 395 nm. Fig.2B thể hiện các phổ kích thích cho mẫu này với việc phát xạ được phát hiện tại 510 nm. Fig.2C thể hiện số đo nhiễu xạ bột tia X (x-ray diffraction - XRD) cho mẫu này, khớp với mẫu XRD cho EuAl_2S_4 (tiêu chuẩn PDF # 01-081-2821). Nó đề xuất rằng một số thành phần trong Al dư, B dư, và S dư có thể có mặt trong một hoặc nhiều pha chalcogen nhị nguyên.

Ví dụ 2 $\text{EuAl}_{2,322}\text{Lu}_{0,378}\text{S}_{5,05}$ (số mẫu KB3-059-399), $x = 0,7$

Tỉ lệ 1:2,322:0,378:4.4 của Eu:Al:Lu:S được nghiền trong hộp có găng tay, được nạp agon và được bít kín trong ống silic đioxit được nung chảy. Mẫu được gia nhiệt tại 400°C trong 6 giờ, sau đó nhiệt độ được tăng và được giữ tại 800°C trong 12 giờ. Mẫu được làm nguội tới nhiệt độ phòng tại tốc độ khoảng 130°C/giờ. Mẫu được mở trong hộp có găng tay, được nạp agon, nghiền với 10 % khối lượng lưu huỳnh bổ sung và được bít kín trong ống silic đioxit được nung chảy và được gia nhiệt lần hai với cùng một biên dạng gia nhiệt.

Fig.3A thể hiện các phổ phát xạ từ ví dụ này với việc kích thích tại 395 nm. Fig.3B thể hiện các phổ kích thích cho mẫu này với việc phát xạ được phát hiện tại 505 nm.

Ví dụ 3 $\text{EuAl}_{0,8}\text{Ga}_{1,2}\text{S}_4$, (số mẫu KB3-125-488), $x = 0$, ví dụ so sánh

Eu, Al_2S_3 , Ga_2S_3 , và S được trộn lẫn theo tỉ lệ hệ số tỉ lượng và 0,25 lưu huỳnh bổ sung cho mỗi đơn vị công thức và 7,5 % khối lượng AlCl_3 được thêm vào (0,116 g Eu, 0,046 g Al_2S_3 , 0,108 g Ga_2S_3 , 0,031 g S, 0,023 g AlCl_3). Hỗn hợp được nghiền trong hộp có găng tay, được nạp agon và được bít kín trong ống silic đioxit được nung chảy. Các mẫu được gia nhiệt tại 400°C trong 1 giờ, sau đó nhiệt độ được tăng và được giữ tại 900°C trong 6 giờ. Mẫu được làm nguội tới nhiệt độ phòng tại tốc độ 50°C/giờ.

Fig.4A thể hiện các phổ phát xạ cho mẫu này (được gắn nhãn $x = 0$) với việc kích thích tại 395 nm. Fig.4B thể hiện các phổ kích thích cho mẫu này (được gắn nhãn $x=0$) với việc phát xạ được phát hiện tại 535 nm. Fig.4C thể hiện số đo tán xạ bột tia X (x-ray diffraction - XRD) cho mẫu này, được gắn nhãn $x=0$.

Ví dụ 4 $\text{EuAl}_{0,84}\text{Ga}_{1,26}\text{S}_{4,15}$, (số mẫu KB3-125-489), $x = 0,1$

Eu, Al_2S_3 , Ga_2S_3 , và S được trộn lẫn theo tỉ lệ hệ số tỉ lượng và 0,25 lưu huỳnh bổ sung cho mỗi đơn vị công thức và 7,5 % khối lượng AlCl_3 được thêm vào (0,113 g Eu, 0,047 g Al_2S_3 , 0,110 g Ga_2S_3 , 0,030 g S, 0,023 g AlCl_3). Hỗn hợp được nghiền trong hộp có găng tay, được nạp agon và được bít kín trong ống silic đioxit được nung chảy. Các mẫu được gia nhiệt tại 400°C trong 1 giờ, sau đó nhiệt độ được tăng và được giữ tại 900°C trong 6 giờ. Mẫu được làm nguội tới nhiệt độ phòng tại tốc độ $50^\circ\text{C}/\text{giờ}$.

Fig.4A thể hiện các phổ phát xạ cho mẫu này (được gắn nhãn $x = 0,1$) với việc kích thích tại 395 nm. Fig.4B thể hiện các phổ kích thích cho mẫu này (được gắn nhãn $x=0,1$) với việc phát xạ được phát hiện tại 535 nm. Fig.4C thể hiện số đo tán xạ bột tia X (x-ray diffraction - XRD) cho mẫu này, được gắn nhãn $x=0,1$.

Ví dụ 5 $\text{EuAl}_{0,92}\text{Ga}_{1,38}\text{S}_{4,45}$, (số mẫu KB3-125-490), $x = 0,3$

Eu, Al_2S_3 , Ga_2S_3 , và S được trộn lẫn theo tỉ lệ hệ số tỉ lượng, và 0,25 lưu huỳnh bổ sung cho mỗi đơn vị công thức và 7,5 % khối lượng AlCl_3 được thêm vào (0,108 g Eu, 0,049 g Al_2S_3 , 0,115 g Ga_2S_3 , 0,028 g S, 0,023 g AlCl_3). Hỗn hợp được nghiền trong hộp có găng tay, được nạp agon và được bít kín trong ống silic đioxit được nung chảy. Các mẫu được gia nhiệt tại 400°C trong 1 giờ, sau đó nhiệt độ được tăng và được giữ tại 900°C trong 6 giờ. Mẫu được làm nguội tới nhiệt độ phòng tại tốc độ $50^\circ\text{C}/\text{giờ}$.

Fig.4A thể hiện các phổ phát xạ cho mẫu này (được gắn nhãn $x = 0,3$) với việc kích thích tại 395 nm. Fig.4B thể hiện các phổ kích thích cho mẫu này (được gắn nhãn $x=0,3$) với việc phát xạ được phát hiện tại 535 nm. Fig.4C thể hiện số đo tán xạ bột tia X (x-ray diffraction - XRD) cho mẫu này, được gắn nhãn $x=0,3$.

Ví dụ 6 $\text{EuAlGa}_{1,5}\text{S}_{4,75}$, (số mẫu KB3-125-491), $x = 0,5$

Eu, Al_2S_3 , Ga_2S_3 , và S được trộn lẫn theo tỉ lệ hệ số tỉ lượng, và 0,25 lưu huỳnh bổ sung cho mỗi đơn vị công thức và 7,5 % khối lượng AlCl_3 được thêm vào (0,103 g Eu, 0,051 g Al_2S_3 , 0,120 g Ga_2S_3 , 0,027 g S, 0,023 g AlCl_3). Hỗn hợp được nghiền trong hộp có găng tay, được nạp agon và được bít kín trong ống silic đioxit được nung

chảy. Các mẫu được gia nhiệt tại 400°C trong 1 giờ, sau đó nhiệt độ được tăng và được giữ tại 900°C trong 6 giờ. Mẫu được làm nguội tới nhiệt độ phòng tại tốc độ 50°C/giờ.

Fig.4A thể hiện các phổ phát xạ cho mẫu này (được gắn nhãn $x = 0,5$) với việc kích thích tại 395 nm. Fig.4B thể hiện các phổ kích thích cho mẫu này (được gắn nhãn $x=0,5$) với việc phát xạ được phát hiện tại 535 nm. Fig.4C thể hiện số đo tán xạ bột tia X (x-ray diffraction - XRD) cho mẫu này, được gắn nhãn $x=0,5$.

Ví dụ 7 $\text{EuAl}_{1,08}\text{Ga}_{1,62}\text{S}_{5,05}$, (số mẫu KB3-126-492), $x = 0,7$

Eu, Al_2S_3 , Ga_2S_3 , và S được trộn lẫn theo tỉ lệ hệ số tỉ lượng, và 0,25 lưu huỳnh bổ sung cho mỗi đơn vị công thức và 7,5 % khối lượng AlCl_3 được thêm vào (0,098 g Eu, 0,052 g Al_2S_3 , 0,124 g Ga_2S_3 , 0,026 g S, 0,023 g AlCl_3). Hỗn hợp được nghiền trong hộp có găng tay, được nạp agon và được bít kín trong ống silic đioxit được nung chảy. Các mẫu được gia nhiệt tại 400°C trong 1 giờ, sau đó nhiệt độ được tăng và được giữ tại 900°C trong 6 giờ. Mẫu được làm nguội tới nhiệt độ phòng tại tốc độ 50°C/giờ.

Fig.4A thể hiện các phổ phát xạ cho mẫu này (được gắn nhãn $x = 0,7$) với việc kích thích tại 395 nm. Fig.4B thể hiện các phổ kích thích cho mẫu này (được gắn nhãn $x=0,7$) với việc phát xạ được phát hiện tại 535 nm. Fig.4C thể hiện số đo tán xạ bột tia X (x-ray diffraction - XRD) cho mẫu này, được gắn nhãn $x=0,7$.

Ví dụ 8 $\text{EuAl}_{1,16}\text{Ga}_{1,74}\text{S}_{5,35}$ (số mẫu KB3-126-493), $x = 0,9$

Eu, Al_2S_3 , Ga_2S_3 , và S, được trộn lẫn theo tỉ lệ hệ số tỉ lượng và 0,25 lưu huỳnh bổ sung cho mỗi đơn vị công thức và 7,5 % khối lượng AlCl_3 được thêm vào (0,094 g Eu, 0,054 g Al_2S_3 , 0,127 g Ga_2S_3 , 0,025 g S, 0,023 g AlCl_3). Hỗn hợp được nghiền trong hộp có găng tay, được nạp agon và được bít kín trong ống silic đioxit được nung chảy. Các mẫu được gia nhiệt tại 400°C trong 1 giờ, sau đó nhiệt độ được tăng và được giữ tại 900°C trong 6 giờ. Mẫu được làm nguội tới nhiệt độ phòng tại tốc độ 50°C/giờ.

Fig.4A thể hiện các phổ phát xạ cho mẫu này (được gắn nhãn $x = 0,9$) với việc kích thích tại 395 nm. Fig.4B thể hiện các phổ kích thích cho mẫu này (được gắn nhãn

$x=0,9$) với việc phát xạ được phát hiện tại 535 nm. Fig.4C thể hiện số đo tán xạ bột tia X (x-ray diffraction - XRD) cho mẫu này, được gắn nhãn $x=0,9$.

Các dữ liệu XRD cho các ví dụ 3-8

Trên Fig.4C pha chính trong từng mẫu XRD khớp với EuGa_2S_4 (tiêu chuẩn PDF# 01-071-0588). Ga_2S_3 (PDF # 00-054-0415) cũng có mặt (các đỉnh được đánh dấu với các ngôi sao), và lượng tăng khi “x” tăng. Các đỉnh cho cả hai pha được dịch chuyển tới góc cao hơn một chút so với các mẫu trong cơ sở dữ liệu, phần lớn là do sự tích hợp của nhôm.

Ví dụ 9 $\text{EuAl}_{1,08}\text{Ga}_{1,62}\text{S}_{5,05}$ (số mẫu KB3-132-506), $x = 0,7$

Mẫu này được chuẩn bị sử dụng chất pha loãng AlF_3 , hơn là chất pha loãng AlCl_3 như trong ví dụ 7. Eu, Al_2S_3 , Ga_2S_3 , và S, được trộn lẫn theo tỉ lệ hệ số tỉ lượng. 0,25 lưu huỳnh bổ sung cho mỗi đơn vị công thức và 7,5 % khối lượng AlF_3 được thêm vào. Hỗn hợp được nghiền trong hộp có găng tay được nạp argon và được bít kín trong ống silic đioxit được nung chảy được phủ cacbon. Các mẫu được gia nhiệt tại 400°C trong 1 giờ, sau đó nhiệt độ được tăng và được giữ tại 800°C trong 6 giờ. Các mẫu được làm nguội tới nhiệt độ phòng tại tốc độ $50^\circ\text{C}/\text{giờ}$.

Ví dụ 10 $\text{EuAl}_{0,8}\text{Ga}_{1,2}\text{S}_4$ (số mẫu KB3-133-507), $x = 0$

Mẫu này được chuẩn bị sử dụng chất pha loãng AlF_3 , hơn là chất pha loãng AlCl_3 như trong ví dụ 3. Eu, Al_2S_3 , Ga_2S_3 , và S, được trộn lẫn theo tỉ lệ hệ số tỉ lượng. 0,25 lưu huỳnh bổ sung cho mỗi đơn vị công thức và 7,5 % khối lượng AlF_3 được thêm vào. Hỗn hợp được nghiền trong hộp có găng tay được nạp argon và được bít kín trong ống silic đioxit được nung chảy được phủ cacbon. Các mẫu được gia nhiệt tại 400°C trong 1 giờ, sau đó nhiệt độ được tăng và được giữ tại 800°C trong 6 giờ. Các mẫu được làm nguội tới nhiệt độ phòng tại tốc độ $50^\circ\text{C}/\text{giờ}$.

