

(19) 日本国特許庁(JP)

## (12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2015-510954

(P2015-510954A)

(43) 公表日 平成27年4月13日(2015.4.13)

(51) Int.Cl.	F 1	テーマコード (参考)
C09K 11/80 (2006.01)	C09K 11/80	C P M 4 H O O 1
C09K 11/59 (2006.01)	C09K 11/59	C P R 5 F 1 4 2
C09K 11/79 (2006.01)	C09K 11/79	C Q D
C09K 11/64 (2006.01)	C09K 11/64	C Q H
C09K 11/08 (2006.01)	C09K 11/08	C P P

審査請求 有 予備審査請求 未請求 (全 32 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2014-561005 (P2014-561005)	(71) 出願人	000003964 日東電工株式会社 大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号
(86) (22) 出願日	平成25年3月4日 (2013.3.4)	(71) 出願人	514227209 チャン、ビン アメリカ合衆国 カリフォルニア州 92 128、サンディエゴ、11886
(85) 翻訳文提出日	平成26年10月30日 (2014.10.30)	(71) 出願人	カミニート コリエンテ 宮川 浩明 アメリカ合衆国 カリフォルニア州 92 057、オーシャンサイド、844 アー サー アベニュー
(86) 國際出願番号	PCT/US2013/028943	(71) 出願人	
(87) 國際公開番号	W02013/134163	(71) 出願人	
(87) 國際公開日	平成25年9月12日 (2013.9.12)	(71) 出願人	
(31) 優先権主張番号	61/607,361	(71) 出願人	
(32) 優先日	平成24年3月6日 (2012.3.6)	(71) 出願人	
(33) 優先権主張國	米国(US)	(71) 出願人	

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】発光デバイス用のセラミック体

## (57) 【要約】

本明細書において開示する一部の実施形態は、第一の領域と第二の領域とを含むセラミック体を含む。前記第一の領域は、ホスト材料と、ルミネセンスを生じさせるために有効である第一の濃度のドーパントとを含み得る。前記第二の領域は、前記ホスト材料および第二の濃度のドーパントを含み得る。一部の実施形態において、前記第一の領域は、前記第二の領域の平均粒度より大きい平均粒度を有する。前記セラミック体は、一部の実施形態では、優れた内部量子効率(IQE)を呈示し得る。本明細書において開示する一部の実施形態は、本明細書において開示するセラミック体の作製および使用方法を含む。また、一部の実施形態は、本明細書において開示するセラミック体を含む照明装置を本明細書において開示した。

【選択図】図5

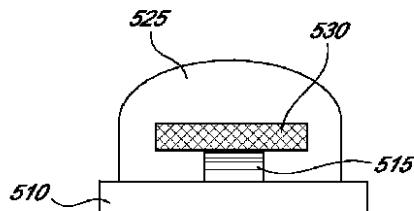


FIG. 5

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

セラミック体であって、  
ホスト材料および第一の濃度のドーパントを含有し、前記第一の濃度が、ルミネセンスを生じさせるために有効である、第一の領域と、  
前記ホスト材料および第二の濃度の前記ドーパントを含有し、前記第二の濃度が前記第一の濃度より低い、第二の領域と  
を含み；ならびに  
前記第一の領域が、前記第二の領域の平均粒度より大きい平均粒度を有するものであるセラミック体。

10

## 【請求項 2】

前記ホスト材料が、式  $A_3B_5O_{12}$  (式中、  
A は、Y、Lu、Ca、La、Tb、Gd およびこれらの組み合わせからなる群より選択され；ならびに  
B は、Al、Mg、Si、Ga、In およびこれらの組み合わせからなる群より選択される)  
によって表される、請求項 1 に記載のセラミック体。

## 【請求項 3】

前記ホスト材料が、 $Y_3Al_5O_{12}$ 、 $(Y, Tb)_3Al_5O_{12}$ 、 $(Y, Gd)_3Al_5O_{12}$ 、 $(Y, Gd)_3(Y, Gd)_3$   
 $(Al, Ga)_5O_{12}$ 、 $(Sr, Ca, Ba)_2SiO_4$ 、 $Lu_3Al_5O_{12}$ 、 $Lu_2CaMg_2Si_3O_{12}$ 、 $Lu_2CaAl_4SiO_{12}$ 、  
 $Ca_3Sc_2Si_3O_{12}$ 、 $Ba_3MgSi_2O_8$ 、 $BaMgAl_{10}O_{17}$ 、 $La_2O_2S$ 、 $SrGa_2S_4$ 、 $CaAlSiN_3$ 、 $Ca_2Si_5N_8$ 、および  $CaSiAlO_N$  から選択される、請求項 1 または 2 に記載のセラミック体。

20

## 【請求項 4】

前記ホスト材料が、 $Y_3Al_5O_{12}$  である、請求項 1 ~ 3 のいずれか一項に記載のセラミック体。

## 【請求項 5】

前記ドーパントが、希土類金属である、請求項 1 ~ 4 のいずれか一項に記載のセラミック体。

30

## 【請求項 6】

前記ドーパントが、Ce、La、Tb、Pr、Eu およびこれらの組み合わせからなる群より選択される、請求項 1 ~ 5 のいずれか一項に記載のセラミック体。

## 【請求項 7】

前記ドーパントが Ce である、請求項 1 ~ 6 のいずれか一項に記載のセラミック体。

## 【請求項 8】

前記第一の領域が、約  $5 \mu m$  から約  $100 \mu m$  の平均粒度を有する、請求項 1 ~ 7 のいずれか一項に記載のセラミック体。

## 【請求項 9】

前記第二の領域が、約  $30 \mu m$  未満の平均粒度を有する、請求項 1 ~ 8 のいずれか一項に記載のセラミック体。

40

## 【請求項 10】

前記第二のドーパント濃度が、約  $0.2 at\%$  以下である、請求項 1 ~ 9 のいずれか一項に記載のセラミック体。

## 【請求項 11】

前記第一の濃度のドーパントの、前記第二の濃度のドーパントに対する比が、約 4 : 1 から約 1 : 1 の範囲内である、請求項 1 ~ 10 のいずれか一項に記載のセラミック体。

## 【請求項 12】

前記第一の領域が、前記セラミック体の中心コアを含有する、請求項 1 ~ 11 のいずれか一項に記載のセラミック体。

50

**【請求項 1 3】**

前記第二の領域が、前記セラミック体の外周部分を含有する、請求項 1 ~ 1 2 のいずれか一項に記載のセラミック体。

**【請求項 1 4】**

前記第一の領域が、前記第二の領域に隣接する、請求項 1 ~ 1 3 のいずれか一項に記載のセラミック体。

**【請求項 1 5】**

前記セラミック体が、前記ホスト材料と第三の濃度の前記ドーパントとを含有する第三の領域をさらに含み、前記第三の濃度が、前記第一の濃度より低く、前記第一の領域が、前記第三の領域の平均粒度より大きい平均粒度を有し、および前記第一の領域が、前記第二の領域と第三の領域の間にある、請求項 1 ~ 1 1 のいずれか一項に記載のセラミック体。  
10

**【請求項 1 6】**

前記第二の領域が、前記セラミック体の第一の表面を含み；

前記第三の領域が、前記セラミック体の第二の表面を含み；

前記第一および第二の表面が、前記セラミック体の反対側にある、  
請求項 1 5 に記載のセラミック体。

**【請求項 1 7】**

前記第一、第二および第三の領域が、別々の層である、請求項 1 5 ~ 1 6 のいずれか一項に記載のセラミック体。  
20

**【請求項 1 8】**

前記第三の領域が、約 3 0  $\mu\text{m}$  未満の平均粒度を有する、請求項 1 5 ~ 1 7 のいずれか一項に記載のセラミック体。

**【請求項 1 9】**

前記第三のドーパント濃度が、約 0 . 2 at % 以下である、請求項 1 5 ~ 1 8 のいずれか一項に記載のセラミック体。

**【請求項 2 0】**

前記第一の濃度のドーパントの、前記第三の濃度のドーパントに対する比が、約 4 : 1 から約 1 : 1 の範囲内である、請求項 1 5 ~ 1 9 のいずれか一項に記載のセラミック体。  
30

**【請求項 2 1】**

前記セラミック体が、約 4 5 5 nm の波長を有する放射線に曝露されたとき、少なくとも約 0 . 8 0 の内部量子効率 ( IQE ) を呈示する、請求項 1 ~ 2 0 のいずれか一項に記載のセラミック体。

**【請求項 2 2】**

セラミック体の形成方法であって、

組立体を形成する工程を含み、前記組立体を形成する工程が、

ホスト材料、ホスト材料前駆体またはこれらの組み合わせを含有する第一のノンドープ層を用意する工程であって、前記第一のノンドープ層が約 4 0  $\mu\text{m}$  から約 8 0 0  $\mu\text{m}$  の範囲内の厚みを有するものである工程；

前記第一のノンドープ層上にドープ層を堆積させる工程であって、前記ドープ層が、約 1 0  $\mu\text{m}$  から約 4 0 0  $\mu\text{m}$  の範囲内の厚みを有し、およびホスト材料、ホスト材料前駆体またはこれらの組み合わせと、ドーパントとを含有するものである工程；および  
40

組立体を焼結して、第一の領域と第二の領域とを含む前記セラミック体を形成する工程であって、前記第一の領域の平均粒度が前記第二の領域の平均粒度より大きく、

前記第一の領域が、ルミネセンスを生じさせるために有効である第一の濃度のドーパントを含有し、および前記第二の領域が、前記第一のドーパント濃度より低い第二の濃度のドーパントを含有するものである工程

を含む方法。

**【請求項 2 3】**

前記ドープ層の上に第二のノンドープ層を堆積させる工程をさらに含み、前記第二のノ

10

20

30

40

50

ンドープ層が、前記ホスト材料、前記ホスト材料前駆体またはこれらの組み合わせを含有し、ならびに前記第一および第二のノンドープ層が、各々独立して、約 40 μm から約 400 μm の範囲内の厚みを有する、請求項 22 に記載の方法。

**【請求項 24】**

前記組立体が、減圧下で焼結される、請求項 22 ~ 23 のいずれか一項に記載の方法。

**【請求項 25】**

前記減圧が、約 100 Torr 以下である、請求項 24 に記載の方法。

**【請求項 26】**

前記組立体を焼結する工程が、約 1000 から約 1950 の範囲内の温度での少なくとも約 2 時間の前記組立体の加熱を含む、請求項 22 ~ 25 のいずれか一項に記載の方法。10

**【請求項 27】**

前記温度が、約 1300 から約 1800 の範囲内である、請求項 26 に記載の方法。11

**【請求項 28】**

前記組立体が、前記温度で少なくとも約 5 時間加熱される、請求項 26 ~ 27 のいずれか一項に記載の方法。

**【請求項 29】**

前記組立体が、前記温度で約 60 時間以下加熱される、請求項 26 ~ 28 のいずれか一項に記載の方法。20

**【請求項 30】**

前記ドープ層が、約 40 μm から約 80 μm の範囲内の厚みを有する、請求項 22 ~ 29 のいずれか一項に記載の方法。

**【請求項 31】**

前記第一のノンドープ層の厚みが、前記第二のノンドープ層の厚みとほぼ同じであり；ならびに

前記第一のノンドープ層の厚みおよび前記第二のノンドープ層の厚みの各々が、前記ドープ層の厚みより厚い。

請求項 23 ~ 30 のいずれか一項に記載の方法。

**【請求項 32】**

前記組立体が、約 100 μm から約 1 mm の範囲内の全厚を有する、請求項 22 ~ 31 のいずれか一項に記載の方法。30

**【請求項 33】**

前記ドープ層が、約 0.1 at% から約 5 at% のドーパントを含有する、請求項 22 ~ 32 のいずれか一項に記載の方法。

**【請求項 34】**

前記ホスト材料が、式  $A_3 B_5 O_{12}$  (式中、  
A は、Y、Lu、Ca、La、Tb、Gd およびこれらの組み合わせからなる群より選択され；ならびに

B は、Al、Mg、Si、Ga、In およびこれらの組み合わせからなる群より選択される)40

によって表される、請求項 22 ~ 33 のいずれか一項に記載の方法。

**【請求項 35】**

前記ホスト材料が、 $Y_3 Al_5 O_{12}$ 、 $(Y, Tb)_3 Al_5 O_{12}$ 、 $(Y, Gd)_3 Al_5 O_{12}$ 、 $(Y, Gd)_3 (Al, Ga)_5 O_{12}$ 、 $(Sr, Ca, Ba)_2 SiO_4$ 、 $Lu_3 Al_5 O_{12}$ 、 $Lu_2 Ca Mg_2 Si_3 O_{12}$ 、 $Lu_2 Ca Al_4 Si O_{12}$ 、 $Ca_3 Sc_2 Si_3 O_{12}$ 、 $Ba_3 Mg Si_2 O_8$ 、 $Ba Mg Al_{10} O_{17}$ 、 $La_2 O_2 S$ 、 $Sr Ga_2 S_4$ 、 $Ca Al Si N_3$ 、 $Ca_2 Si_5 N_8$ 、および  $Ca Si Al O_N$  から選択される、請求項 22 ~ 34 のいずれか一項に記載の方法。

