



(19)  
Bundesrepublik Deutschland  
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) DE 602 24 798 T2 2009.01.22

(12)

## Übersetzung der europäischen Patentschrift

(97) EP 1 393 385 B1

(21) Deutsches Aktenzeichen: 602 24 798.5

(86) PCT-Aktenzeichen: PCT/US02/17307

(96) Europäisches Aktenzeichen: 02 734 622.0

(87) PCT-Veröffentlichungs-Nr.: WO 2002/099902

(86) PCT-Anmeldetag: 29.05.2002

(87) Veröffentlichungstag

der PCT-Anmeldung: 12.12.2002

(97) Erstveröffentlichung durch das EPA: 03.03.2004

(97) Veröffentlichungstag

der Patenterteilung beim EPA: 23.01.2008

(47) Veröffentlichungstag im Patentblatt: 22.01.2009

(51) Int Cl.<sup>8</sup>: H01L 33/00 (2006.01)

C09K 11/77 (2006.01)

C09K 11/80 (2006.01)

(30) Unionspriorität:

681522 01.06.2001 US

(84) Benannte Vertragsstaaten:

AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT,  
LI, LU, MC, NL, PT, SE, TR

(73) Patentinhaber:

Gelcore LLC, Valley View, Ohio, US

(72) Erfinder:

SRIVASTAVA, Alok Mani, Niskayuna, NY 12309,  
US; SETLUR, Anant Achyut, Niskayuna, NY 12309,  
US; COMANZO, Holly Ann, Niskayuna, NY 12309,  
US

(74) Vertreter:

Dr. Weber, Dipl.-Phys. Seiffert, Dr. Lieke, 65183  
Wiesbaden

(54) Bezeichnung: BREITBANDIGE TERBIUM-GRANAT-LEUCHTSTOFFE UND DAMIT AUSGERÜSTETE WEISS-LICHTQUELLEN

Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents kann jedermann beim Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingelebt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist (Art. 99 (1) Europäisches Patentübereinkommen).

Die Übersetzung ist gemäß Artikel II § 3 Abs. 1 IntPatÜG 1991 vom Patentinhaber eingereicht worden. Sie wurde vom Deutschen Patent- und Markenamt inhaltlich nicht geprüft.

**Beschreibung****HINTERGRUND DER ERFINDUNG**

**[0001]** Die vorliegende Erfindung betrifft mit Seltenerdmetallionen aktivierte, sichtbares Licht mit breitem Spektrum emittierende Leuchtstoffe mit einer Granat-Struktur. Insbesondere betrifft die vorliegende Erfindung einen mit Cer aktivierten Terbium-Aluminiumoxid-Granat-Leuchtstoff, der unter Blaulichtanregung Gelblicht emittiert. Die vorliegende Erfindung betrifft auch Weißlichtquellen unter Verwendung dieser Leuchtstoffe.

**[0002]** Ein Leuchtstoff ist ein lumineszentes Material, das Strahlungsenergie in einem Teil des elektromagnetischen Spektrums absorbiert und Energie in einem anderen Teil des elektromagnetischen Spektrums emittiert. Leuchtstoffe einer wichtigen Klasse sind kristalline anorganische Verbindungen mit sehr hoher chemischer Reinheit und mit einer kontrollierten Zusammensetzung, zu denen kleine Mengen weiterer Elemente (genannt "Aktivatoren") hinzugefügt wurden, um sie in effiziente fluoreszierende Materialien umzuwandeln. Mit der richtigen Kombination aus Aktivatoren und anorganischen Verbindungen kann die Farbe der Emission gesteuert bzw. kontrolliert werden. Die nützlichsten und am besten bekannten Leuchtstoffe emittieren Strahlung im sichtbaren Bereich des elektromagnetischen Spektrums in Reaktion auf Anregung durch elektromagnetische Strahlung außerhalb des sichtbaren Bereichs. Gut bekannte Leuchtstoffe wurden in Quecksilberdampf ausstoßenden Lampen verwendet, um die ultraviolette ("UV"-)Strahlung, die von dem angeregten Quecksilberdampf emittiert wird, in sichtbares Licht umzuwandeln. Weitere Leuchtstoffe können sichtbares Licht emittieren, wenn sie durch Elektronen (die in Kathodenstrahlröhren verwendet werden) oder Röntgenstrahlen (beispielsweise Szintillatoren in Röntgenstrahlendetektionssystemen) angeregt werden.