Ví dụ 11 EuAl_2Se_4 , (số mẫu YBG-170419-1), $x = 0$, ví dụ so sánh

Các lượng hệ số tỉ lượng của Eu, Al, và Se được nghiền hoàn toàn trong cối giã với chày trong hộp có găng tay. Hỗn hợp được đặt trong các ống silic đioxit được phủ cacbon, được làm khô, vốn được hút chân không và được bít kín tại chiều dài là khoảng 12,7 cm (5 inso). Phản ứng được thực hiện trong lò hộp. Nhiệt độ được nâng

lên tới 400°C và được giữ trong 6 giờ và được nâng lại tới 800°C và được giữ trong 6 giờ, sau đó được làm nguội tới nhiệt độ phòng trong 6 giờ.

Fig.5A thể hiện các phổ phát xạ cho mẫu này (được gắn nhãn “a”) cho việc kích thích tại 395 nm. Cường độ tương đối của đỉnh phát xạ là 100% so sánh với phổ phát xạ khác trong hình vẽ này. Fig.5B thể hiện các phổ kích thích cho mẫu này (được gắn nhãn “a”) với việc phát xạ được phát hiện tại 490 nm.

Ví dụ 12 $\text{EuAl}_{2,4}\text{Se}_{4,6}$ (số mẫu YBG-170419-2), $x = 0,4$

Các lượng hệ số tỉ lệ của Eu, Al, và Se được nghiền hoàn toàn trong cối giã với chày trong hộp có gắng tay. Hỗn hợp được đặt trong các ống silic đioxit được phủ cacbon, được làm khô, vốn được hút chân không và được bít kín tại chiều dài là khoảng 12,7 cm (5 inso). Phản ứng được thực hiện trong lò hộp. Nhiệt độ được nâng lên tới 400°C và được giữ trong 6 giờ và được nâng lại tới 800°C và được giữ trong 6 giờ, sau đó được làm nguội tới nhiệt độ phòng trong 6 giờ.

Fig.5A thể hiện các phổ phát xạ cho mẫu này (được gắn nhãn “b”) cho việc kích thích tại 395 nm. Cường độ tương đối của đỉnh phát xạ là 144% so sánh với phổ phát xạ khác trong hình vẽ này. Fig.5B thể hiện các phổ kích thích cho mẫu này (được gắn nhãn “b”) với việc phát xạ được phát hiện tại 490 nm.

Ví dụ 13 $\text{EuAl}_{2,4}\text{Se}_{3,6}\text{S}$ (số mẫu YBG-170419-4), $x = 0,4$

Các lượng hệ số tỉ lệ của Eu, Al, Se, và S được nghiền hoàn toàn trong cối giã với chày trong hộp có gắng tay. Hỗn hợp được đặt trong các ống silic đioxit được phủ cacbon, được làm khô, vốn được hút chân không và được bít kín tại chiều dài là khoảng 12,7 cm (5 inso). Phản ứng được thực hiện trong lò hộp. Nhiệt độ được nâng lên tới 400°C và được giữ trong 6 giờ và được nâng lại tới 800°C và được giữ trong 6 giờ, sau đó được làm nguội tới nhiệt độ phòng trong 6 giờ.

Fig.5A thể hiện các phổ phát xạ cho mẫu này (được gắn nhãn “c”) cho việc kích thích tại 395 nm. Cường độ tương đối của đỉnh phát xạ là 117% so sánh với phổ phát xạ khác trong hình vẽ này. Fig.5B thể hiện các phổ kích thích cho mẫu này (được gắn nhãn “c”) với việc phát xạ được phát hiện tại 490 nm.

Ví dụ 14 $\text{EuAl}_{2,7}\text{Se}_{5,05}$ (số mẫu YBG-170419-5), $x = 0,7$

Các lượng hệ số tỉ lệ của Eu, Al, và Se được nghiền hoàn toàn trong cối giã với chày trong hộp có gắng tay. Hỗn hợp được đặt trong các ống silic đioxit được phủ cacbon, được làm khô, vốn được hút chân không và được bít kín tại chiều dài là khoảng 12,7 cm (5 in). Phản ứng được thực hiện trong lò hộp. Nhiệt độ được nâng lên tới 400°C và được giữ trong 6 giờ và được nâng lại tới 800°C và được giữ trong 6 giờ, sau đó được làm nguội tới nhiệt độ phòng trong 6 giờ.

Fig.5A thể hiện các phổ phát xạ cho mẫu này (được gắn nhãn “d”) cho việc kích thích tại 395 nm. Cường độ tương đối của đỉnh phát xạ là 224% so sánh với phổ phát xạ khác trong hình vẽ này. Fig.5B thể hiện các phổ kích thích cho mẫu này (được gắn nhãn “d”) với việc phát xạ được phát hiện tại 490 nm.

Ví dụ 15 $\text{EuAl}_{2,07}\text{In}_{0,23}\text{S}_{4,45}$ (số mẫu KB3-132-503)

Eu, Al_2S_3 , In_2S_3 , và S được trộn lẫn theo các tỉ lệ hệ số tỉ lệ. Các hỗn hợp được nghiền trong hộp có gắng tay, được nạp agon và được bít kín trong ống silic đioxit được nung chảy. Các mẫu được gia nhiệt tại 400 °C trong 1 giờ, sau đó nhiệt độ được tăng và được giữ tại 900 °C trong 6 giờ. Các mẫu được làm nguội tới nhiệt độ phòng tại tốc độ 50 °C/giờ.

Fig.6 thể hiện các phổ phát xạ cho mẫu này cho việc kích thích tại 405 nm.

Ví dụ 16 $\text{EuAl}_{1,84}\text{In}_{0,46}\text{S}_{4,45}$ (số mẫu KB3-132-504)

Eu, Al_2S_3 , In_2S_3 , và S được trộn lẫn theo các tỉ lệ hệ số tỉ lệ. Các hỗn hợp được nghiền trong hộp có gắng tay, được nạp agon và được bít kín trong ống silic đioxit được nung chảy. Các mẫu được gia nhiệt tại 400 °C trong 1 giờ, sau đó nhiệt độ được tăng và được giữ tại 900 °C trong 6 giờ. Các mẫu được làm nguội tới nhiệt độ phòng tại tốc độ 50 °C/giờ.

Fig.7 thể hiện các phổ phát xạ cho mẫu này cho việc kích thích tại 405 nm.

Ví dụ 17 $\text{EuAl}_{1,61}\text{Ga}_{0,23}\text{In}_{0,46}\text{S}_{4,45}$ (số mẫu KB3-132-505)

Eu, Al_2S_3 , Ga_2S_3 , In_2S_3 , và S được trộn lẫn theo tỉ lệ hệ số tỉ lệ. Các hỗn hợp được nghiền trong hộp có gắng tay, được nạp agon và được bít kín trong ống silic đioxit được nung chảy. Các mẫu được gia nhiệt tại 400 °C trong 1 giờ, sau đó nhiệt độ được tăng và được giữ tại 900 °C trong 6 giờ. Các mẫu được làm nguội tới nhiệt độ

phòng tại tốc độ 50 °C/giờ.

Fig.8 thể hiện các phổ phát xạ cho mẫu này cho việc kích thích tại 405 nm.

Ví dụ 18 $\text{EuAlGa}_{1,5}\text{S}_{4,75}$ (số mẫu ELTAIS-056A)

1,2 g hỗn hợp của các lượng hệ số tỉ lượng của Eu, Al_2S_3 , Ga_2S_3 và S được chuẩn bị dưới Ar. Hỗn hợp được kết hợp với 20 % khối lượng dư S, và được tách thành năm phần 200 mg để sử dụng trong ví dụ này và trong các ví dụ 19-22. Với ví dụ này, một phần 200 mg của hỗn hợp được trộn đều với 30 mg (15 % khối lượng) của chất pha loãng AlBr_3 và được bít kín trong ống thạch anh được hút chân không. Ampun được gia nhiệt tới 400°C qua 2 giờ, giữ trong 1 giờ tại nhiệt độ đó, và sau đó được gia nhiệt tới 900°C qua 1,5 giờ và giữ tại nhiệt độ đó trong 6 giờ trước khi được làm nguội chậm tới nhiệt độ phòng ở tốc độ 50°C/giờ.

Ví dụ 19 $\text{EuAlGa}_{1,5}\text{S}_{4,75}$ (số mẫu ELTAIS-056B)

Phần 200 mg của 1,2 g hỗn hợp của các lượng hệ số tỉ lượng của Eu, Al_2S_3 , Ga_2S_3 và S được chuẩn bị trong ví dụ 18 được trộn đều với 30 mg (15% khối lượng) của chất pha loãng GaBr_3 và được bít kín trong ống thạch anh được hút chân không. Ampun được gia nhiệt tới 400°C qua 2 giờ, giữ trong 1 giờ tại nhiệt độ đó, và sau đó được gia nhiệt tới 900°C qua 1,5 giờ và giữ tại nhiệt độ đó trong 6 giờ trước khi được làm nguội chậm tới nhiệt độ phòng ở tốc độ 50 °C/giờ.

Ví dụ 20 $\text{EuAlGa}_{1,5}\text{S}_{4,75}$ (số mẫu ELTAIS-056C)

Phần 200 mg của 1,2 g hỗn hợp của các lượng hệ số tỉ lượng của Eu, Al_2S_3 , Ga_2S_3 và S được chuẩn bị trong ví dụ 18 được trộn đều với 30 mg (15% khối lượng) của chất pha loãng GaCl_3 và được bít kín trong ống thạch anh được hút chân không. Ampun được gia nhiệt tới 400°C qua 2 giờ, giữ trong 1 giờ tại nhiệt độ đó, và sau đó được gia nhiệt tới 900°C qua 1,5 giờ và giữ tại nhiệt độ đó trong 6 giờ trước khi được làm nguội chậm tới nhiệt độ phòng ở tốc độ 50 °C/giờ.

Ví dụ 21 $\text{EuAlGa}_{1,5}\text{S}_{4,75}$ (số mẫu ELTAIS-056D)

Phần 200 mg của 1,2 g hỗn hợp của các lượng hệ số tỉ lượng của Eu, Al_2S_3 , Ga_2S_3 và S được chuẩn bị trong ví dụ 18 được trộn đều với 30 mg (15% khối lượng) của chất pha loãng EuCl_3 và được bít kín trong ống thạch anh được hút chân không.

Ampun được gia nhiệt tới 400°C qua 2 giờ, giữ trong 1 giờ tại nhiệt độ đó, và sau đó được gia nhiệt tới 900°C qua 1,5 giờ và giữ tại nhiệt độ đó trong 6 giờ trước khi được làm nguội chậm tới nhiệt độ phòng ở tốc độ 50 °C/giờ.

Ví dụ 22 $\text{EuAlGa}_{1,5}\text{S}_{4,75}$ (số mẫu ELTAIS-056E)

Phần 200 mg của 1,2 g hỗn hợp của các lượng hệ số tỉ lượng của Eu, Al_2S_3 , Ga_2S_3 và S được chuẩn bị trong ví dụ 18 được trộn đều với 30 mg (15% khối lượng) của chất pha loãng EuI_2 và được bít kín trong ống thạch anh được hút chân không. Ampun được gia nhiệt tới 400°C qua 2 giờ, giữ trong 1 giờ tại nhiệt độ đó, và sau đó được gia nhiệt tới 900°C qua 1,5 giờ và giữ tại nhiệt độ đó trong 6 giờ trước khi được làm nguội chậm tới nhiệt độ phòng ở tốc độ 50 °C/giờ.

Ví dụ 23 $\text{Eu}_{0,97}\text{Gd}_{0,03}\text{Al}_{0,92}\text{Ga}_{1,38}\text{S}_{4,45}$ (số mẫu YBG-170424-2)

Lượng hệ số tỉ lượng của Eu, Al, Ga_2S_3 , Gd_2O_3 , S, và 5 % khối lượng dư S được nghiền hoàn toàn trong cối giã với chày trong hộp có găng tay. Các hỗn hợp được đặt trong các ống silic đioxit được làm khô, vốn được hút chân không và được bít kín tại chiều dài là khoảng 12,7 cm (5 inso). Các phản ứng được thực hiện trong lò hộp. Nhiệt độ được nâng lên tới 900 °C trong 4 giờ và được giữ trong 12 giờ sau đó được làm nguội tới nhiệt độ phòng trong 6 giờ.