**【請求項 36】**

10

20

30

40

50

前記ホスト材料が、 $Y_3Al_5O_{12}$ である、請求項22～35のいずれか一項に記載の方法。

**【請求項37】**

前記ホスト材料が、 $(Y, Gd)_3Al_5O_{12}$ である、請求項22～35のいずれか一項に記載の方法。

**【請求項38】**

前記ドーパントが、希土類金属である、請求項22～37のいずれか一項に記載の方法。

**【請求項39】**

前記ドーパントが、Ce、Gd、La、Tb、Pr、Euおよびこれらの組み合わせからなる群より選択される、請求項22～38のいずれか一項に記載の方法。 10

**【請求項40】**

前記ドーパントがCeである、請求項22～39のいずれか一項に記載の方法。

**【請求項41】**

請求項22～40のいずれか一項に記載の方法によって作製されたセラミック体。

**【請求項42】**

前記セラミック体が、約455nmの波長を有する放射線に曝露されたとき、少なくとも約0.80の内部量子効率(IQE)を呈示する、請求項41に記載のセラミック体。 20

**【請求項43】**

照明装置であって、

青色放射線を放射するように構成されている光源と、

請求項1～21、41および42のいずれか一項に記載のセラミック体

とを含み、

前記セラミック体が、前記青色放射線の少なくとも一部分を受けるように構成されているものである、照明装置。 25

**【請求項44】**

請求項1～21、41および42のいずれか一項に記載のセラミック体を青色放射線に曝露することを含む、光を生じさせる方法。 30

**【発明の詳細な説明】**

**【技術分野】**

**【0001】**

本願は、リン光体成分を有する放射性セラミック材料に関する。 35

**【背景技術】**

**【0002】**

固体発光デバイス、例えば、発光ダイオード(LED)、有機発光ダイオード(OLED)、すなわち有機エレクトロルミネセンスデバイス(OEL)と呼ばれることがあるものの、および無機エレクトロルミネセンスデバイス(IEL)は、様々な用途、例えば、フラットパネル表示装置、様々な計器のための表示器、看板、および装飾照明などに、幅広く利用されている。これらの発光デバイスの放射効率は向上し続けているので、よりいっそう高い光度を要する用途、例えば自動車ヘッドライトおよび一般照明が、すぐに実現可能になるだろう。これらの用途のために、白色LEDは、有望な候補の1つであり、大きな関心を引いている。 40

**【0003】**

内部量子効率(IQE)は、放射性材料によって作り出される光子の、同材料によって吸収される光子に対する比である。IQE値増加は、照明装置のエネルギー効率を向上させることができるが、IQEを増加させ、その上、光効率を低下させない、信頼できる方法は、まだない。それ故、IQEに関するこれらの限界を克服することができる新たな放射性材料が必要とされている。

**【発明の概要】**

**【発明が解決しようとする課題】**

**【0004】**

本明細書において開示する一部の実施形態は、セラミック体であって、ホスト材料および第一の濃度のドーパントを含有し、前記第一の濃度がルミネセンスを生じさせるために有効である、第一の領域と；前記ホスト材料および第二の濃度のドーパントを含有し、前記第二の濃度が前記第一の濃度より低い、第二の領域とを含み；前記第一の領域が、前記第二の領域の平均粒度より大きい平均粒度を有するものであるセラミック体を含む。

**【0005】**

本明細書において開示する一部の実施形態は、セラミック体の形成方法であって、組立体を形成する工程を含み、前記組立体を形成する工程が、ホスト材料、ホスト材料前駆体またはこれらの組み合わせを含有する、第一のノンドープ層を用意する工程であって、前記第一のノンドープ層が約40μmから約800μmの範囲内の厚みを有するものである工程；前記第一のノンドープ層上にドープ層を堆積させる工程であって、前記ドープ層が、約10μmから約400μmの範囲内の厚みを有し、およびホスト材料、ホスト材料前駆体またはこれらの組み合わせと、ドーパントとを含有するものである工程；および組立体を焼結して、前記セラミック体の第二の領域の平均粒度より大きい平均粒度を有する前記セラミック体の第一の領域を形成する工程であって、前記第一の領域が、ルミネセンスを生じさせるために有効である第一の濃度のドーパントを含有し、および前記第二の領域が、前記第一のドーパント濃度より低い第二の濃度のドーパントを含有するものである工程を含む方法を含む。

10

**【0006】**

本明細書において開示する一部の実施形態は、本明細書において開示する方法のいずれかによって調製されたセラミック体を含む。

20

**【0007】**

本明細書において開示する一部の実施形態は、照明装置であって、青色放射線を放射するように構成されている光源と、本明細書において開示するセラミック体のいずれかとを含み、前記セラミック体が、前記青色放射線の少なくとも一部分を受けるように構成されているものである、照明装置を含む。

**【0008】**

本明細書において開示する一部の実施形態は、光を生じさせる方法であって、本明細書において開示するセラミック体のいずれかを青色放射線に曝露することを含む方法を含む。

30

**【図面の簡単な説明】****【0009】**

【図1】図1A～Bは、本願の範囲内のセラミック体の一例の、上面図および側面図をそれぞれ示す。

**【0010】**

【図2】図2A～Bは、本願の範囲内のセラミック体の一例の、上面図および側面図をそれぞれ示す。

**【0011】**

【図3】図3A～Bは、本明細書において開示する方法に従って焼結することができる組立体の一例を例証するものである。

40

**【0012】**

【図4】図4は、ラミネーションを含むセラミック体形成の1つの実施形態についての調製フローチャートを示す。

**【0013】**

【図5】図5は、本明細書において開示するセラミック体を含むことができる照明装置の例である。

**【0014】**

【図6】図6は、実施例1において開示するようにセラミック体を得るために加工した組立体の構造を示す。

50

【0015】

【図7】図7は、内部量子効率(IQE)を決定することができる方法の例である。

【0016】

【図8】図8A～Cは、左縁領域、中央領域および右縁領域をそれぞれ含む、実施例1に従って調製したセラミック体の断面の反射電子モード走査型電子顕微鏡検査(SEM-BSE)画像を示す。

【0017】

【図9】図9は、実施例1に従って調製したセラミック体の飛行時間型二次イオン質量分析法(TOF SIMS)分析を示す。

【0018】

【図10】図10A～Cは、左縁領域、中央領域および右縁領域をそれぞれ含む、比較例1に従って調製したセラミック体の断面の反射電子モード走査型電子顕微鏡検査(SEM-BSE)画像を示す。

【0019】

【図11】図11A～Bは、実施例2において開示するようにセラミック体を得るために加工した組立体の構造を示す。

【発明を実施するための形態】

【0020】

本明細書において開示する一部の実施形態は、第一の領域と第二の領域とを含むセラミック体を含む。前記第一の領域は、ホスト材料と、ルミネセンスを生じさせるために有効である第一の濃度のドーパントとを含み得る。前記第二の領域は、前記ホスト材料および第二の濃度のドーパントを含み得る。一部の実施形態において、前記第一の領域は、前記第二の領域の平均粒度より大きい平均粒度を有する。前記セラミック体は、一部の実施形態では、優れた内部量子効率(IQE)を呈示し得る。本明細書において開示する一部の実施形態は、本明細書において開示するセラミック体の作製および使用方法を含む。また、本明細書において開示する一部の実施形態は、本明細書において開示するセラミック体を含有する照明装置を含む。

【0021】

前記セラミック体を、例えば、組立体を焼結することによって調製してもよい。したがって、「セラミック体」は、一般に、照明を目的として使用することができる最終放射性材料を言い表し、その一方で「組立体」は、放射性セラミックを形成するために焼結され得る複合材である。さらに下で論ずるように、組立体の焼結は、第一の領域と第二の領域とを有するセラミック体を得るための1つの方法である。

【0022】

図1Aおよび1Bは、本願の範囲内のセラミック体の一例の上面および側面図をそれぞれ示す。セラミック体100は、第一の領域110および第二の領域120を含む。第一の領域110は、ホスト材料と、ルミネセンスを生じさせるために有効である第一の濃度のドーパントとを含むことができる。第二の領域120は、前記ホスト材料および第二の濃度のドーパントを含むことができる。第二の領域120における第二のドーパント濃度は、第一の領域110における第一のドーパント濃度より低くなくてよい。第一の領域110の平均粒度は、第二の領域120の平均粒度より大きい場合がある。

【0023】

図示されているように、第一の領域110は、一般に、セラミック体100の中央付近に位置することがある。それ故、一部の実施形態では、前記第一の領域は、前記セラミック体の中心コアを含むことがある。図示されているように、第二の領域120は、一般に、セラミック体100の外面にまたは付近に位置することがある。一部の実施形態において、前記第二の領域は、前記セラミック体の外面の少なくとも一部分を含むことがある。一部の実施形態において、前記第二の領域は、前記セラミック体の外面の実質的に全部を含むことがある。

【0024】

10

20

30

40

50

前記第一の領域および第二の領域は、一部の実施形態では、一緒に前記セラミック体の全体積を含むことがある。すなわち、前記第一の領域の体積と前記第二の領域の体積の合計は、前記セラミック体の体積とほぼ同じであることがある。例えば、図1Aおよび1Bに図示されているように、第一の領域110および第二の領域120は、一緒にセラミック体100のすべてを形成する。一部の実施形態において、前記セラミック体は、第一の領域および第二の領域からなる。一部の実施形態において、前記セラミック体は、第一の領域および第二の領域から本質的になる。一部の実施形態において、第一の領域110は、セラミック体100の中で第二の領域120によって実質的に包囲されている。

#### 【0025】

図2Aおよび2Bは、本願の範囲内のセラミック体のもう1つの例の上面および側面図をそれぞれ示す。セラミック体200は、第一の領域210、第二の領域220および第三の領域230を含む。第一の領域210は、ホスト材料と、ルミネセンスを生じさせるために有効である第一の濃度のドーパントとを含むことができる。第二の領域220は、前記ホスト材料および第二の濃度のドーパントを含むことができる。第三の領域230は、前記ホスト材料および第三の濃度のドーパントを含むことができる。第二の領域220における第二のドーパント濃度および第三の領域230における第三のドーパント濃度は、それぞれ第一の領域における第一のドーパント濃度より低いものであり得る。第一の領域210の平均粒度は、第二の領域220の平均粒度および第三の領域230の平均粒度の各々より大きい場合がある。

10

#### 【0026】

前記第二の領域および前記第三の領域（例えば、図2Aおよび2Bに図示されている第二の領域220および第三の領域230）についての相対ドーパント濃度は、特に限定されない。一部の実施形態において、前記第二の領域における第二のドーパント濃度は、前記第三の領域における第三の濃度と同じである。一部の実施形態において、前記第二の領域における第二のドーパント濃度は、前記第三の領域における第三の濃度より高い。一部の実施形態において、前記第二の領域における第二のドーパント濃度は、前記第三の領域における第三の濃度より低い。

20

#### 【0027】

前記第二の領域および前記第三の領域（例えば、図2Aおよび2Bに図示されている第二の領域220および第三の領域230）についての相対平均粒度は、特に限定されない。一部の実施形態において、前記第二の領域における平均粒度は、前記第三の領域における平均粒度と同じである。一部の実施形態において、前記第二の領域における平均粒度は、前記第三の領域における平均粒度より小さい。一部の実施形態において、前記第二の領域における平均粒度は、前記第三の領域における平均粒度より大きい。

30

#### 【0028】

前記第一の領域、前記第二の領域および前記第三の領域は、一部の実施形態では、一緒に前記セラミック体の全体積を含むことがある。すなわち、前記第一の領域の体積と前記第二の領域の体積と前記第三の領域の体積の合計は、前記セラミック体の体積とほぼ同じであることがある。例えば、図2Aおよび2Bに図示されているように、第一の領域210、第二の領域220および第三の領域230は、一緒にセラミック体200のすべてを形成する。一部の実施形態において、前記第一の領域、前記第二の領域および前記第三の領域は、一緒に前記セラミック体の実質的な体積を含むことがある。一部の実施形態において、前記セラミック体は、前記第一の領域、前記第二の領域および前記第三の領域からなる。一部の実施形態において、前記セラミック体は、前記第一の領域、前記第二の領域および前記第三の領域から本質的になる。

40

#### 【0029】

本願の教示により導かれて、当業者には理解されるであろうが、前記セラミック体の幾何形状は特に限定されず、容易に変えることができる。それ故、非常の多数の他の幾何形状が本願の範囲内であり、図1および2に描かれている略立方形幾何形状に限定されない。同様に、前記セラミック体内の領域の幾何形状は特に限定されない。例えば、前記領域

50

は、（例えば、図1に図示されているように）湾曲した輪郭を有することもあり、または（例えば、図2に図示されているように）層を形成することもある。前記セラミック体内の領域についての他の幾何形状も本願の範囲内である。

### 【0030】

前記第一の領域の体積は特に限定されない。前記セラミック体の全体積に対して前記第一の領域の体積は、例えば、少なくとも約10%；少なくとも約25%；少なくとも約40%；少なくとも約50%；少なくとも約60%；少なくとも約75%；少なくとも約90%；または少なくとも約95%であってもよい。前記セラミック体の全体積に対して前記第一の領域の体積は、例えば、約98%以下；約95%以下；約90%以下；約80%以下；約70%以下；約50%以下；または約40%以下であってもよい。一部の実施形態において、前記セラミック体の全体積に対して前記第一の領域の体積は、約10%から約98%の範囲内である。一部の実施形態において、前記セラミック体の全体積に対して前記第一の領域の体積は、約25%から約90%の範囲内である。