**[0003]** Die Effizienz einer Leuchtvorrichtung, die einen Leuchtstoff verwendet, nimmt zu, wenn der Unterschied zwischen der Wellenlänge der anregenden Strahlung und derjenigen der emittierten Strahlung kleiner wird. In dem Streben nach einer Verbesserung der Effizienz von Weißlichtquellen waren daher Anstrengungen darauf gerichtet, eine Quelle von stimulierender Strahlung mit Wellenlängen, die länger sind als diejenigen von UV-Strahlung, und Leuchtstoffe, die auf diese Wellenlängen reagieren, zu finden. Kürzlich erfolgte Vorstöße in der Technologie von lichtemittierenden Dioden ("LED") haben effiziente LEDs, die im Bereich zwischen nahem UV- und Blaulicht emittieren, hervorgebracht. Der Ausdruck "naher UV-Bereich", wie er hier verwendet wird, bezeichnet UV-Strahlung mit Wellenlängen im Bereich von etwa 315 nm bis etwa 400 nm. Diese LEDs, die Strahlung im Bereich von nahem UV- bis Blaulicht emittieren, werden im folgenden als "UV-/blaue LEDs" bezeichnet. Wie hierin verwendet, kann eine UV-/blaue LED Strahlung mit Wellenlängen im nahen UV-Bereich, im Blaulichtbereich oder in einem breiten Bereich von nahem UV- bis Blaulicht emittieren. Es würde einen Fortschritt für die Beleuchtungstechnologie darstellen, einen Bereich von Leuchtstoffen bereitzustellen, die durch die Strahlung, welche durch diese UV-/blauen LED-Strahlungsquellen emittiert wird, stimuliert werden können, um eine Flexibilität bei der Verwendung von Leuchtstoffen zum Erzeugen verschiedenfarbiger LEDs zu gestatten. Solche Leuchtstoffe können, wenn sie mit der Emission der UV-/blauen LEDs kombiniert werden, effiziente und langlebige Leuchtvorrichtungen bereitstellen, die wenig Energie verbrauchen.

**[0004]** Viele nahe UV-/blaue LEDs, die auf Kombinationen von Nitriden von Indium, Aluminium und Gallium basieren, sind in jüngerer Zeit aufgekommen. Beispielsweise offenbarte das US-Patent 5,777,350 LEDs, die mehrere Schichten von Indium- und Galliumnitriden und p- und n-Typ-AlGaN aufweisen, welche im Wellenlängenbereich von etwa 380 nm bis etwa 420 nm emittieren. Die aktive Schicht einer solchen LED kann mit anderen Materialien dotiert werden, um die LED-Peakemission innerhalb des UV-bis-Blau-Wellenlängenbereichs zu verschieben. Eine LED mit einer Peakemission im Bereich der Blaulicht-Wellenlängen wurde mit einer Beschichtung aus einem mit Cer aktivierte, Gelblicht emittierenden Yttrium-Aluminium-Granat-Leuchtstoff ("YAG:Ce") kombiniert, um weißes Licht zu erzeugen, wie in dem US-Patent Nr. 5,998,925 offenbart. Obwohl ein wesentlicher Anteil des Bedarfs an Weißlichtvorrichtungen durch Vorrichtungen auf LED-Basis erfüllt werden kann, war die Fähigkeit zum Kombinieren einer UV-/blauen LED mit einem Leuchtstoff begrenzt, da YAG:Ce der einzige bekannte Gelblicht emittierende Leuchtstoff war, der durch Strahlung im blauen Bereich angeregt werden kann.

**[0005]** Die WO 01/08452 offenbart eine Leuchtsubstanz für Lichtquellen, wobei deren Emission innerhalb der spektralen Region liegt und die eine granatische Struktur  $A_3B_5O_{12}$  hat. Diese Substanz ist mit Ce aktiviert. Der zweite Bestandteil B repräsentiert wenigstens eines der Elemente Al und Ga, und der erste Bestandteil A enthält Terbium.

**[0006]** Die WO 01/08453 offenbart eine lumineszierende Anordnung, die durch eine Strahlungsquelle unter Verwendung eines lumineszenten Materials angeregt wird, welches eine mit Cer aktivierte Granat-Struktur

$A_3B_5O_{12}$  hat, worin die erste Komponente A wenigstens ein Element aus einer aus Y, Lu, Sc, La, Gd, Sm und Tb bestehenden Gruppe enthält und worin die zweite Komponente B wenigstens eines der Elemente Al, Ga oder In repräsentiert und wobei mehrere lumineszente Materialien gemischt werden. Sie offenbart auch ein die korrespondierende Wellenlänge umwandelndes Abdichtmaterial und eine korrespondierende Lichtquellenanordnung.

**[0007]** Es besteht daher ein Bedarf nach der Bereitstellung neuer Leuchtstoffe, die im Bereich zwischen nahem UV- und Blaulicht angeregt werden können und die im sichtbaren Bereich emittieren. Es ist auch wünschenswert, neue Leuchtstoffe bereitzustellen, die Licht in einem breiten Wellenlängenbereich von Blaugrün bis Rot emittieren, so daß sie mit UV-/blauen LEDs kombiniert werden können, um Weißlicht mit hoher Effizienz und/oder hohem Farbwiedergabeindex (Color Rendering index – "CRI") zu erzeugen.