Ví dụ 24 EuAl_2S_4 (số mẫu ELTAIS-006C), ví dụ so sánh

Hỗn hợp của các lượng hệ số tỉ lượng của Eu, Al, S, và một vài % khối lượng dư của S được trộn đều dưới agon và được bít kín trong ống thạch anh được hút chân không. Ampun được gia nhiệt tới 400°C qua 6 giờ, được giữ trong 6 giờ tại nhiệt độ đó, và sau đó được gia nhiệt tới 800°C và được giữ tại nhiệt độ đó trong 24 giờ trước khi được làm nguội tới nhiệt độ phòng qua 9 giờ. Mẫu được trộn đều dưới agon và được bít kín trong ống thạch anh được hút chân không. Bước gia nhiệt được lặp lại.

Ví dụ 25 $\text{EuAl}_{2,33}\text{S}_{4,28}$ (số mẫu ELTAIS-016C)

Hỗn hợp của các lượng hệ số tỉ lượng của Eu, Al, S, và một vài % khối lượng dư của S được trộn đều dưới agon và được bít kín trong ống thạch anh được hút chân không. Ampun được gia nhiệt tới 400°C qua 6 giờ, được giữ trong 6 giờ tại nhiệt độ đó, và sau đó được gia nhiệt tới 800°C và được giữ tại nhiệt độ đó trong 24 giờ trước

khi được làm nguội tới nhiệt độ phòng qua 6 giờ. Mẫu được trộn đều dưới agon và được bít kín trong ống thạch anh được hút chân không. Bước gia nhiệt được lặp lại.

Ví dụ 26 $\text{EuAl}_{2,7}\text{S}_{5,05}$ (số mẫu ELTAIS-016E)

Hỗn hợp của các lượng hệ số tỉ lượng của Eu, Al, S, và một vài % khối lượng dư của S được trộn đều dưới agon và được bít kín trong ống thạch anh được hút chân không. Ampun được gia nhiệt tới 400°C qua 6 giờ, được giữ trong 6 giờ tại nhiệt độ đó, và sau đó được gia nhiệt tới 800°C và được giữ tại nhiệt độ đó trong 120 giờ trước khi được làm nguội tới nhiệt độ phòng qua 6 giờ. Mẫu được trộn đều dưới agon và được bít kín trong ống thạch anh được hút chân không. Bước gia nhiệt được lặp lại với bước giữ tại 800°C trong 48 giờ.

Ví dụ 27 $\text{EuAl}_{2,9}\text{S}_{5,35}$ (số mẫu ELTAIS-016F)

Hỗn hợp của các lượng hệ số tỉ lượng của Eu, Al, S, và một vài % khối lượng dư của S được trộn đều dưới agon và được bít kín trong ống thạch anh được hút chân không. Ampun được gia nhiệt tới 400°C qua 6 giờ, được giữ trong 6 giờ tại nhiệt độ đó, và sau đó được gia nhiệt tới 800°C và được giữ tại nhiệt độ đó trong 48 giờ trước khi được làm nguội tới nhiệt độ phòng qua 6 giờ. Mẫu được trộn đều dưới agon và được bít kín trong ống thạch anh được hút chân không. Bước gia nhiệt được lặp lại.

Các cường độ quang phát quang tương đối được so sánh với EuAl_2S_4 , $\text{EuAl}_{2,33}\text{S}_{4,28}$, $\text{EuAl}_{2,7}\text{S}_{5,05}$, và $\text{EuAl}_{2,9}\text{S}_{5,35}$ sử dụng việc kích thích 395 nm. Thiết lập EuAl_2S_4 là 100%, $\text{EuAl}_{2,33}\text{S}_{4,28}$ có cường độ cao hơn tại 109%, $\text{EuAl}_{2,7}\text{S}_{5,05}$ có cường độ cao nhất tại 378% và $\text{EuAl}_{2,9}\text{S}_{5,35}$ cũng có cường độ cao hơn so với ví dụ so sánh bởi lượng là 292%.

Ví dụ 28 EuGa_2S_4 (số mẫu ELTAIS-062A), ví dụ so sánh

Các lượng hệ số tỉ lượng của Eu, Ga_2S_3 và S, với 20 % khối lượng dư S được đồng nhất hóa dưới agon. Hỗn hợp được kết hợp với 136 mg (6 mg/cm^3) I_2 trước khi bít kín trong ống thạch anh được hút chân không xấp xỉ 20,32 cm (8 inch). Ampun được đặt trong lò ống nằm ngang với gradien tự nhiên và được gia nhiệt tới 400°C qua 6 h, được giữ trong 6 h, sau đó được gia nhiệt tới 900°C qua 2,5 giờ và được giữ trong 72 giờ trước khi được làm nguội chậm tới nhiệt độ phòng qua 24 h. Bột chất huỳnh

quang có bước sóng phát xạ đỉnh là 549 nm và toàn độ rộng nửa cực đại (full width at half maximum) là 43 nm khi được kích thích với ánh sáng 405 nm từ LED.

Ví dụ 29 EuGa_2S_4 (số mẫu ELTAIS-062B), ví dụ so sánh

Các lượng hệ số tỉ lượng của Eu, Ga_2S_3 và S, với 20 % khối lượng dư S được đồng nhất hóa dưới agon. Hỗn hợp được kết hợp với 60 mg (15 % khối lượng) GaCl_3 trước khi bít kín trong ống thạch anh được hút chân không xấp xỉ 20,32 cm (8 inch). Ampun được đặt trong lò ống nằm ngang với gradien tự nhiên và được gia nhiệt tới 400°C qua 6 h, được giữ trong 6 h, sau đó được gia nhiệt tới 900°C qua 2,5 giờ và được giữ trong 72 giờ trước khi được làm nguội chậm tới nhiệt độ phòng qua 24 h. Bột chất huỳnh quang có bước sóng phát xạ đỉnh là 551 nm và toàn độ rộng nửa cực đại (full width at half maximum) là 39 nm khi được kích thích với ánh sáng 405 nm từ LED.

Ví dụ 30 $\text{EuGa}_{2,7}\text{S}_{5,05}$ (số mẫu ELTAIS-063A)

Các lượng hệ số tỉ lượng của Eu, Ga_2S_3 và S, với 20 % khối lượng dư S được đồng nhất hóa dưới agon. Hỗn hợp được kết hợp với 136 mg (6 mg/cm^3) I_2 trước khi bít kín trong ống thạch anh được hút chân không xấp xỉ 20,32 cm (8 inch). Ampun được đặt trong lò ống nằm ngang với gradien tự nhiên và được gia nhiệt tới 400°C qua 6 h, được giữ trong 6 h, sau đó được gia nhiệt tới 900°C qua 2,5 giờ và được giữ trong 72 giờ trước khi được làm nguội chậm tới nhiệt độ phòng qua 24 h. Bột chất huỳnh quang có bước sóng phát xạ đỉnh là 549 nm và toàn độ rộng nửa cực đại (full width at half maximum) là 41 nm khi được kích thích với ánh sáng 405 nm từ LED, và có độ sáng nhìn thấy được hơn ví dụ so sánh 28.

Ví dụ 31 $\text{EuGa}_{2,7}\text{S}_{5,05}$ (số mẫu ELTAIS-063B)

Các lượng hệ số tỉ lượng của Eu, Ga_2S_3 và S, với 20 % khối lượng dư S được đồng nhất hóa dưới agon. Hỗn hợp được kết hợp với 60 mg (15 % khối lượng) GaCl_3 trước khi bít kín trong ống thạch anh được hút chân không xấp xỉ 20,32 cm (8 inch). Ampun được đặt trong lò ống nằm ngang với gradien tự nhiên và được gia nhiệt tới 400°C qua 6 h, được giữ trong 6 h, sau đó được gia nhiệt tới 900°C qua 2,5 giờ và được giữ trong 72 giờ trước khi được làm nguội chậm tới nhiệt độ phòng qua 24 h. Bột

chất huỳnh quang có bước sóng phát xạ đỉnh là 550 nm và toàn độ rộng nửa cực đại (full width at half maximum) là 39 nm khi được kích thích với ánh sáng 405 nm từ LED, và có độ sáng nhìn thấy được hơn ví dụ so sánh 29.

Các ví dụ LED được biến đổi chất huỳnh quang

Bột nhão chất huỳnh quang được tạo ra bằng cách kết hợp 21,40 mg Dow Corning OE-6550 2 phần silicon, 0,98 mg chất huỳnh quang đỏ, BR101J và 2,67 mg chất huỳnh quang xanh lục theo sáng chế (ví dụ 5, $\text{EuAl}_{0,92}\text{Ga}_{1,38}\text{S}_{4,45}$, $x = 0,3$). Các LED được biến đổi chất huỳnh quang 1-3 (các ví dụ 24-26 bên dưới) được lắp ráp sử dụng các phần của bột nhão này, và thay đổi so với nhau chỉ ở lượng bột nhão được lắng đọng trên LED.

Ví dụ 32 LED được biến đổi chất huỳnh quang 1

Bột nhão chất huỳnh quang được mô tả ở trên được áp dụng trên đỉnh của LED gốc InGaN phát xạ xanh lam được gắn trong gói 2835 PLCC từ Power Opto Co., và silicon được lưu hóa qua đêm tại quanh 100°C. Các phổ phát xạ của LED này, được thể hiện trên Fig.9, được đo với phổ kế Ocean Optics. LED được biến đổi chất huỳnh quang theo ví dụ này được đo để có nhiệt độ màu (correlated color temperature - CCT) là 4625K, duy là 0,0046, và CRI là 83, tương ứng với màu trắng trung tính.

Ví dụ 33 LED được biến đổi chất huỳnh quang 2

Bột nhão chất huỳnh quang được mô tả ở trên được áp dụng trên đỉnh của LED gốc InGaN phát xạ xanh lam được gắn trong gói 2835 PLCC từ Power Opto Co., và silicon được lưu hóa qua đêm tại quanh 100°C. Các phổ phát xạ của LED này, được thể hiện trên Fig.10, được đo với phổ kế Ocean Optics. Lớp được lưu hóa của bột nhão trên LED theo ví dụ này là mỏng hơn so với lớp trong ví dụ 25 (LED được biến đổi chất huỳnh quang 1). LED được biến đổi chất huỳnh quang theo ví dụ này được đo để có nhiệt độ màu (correlated color temperature - CCT) là 6575K, duy là 0,0045, và CRI là 85, tương ứng với màu trắng lạnh.

Ví dụ 34 LED được biến đổi chất huỳnh quang 3

Bột nhão chất huỳnh quang được mô tả ở trên được áp dụng trên đỉnh của LED gốc InGaN phát xạ xanh lam được gắn trong gói 2835 PLCC từ Power Opto Co., và

silicon được lưu hóa qua đêm tại quanh 100°C. Các phổ phát xạ của LED này, được thể hiện trên Fig.11, được đo với phổ kế Ocean Optics. Lớp được lưu hóa của bột nhão trên LED theo ví dụ này là mỏng hơn so với lớp trong ví dụ 26 (LED được biến đổi chất huỳnh quang 2). LED được biến đổi chất huỳnh quang theo ví dụ này được đo để có các tọa độ xy CIE là 0,253, 0,250, thích hợp cho các ứng dụng chiếu sáng nền. Fig.12 thể hiện việc phát xạ từ LED được biến đổi chất huỳnh quang này, được phủ với bộ các bộ lọc màu LCD làm ví dụ: xanh lam (gạch dài), xanh lục (gạch và chấm xen kẽ), và đỏ (gạch ngắn). Các phổ phát xạ là sự phù hợp tốt cho các bộ lọc màu làm ví dụ được thể hiện trên hình vẽ.

Các phương án thực hiện khác nhau được mô tả trong các mệnh đề sau.

Mệnh đề 1. Chế phẩm phát quang của chất đặc trưng bởi công thức $REM_{2+x}E_y$, trong đó:

RE là một hoặc nhiều nguyên tố đất hiếm;

M là một hoặc nhiều nguyên tố được chọn từ nhóm Al, Ga, B, In, Sc, Lu, và Y;

E là một hoặc nhiều nguyên tố được chọn từ nhóm S, Se, O, và Te;

x là lớn hơn không; và

y có trị số đạt được cân bằng điện tích trong công thức, giả sử rằng E có điện tích là -2.

Mệnh đề 2. Chế phẩm phát quang của chất theo mệnh đề 1, trong đó RE là Eu.

Mệnh đề 3. Chế phẩm phát quang của chất theo mệnh đề 1, trong đó RE chứa Eu và Gd.

Mệnh đề 4. Chế phẩm phát quang của chất theo mệnh đề 1, theo cách dành riêng, là có cấu trúc tinh thể giả trực thoi EuM_2E_4 .