10

### 【0031】

前記第二の領域の体積は特に限定されない。前記セラミック体の全体積に対して前記第二の領域の体積は、例えば、少なくとも約1%；少なくとも約5%；少なくとも約10%；少なくとも約20%；少なくとも約25%；または少なくとも約40%であってもよい。前記セラミック体の全体積に対して前記第二の領域の体積は、例えば、約90%以下；約75%以下；約50%以下；約40%以下；約30%以下；約20%以下；または約10%以下であってもよい。一部の実施形態において、前記セラミック体の全体積に対して前記第二の領域の体積は、約10%から約98%の範囲内である。一部の実施形態において、前記セラミック体の全体積に対して前記第二の領域の体積は、約25%から約90%の範囲内である。一部の実施形態において、前記第二の領域の体積は、前記第一の領域の体積より小さい。

20

### 【0032】

前記任意選択の第三の領域の体積は特に限定されない。前記第三の領域は、例えば、前記第二の領域に関して上で説明した体積百分率のいずれかを有することがある。一部の実施形態において、前記第三の領域の体積は、前記第二の領域の体積とほぼ同じである。一部の実施形態において、前記第三の領域の体積は、前記第二の領域の体積より大きい。一部の実施形態において、前記第三の領域の体積は、前記第二の領域の体積より小さい。一部の実施形態において、前記第一の領域の体積は、前記第一の領域の体積より大きい。

30

### 【0033】

前記セラミック体の領域（例えば、前記セラミック体における第一の領域、第二の領域および場合によっては第三の領域）中のホスト材料は、様々な公知ホスト材料を含むことができる。一部の実施形態において、前記ホスト材料は、式A<sub>3</sub>B<sub>5</sub>O<sub>12</sub>（式中、Aは、Y、Lu、Ca、La、Tb、Gdおよびこれらの組み合わせからなる群より選択され；ならびにBは、Al、Mg、Si、Ga、Inおよびこれらの組み合わせからなる群より選択される）によって表される。一部の実施形態において、Aは、Yを含む。一部の実施形態において、Aは、Gdを含む。一部の実施形態において、Aは、YおよびGdを含む。一部の実施形態において、Aは、Luを含む。一部の実施形態において、Bは、Alを含む。前記セラミック体の領域に含めることができるホスト材料の非限定的な例としては、Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub>、(Y, Tb)<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub>、(Y, Gd)<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub>、(Y, Gd)<sub>3</sub>(Al, Ga)<sub>5</sub>O<sub>12</sub>、(Sr, Ca, Ba)<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub>、Lu<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub>、Lu<sub>2</sub>CaMg<sub>2</sub>Si<sub>3</sub>O<sub>12</sub>、Lu<sub>2</sub>CaAl<sub>4</sub>SiO<sub>12</sub>、Ca<sub>3</sub>Sc<sub>2</sub>Si<sub>3</sub>O<sub>12</sub>、Ba<sub>3</sub>MgSi<sub>2</sub>O<sub>8</sub>、BaMgAl<sub>10</sub>O<sub>17</sub>、La<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S、SrGa<sub>2</sub>S<sub>4</sub>、CaAlSiN<sub>3</sub>、Ca<sub>2</sub>Si<sub>5</sub>N<sub>8</sub>、およびCaSiAlONが挙げられる。一部の実施形態において、前記ホスト材料は、ガーネットである。一部の実施形態において、前記ホスト材料は、(Y<sub>1-y</sub>Gd<sub>y</sub>)<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub>（式中、0.05 < y < 0.40）である。一部の実施形態において、前記ホスト材料は、(Y<sub>1-y</sub>Gd<sub>y</sub>)<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub>（式中、0.05 < y < 0.15）である。一部の実施形態において、前記ホス

40

50

ト材料は、 $(Y_{0.90}Gd_{0.10})_3Al_5O_{12}$ である。一部の実施形態において、前記ホスト材料は、 $Y_3Al_5O_{12}$ である。

#### 【0034】

一部の実施形態において、前記セラミック体中のドーパントは、希土類金属であり得る。ドーパントの非限定的な例としては、Nd、Er、Eu、Cr、Yb、Sm、Tb、Ce、Pr、By、Ho、Lu、およびこれらの組み合わせが挙げられる。一部の実施形態において、前記ドーパントは、Ceである。一例として、前記セラミック体中のドープイットリウム・アルミニウム・ガーネット領域を式 $(Y_{1-x}Ce_x)_3Al_5O_{12}$ （式中、 $0 < x < 1$ ）によって表すことができる。もう1つの例として、前記セラミック体中のドープイットリウム・アルミニウム・ガーネット領域を $(Y_{1-y-x}Gd_yCe_x)_3Al_5O_{12}$ （式中、 $0 < y + x < 1$ ）によって表すことができる。一部の実施形態において、 $0.05 < y < 0.40$ 、および/または $0.0001 < x < 0.02$ である。一部の実施形態において、 $0.5 < y < 0.15$ 、および/または $0.002 < x < 0.005$ である。10

#### 【0035】

前記第一の領域における第一のドーパント濃度は、様々であり得る。前記第一の領域における第一のドーパント濃度は、例えば、少なくとも約 $0.01\text{ at\%}$ ；少なくとも約 $0.05\text{ at\%}$ ；少なくとも約 $0.1\text{ at\%}$ ；少なくとも約 $0.2\text{ at\%}$ ；少なくとも約 $0.3\text{ at\%}$ ；少なくとも約 $0.5\text{ at\%}$ ；少なくとも約 $0.8\text{ at\%}$ ；少なくとも約 $1\text{ at\%}$ ；少なくとも約 $1.5\text{ at\%}$ ；または少なくとも約 $2\text{ at\%}$ である場合がある。前記第一の領域における第一のドーパント濃度は、例えば、約 $10\text{ at\%}$ 以下；約 $5\text{ at\%}$ 以下；約 $4\text{ at\%}$ 以下；約 $2\text{ at\%}$ 以下；約 $1.5\text{ at\%}$ 以下；約 $1\text{ at\%}$ 以下；約 $0.8\text{ at\%}$ 以下；または約 $0.5\text{ at\%}$ 以下である場合がある。一部の実施形態において、前記第一の領域における第一のドーパント濃度は、約 $0.01\text{ at\%}$ から約 $10\text{ at\%}$ の範囲内である場合がある。一部の実施形態において、前記第一の領域における第一のドーパント濃度は、約 $0.2\text{ at\%}$ から約 $1\text{ at\%}$ の範囲内である場合がある。20

#### 【0036】

前記第二の領域における第二のドーパント濃度は、前記第一の領域における第一のドーパント濃度より低い場合がある。一部の実施形態において、前記第二の領域における第二のドーパント濃度は、約 $0.2\text{ at\%}$ 以下である。一部の実施形態において、前記第二の領域における第二のドーパント濃度は、約 $0.1\text{ at\%}$ 以下である。一部の実施形態において、前記第二の領域における第二のドーパント濃度は、約 $0.05\text{ at\%}$ 以下である。一部の実施形態において、前記第二の領域における第二のドーパント濃度は、少なくとも約 $0.001\text{ at\%}$ である。一部の実施形態において、前記第二の領域における第二のドーパント濃度は、少なくとも約 $0.005\text{ at\%}$ である。一部の実施形態において、前記第二の領域における第二のドーパント濃度は、少なくとも約 $0.01\text{ at\%}$ である。一部の実施形態において、前記第二の領域における第二のドーパント濃度は、少なくとも約 $0.05\text{ at\%}$ である。一部の実施形態において、前記第二の領域における第二のドーパント濃度は、約 $0.001\text{ at\%}$ から約 $0.2\text{ at\%}$ の範囲である。30

#### 【0037】

前記第一の領域における第一の濃度のドーパントの前記第二の領域における第二の濃度のドーパントに対する比は、様々であってよい。前記第一の領域における第一の濃度のドーパントの前記第二の領域における第二の濃度のドーパントに対する比は、例えば、 $1:1$ より大きくてよく；少なくとも約 $1.2:1$ ；少なくとも約 $1.5:1$ ；少なくとも約 $1.7:1$ ；少なくとも約 $2:1$ ；または少なくとも約 $3:1$ であってもよい。前記第一の領域における第一の濃度のドーパントの前記第二の領域における第二の濃度のドーパントに対する比は、例えば、約 $4:1$ 以下；約 $3.5:1$ 以下；約 $3:1$ 以下；約 $2:1$ 以下；または約 $1.5:1$ 以下であってもよい。一部の実施形態において、前記第一の領域における第一の濃度のドーパントの前記第二の領域における第二の濃度のドーパントに対する比は、約 $4:1$ から約 $1:1$ の範囲内である場合がある。40

10

20

30

40

50

**【 0 0 3 8 】**

前記第三の領域における第三のドーパント濃度は、前記第一の領域における第一のドーパント濃度より低い場合がある。一部の実施形態において、前記第三の領域における第三のドーパント濃度は、前記第二の領域における第二のドーパント濃度とほぼ同じである。一部の実施形態において、前記第三の領域における第三のドーパント濃度は、前記第二の領域における第二のドーパント濃度より低い。一部の実施形態において、前記第三の領域における第三のドーパント濃度は、前記第二の領域における第二のドーパント濃度より高い場合がある。一部の実施形態において、前記第三の領域は、前記第二の領域の平均粒度より小さい平均粒度を有し、および前記第三の領域における第三のドーパント濃度は、前記第二の領域における第二のドーパント濃度より低い。一部の実施形態において、前記第三の領域は、前記第二の領域の平均粒度より大きい平均粒度を有し、および前記第三の領域における第三のドーパント濃度は、前記第二の領域における第二のドーパント濃度より高い。

10

**【 0 0 3 9 】**

一部の実施形態において、前記第三の領域における第三のドーパント濃度は、約 0 . 2 a t % 以下である。一部の実施形態において、前記第三の領域における第三のドーパント濃度は、約 0 . 1 a t % 以下である。一部の実施形態において、前記第三の領域における第三のドーパント濃度は、約 0 . 0 5 a t % 以下である。一部の実施形態において、前記第三の領域における第三のドーパント濃度は、少なくとも約 0 . 0 0 1 a t % である。一部の実施形態において、前記第三の領域における第三のドーパント濃度は、少なくとも約 0 . 0 0 5 a t % である。一部の実施形態において、前記第三の領域における第三のドーパント濃度は、少なくとも約 0 . 0 1 a t % である。一部の実施形態において、前記第三の領域における第三のドーパント濃度は、少なくとも約 0 . 0 0 5 a t % である。一部の実施形態において、前記第三の領域における第三のドーパント濃度は、約 0 . 0 0 1 a t % から約 0 . 2 a t % の範囲である。

20

**【 0 0 4 0 】**

前記第一の領域における第一の濃度のドーパントの前記第三の領域における任意選択の第三の濃度のドーパントに対する比は、様々であってよい。前記第一の領域における第一の濃度のドーパントの前記第三の領域における第三の濃度のドーパントに対する比は、例えば、1 : 1 より大きくてもよく；少なくとも約 1 . 2 : 1 ; 少なくとも約 1 . 5 : 1 ; 少なくとも約 1 . 7 : 1 ; 少なくとも約 2 : 1 ; または少なくとも約 3 : 1 であってもよい。前記第一の領域における第一の濃度のドーパントの前記第三の領域における第三の濃度のドーパントに対する比は、例えば、約 4 : 1 以下；約 3 . 5 : 1 以下；約 3 : 1 以下；約 2 : 1 以下；または約 1 . 5 : 1 以下であってもよい。一部の実施形態において、前記第一の領域における第一の濃度のドーパントの前記第三の領域における第三の濃度のドーパントに対する比は、約 4 : 1 から 1 : 1 であり得る。

30

**【 0 0 4 1 】**

前記第一の領域についての平均粒度は、それが前記第二の領域についての平均粒度より大きい限り、特に限定されない。前記第一の領域についての平均粒度は、例えば、少なくとも 5  $\mu\text{m}$  ; 少なくとも約 1 0  $\mu\text{m}$  ; 少なくとも約 2 0  $\mu\text{m}$  ; 少なくとも約 3 0  $\mu\text{m}$  ; 少なくとも約 4 0  $\mu\text{m}$  ; 少なくとも約 5 0  $\mu\text{m}$  ; または少なくとも約 7 5  $\mu\text{m}$  であってもよい。一部の実施形態において、前記第一の領域についての平均粒度は、例えば、約 1 0 0  $\mu\text{m}$  以下；約 7 5  $\mu\text{m}$  以下；約 5 0  $\mu\text{m}$  以下；約 4 0  $\mu\text{m}$  以下；または約 3 0  $\mu\text{m}$  以下であってもよい。一部の実施形態において、前記第一の領域についての平均粒度は、約 5  $\mu\text{m}$  から約 1 0 0  $\mu\text{m}$  の範囲内である場合がある。一部の実施形態において、前記第一の領域についての平均粒度は、約 1 0  $\mu\text{m}$  から約 8 0  $\mu\text{m}$  の範囲内である場合がある。

40

**【 0 0 4 2 】**

前記第二の領域についての平均粒度は、それが前記第一の領域についての平均粒度より小さい限り、特に限定されない。前記第二の領域についての平均粒度は、例えば、約 3  $\mu\text{m}$  以下；約 2 0  $\mu\text{m}$  以下；約 1 0  $\mu\text{m}$  以下；または約 5  $\mu\text{m}$  以下であってもよい。前記

50

第二の領域についての平均粒度は、例えば、少なくとも約 1  $\mu\text{m}$ ；少なくとも約 5  $\mu\text{m}$ ；少なくとも約 10  $\mu\text{m}$ ；または少なくとも約 20  $\mu\text{m}$ であってもよい。一部の実施形態において、前記第二の領域についての平均粒度は、約 30  $\mu\text{m}$ 以下である場合がある。一部の実施形態において、前記第二の領域についての平均粒度は、約 1  $\mu\text{m}$ から約 30  $\mu\text{m}$ の範囲内である場合がある。一部の実施形態において、前記第二の領域についての平均粒度は、約 5  $\mu\text{m}$ から約 30  $\mu\text{m}$ の範囲内である場合がある。

#### 【0043】

前記任意選択の第三の領域についての平均粒度は、それが前記第一の領域についての平均粒度より小さい限り、特に限定されない。前記第三の領域についての平均粒度は、例えば、約 30  $\mu\text{m}$ 以下；約 20  $\mu\text{m}$ 以下；約 10  $\mu\text{m}$ 以下；または約 5  $\mu\text{m}$ 以下であってもよい。前記第三の領域についての平均粒度は、例えば、少なくとも約 1  $\mu\text{m}$ ；少なくとも約 5  $\mu\text{m}$ ；少なくとも約 10  $\mu\text{m}$ ；または少なくとも約 20  $\mu\text{m}$ であってもよい。一部の実施形態において、前記第三の領域についての平均粒度は、約 30  $\mu\text{m}$ 以下である場合がある。一部の実施形態において、前記第三の領域についての平均粒度は、約 1  $\mu\text{m}$ から約 30  $\mu\text{m}$ の範囲内である場合がある。一部の実施形態において、前記第三の領域についての平均粒度は、約 5  $\mu\text{m}$ から約 30  $\mu\text{m}$ の範囲内である場合がある。一部の実施形態において、前記任意選択の第三の領域の平均粒度は、前記第二の領域の平均粒度とほぼ同じである。一部の実施形態において、前記任意選択の第三の領域の平均粒度は、ほぼ前記第二の領域の平均粒度より大きい。一部の実施形態において、前記任意選択の第三の領域の平均粒度は、前記第二の領域の平均粒度より小さい。

10

20

30

#### 【0044】

上で開示したように、本明細書において開示するセラミック体の 1 つの利点は、それらが優れた内部量子効率を呈示できることである。一部の実施形態において、前記セラミック体は、約 455 nm の波長を有する放射線に曝露されたとき、少なくとも約 0.80 の内部量子効率 (IQE) を呈示することができる。一部の実施形態において、前記セラミック体は、約 455 nm の波長を有する放射線に曝露されたとき、少なくとも約 0.85 の内部量子効率 (IQE) を呈示することができる。一部の実施形態において、前記セラミック体は、約 455 nm の波長を有する放射線に曝露されたとき、少なくとも約 0.90 の内部量子効率 (IQE) を呈示することができる。

#### 放射性セラミックの作製方法

#### 【0045】

本明細書において開示する一部の実施形態は、セラミック体、例えば上で開示したセラミック体のいずれか、の形成方法を含む。前記方法は、一部の実施形態では、組立体を焼結する工程を含むことがあり、前記組立体は、2 つのノンドープ層間に介在しているドープ層を含む。

#### 【0046】

セラミック体を形成するために組立体を焼結するための様々な方法が当該技術分野において公知である。例えば、2 つ以上のキャストテープを、米国特許第 7,514,721 号明細書、米国特許出願公開第 2009/0108507 号明細書、米国特許出願第 61/446,346 号明細書および米国特許出願第 13/306,797 号明細書における開示に従って、ラミネートし、焼結してもよい。もう 1 つの例として、前記セラミック体を、米国特許出願公開第 2009/0212697 号明細書および米国特許出願第 61/315,763 号明細書に開示されているように、リン光体混合物を成形し、焼結することによって調製してもよい。

40

#### 【0047】

図 3A および 3B は、本明細書において開示する方法に従って焼結することができる組立体の実施形態を例証するものである。図 3A は、第一のノンドープ層 320 と第二のノンドープ層 330 の間に介在しているドープ層 310 を有する組立体 300 の側面図である。図 3B は、組立体 300 の透視図である。組立体 300 を、例えば、( 例えば、図 2A および 2B に図示されているような ) 第一の領域と第二の領域と第三の領域とを有する

50

セラミック体を得るために適切な条件下で構成および焼結することができる。

【0048】

前記組立体のドープ層は、ホスト材料、ホスト材料前駆体またはこれらの組み合わせを含むことができる。前記ホスト材料は、セラミック体に関して上で説明した材料のいずれかであり得る。例えば、前記ホスト材料は、イットリウム・アルミニウム・ガーネットである場合がある。ホスト材料前駆体は、前記プロセス中に（例えば、焼結中に）ホスト材料を形成することになる任意の成分であり得る。一例として、イットリウム・アルミニウム・ガーネット前駆体は、焼結中にイットリウム・アルミニウム・ガーネットを形成する  $\text{Y}_2\text{O}_3$  と  $\text{Al}_2\text{O}_3$  の 3 : 5 の化学量論比での混合物であってもよい。一部の実施形態において、前記ドープ層は、少なくとも約 50 % のホスト材料および／またはその当量の前駆体を含む。一部の実施形態において、前記ドープ層は、少なくとも約 80 % のホスト材料および／またはその当量の前駆体を含む。一部の実施形態において、前記ドープ層は、少なくとも約 90 % のホスト材料および／またはその当量の前駆体を含む。一部の実施形態において、前記ドープ層は、ホスト材料および所望のドーパントから本質的になる。

10

【0049】

前記ドープ層はまた、ドーパント、例えば、Nd、Er、Eu、Cr、Yb、Sm、Tb、Ce、Pr、Dy、Ho、Lu、およびこれらの組み合わせを含む。一部の実施形態において、前記ドーパントは、Ceである。前記ドープ層中のドーパントの量は、焼結が完了した後にその放射性セラミックに対してルミネセンスを付与するために有効な量であることができる。一部の実施形態において、前記ドープ層は、約 0.1 at % から約 10 at % ドーパントを含む。前記ドープ層は、例えば、少なくとも約 0.5 at %；少なくとも約 1 at %；少なくとも約 1.5 at %；または少なくとも約 2 at % の前記ドーパントを含んでもよい。前記ドープ層は、例えば、約 5 at % 以下；約 4 at % 以下；約 3.5 at % 以下；約 3 at % 以下の前記ドーパント；約 2 at % 以下の前記ドーパント；約 1.5 at % 以下の前記ドーパント；または約 1 at % 以下の前記ドーパントを含んでもよい。前記ドープ層は、例えば、少なくとも約 0.01 at %；少なくとも約 0.05 at %；少なくとも約 0.1 at %；少なくとも約 0.5 at %；または少なくとも約 1 at % を含んでもよい。一部の実施形態において、前記ドープ層は、ドーパントの略一様分布を含有する。

20

【0050】

前記組立体中のノンドープ層もまた、ホスト材料、ホスト材料前駆体またはこれらの組み合わせを含むことができる。前記ノンドープ層中のホスト材料は、前記ドープ層中のホスト材料と同じであってもよいし、または異なってもよい。一部の実施形態において、前記ホスト材料は、イットリウム・アルミニウム・ガーネットである。一部の実施形態において、前記ノンドープ層は、少なくとも約 50 % のホスト材料および／またはその当量の前駆体を含む。一部の実施形態において、前記ノンドープ層は、少なくとも約 80 % のホスト材料および／またはその当量の前駆体を含む。一部の実施形態において、前記ノンドープ層は、少なくとも約 90 % のホスト材料および／またはその当量の前駆体を含む。しかし、前記ノンドープ層にはドーパントが実質的にならない場合がある。一部の実施形態において、前記ノンドープ層は、前記放射性セラミックに対するルミネセンスの付与に有効ではない量のドーパントを含むことができる。一部の実施形態において、前記ノンドープ層は、約 0.05 at % 未満のドーパントを含むことができる。一部の実施形態において、前記ノンドープ層は、約 0.01 at % 未満のドーパントを含むことができる。一部の実施形態において、前記ノンドープ層は、約 0.001 at % 未満のドーパントを含むことができる。

30

【0051】

一部の実施形態において、前記ドープ層と前記ノンドープ層の相対的厚みは、前記セラミック体の異なる領域におけるドーパントの分布に影響を及ぼすことがある。例えば、より薄いドープ層の場合、そのドープ層中のドーパントは、隣接するノンドープ層中に拡散

40

50

することができ、これは、最大ドーパント濃度を低下させる。

【0052】

一部の実施形態において、前記ドープ層は、そのドープ層中の初期ドーパント濃度の低下を可能にするように設計された厚みを有する。一部の実施形態において、前記ドープ層は、焼結中のそのドープ層から非放射性層（単数もしくは複数）またはノンドープ層（単数もしくは複数）への拡散を可能にするように設計された厚みを有する。一部の実施形態において、前記ドープ層は、約10μmから約400μmの範囲内の厚みを有する。一部の実施形態において、前記ドープ層は、約40μmから約200μmの範囲内の厚みを有する。前記ドープ層は、例えば、少なくとも約20μm；少なくとも約30μm；少なくとも約40μm；少なくとも約50μm；少なくとも約100μm；少なくとも約150μm；または少なくとも約200μmである厚みを有してもよい。前記ドープ層は、例えば、約400μm以下；約300μm以下；約250μm以下；約200μm以下；約150μm以下；約120μm以下；約100μm以下；約80μm以下；または約70μm以下である厚みを有してもよい。

10

【0053】

前記ノンドープ層は、各々独立して、約40μmから約800μmの範囲内の厚みを有してもよい。一部の実施形態において、前記ノンドープ層は、各々独立して、約40μmから約400μmの範囲内の厚みを有してもよい。前記ノンドープ層は、例えば、各々独立して、少なくとも約40μm；少なくとも約80μm；少なくとも約100μm；または少なくとも約200μmである厚みを有してもよい。前記ノンドープ層は、例えば、各々独立して、約400μm以下；約300μm以下；約250μm以下；約200μm以下；または約150μm以下である厚みを有してもよい。一部の実施形態において、少なくとも1つのノンドープ層（例えば、1つまたは2つのノンドープ層）は、前記ドープ層の厚み以下であってよい。一部の実施形態において、少なくとも1つのノンドープ層（例えば、1つまたは2つのノンドープ層）は前記ドープ層の厚み以上である。

20

【0054】

前記組立体は、ドープ層と2つのノンドープ層とから本質的になることがある（例えば、図3Aおよび3B中の組立体300）。言い換えると、前記組立体は、ドープ層および2つのノンドープ層は含むが、放射領域を形成するいずれの他の層も含まない。前記第一および第二のノンドープ層は、各々独立して、上に開示したものなどの任意の厚み有することができる。例えば、前記第一のノンドープ層は、約40μmから約400μmの範囲内の厚みを有してもよく、および前記第二のノンドープ層は、約40μmから約400μmの範囲内の厚みを有してもよい。一部の実施形態において、前記第一のノンドープ層は、前記ドープ層より厚い。一部の実施形態において、前記第二のノンドープ層は、前記ドープ層より厚い。一部の実施形態において、前記第一および第二のノンドープ層は両方とも、前記ドープ層より厚い。一部の実施形態において、前記第一および第二のノンドープ層は、異なる厚みを有する。一部の実施形態において、前記第一および第二のノンドープ層は、ほぼ同じである厚みを有する。

30

【0055】

前記組立体の全厚は特に限定されない。一部の実施形態において、前記組立体は、約10μmから1mmまでの範囲内の厚みを有することができる。前記組立体は、例えば、少なくとも約10μm；少なくとも約50μm；少なくとも約100μm；少なくとも約200μm；または少なくとも約250μmの厚みを有してもよい。前記組立体は、例えば、約1mm以下；約800μm以下；約600μm以下；約400μm以下；または約300μm以下の厚みを有してもよい。

40

【0056】

図4は、ラミネーションを含む放射性セラミック形成の1つの実施形態についての調製フローチャートを示す。第一に、原料（例えば、硝酸塩系または酸化物系原料、例えば、 $Y_2O_3$ と $Al_2O_3$ ）の粒径を、溶剤の蒸発中の毛管力によるキャストテープの割れを低減させるために、場合により調整してもよい。例えば、原料粒

50

子をプレアニールすることにより前記粒径を調整して、所望の粒径を得ることができる。原料粒子を約800から約1800（またはさらに好ましくは1000から約1500）の温度範囲内でプレアニールして、所望の粒径を得ることができる。前記プレアニーリングを真空、空気、O<sub>2</sub>、H<sub>2</sub>、H<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>、または希ガス（例えば、He、Ar、Kr、Xe、Rn、もしくはこれらの組み合わせ）中で行ってもよい。ある実施形態では、各々の原料（例えば、YAGを形成するためのY<sub>2</sub>O<sub>3</sub>およびAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>）をほぼ同じ粒径になるように調整する。別の実施形態において、前記粒子は、約0.5m<sup>2</sup>/gから約20m<sup>2</sup>/g、約1.0m<sup>2</sup>/gから約10m<sup>2</sup>/g、または約3.0m<sup>2</sup>/gから約6.0m<sup>2</sup>/gの範囲内のBET表面積を有する。

## 【0057】

10

次に、後にテープにキャストするためのスラリーを調製してもよい。予め作製されたリン光体（例えば、本明細書に記載するフロー型熱化学合成経路によって調製されたリン光体）および／または化学量論量の原料を様々な成分と混合して混合物を形成することができる。その混合物の成分の例としては、ドーパント、分散剤、可塑剤、バインダー、焼結助剤および溶剤が挙げられるが、これらに限定されない。