Mệnh đề 5. Chế phẩm phát quang của chất theo mệnh đề, có hỗn hợp trội là cấu trúc tinh thể giả trực thoi EuM_2E_4 và một hoặc nhiều cấu trúc tinh thể chalcogen nhị nguyên.

Mệnh đề 6. Chế phẩm phát quang của chất theo mệnh đề bất kỳ trong số các mệnh đề từ 1 đến 5, trong đó chế phẩm đặc trưng bởi công thức $\text{Eu}(\text{Al}_{10,4}\text{Ga}_{0,6})_2 + x\text{Sy}$, trong đó x là lớn hơn không.

Mệnh đề 7. Chế phẩm phát quang của chất theo mệnh đề bất kỳ trong số các mệnh đề từ 1 đến 5, trong đó:

M là Al; và

E là S, Se, hoặc hỗn hợp của S và Se.

Mệnh đề 8. Chế phẩm phát quang của chất theo mệnh đề bất kỳ trong số các mệnh đề từ 1 đến 7, trong đó x là lớn hơn hoặc bằng với 0,5.

Mệnh đề 9. Chế phẩm phát quang của chất theo mệnh đề bất kỳ trong số các mệnh đề từ 1 đến 8, trong đó x là lớn hơn hoặc bằng với 0,7.

Mệnh đề 10. Chế phẩm phát quang của chất theo mệnh đề bất kỳ trong số các mệnh đề từ 1 đến 5, trong đó chế phẩm được đặc trưng bởi công thức $\text{EuAl}_{11,08}\text{Ga}_{1,62}\text{S}_{5,05}$.

Mệnh đề 11. Thiết bị phát sáng bao gồm chất huỳnh quang theo mệnh đề bất kỳ trong số các mệnh đề từ 1 đến 10.

Mệnh đề 12. Điốt phát sáng được biến đổi chất huỳnh quang bao gồm:

Điốt phát sáng phát ánh sáng qua khoảng giới hạn bước sóng thứ nhất; và

Chất huỳnh quang theo mệnh đề bất kỳ trong số các mệnh đề từ 1 đến 10 được sắp xếp để bị kích thích bởi việc phát xạ từ điốt phát sáng và đáp lại phát xạ ánh sáng qua khoảng giới hạn bước sóng thứ hai.

Phần bộc lộ này chỉ là minh họa và không làm hạn chế. Các biến đổi khác sẽ là rõ ràng đối với người có hiểu biết trung bình về lĩnh vực này và nhằm để nằm trong phạm vi bảo hộ của các yêu cầu bảo hộ kèm theo.

Bảng 1: Tổng hợp các hợp phần ví dụ thực nghiệm và các tính chất phổ

Ví dụ	Mẫu	Chế phẩm thực nghiệm	Các pha được quan sát trong PXRD	Phát xạ đỉnh Bước sóng / nm	FWHM / nm
1	KB3-063-406	$\text{EuAl}_{2,133}\text{B}_{0,567}\text{S}_{5,05}$	$\text{Eu}(\text{Al}_{0,79}\text{B}_{0,21})_2\text{S}_4$	505	34

2	KB3-059-399	$\text{EuAl}_{2,322}\text{Lu}_{0,378}\text{S}_{5,05}$		501	35
3	KB3-125-488	$\text{EuAl}_{0,8}\text{Ga}_{1,2}\text{S}_4$ Chất pha loãng AlCl_3	$\text{Eu}(\text{Ga}_{0,6}\text{Al}_{0,4})_2\text{S}_4$	535	42
4	KB3-125-489	$\text{EuAl}_{0,84}\text{Ga}_{1,26}\text{S}_{4,15}$ Chất pha loãng AlCl_3	$\text{Eu}(\text{Ga}_{0,6}\text{Al}_{0,4})_2\text{S}_4 + (\text{Ga},\text{Al})_2\text{S}_3$	534	43
5	KB3-125-490	$\text{EuAl}_{0,92}\text{Ga}_{1,38}\text{S}_{4,45}$ Chất pha loãng AlCl_3	$\text{Eu}(\text{Ga}_{0,6}\text{Al}_{0,4})_2\text{S}_4 + (\text{Ga},\text{Al})_2\text{S}_3$	539	44
6	KB3-125-491	$\text{EuAlGa}_{1,5}\text{S}_{4,75}$ Chất pha loãng AlCl_3	$\text{Eu}(\text{Ga}_{0,6}\text{Al}_{0,4})_2\text{S}_4 + (\text{Ga},\text{Al})_2\text{S}_3$	535	43
7	KB3-126-492	$\text{EuAl}_{1,08}\text{Ga}_{1,62}\text{S}_{5,05}$ Chất pha loãng AlCl_3	$\text{Eu}(\text{Ga}_{0,6}\text{Al}_{0,4})_2\text{S}_4 + (\text{Ga},\text{Al})_2\text{S}_3$	535	43
8	KB3-126-493	$\text{EuAl}_{1,16}\text{Ga}_{1,74}\text{S}_{5,35}$ Chất pha loãng AlCl_3	$\text{Eu}(\text{Ga}_{0,6}\text{Al}_{0,4})_2\text{S}_4 + (\text{Ga},\text{Al})_2\text{S}_3$	533	43
9	KB3-132-506	$\text{EuAl}_{1,08}\text{Ga}_{1,62}\text{S}_{5,05}$ Chất pha loãng AlF_3		530	48
10	KB3-133-507	$\text{EuAl}_{0,8}\text{Ga}_{1,2}\text{S}_4$ Chất pha loãng AlF_3		532	47
11	YBG-170419-1	EuAl_2Se_4	$\text{EuAl}_2\text{Se}_4 + \text{EuSe} + \text{Al}_{1,33}\text{Se}_2$	486	34
12	YBG-170419-2	$\text{EuAl}_{2,4}\text{Se}_{4,6}$	$\text{EuAl}_2\text{Se}_4 + \text{EuSe}$	488	34
13	YBG-170419-4	$\text{EuAl}_{2,4}\text{Se}_{3,6}\text{S}$	$\text{EuAl}_2\text{Se}_4 + \text{EuSe}$	496	37
14	YBG-170419-5	$\text{EuAl}_{2,7}\text{Se}_{5,05}$	EuAl_2Se_4	488	33
15	KB3-132-503	$\text{EuAl}_{2,07}\text{In}_{0,23}\text{S}_{4,45}$		508	31
16	KB3-132-504	$\text{EuAl}_{1,84}\text{In}_{0,46}\text{S}_{4,45}$		511	37
17	KB3-132-505	$\text{EuAl}_{1,61}\text{Ga}_{0,23}\text{In}_{0,46}\text{S}_{4,45}$		517	45
18	ELTAIS-056A	$\text{EuAlGa}_{1,5}\text{S}_{4,75}$ Chất pha loãng AlBr_3	$\text{Eu}(\text{Ga}_{0,6}\text{Al}_{0,4})_2\text{S}_4 + (\text{Ga},\text{Al})_2\text{S}_3$	533	43
19	ELTAIS-056B	$\text{EuAlGa}_{1,5}\text{S}_{4,75}$ Chất pha loãng GaBr_3	$\text{Eu}(\text{Ga}_{0,6}\text{Al}_{0,4})_2\text{S}_4 + (\text{Ga},\text{Al})_2\text{S}_3$	541	44
20	ELTAIS-056C	$\text{EuAlGa}_{1,5}\text{S}_{4,75}$ chất pha loãng GaCl_3	$\text{Eu}(\text{Ga}_{0,6}\text{Al}_{0,4})_2\text{S}_4 + (\text{Ga},\text{Al})_2\text{S}_3$	541	45
21	ELTAIS-056D	$\text{EuAlGa}_{1,5}\text{S}_{4,75}$ Chất pha loãng EuCl_3	$\text{Eu}(\text{Ga}_{0,6}\text{Al}_{0,4})_2\text{S}_4 + (\text{Ga},\text{Al})_2\text{S}_3 + (\text{Ga},\text{Al})\text{S}$	537	44
22	ELTAIS-056E	$\text{EuAlGa}_{1,5}\text{S}_{4,75}$ Chất pha loãng EuI_2	$\text{Eu}(\text{Ga}_{0,6}\text{Al}_{0,4})_2\text{S}_4$	536	47
23	YBG-170424-2	$\text{Eu}_{0,97}\text{Gd}_{0,03}\text{Al}_{0,92}\text{Ga}_{1,38}\text{S}_{4,45}$	$\text{EuAl}_{0,8}\text{Ga}_{1,2}\text{S}_4$	537	50
24	ELTAIS-006C	EuAl_2S_4	EuAl_2S_4	503	30
25	ELTAIS-016C	$\text{EuAl}_{2,33}\text{S}_{4,28}$	EuAl_2S_4	509	31
26	ELTAIS-016E	$\text{EuAl}_{2,7}\text{S}_{5,05}$	EuAl_2S_4	508	32
27	ELTAIS-016F	$\text{EuAl}_{2,9}\text{S}_{5,35}$	EuAl_2S_4	507	31
28	ELTAIS-062A	Chất pha loãng EuGa_2S_4 I_2		549	43
29	ELTAIS-062B	Chất pha loãng EuGa_2S_4 GaCl_3		551	39
30	ELTAIS-063A	Chất pha loãng $\text{EuGa}_{2,7}\text{S}_{5,05}$ I_2		549	41
31	ELTAIS-063B	Chất pha loãng $\text{EuGa}_{2,7}\text{S}_{5,05}$ GaCl_3		550	39

YÊU CẦU BẢO HỘ

1. Chế phẩm phát quang của chất đặc trưng bởi công thức $REM_{2+x}E_y$, trong đó:
RE là một hoặc nhiều nguyên tố đất hiếm, với điều kiện là ít nhất một nguyên tố đất hiếm là Eu;
M là một hoặc nhiều nguyên tố được chọn từ nhóm Al, Ga, B, In, Sc, Lu, và Y;
E là một hoặc nhiều nguyên tố được chọn từ nhóm S, và Se;
x là lớn hơn hoặc bằng với 0,1, và nhỏ hơn hoặc bằng với 0,9; và
y có trị số đạt được cân bằng điện tích trong công thức, giả sử rằng E có điện tích là -2.
2. Chế phẩm phát quang của chất theo điểm 1, trong đó x là lớn hơn hoặc bằng với 0,3.
3. Chế phẩm phát quang của chất theo điểm 1, trong đó x là lớn hơn hoặc bằng với 0,7.
4. Chế phẩm phát quang của chất theo điểm bất kỳ trong số các điểm từ 1 đến 3, theo cách dành riêng, là có cấu trúc tinh thể giả trực thoi EuM_2E_4 .
5. Chế phẩm phát quang của chất theo điểm bất kỳ trong số các điểm từ 1 đến 3, có hỗn hợp trội là cấu trúc tinh thể giả trực thoi EuM_2E_4 và một hoặc nhiều cấu trúc tinh thể chalcogen nhị nguyên.
6. Chế phẩm phát quang của chất theo điểm 1, trong đó RE là Eu.
7. Chế phẩm phát quang của chất theo điểm 6, trong đó x là lớn hơn hoặc bằng với 0,3.
8. Chế phẩm phát quang của chất theo điểm 6, trong đó x là lớn hơn hoặc bằng với 0,7.
9. Chế phẩm phát quang của chất theo điểm bất kỳ trong số các điểm từ 6 đến 8, theo cách dành riêng, là có cấu trúc tinh thể giả trực thoi EuM_2E_4 .
10. Chế phẩm phát quang của chất theo điểm bất kỳ trong số các điểm từ 6 đến 8, có hỗn hợp trội là cấu trúc tinh thể giả trực thoi EuM_2E_4 và một hoặc nhiều cấu trúc tinh thể chalcogen nhị nguyên.