## 【0058】

一部の実施形態では、前記組立体の焼結特性を向上させるために必要に応じて少量のフラックス材料（例えば、焼結助剤）を使用することがある。一部の実施形態において、前記焼結助剤としては、オルトケイ酸テトラエチル（TEOS）、コロイド状シリカ、酸化リチウム、酸化チタン、酸化ジルコニアム、酸化マグネシウム、酸化バリウム、酸化カルシウム、酸化ストロンチウム、酸化ホウ素、またはフッ化カルシウムを挙げることができるが、これらに限定されない。さらなる焼結助剤としては、アルカリ金属ハロゲン化物、例えばNaClまたはKCl、および有機化合物、例えば尿素が挙げられるが、これらに限定されない。一部の実施形態において、前記組立体は、約0.01重量%と約5重量%の間、約0.05重量%と約5重量%の間、約0.1重量%と約4重量%の間、または約0.3重量%と約1重量%の間のフラックス材料（単数もしくは複数）または焼結助剤（単数もしくは複数）を含有する。前記焼結助剤を前記原料と混合することができる。例えば、一部の実施形態では、オルトケイ酸テトラエチル（TEOS）を前記原料に添加して、所望の量の焼結助剤を供給することができる。1つの実施形態では、約0.05重量%から約5重量%のTEOSを前記組立体に供給する。一部の実施形態において、前記TEOSの量は、約0.3重量%と約1重量%の間であってよい。

20

## 【0059】

30

一部の実施形態では、前記セラミックのガラス転移温度を低下させるためにおよび／または可撓性を向上させるために様々な可塑剤を含めことがある。可塑剤の非限定的な例としては、ジカルボン酸／トリカルボン酸エステル系可塑剤、例えば、フタル酸ビス（2-エチルヘキシル）、フタル酸ジイソノニル、フタル酸ビス（n-ブチル）、フタル酸ブチルベンジル、フタル酸ジイソデシル、フタル酸ジ-n-オクチル、フタル酸ジイソオクチル、フタル酸ジエチル、フタル酸ジイソブチルおよびフタル酸ジ-n-ヘキシル；アジピン酸エステル系可塑剤、例えば、アジピン酸ビス（2-エチルヘキシル）、アジピン酸ジメチル、アジピン酸モノメチルおよびアジピン酸ジオクチル；セバシン酸エステル系可塑剤、例えば、セバシン酸ジブチル、およびマレイン酸エステル；マレイン酸ジブチル；マレイン酸ジイソブチル；ポリアルキレングリコール、例えば、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、およびこれらのコポリマー；安息香酸エステル；エポキシ化植物油；スルホンアミド、例えば、N-エチルトルエンスルホンアミド、N-(2-ヒドロキシプロピル)ベンゼンスルホンアミド、およびN-(n-ブチル)ベンゼンスルホンアミド；有機リン酸エステル、例えば、リン酸トリクロレシル、リン酸トリブチル；グリコール／ポリエーテル、例えば、ジヘキサン酸トリエチレングリコール、ジヘプタン酸テトラエチレングリコール；クエン酸アルキル、例えば、クエン酸トリエチル、クエン酸アセチルトリエチル、クエン酸トリブチル、クエン酸アセチルトリブチル、クエン酸トリオクチル、クエン酸アセチルトリオクチル、クエン酸トリヘキシル、クエン酸アセチルトリ

40

50

ヘキシル、クエン酸ブチリルトリヘキシル、およびクエン酸トリメチル；アルキルスルホン酸フェニルエステル；ならびにこれらの混合物が挙げられる。

#### 【0060】

一部の実施形態では、原料粉末にバインダー樹脂および溶剤を時折添加することにより、前記プロセスをより容易にすることができる。バインダーは、複合材を形成するために加熱されている組成物の粒子の接着性を向上させる任意の物質である。バインダーの一部の非限定的な例としては、ポリビニルアルコール、ポリ酢酸ビニル、ポリ塩化ビニル、ポリビニルブチラール、ポリスチレン、ポリエチレングリコール、ポリビニルピロリドン、ポリ酢酸ビニルおよびポリ酪酸ビニルなどが挙げられる。すべてではないが一部の状況では、前記バインダーが、それを焼結相中に前駆体混合物から完全に除去または排除することができるほどに十分に揮発性であることが有用であり得る。使用することができる溶剤としては、水、低級アルカノール、例えば、これらに限定されるものではないが、変性エタノール、メタノール、イソプロピルアルコールおよびこれらの混合物、好ましくは変性エタノール、キシレン、シクロヘキサン、アセトン、トルエンおよびメチルエチルケトン、ならびにこれらの混合物を挙げることができるが、それらに限定されない。一部の実施形態において、前記溶剤は、キシレンとエタノールの混合物である。

10

#### 【0061】

一部の実施形態において、前記分散剤は、Flowen、魚油、長鎖ポリマー、ステアリン酸(steric acid)、酸化メンヘーデン魚油、ジカルボン酸、例えばコハク酸、モノオレイン酸ソルビタン(orbitan monooleate)、エタン二酸、プロパン二酸、ペンタン二酸、ヘキサン二酸、ヘプタン二酸、オクタン二酸、ノナン二酸、デカン二酸、o-フタル酸、p-フタル酸およびこれらの混合物であり得る。

20

#### 【0062】

次に、その混合物を微粉碎に付して、例えばその混合物を約0.5時間から約100時間(好ましくは約6時間から約48時間、またはさらに好ましくは約12時間から約24時間)の範囲の期間ボールミル粉碎することにより、スラリーを形成してもよい。前記ボールミル粉碎は、前記混合物中に混合されている成分以外の材料を含むミリングボールを用いることがある(例えば、YAGを形成する混合物用のミリングボールは、ZrO<sub>2</sub>であってもよい)。ある実施形態において、前記ボールミル粉碎は、ある一定の期間の後、濾過または他の公知の単離方法によって前記ミリングボールを単離することを含む。一部の実施形態において、前記スラリーは、約10cPから約5000cP(好ましくは約100cPから約3000cP、またはさらに好ましくは約400cPから1000cP)の範囲内の粘度を有する。

30

#### 【0063】

第三に、前記スラリーを剥離基材(例えば、シリコーン塗布ポリエチレンテレフタレート基材)上にキャストしてテープを形成してもよい。例えば、ドクターブレードを使用して移動キャリア上にスラリーをキャストさせ、乾燥させてテープを形成してもよい。そのキャストテープの厚みは、ドクターブレードと移動キャリアの間の間隙を変化させることによって調整することができる。一部の実施形態において、前記ドクターブレードと移動キャリア間の間隙は、約0.125mmから約1.25mm、約0.25mmから約1.00mm、または約0.375mmから約0.75mmの範囲内である。一方、前記移動キャリアのスピードは、約10cm/分から約150cm/分、30cm/分から約100cm/分、または約40cm/分から約60cm/分の範囲内の速度を有することができる。前記移動キャリアのスピードおよび前記ドクターブレードと移動キャリア間の間隙を調整することにより、前記テープは、約20μmと約300μmの間の厚みを有することができる。場合によっては前記テープをキャスティング後に所望の形状に切断してもよい。

40

#### 【0064】

2つ以上のテープをラミネートして前記組立体を形成することができる。このラミネーション工程は、2つ以上のテープを積み重ねる工程(例えば、2から100のテープを積

50

み重ねる)および積み重ねられたテープを熱および一軸圧(例えば、テープ表面に対して垂直な圧力)に付す工程を含むことができる。例えば、前記積み重ねられたテープを、そのテープに含有されているバインダーのガラス転移温度( $T_g$ )を超える温度に加熱し、金属製ダイを使用して一軸圧縮してもよい。一部の実施形態において、前記一軸圧は、約1から約500 MPa、または約30 MPaから約60 MPaの範囲内である。一部の実施形態では、前記熱および圧力を約1分から約60分、約15分から約45分の範囲の期間、または30分間、印加する。前記ラミネーション工程は、例えば成型ダイを使用することにより、様々な形状(例えば、穴もしくは柱)またはパターンを組立体中に形成する工程を場合により含むことがある。

## 【0065】

10

前記積み重ねられたテープを配列して、所望の組立体構成および層厚を得ることができる。例えば、テープを積み重ねて、図3Aおよび3Bにおいて例証される構成を得ることができる。前記ドープ層および1つ以上のノンドープ層の厚みを、その組立体中のテープの数を変化させることによって変更することができる。例えば、より厚いノンドープ層を得るために、追加のテープ層を前記組立体に加えることができる。

## 【0066】

焼結に先立ち、任意選択の脱バインダープロセスを完了させてもよい。この脱バインダープロセスは、前記組立体中の有機成分の少なくとも一部分を分解することを含む(例えば、前記組立体中のバインダーおよび可塑剤を揮発させる)。一例として、前記組立体を空气中で約300から約1200、約500から約1000の範囲の温度、または約800に、約0.1/分から約10/分、約0.3/分から約5/分、または約0.5/分から約1.5/分の速度で加熱してもよい。前記加熱工程は、前記組立体の厚みに基づいて選択され得る約30分から約300分の範囲の期間、前記温度を維持することも含むことがある。

20

## 【0067】

本明細書において開示する方法は、前記組立体を焼結して前記セラミック体を得る工程を含むことができる。本願の教示により導かれて、当業者は、前記組立体についての適切な構成および焼結条件を選択して、放射性セラミック、例えば、第一の領域と第二の領域とを有する本明細書において開示するものを得ることができる。

30

## 【0068】

いずれの特定の理論にも拘束されないが、本明細書において開示するプロセスは、ドーパントをドープ層の中からノンドープ層の中へと拡散させると考えられる。焼結条件および組立体構成に依存して、前記セラミック体中のドーパントのプロファイルが変更され得る。同様に、前記焼結条件は、前記セラミック体における結晶粒界のサイズおよび分布に影響を及ぼし得る。

## 【0069】

詳細には、前記組立体調製中に用いられるプロセス因子の一部を応用して、最終セラミック体における粒度および分布を制御または調整することができる。これらの因子としては、出発粉末粒径、焼結温度、圧力および時間が挙げられる。より具体的には、両方の領域においてより大きい平均粒径を得るためにには、より小さい出発粉末粒径、より高い焼結温度および真空、ならびに長期の焼結時間が好ましい。例えば、前記セラミック体は、焼結が高温(例えば、1700)を含むとき、そのセラミック体のコアに比べてその表面付近のほうが小さい結晶粒界を含むことがある。加えて、ラミネーション構造、例えばドープおよびノンドープ層の厚み、の応用により、粒度分布も制御することができる。

40

## 【0070】

前記組立体を真空、空気、O<sub>2</sub>、H<sub>2</sub>、H<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>、または希ガス(例えば、He、Ar、Kr、Xe、Rn、もしくはこれらの組み合わせ)中、約1200から約1950、約1300から約1900、約1350から約1850、または約1500から約1800の範囲内の温度で、約1時間から20時間、約2時間から約10時間、または約2時間から約5時間の範囲内の期間、焼結してもよい。一部の実施形態では、

50

前記脱バインダーおよび焼結プロセスを单一工程で完了させる。

【0071】

前記組立体の変形（例えば、反り、湾曲、屈曲など）を低減させるために、加熱工程中、前記組立体をカバープレート間にサンドイッチしてもよい。前記カバープレートは、加熱工程中に印加される温度より上の融点を有する材料を含み得る。さらに、前記カバープレートは、それらの被覆板を通した揮発成分の輸送を可能にするほどに十分多孔性であり得る。一例として、前記被覆板は、約40%の多孔度を有する二酸化ジルコニウムであつてもよい。

セラミック体を使用する照明装置および方法

【0072】

一部の実施形態は、光源とその光源によって放射される放射線の少なくとも一部分を受けるように構成されているセラミック体とを有する照明装置を提供する。前記セラミック体は、第一の領域および第二の領域、例えば、上で開示したセラミック体のいずれかである。

【0073】

前記光源を、一部の実施形態では、青色放射線を放射するように構成することができる。前記青色放射線は、例えば、約360nmと約500nmの間のピーク放射波長を有することがある。一部の実施形態において、前記光源は、約450nmと約500nmの間のピーク放射波長を有する放射線を放射する。一部の実施形態は、半導体LEDである光源を含む。一例として、前記光源は、電源に連結されたAlInGaN系単結晶半導体材料であつてもよい。

【0074】

図5は、本明細書において開示するセラミック体の1つ以上を含むことができる照明装置の一例である。照明装置500は、サブマウント510と、その上に取り付けられた光源515、例えば従来のベースLED、とを含む。光源515は、その光源515から放射される光の少なくとも一部分を受けるセラミック体530に隣接している。任意選択の封止樹脂525が、光源515とセラミック体530の上に配置されている。セラミック体530は、本願において開示するセラミック体のいずれかを含むことができる。

【0075】

LEDを搭載するデバイスを説明し、例として用いてきたが、これらのLEDは、本願の単なる一部の実施形態の代表にすぎない。焼結セラミックプレートの搭載に適する他の光学デバイスとしては、OLEDおよびILEDが挙げられるが、これらに限定されない。

【0076】

本願において開示するセラミック体のいずれかを青色放射線に曝露することを含む、光を生じさせる方法も、本明細書において開示する。前記青色放射線は、例えば、約360nmと約500nmの間のピーク放射波長を有することがある。一部の実施形態において、前記青色放射線は、約450nmと約500nmの間のピーク放射波長を有する。

【実施例】

【0077】

さらなる実施形態を以下の実施例においてさらに詳細に開示する。これらの実施例は、いかなる点においても本請求項の範囲を限定するためのものではない。

(実施例1)