11. Chế phẩm phát quang của chất theo điểm 1, trong đó RE chứa Eu và Gd.
12. Chế phẩm phát quang của chất theo điểm 11, trong đó x là lớn hơn hoặc bằng với 0,3.
13. Chế phẩm phát quang của chất theo điểm 11, trong đó x là lớn hơn hoặc bằng với 0,7.
14. Chế phẩm phát quang của chất theo điểm 1, trong đó chế phẩm đặc trưng bởi công thức $\text{Eu}(\text{Al}, \text{Ga})_{2+x}\text{S}_y$.
15. Chế phẩm phát quang của chất theo điểm 14, trong đó tỉ lệ của Al so với Ga là giữa khoảng 1:3 và khoảng 2:1.
16. Chế phẩm phát quang của chất theo điểm 14, trong đó x là lớn hơn hoặc bằng với 0,3.
17. Chế phẩm phát quang của chất theo điểm 14, trong đó x là lớn hơn hoặc bằng với 0,7.
18. Chế phẩm phát quang của chất theo điểm bất kỳ trong số các điểm từ 14 đến 17, theo cách dành riêng, là có cấu trúc tinh thể giả trực thoi EuM_2E_4 .
19. Chế phẩm phát quang của chất theo điểm bất kỳ trong số các điểm từ 14 đến 17, có hỗn hợp trội là cấu trúc tinh thể giả trực thoi EuM_2E_4 và một hoặc nhiều cấu trúc tinh thể chalcogen nhị nguyên.
20. Chế phẩm phát quang của chất theo điểm 17 trong đó chế phẩm được đặc trưng bởi công thức $\text{EuAl}_{1,08}\text{Ga}_{1,62}\text{S}_{5,05}$.
21. Chế phẩm phát quang của chất theo điểm 1, trong đó chế phẩm đặc trưng bởi công thức $\text{EuAl}_{2+x}\text{E}_y$, trong đó E được chọn từ nhóm S và Se.
22. Chế phẩm phát quang của chất theo điểm 21, trong đó x là lớn hơn hoặc bằng với 0,3.

23. Chế phẩm phát quang của chất theo điểm 21, trong đó x là lớn hơn hoặc bằng với 0,7.

24. Chế phẩm phát quang của chất theo điểm bất kỳ trong số các điểm từ 21 đến 23, theo cách dành riêng, là có cấu trúc tinh thể giả trực thoi EuM_2E_4 .

25. Chế phẩm phát quang của chất theo điểm bất kỳ trong số các điểm từ 21 đến 23, có hỗn hợp trội là cấu trúc tinh thể giả trực thoi EuM_2E_4 và một hoặc nhiều cấu trúc tinh thể chalcogen nhị nguyên.

26. Chế phẩm phát quang của chất theo điểm 21, trong đó chế phẩm đặc trưng bởi công thức $\text{EuAl}_{2,7}\text{Se}_{5,05}$.

27. Chế phẩm phát quang của chất theo điểm 21, trong đó chế phẩm đặc trưng bởi công thức $\text{EuAl}_{2,7}\text{S}_{5,05}$.

28. Thiết bị phát sáng bao gồm:

điot phát sáng phát ánh sáng qua khoảng giới hạn bước sóng thứ nhất; và
chế phẩm phát quang của chất được sắp xếp để bị kích thích bởi việc phát xạ từ diot phát sáng và đáp lại là phát xạ ánh sáng qua khoảng giới hạn bước sóng thứ hai; trong đó chế phẩm phát quang của chất đặc trưng bởi công thức $\text{REM}_{2+x}\text{E}_y$, trong đó:

RE là một hoặc nhiều nguyên tố đất hiếm, với điều kiện là ít nhất một nguyên tố đất hiếm là Eu;

M là một hoặc nhiều nguyên tố được chọn từ nhóm Al, Ga, B, In, Sc, Lu, và Y;

E là một hoặc nhiều nguyên tố được chọn từ nhóm S, và Se;

x là lớn hơn không và nhỏ hơn hoặc bằng 0,9; và

y có trị số đạt được cân bằng điện tích trong công thức, giả sử rằng E có điện tích là -2.