【0078】

(a) ( $\text{Y}_{0.99}\text{Ce}_{0.01}$ )<sub>3</sub> $\text{Al}_5\text{O}_{12}$  固相反応粉末：4.6m<sup>2</sup>/g の BET 表面積を有する 2.817g の  $\text{Y}_2\text{O}_3$  粉末 (99.99%、Nippon Yttrium Company Ltd.)、5.6m<sup>2</sup>/g の BET 表面積を有する 2.141g の  $\text{Al}_2\text{O}_3$  粉末 (99.99%、グレードAKP-30、Sumitomo Chemicals Company Ltd.)、および 0.109g の硝酸セリウム (III)・六水和物 (純度 99.99%、Sigma-Aldrich) を前駆体として使用して、加熱中に (例えば、焼結中に) ( $\text{Y}_{0.99}\text{Ce}_{0.01}$ )<sub>3</sub> $\text{Al}_5\text{O}_{12}$  を

10

20

30

40

50

形成した。

【0079】

(b)  $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  固相反応粉末:  $4.6 \text{ m}^2/\text{g}$  の BET 表面積を有する  $2.853 \text{ g}$  の  $\text{Y}_2\text{O}_3$  粉末 (99.99%、Nippon Yttrium Company Ltd.)、 $5.6 \text{ m}^2/\text{g}$  の BET 表面積を有する  $2.147 \text{ g}$  の  $\text{Al}_2\text{O}_3$  粉末 (99.99%、グレード A KP-30、Sumitomo Chemicals Company Ltd.) を前駆体として使用して、加熱中に (例えば、焼結中に)  $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  を形成して、 $(\text{Y}_{0.99}\text{Ce}_{0.01})_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  を形成した。

【0080】

(c) 組立体の形成:  $50 \text{ mL}$  高純度  $\text{Al}_2\text{O}_3$  ボールミルジャーに、 $20 \text{ g}$  の直径  $3 \text{ mm}$  の  $\text{Y}_2\text{O}_3$  安定化  $\text{ZrO}_2$  ボールを充填した。その後、 $5 \text{ g}$  の上で調製した SSR 粉末混合物のうちの 1 つと、 $0.10 \text{ g}$  の分散剤 (Flowlen G-700、Kyoeisha) と、 $0.35 \text{ g}$  のポリ(ビニルブチラール-co-ビニルアルコール-co-酢酸ビニル) (Aldrich) と、 $0.175 \text{ g}$  のフタル酸 n-ブチル-ベンジル (98%、Alfa Aesar) と、 $0.175 \text{ g}$  のポリエチレングリコール ( $M_n = 400$ 、Aldrich) と、焼結助剤としての  $0.025 \text{ g}$  のオルトケイ酸テトラエチル (Fluka) と、 $1.583 \text{ g}$  のキシレン (Fisher Scientific、研究室グレード) と、 $1.583 \text{ g}$  のエタノール (Fisher Scientific、試薬アルコール) とをそのジャーに添加した。その混合物を 24 時間ボールミル粉碎することによりスラリーを製造した。

【0081】

ボールミル粉碎完了後、シリングを使用して、 $0.05 \text{ mm}$  の孔径を有する金属スクリーンフィルターにそのスラリーを通した。得られたスラリーを、調整可能フィルムアプリケータ (Paul N. Gardner Company, Inc.) を用いて  $30 \text{ cm}/\text{分}$  のキャスト速度で剥離基材、例えばシリコーン被覆 Mylar (登録商標) キャリア基材 (Tape Casting Warehouse) 上にキャストした。所望の厚みが得られるようにフィルムアプリケータ上のブレード間隙を設定した。各キャストテープを周囲温度で一晩乾燥させて、グリーンシートを製造した。

【0082】

SSR ( $\text{Y}_{0.99}\text{Ce}_{0.01})_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  または  $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  粉末を含有する乾燥キャストテープを、金属パンチャーを使用して、 $13 \text{ mm}$  の直径を有する円形に切断した。1回のラミネーションで、5片の SSR ( $\text{Y}_{0.99}\text{Ce}_{0.01})_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  (1.0 at% Ce) 切断キャストテープ (各  $40 \mu\text{m}$ ) の両面に 2 片の SSR YAG 切断キャストテープ (一片各々  $100 \mu\text{m}$ ) が積層されていた。その積層複合材を、鏡面研磨された表面を有する円形ダイス間に配置し、ホットプレートで  $800^\circ\text{C}$  に加熱し、その後、油圧式プレス機を使用して 5 トンの一軸圧で約 5 分間圧縮した。最終組立体は、図 6 に図示するように、2つのノンドープ層間に介在しているドープ層を有した。

【0083】

(d) 焼結: 前記組立体を  $\text{ZrO}_2$  カバーブレート (厚さ  $1 \text{ mm}$ 、グレード 42510-X、ESL Electronics Inc.) 間にサンドイッチし、 $5 \text{ mm}$  の厚みを有する  $\text{Al}_2\text{O}_3$  ブレート上に配置した。その後、それらの組立体を管状炉において空気中、 $0.5^\circ\text{C}/\text{分}$  の速度で  $800^\circ\text{C}$  に加熱し、2時間保持して、組立体から有機成分を除去した。

【0084】

脱バインダー後、その組立体を  $10^{-1} \text{ Torr}$  の真空中、 $1500^\circ\text{C}$  で 5 時間、 $1^\circ\text{C}/\text{分}$  の加熱速度でアニールして、非晶質酸化イットリウム、YAP、YAM または  $\text{Y}_2\text{O}_3$  および  $\text{Al}_2\text{O}_3$  を含む (しかしこれらに限定されない) 層中の YAG の非ガーネット相から、イットリウム・アルミニウム・ガーネット (YAG) 相への転化を完了するとともに YAG 粒度を増加させた。

【0085】

10

20

30

40

50

初回アニーリング後、組立体を  $10^{-3}$  Torr の真空中、1700 で 5 時間、5 / 分の加熱速度および室温への 10 / 分の冷却速度でさらに焼結して、透明 / 半透明 YAG セラミックシートを製造した。ラミネートされたグリーンシートを、グラファイトヒーターを有する炉内でアニールするとき、強い還元雰囲気に起因して試料が部分的に構成金属に還元されないようにするために、組立体を 1  $\mu\text{m}$  から 5  $\mu\text{m}$  の犠牲 YAG 粉末に埋め込んだ。褐色を帯びた焼結セラミック体を炉内において、真空雰囲気で、1400 で、2 時間、それぞれ 10 / 分および 20 / 分の加熱および冷却速度で再酸化させた。これらのセラミック体は、800 nm で 70 % より高い透過率を呈示した。

#### 【0086】

(d) 光学性能測定：ダイサー（MTI、EC400）を使用して、各セラミックシートを  $2\text{ mm} \times 2\text{ mm}$  に方形切断した。Otsuka Electronics MCPD 7000 多チャンネル光検出器システムを、必要光学部品、例えば、光ファイバー（Otsuka Electronics）、12インチ径積分球（Gamma Scientific、GS01S12-TLS）、全光束測定用に構成された校正光源（Gamma Scientific、GS-IS12-OP1）、および励起光源（Cree 青色 LED チップ、主波長 455 nm、C455EZ1000-S2001）と共に使用して、光学測定を行った。

#### 【0087】

上で開示した方法に従って調製したセラミック体を、455 nm のピーク波長を有する発光ダイオード（LED）および約 1.45 の屈折率を有するアクリルレンズ上に配置した。セラミック体を伴う LED を積分球の中に配置した。100 mA の駆動電流を用いて LED によってそのセラミック体を照射した。このセラミック体を伴う青色 LED の光放射を記録した。次に、セラミック体を LED から外し、その青色 LED とアクリルレンズのみについての放射を測定した。図 7 に示すように、青色 LED のみと青色 LED / セラミック体組み合わせとの放射の差の積分によって IQE を計算した。実施例 1 における方法によるセラミック体は、約 93 の IQE を呈示した。

#### 【0088】

図 8A ~ C は、左縁領域、中央領域および右縁領域を含む、実施例 1 における方法に従って調製したセラミック体の断面の反射電子モード走査型電子顕微鏡検査（SEM - BSE）画像を示す。図 8A ~ C に示されているように、両方の縁部における粒度は、中央領域におけるものと比較して小さかった。またより小さい粒度を有する領域の厚みは、約 40  $\mu\text{m}$  であった。この約 40  $\mu\text{m}$  範囲を超えると、他の領域における粒度のほうがはるかに大きく、および全く一様であった。

#### 【0089】

図 9 は、実施例 1 の方法に従って調製したセラミック体の飛行時間型二次イオン質量分析法（TOF SIMS）分析を示す。これらの結果は、前記セラミック体の断面に沿って元素濃度プロファイルを示す。Ce 拡散がその元素濃度プロファイルで観察され、およびセラミック体の表面に位置する - より小さい平均粒度を含んだ - Ce イオンの量は、他の領域より有意に少なかった。この例において、より小さい粒度の領域内の Ce<sup>3+</sup> の濃度は、より大きい粒度領域内の Ce<sup>3+</sup> のピーク濃度の約四分の一である。

#### （比較例 1）

#### 【0090】

実施例 1 からの 5 片の SSR (Y<sub>0.99</sub>Ce<sub>0.01</sub>)<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub> (1.0 at % Ce) 切断キャストテープを互いに積層して、約 200  $\mu\text{m}$  の全厚を有する組立体を得た。この組立体には他の層を含めなかった。この組立体を、実施例 1 の場合と概して同じ加工条件を用いて、セラミック体に調製した。

#### 【0091】

図 10A ~ C は、左縁領域、中央領域および右縁領域を含む、比較例 1 において調製したセラミック体の断面の SEM - BSE 画像を示す。図 10A ~ C に示されているように、両方の縁部における粒度は、中央領域におけるものと比較して小さかった。またより小

10

20

30

40

50

さい粒度を有する領域の厚みは、約 40 μm であった。この約 40 μm 範囲を超えると、他の領域における粒度のほうがはるかに大きく、および全く一様であった。

#### 【0092】

比較例 1 に従って調製したセラミック体についての IQE を、実施例 1 において説明した概して同じ手順を用いて決定した。比較例 1 からのセラミック体は、実施例 1 からのセラミック体についての約 93 の IQE と比較して、約 86 の IQE を呈示した。

#### 【0093】

比較例 1 からのセラミック体中の Ce イオンは、より小さい平均粒度を有する領域内により大量の Ce イオンが位置するような略一様分布を有すると予想される。したがって、これらの結果は、より大きい平均粒度を有する領域に Ce イオンが優先的に位置するときに IQE が増加され得ることを示す。

#### (実施例 2)

#### 【0094】

(a) ( $\text{Y}_{0.985}\text{Ce}_{0.015}$ )<sub>3</sub> $\text{Al}_5\text{O}_{12}$  固相反応粉末 : 4.6 m<sup>2</sup> / g の BET 表面積を有する 2.799 g の  $\text{Y}_2\text{O}_3$  粉末 (99.99%、Nippon Yttrium Company Ltd.)、5.6 m<sup>2</sup> / g の BET 表面積を有する 2.139 g の  $\text{Al}_2\text{O}_3$  粉末 (99.99%、グレード AKP-30、Sumitomo Chemicals Company Ltd.)、および 0.164 g の硝酸セリウム (III)・六水和物 (純度 99.99%、Sigma-Aldrich) を前駆体として使用して、加熱中に (例えば、焼結中に) ( $\text{Y}_{0.985}\text{Ce}_{0.015}$ )<sub>3</sub> $\text{Al}_5\text{O}_{12}$  を形成した。

#### 【0095】

(b)  $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  固相反応粉末 : 4.6 m<sup>2</sup> / g の BET 表面積を有する 2.853 g の  $\text{Y}_2\text{O}_3$  粉末 (99.99%、Nippon Yttrium Company Ltd.)、5.6 m<sup>2</sup> / g の BET 表面積を有する 2.147 g の  $\text{Al}_2\text{O}_3$  粉末 (99.99%、グレード AKP-30、Sumitomo Chemicals Company Ltd.) を前駆体として使用して、加熱中に (例えば、焼結中に)  $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  を形成して、( $\text{Y}_{0.99}\text{Ce}_{0.01}$ )<sub>3</sub> $\text{Al}_5\text{O}_{12}$  を形成した。

#### 【0096】

(c) セラミック体の調製：組立体が、図 11A～B に示した構造を含むことを除き、実施例 1 に関して説明した概して同じ手順を用いて、2 つのセラミック体を調製した。

#### 【0097】

実施例 2 に従って調製したセラミック体についての IQE を、実施例 1 において説明した概して同じ手順を用いて決定した。図 11A に図示した組立体から調製したセラミック体は、約 85 であった。図 11B に図示した組立体から調製したセラミック体は、約 93 であった。図 11A に図示した組立体から調製したセラミック体は、より薄いノンドープ層を含んでおり、そのため、より大量の Ce イオンが、より小さい平均粒度を有する表面領域付近に分散したと予想される。したがって、これらの結果は、より大きい平均粒度を有する領域に Ce イオンが優先的に位置するときに IQE が増加され得ることをさらに裏付ける。

#### (比較例 2)

#### 【0098】

実施例 2 からの 5 片の SSR ( $\text{Y}_{0.985}\text{Ce}_{0.015}$ )<sub>3</sub> $\text{Al}_5\text{O}_{12}$  (1.5 at% Ce) 切断キャストテープを互いに積層して、約 200 μm の全厚を有する組立体を得た。この組立体には他の層を含めなかった。この組立体を、実施例 1 の場合と概して同じ加工条件を用いて、セラミック体に調製した。

#### 【0099】

比較例 2 に従って調製したセラミック体についての IQE を、実施例 1 において説明した概して同じ手順を用いて決定した。比較例 2 からのセラミック体は、実施例 2 からのセラミック体についての約 85 および約 93 の IQE と比較して、約 77 の IQE を呈示し

10

20

30

40

50

た。

【0100】

比較例2からのセラミック体中のCeイオンは、より小さい平均粒度を有する領域内により大きい比率のCeイオンが位置するような略一様分布を有すると予想される。したがって、これらの結果は、より大きい平均粒度を有する領域にCeイオンが優先的に位置するときにIQEが増加され得ることを示す。

(実施例3)

【0101】

(a) ( $Y_{0.897}Gd_{0.10}Ce_{0.003}$ )<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub> 固相反応粉末: 4.6 m<sup>2</sup>/g の BET 表面積を有する 2.472 g の  $Y_2O_3$  粉末 (99.99%、Nippon Yttrium Company Ltd.)、5.6 m<sup>2</sup>/g の BET 表面積を有する 2.074 g の Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 粉末 (99.99%、グレードAKP-30、Sumitomo Chemicals Company Ltd.)、0.442 g の Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 粉末 (99.99% Pangaea Ltd.)、および 0.032 g の 硝酸セリウム (III)・六水和物 (純度 99.99%、Sigma-Aldrich) を前駆体として使用して、加熱中に (例えば、焼結中に) ( $Y_{0.897}Gd_{0.10}Ce_{0.003}$ )<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub> を形成した。10

【図1A】

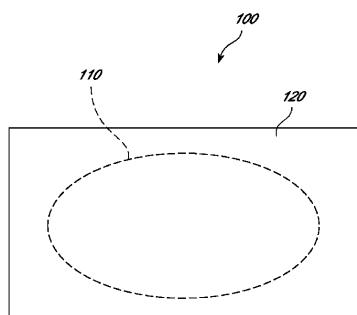


FIG. 1A

【図2A】

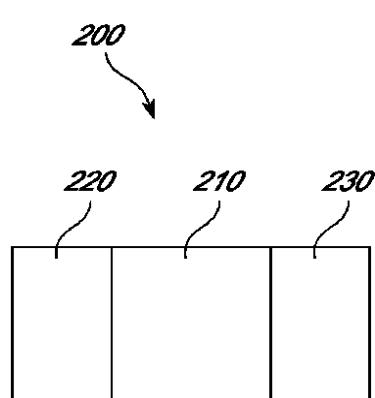


FIG. 2A

【図1B】

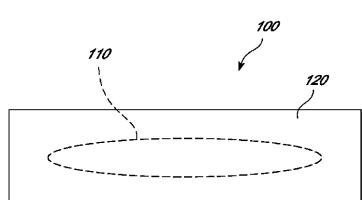


FIG. 1B

【図 2B】

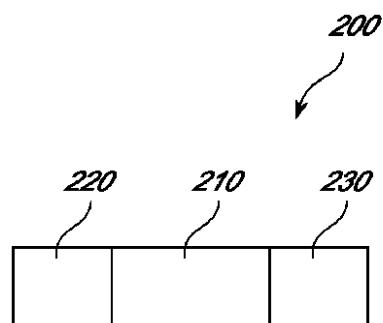


FIG. 2B

【図 3A】

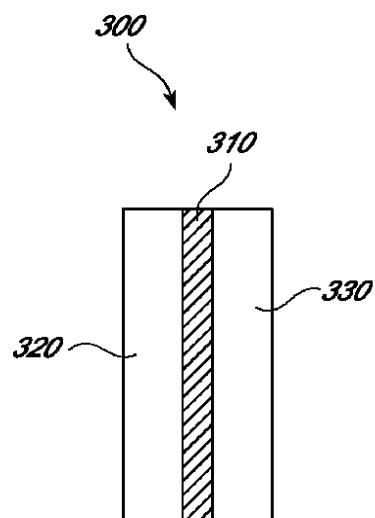


FIG. 3A

【図 3B】

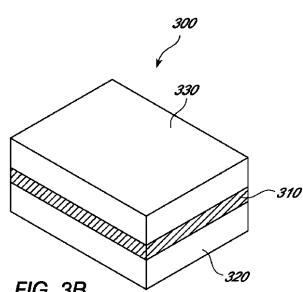
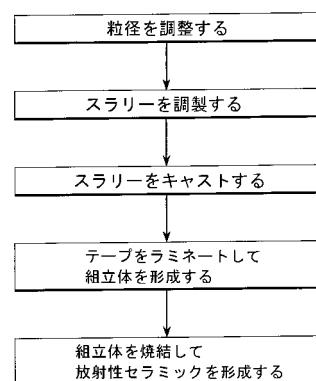


FIG. 3B

【図 4】



【図5】

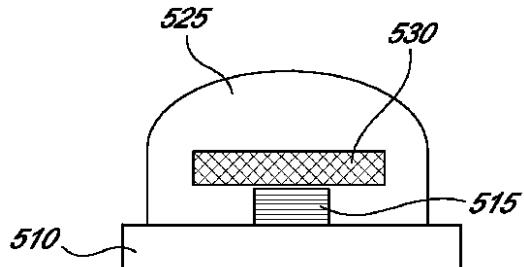


FIG. 5

【図6】

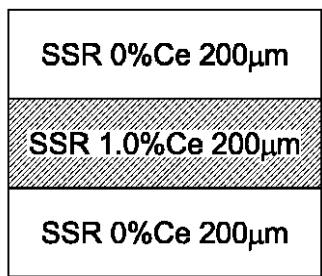
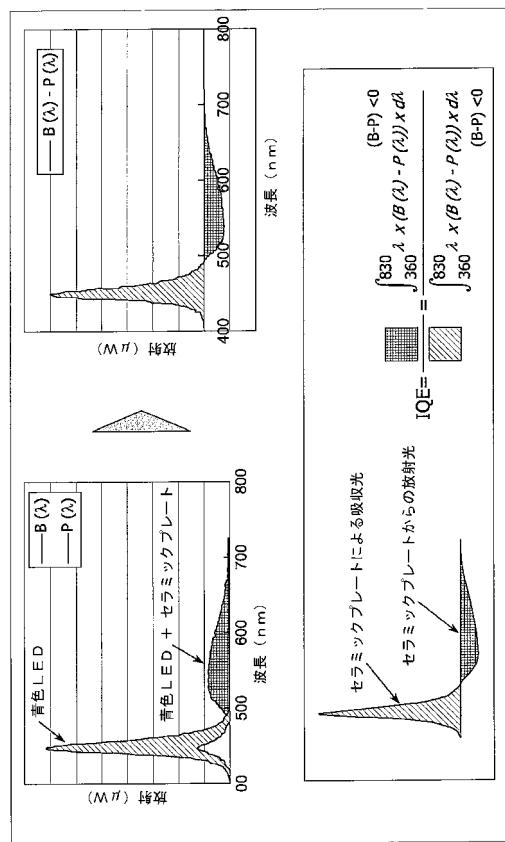
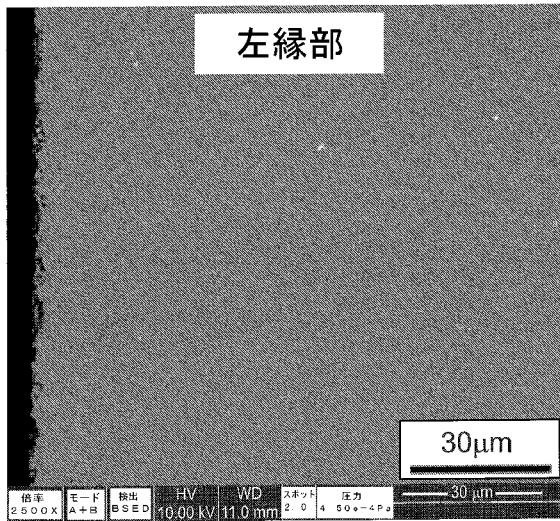


FIG. 6

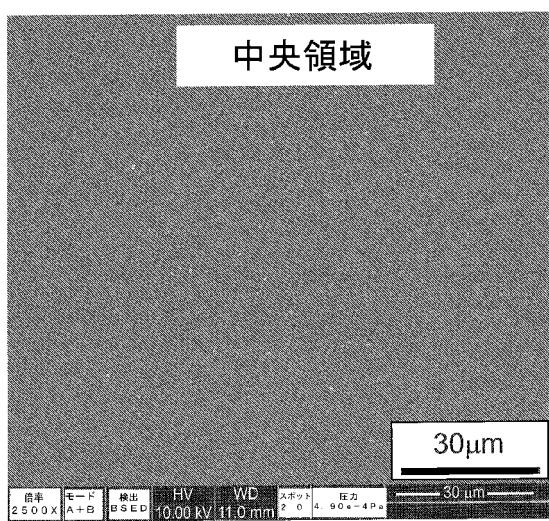
【図7】



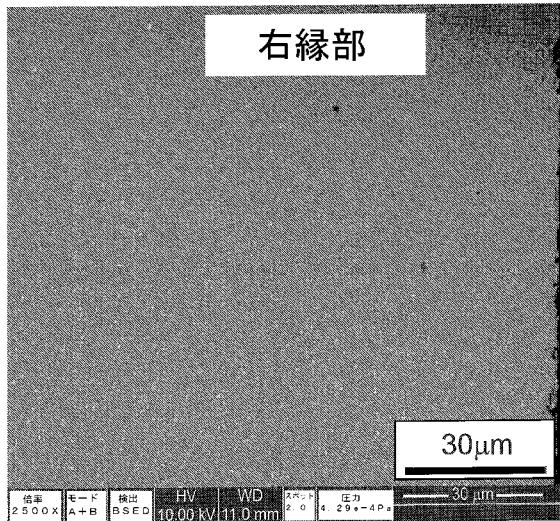
【図8 A】



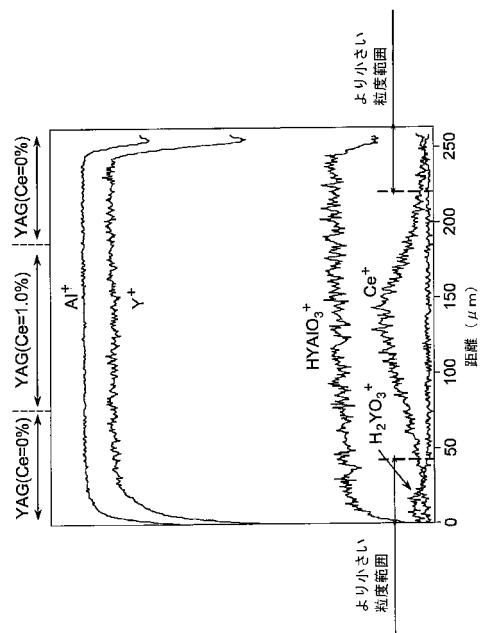
【図8 B】



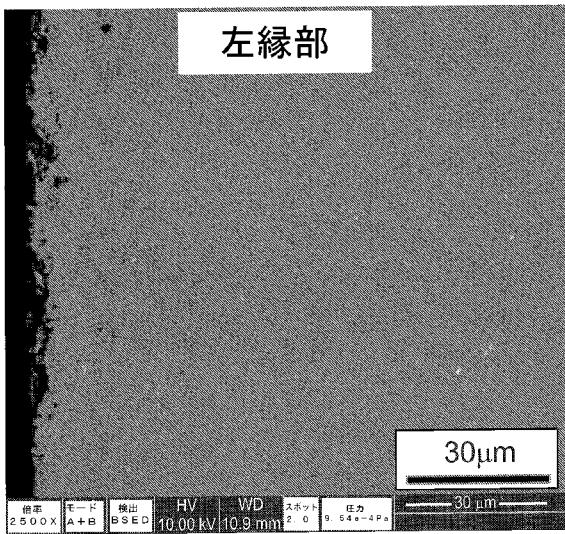
【図 8 C】



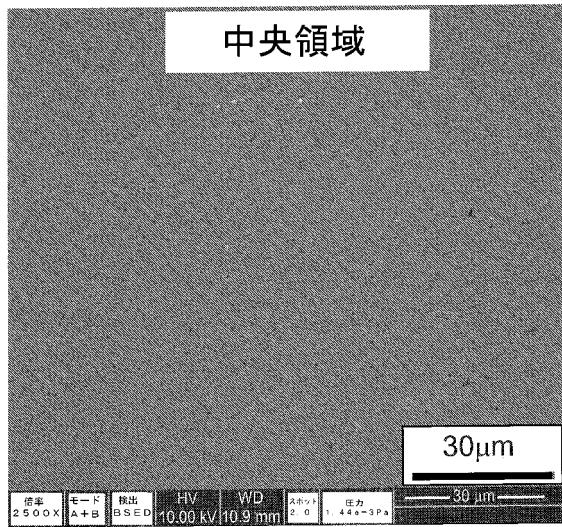
【図 9】



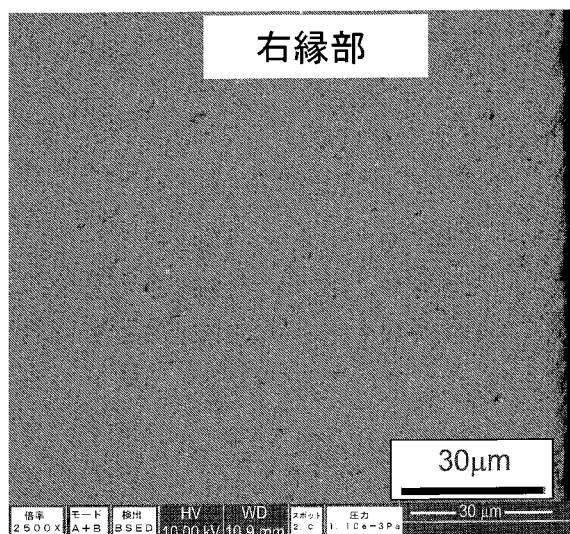
【図 10 A】



【図 10 B】



【図 10 C】



【図 11 A】

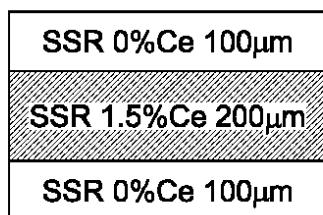


FIG. 11A

【図 11 B】

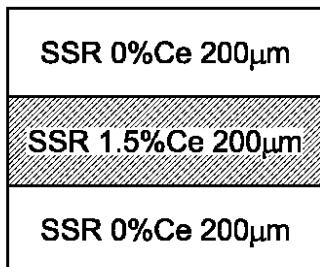


FIG. 11B

## 【手続補正書】

【提出日】平成26年10月30日(2014.10.30)