29. Thiết bị phát sáng theo điểm 28, trong đó RE là Eu và x là lớn hơn hoặc bằng với 0,3.

30. Thiết bị phát sáng theo điểm 28, trong đó RE là Eu và x là lớn hơn hoặc bằng với 0,7.

Biểu đồ NTSC
Điểm gam màu xanh lục

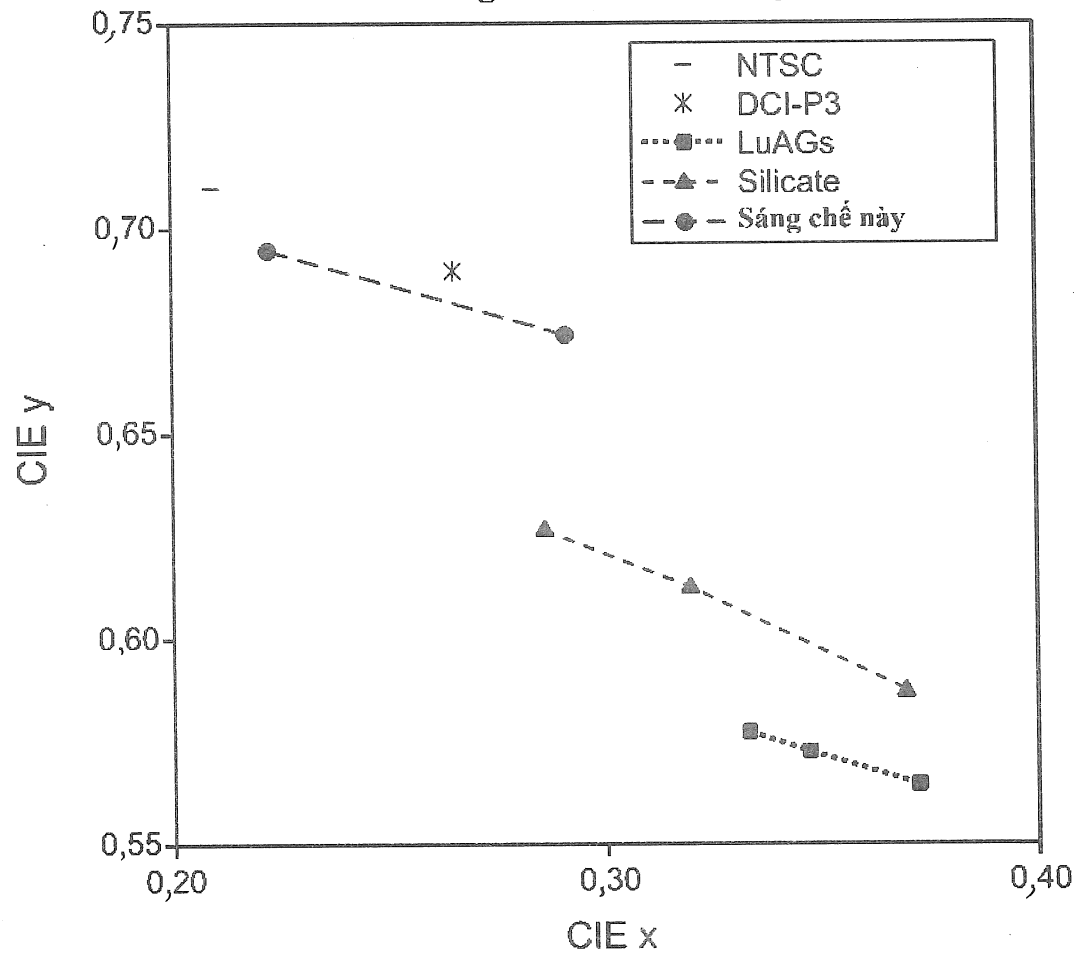
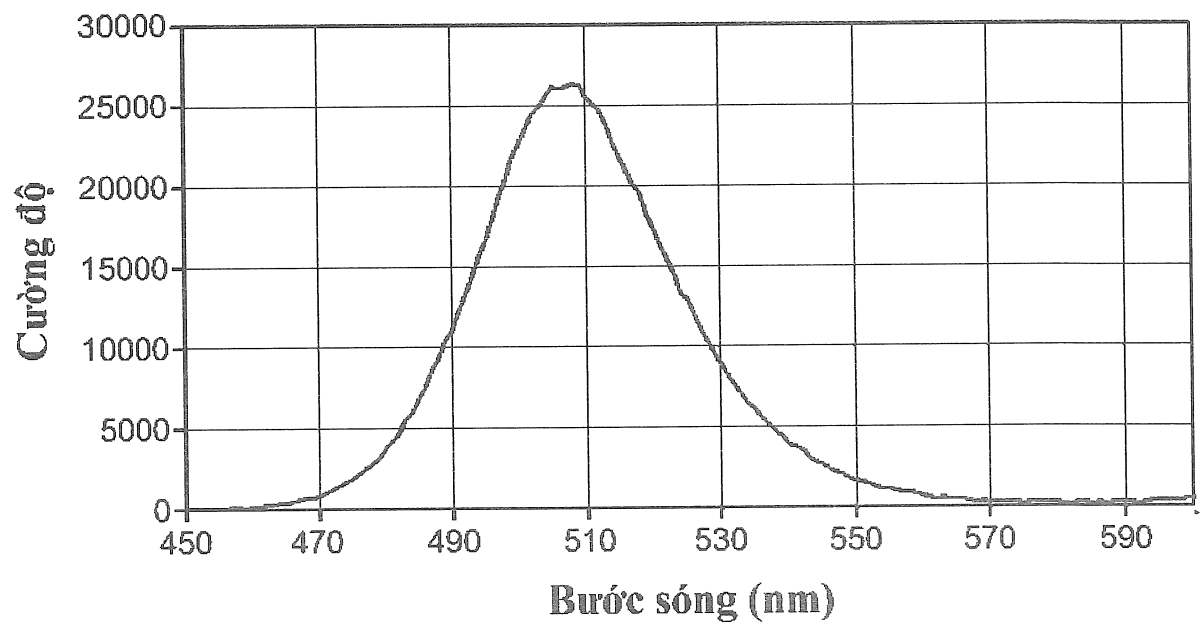
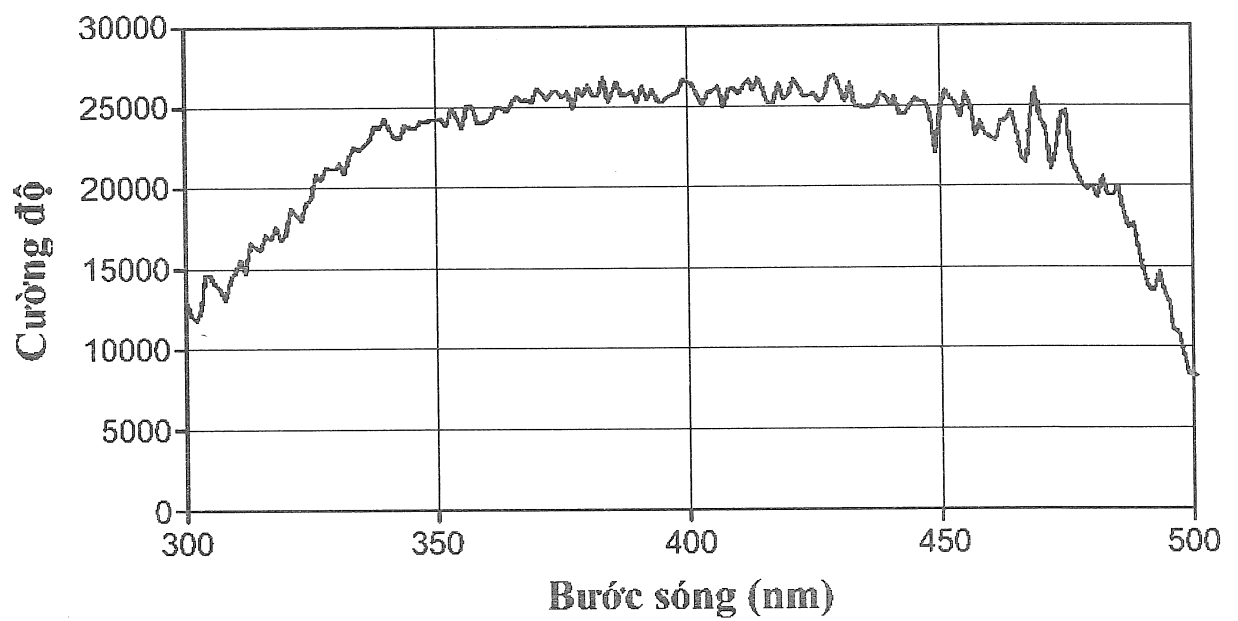
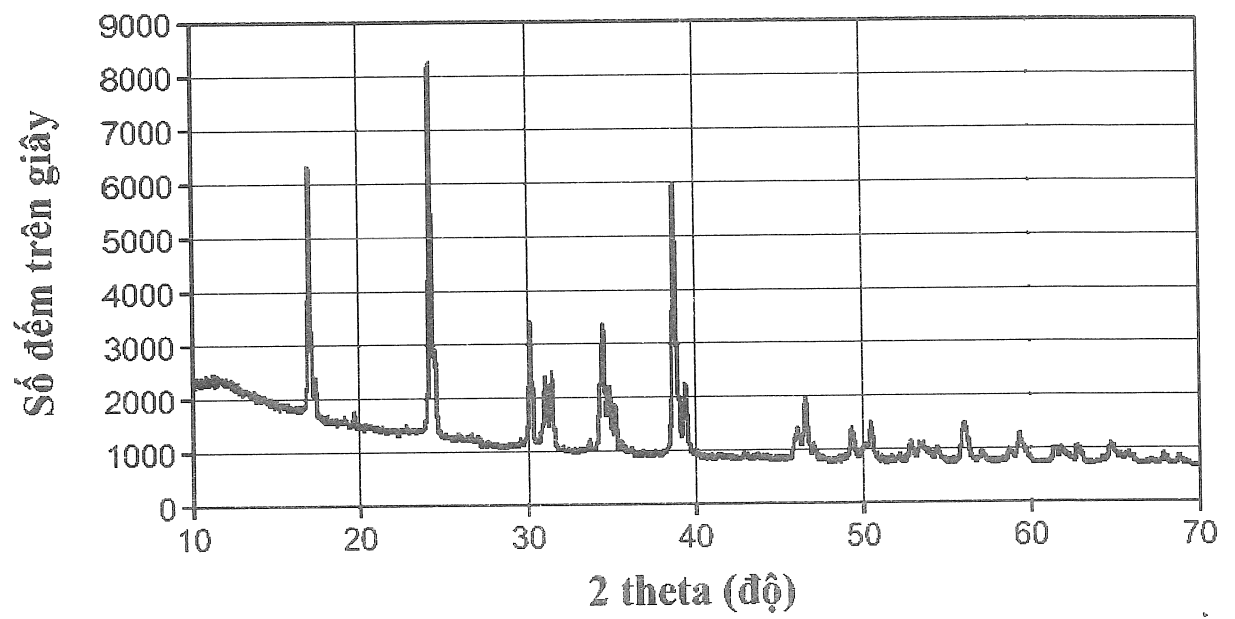
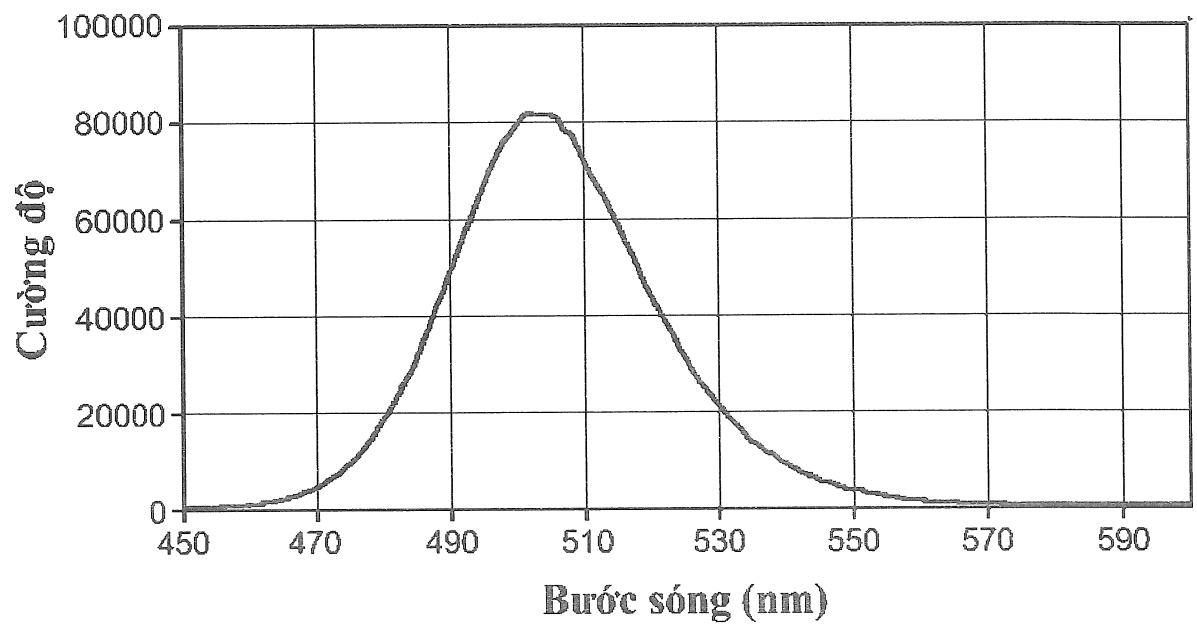
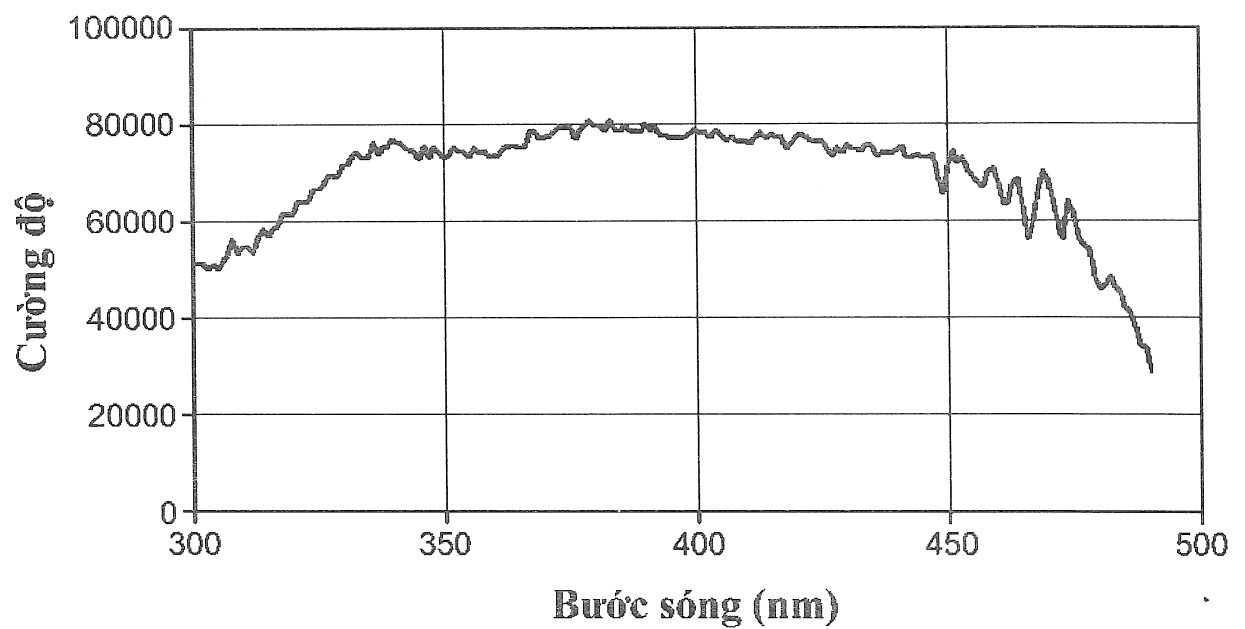
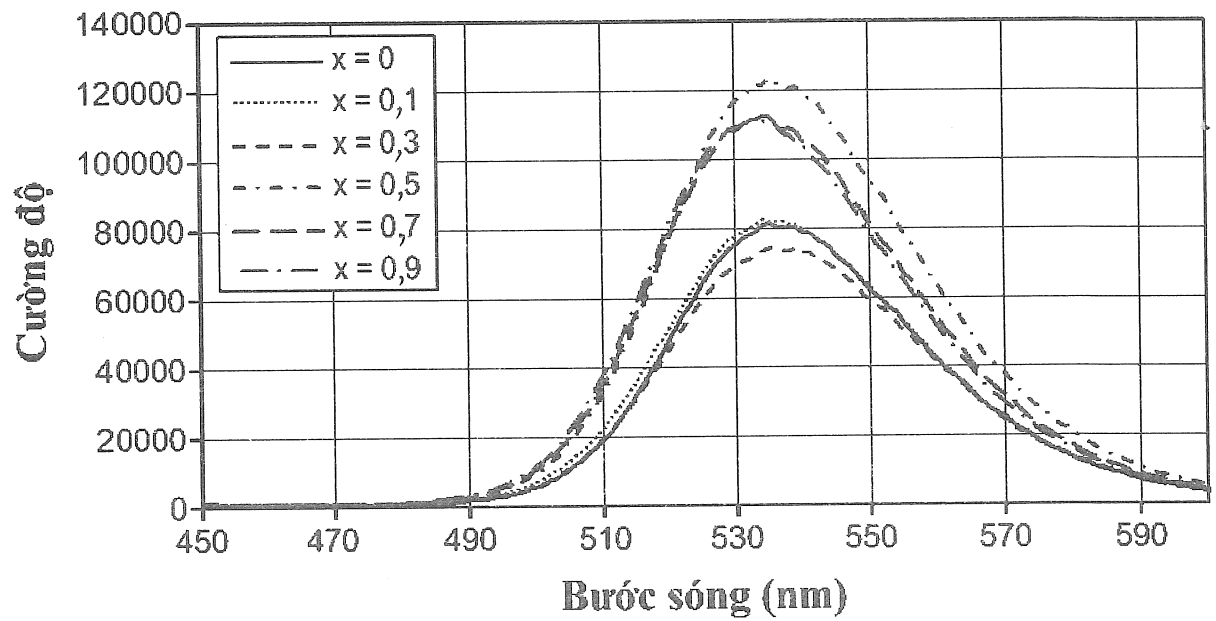
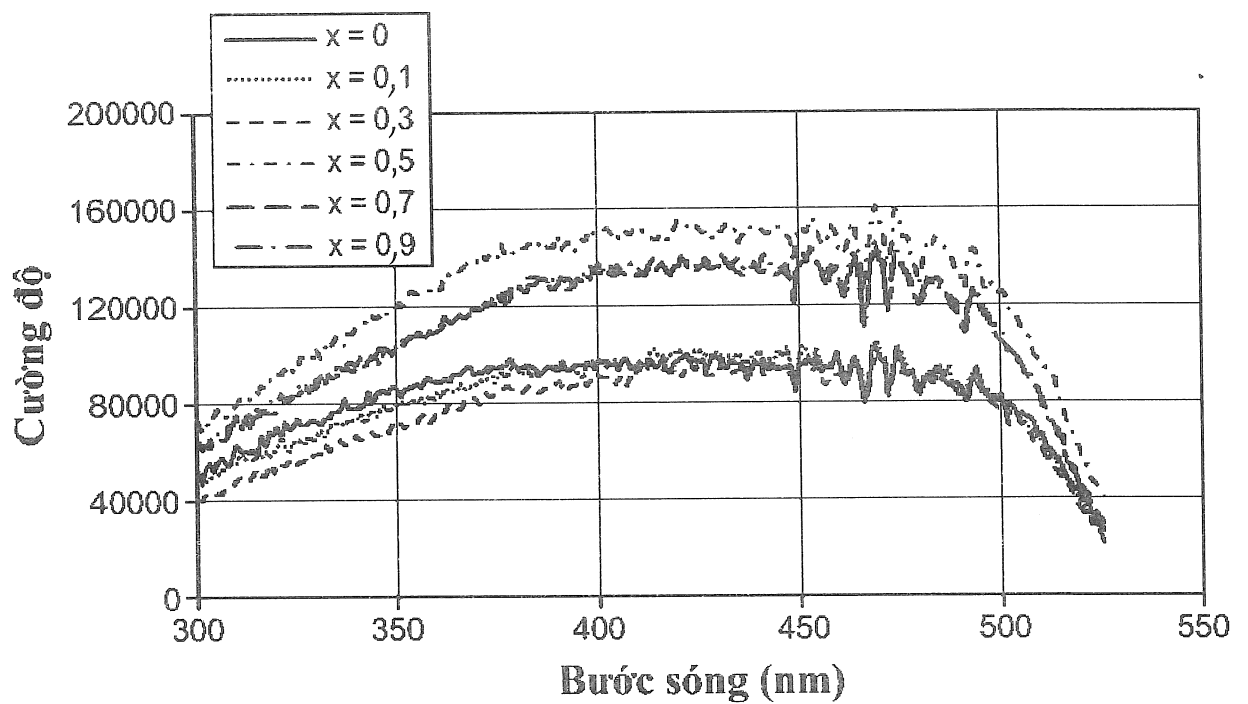


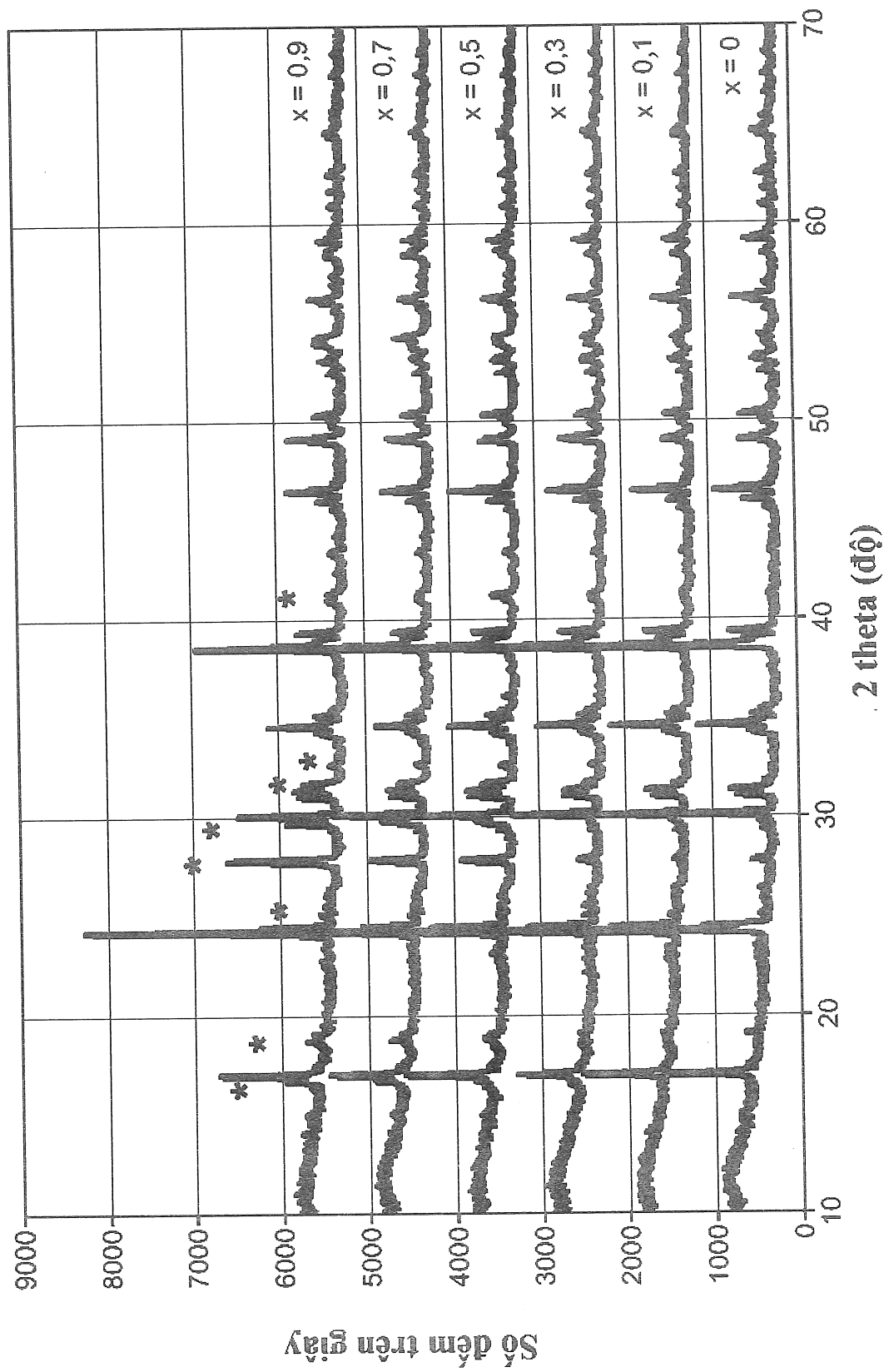
FIG. 1

**FIG. 2A****FIG. 2B**

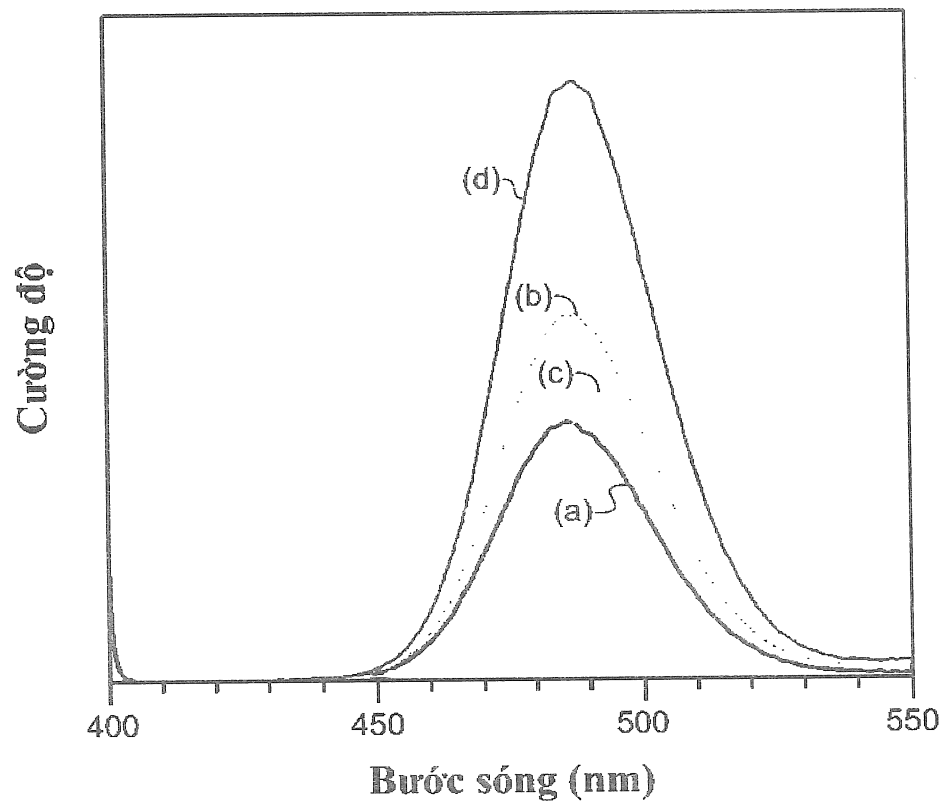
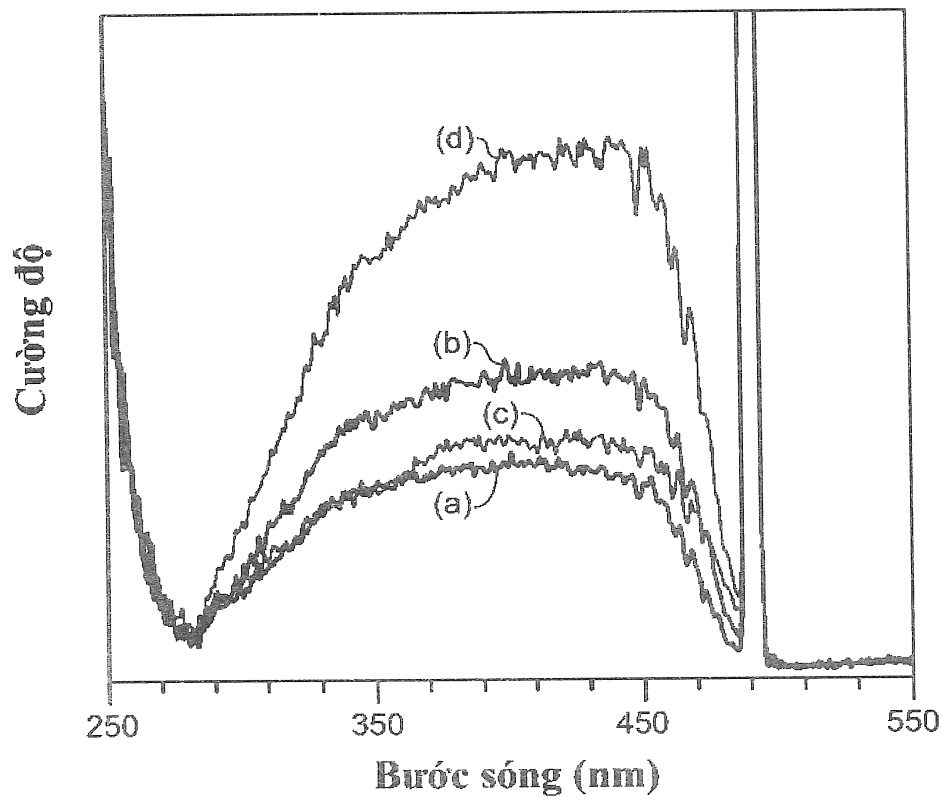
**FIG. 2C**

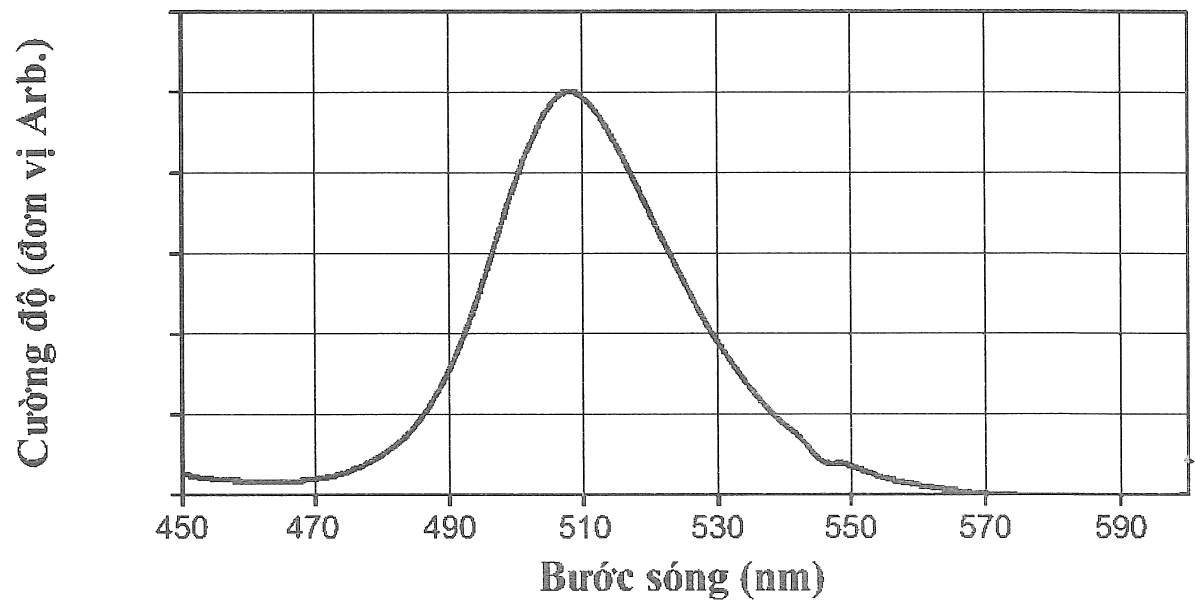
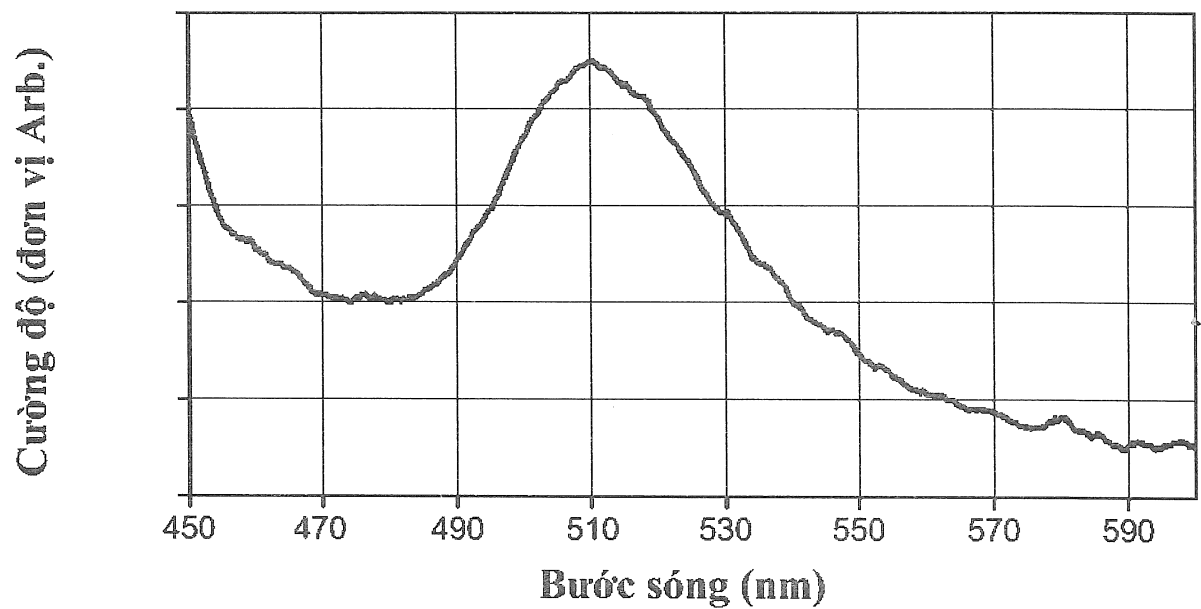
**FIG. 3A****FIG. 3B**