## 【手続補正1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

## 【補正の内容】

【特許請求の範囲】

## 【請求項1】

セラミック体であつて、

ホスト材料および第一の濃度のドーパントを含有し、前記第一の濃度が、ルミネセンスを生じさせるために有効である、第一の領域と、

前記ホスト材料および第二の濃度の前記ドーパントを含有し、前記第二の濃度が前記第一の濃度より低い、第二の領域とを含み；

前記第一の領域が、前記第二の領域の平均粒度より大きい平均粒度を有するものであり；ならびに前記セラミック体が、455 nmの波長を有する放射線に曝露されたとき、少なくとも0.80の内部量子効率(IQE)を呈示するものであるセラミック体。

## 【請求項2】

前記ホスト材料が、式  $A_3B_5O_{12}$  (式中、

Aは、Y、Lu、Ca、La、Tb、Gdおよびこれらの組み合わせからなる群より選択され；ならびに

Bは、Al、Mg、Si、Ga、Inおよびこれらの組み合わせからなる群より選択される)

によって表される、請求項1に記載のセラミック体。

**【請求項 3】**

前記ホスト材料が、 $Y_3Al_5O_{12}$ 、 $(Y, Tb)_3Al_5O_{12}$ 、 $(Y, Gd)_3Al_5O_{12}$ 、 $(Y, Gd)_3(Al, Ga)_5O_{12}$ 、 $(Sr, Ca, Ba)_2SiO_4$ 、 $Lu_3Al_5O_{12}$ 、 $Lu_2CaMg_2Si_3O_{12}$ 、 $Lu_2CaAl_4SiO_{12}$ 、 $Ca_3Sc_2Si_3O_{12}$ 、 $Ba_3MgSi_2O_8$ 、 $BaMgAl_{10}O_{17}$ 、 $La_2O_2S$ 、 $SrGa_2S_4$ 、 $CaAlSiN_3$ 、 $Ca_2Si_5N_8$ 、および $CaSiAlON$ から選択される、請求項1または2に記載のセラミック体。

**【請求項 4】**

前記ホスト材料が、 $Y_3Al_5O_{12}$ である、請求項1～3のいずれか一項に記載のセラミック体。

**【請求項 5】**

前記ドーパントが、希土類金属である、請求項1～4のいずれか一項に記載のセラミック体。

**【請求項 6】**

前記ドーパントが、 $Ce$ 、 $La$ 、 $Tb$ 、 $Pr$ 、 $Eu$ およびこれらの組み合わせからなる群より選択される、請求項1～5のいずれか一項に記載のセラミック体。

**【請求項 7】**

前記ドーパントが $Ce$ である、請求項1～6のいずれか一項に記載のセラミック体。

**【請求項 8】**

前記第一の領域が、5 μmから100 μmの平均粒度を有する、請求項1～7のいずれか一項に記載のセラミック体。

**【請求項 9】**

前記第二の領域が、30 μm未満の平均粒度を有する、請求項1～8のいずれか一項に記載のセラミック体。

**【請求項 10】**

前記第二のドーパント濃度が、0.2 at%以下である、請求項1～9のいずれか一項に記載のセラミック体。

**【請求項 11】**

前記第一の濃度のドーパントの、前記第二の濃度のドーパントに対する比が、4 : 1から1 : 1の範囲内である、請求項1～10のいずれか一項に記載のセラミック体。

**【請求項 12】**

前記第一の領域が、前記セラミック体の中心コアを含有する、請求項1～11のいずれか一項に記載のセラミック体。

**【請求項 13】**

前記第二の領域が、前記セラミック体の外周部分を含有する、請求項1～12のいずれか一項に記載のセラミック体。

**【請求項 14】**

前記第一の領域が、前記第二の領域に隣接する、請求項1～13のいずれか一項に記載のセラミック体。

**【請求項 15】**

前記セラミック体が、前記ホスト材料と第三の濃度の前記ドーパントとを含有する第三の領域をさらに含み、前記第三の濃度が、前記第一の濃度より低く、前記第一の領域が、前記第三の領域の平均粒度より大きい平均粒度を有し、および前記第一の領域が、前記第二の領域と第三の領域の間にある、請求項1～11のいずれか一項に記載のセラミック体。

**【請求項 16】**

前記第二の領域が、前記セラミック体の第一の表面を含み；

前記第三の領域が、前記セラミック体の第二の表面を含み；

前記第一および第二の表面が、前記セラミック体の反対側にある、  
請求項15に記載のセラミック体。

**【請求項 17】**

前記第一、第二および第三の領域が、別々の層である、請求項15～16のいずれか一項に記載のセラミック体。

**【請求項 18】**

前記第三の領域が、30 μm未満の平均粒度を有する、請求項15～17のいずれか一項に記載のセラミック体。

**【請求項 19】**

前記第三のドーパント濃度が、0.2 at%以下である、請求項15～18のいずれか一項に記載のセラミック体。

**【請求項 20】**

前記第一の濃度のドーパントの、前記第三の濃度のドーパントに対する比が、4:1から1:1の範囲内である、請求項15～19のいずれか一項に記載のセラミック体。

**【請求項 21】**

請求項1～20のいずれか1項に記載のセラミック体の形成方法であって、

組立体を形成する工程を含み、前記組立体を形成する工程が、

ホスト材料、ホスト材料前駆体またはこれらの組み合わせを含有する第一のノンドープ層を用意する工程であって、前記第一のノンドープ層が40 μmから800 μmの範囲内の厚みを有するものである工程；

前記第一のノンドープ層上にドープ層を堆積させる工程であって、前記ドープ層が、10 μmから400 μmの範囲内の厚みを有し、およびホスト材料、ホスト材料前駆体またはこれらの組み合わせと、ドーパントとを含有するものである工程；および

前記組立体を焼結して、第一の領域と第二の領域とを含む前記セラミック体を形成する工程であって、前記第一の領域の平均粒度が前記第二の領域の平均粒度より大きく、

前記第一の領域が、ルミネセンスを生じさせるために有効である第一の濃度のドーパントを含有し、および前記第二の領域が、前記第一のドーパント濃度より低い第二の濃度のドーパントを含有するものである工程

を含む方法。

**【請求項 22】**

前記ドープ層の上に第二のノンドープ層を堆積させる工程をさらに含み、前記第二のノンドープ層が、前記ホスト材料、前記ホスト材料前駆体またはこれらの組み合わせを含有し、ならびに前記第一および第二のノンドープ層が、各々独立して、40 μmから400 μmの範囲内の厚みを有する、請求項21に記載の方法。

**【請求項 23】**

前記組立体が、減圧下で焼結される、請求項21～22のいずれか一項に記載の方法。

**【請求項 24】**

前記減圧が、100 Torr以下である、請求項23に記載の方法。

**【請求項 25】**

前記組立体を焼結する工程が、1000から1950の範囲内の温度での少なくとも2時間の前記組立体の加熱を含む、請求項21～24のいずれか一項に記載の方法。

**【請求項 26】**

前記温度が、1300から1800の範囲内である、請求項25に記載の方法。

**【請求項 27】**

前記組立体が、前記温度で少なくとも5時間加熱される、請求項25～26のいずれか一項に記載の方法。

**【請求項 28】**

前記組立体が、前記温度で60時間以下加熱される、請求項25～27のいずれか一項に記載の方法。

**【請求項 29】**

前記ドープ層が、40 μmから80 μmの範囲内の厚みを有する、請求項21～28のいずれか一項に記載の方法。

**【請求項 3 0】**

前記第一のノンドープ層の厚みが、前記第二のノンドープ層の厚みとほぼ同じであり；  
ならびに

前記第一のノンドープ層の厚みおよび前記第二のノンドープ層の厚みの各々が、前記ド  
ープ層の厚みより厚い、

請求項2 2 ~ 2 9のいずれか一項に記載の方法。

**【請求項 3 1】**

前記組立体が、1 0 0 μmから1 mmの範囲内の全厚を有する、請求項2 1 ~ 3 0のい  
ずれか一項に記載の方法。

**【請求項 3 2】**

前記ドープ層が、0 . 1 at%から5 at%のドーパントを含有する、請求項2 1 ~ 3  
1のいずれか一項に記載の方法。

**【請求項 3 3】**

照明装置であって、

青色放射線を放射するように構成されている光源と、

請求項1 ~ 2 0のいずれか一項に記載のセラミック体

とを含み、

前記セラミック体が、前記青色放射線の少なくとも一部分を受けるように構成されてい  
るものである、照明装置。

## 【国際調査報告】

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No  
PCT/US2013/028943

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
INV. C09K11/80  
ADD. H01L33/50

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

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
C09K

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

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

EPO-Internal, COMPENDEX, INSPEC, WPI Data

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 2012/001214 A1 (OYABU YASUNARI [JP] ET AL) 5 January 2012 (2012-01-05) paragraph [0087] - paragraph [0136]; claims 1-5; figures 1,2 -----	1-44
X	US 2011/227477 A1 (ZHANG BIN [US] ET AL) 22 September 2011 (2011-09-22) paragraph [0050] - paragraph [0051] paragraph [0055] paragraph [0087] - paragraph [0110]; claims 1-21 -----	1-44
X	US 2011/116263 A1 (CILLESSEN JOHANNES FRANCISCUS MARIA [NL] ET AL) 19 May 2011 (2011-05-19) claims 1-15; figure 1; example 1 -----	1-44

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

## \* Special categories of cited documents :

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

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

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

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

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

Date of mailing of the international search report

11 June 2013

19/06/2013

Name and mailing address of the ISA/

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

Authorized officer

Mehdaoui, Imed

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

Information on patent family members

International application No
PCT/US2013/028943

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)		Publication date
US 2012001214 A1	05-01-2012	CN	102367017 A	07-03-2012
		JP	2012015254 A	19-01-2012
		KR	20120002471 A	05-01-2012
		TW	201201420 A	01-01-2012
		US	2012001214 A1	05-01-2012
<hr/>				
US 2011227477 A1	22-09-2011	TW	201139621 A	16-11-2011
		US	2011227477 A1	22-09-2011
		WO	2011115820 A1	22-09-2011
<hr/>				
US 2011116263 A1	19-05-2011	CN	102106003 A	22-06-2011
		EP	2308106 A1	13-04-2011
		JP	2011529266 A	01-12-2011
		KR	20110031994 A	29-03-2011
		RU	2011106473 A	27-08-2012
		TW	201023405 A	16-06-2010
		US	2011116263 A1	19-05-2011
		WO	2010010484 A1	28-01-2010
<hr/>				

## フロントページの続き

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード(参考)
H 01 L 33/50	C 09 K 11/08	B
	H 01 L 33/00	4 1 0

(81) 指定国 AP(BW,GH,GM,KE,LR,LS,MW,MZ,NA,RW,SD,SL,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,RU,TJ,TM),EP(AL,AT,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR,GB,GR,HR,HU,IE,IS,IT,LT,LU,LV,MC,MK,MT,NL,NO,PL,PT,RO,RS,SE,SI,SK,SM,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,ML,MR,NE,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AO,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BH,BN,BR,BW,BY,BZ,CA,CH,CL,CN,CO,CR,CU,CZ,DE,DK,DM,DO,DZ,EC,EE,EG,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,GT,HN,HR,HU,ID,IL,IN,IS,JP,KE,KG,KM,KN,KP,KR,KZ,LA,LK,LR,LS,LT,LU,LY,MA,MD,ME,MG,MK,MN,MW,MX,MY,MZ,NA,NG,NI,NO,NZ,OM,PA,PE,PG,PH,PL,PT,QA,RO,RS,RU,RW,SC,SD,SE,SG,SK,SL,SM,ST,SV,SY,TH,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US,UZ,VC

(71) 出願人 514226545

中村 年孝

大阪府高槻市寺谷町 35番24号

(74) 代理人 110000729

特許業務法人 ユニアス国際特許事務所

(72) 発明者 チャン、ビン

アメリカ合衆国 カリフォルニア州 92128、サンディエゴ、15855 アベニダ ベナ  
スト 737

(72) 発明者 宮川 浩明

アメリカ合衆国 カリフォルニア州 92057、オーシャンサイド、844 アーサー アベニ  
ュー

(72) 発明者 中村 年孝

大阪府高槻市寺谷町 35番24号

F ターム(参考) 4H001 CA04 CA06 CF02 XA07 XA08 XA12 XA13 XA14 XA20 XA31  
XA38 XA39 XA56 XA64 XA65 XA71 YA57 YA58 YA59 YA63  
YA65  
5F142 AA03 BA34 CG03 DA02 DA14 DA45 DA54 DA55 DA63 DA73  
FA24 FA28 GA21