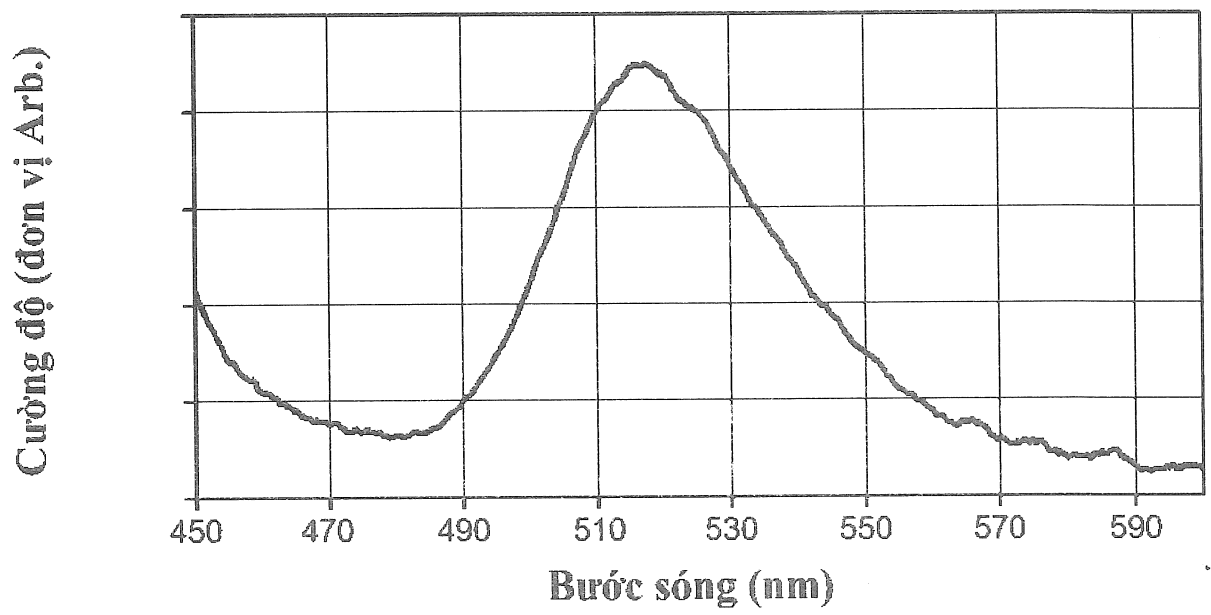
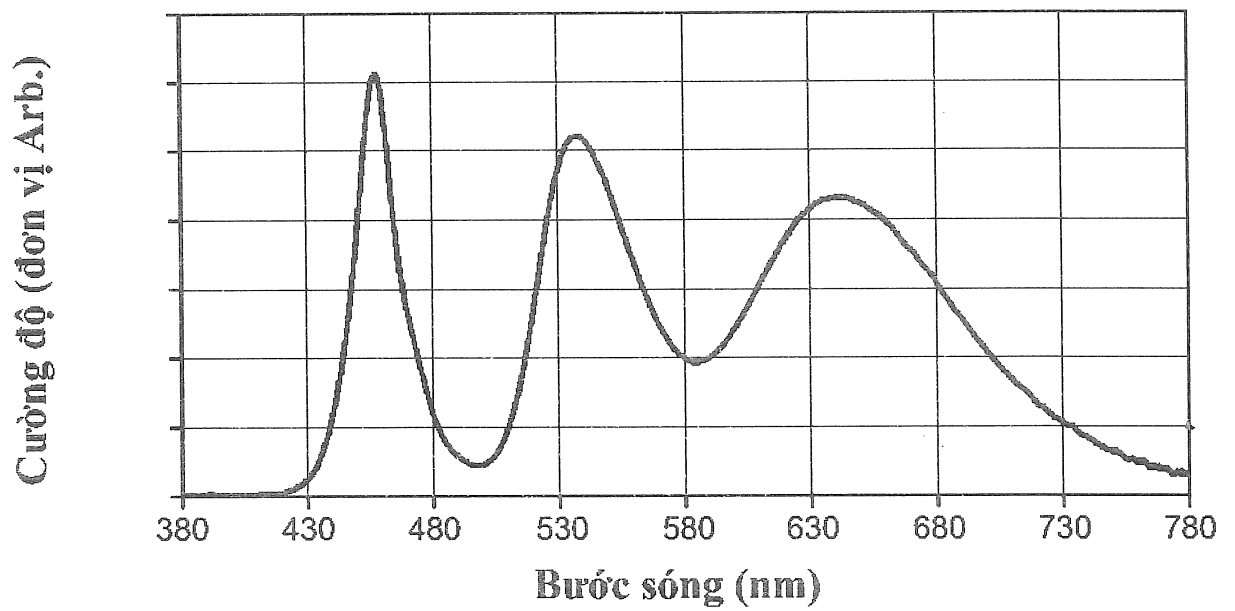
**FIG. 4A****FIG. 4B**

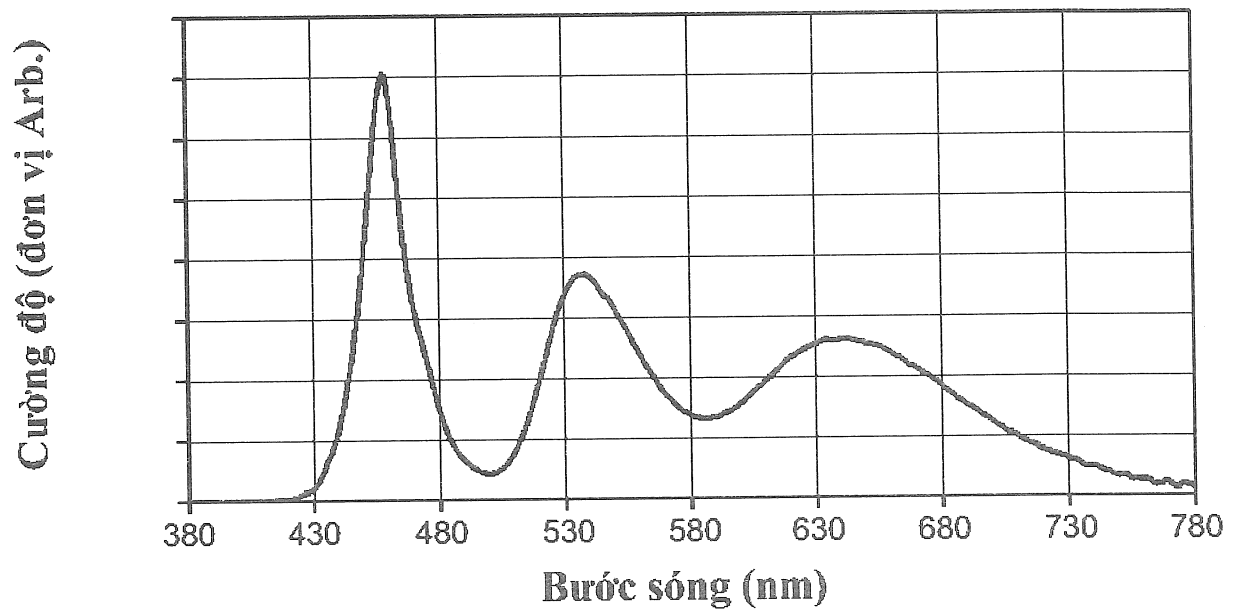
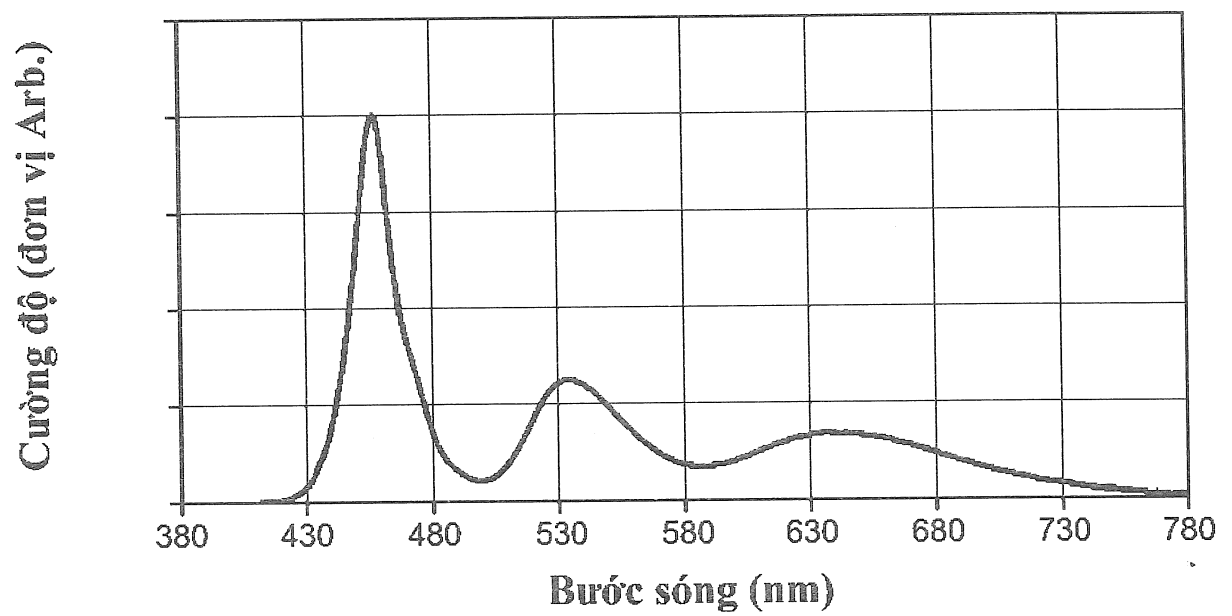
**FIG. 4C**

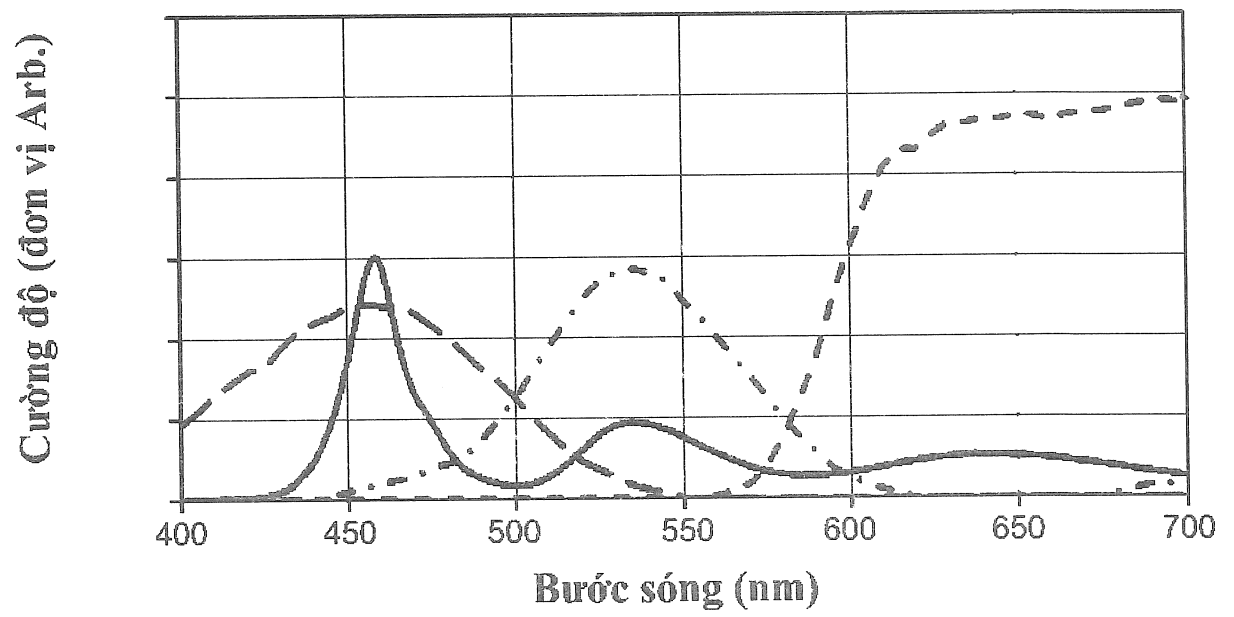
7 / 11

**FIG. 5A****FIG. 5B**

**FIG. 6****FIG. 7**

**FIG. 8****FIG. 9**

**FIG. 10****FIG. 11**

**FIG. 12**