#### ZUSAMMENFASSUNG DER ERFINDUNG

**[0008]** Die vorliegende Erfindung liefert Leuchtstoffe, die durch Strahlung mit Wellenlängen im Bereich zwischen nahem UV- und Blaulicht (von etwa 315 nm bis etwa 480 nm) angeregt werden können, um in effizienter Weise ein sichtbares Licht in einem breiten Wellenlängenbereich von etwa 490 nm bis etwa 770 nm mit einem Emissionspeak im Wellenlängenbereich von Grün bis Gelb zu emittieren. Die Leuchtstoffe der vorliegenden Erfindung sind Oxidfeststoffe, die wenigstens Terbium und wenigstens ein Element, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus Aluminium, Gallium und Indium, enthalten und mit wenigstens einem Seltenerdmetallion, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus Cer, Praseodym, Neodym, Samarium, Europium, Gadolinium, Dysprosium, Holmium, Erbium, Thulium, Ytterbium und Lutetium, aktiviert sind. Terbium kann teilweise durch wenigstens ein Seltenerdmetall, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus Yttrium, Lanthan, Gadolinium, Samarium und Lutetium, ersetzt werden. Die Leuchtstoffe der vorliegenden Erfindung haben eine Granat-Struktur und die allgemeine Formel



worin A ein aus der Gruppe, bestehend aus Y, La, Gd und Sm, ausgewähltes Element ist, RE ein aus der Gruppe, bestehend aus Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu und Kombinationen davon, ausgewähltes Element ist, D ein aus der Gruppe, bestehend aus Al, Ga, In und Kombinationen davon, ausgewähltes Element ist, x im Bereich von 0 bis etwa 0,5 liegt und y im Bereich von etwa 0,0005 bis etwa 0,2 liegt und z im Bereich von etwa 4 bis 5 liegt. In einem Aspekt der Erfindung ist  $4 < z < 5$ .

**[0009]** Gemäß einem weiteren Aspekt liefert die Erfindung ein Verfahren zur Herstellung eines mit einer seltenen Erde aktivierte, Terbium enthaltenden Granat-Leuchtstoffs, wobei das Verfahren die folgenden Schritte umfaßt:

Bereitstellen von Mengen von sauerstoffhaltigen Verbindungen von Terbium, sauerstoffhaltigen Verbindungen von wenigstens einem Seltenerdmetall, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Dy, Ho, Er, Tm, Yb und Lu, und sauerstoffhaltigen Verbindungen von wenigstens einem Element, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus Al, Ga und In,

Vermischen der sauerstoffhaltigen Verbindungen unter Bildung eines Gemischs und

Anheizen bzw. Erhitzen des Gemischs in einer reduzierenden Atmosphäre bei einer Temperatur und für eine Zeitdauer, die ausreichend sind, um das Gemisch in einen mit einer seltenen Erde aktivierte, Terbium enthaltenden Granat-Leuchtstoff umzuwandeln,

wobei die Mengen so gewählt werden, daß der mit einer seltenen Erde aktivierte, Terbium enthaltende Granat-Leuchtstoff die Formel  $(Tb_{1-x-y}A_xRE_y)_3D_zO_{12}$  hat, worin A ein aus der Gruppe, bestehend aus Y, La, Gd und Sm, ausgewähltes Element ist, RE ein aus der Gruppe, bestehend aus Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu und Kombinationen davon, ausgewähltes Element ist, D ein aus der Gruppe, bestehend aus Al, Ga, In und Kombinationen davon, ausgewähltes Element ist, a in einem Bereich zwischen etwa 2,8 und einschließlich 3 liegt, x in einem Bereich zwischen 0 und etwa 0,5 liegt und y in einem Bereich zwischen etwa 0,0005 und etwa 0,2 liegt und  $4 < z < 5$  ist.

**[0010]** In einem weiteren Aspekt liefert die Erfindung ein Verfahren zur Herstellung eines mit einer seltenen Erde aktivierte, Terbium enthaltenden Granat-Leuchtstoffs, wobei das Verfahren die folgenden Schritte umfaßt:

Bereitstellen von Mengen von sauerstoffhaltigen Verbindungen von Terbium, sauerstoffhaltigen Verbindungen von wenigstens einem Seltenerdmetall, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Dy, Ho, Er, Tm, Yb und Lu, und sauerstoffhaltigen Verbindungen von wenigstens einem Element, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus Al, Ga und In,

Herstellen einer ersten Lösung, die sauerstoffhaltige Verbindungen aufweist,  
 Bereitstellen einer zweiten Lösung, die eine Base aufweist,  
 Zugeben der zweiten Lösung zu der ersten Lösung unter Erhalt eines Präzipitats,  
 Abtrennen des Präzipitats,  
 Kalzinieren des Präzipitats unter einer oxidierenden Atmosphäre bei einer Temperatur und für eine Zeitdauer, die ausreichend sind, um das Präzipitat zu dehydratisieren, und  
 Anheizen des Gemisches in einer reduzierenden Atmosphäre bei einer Temperatur und für eine Zeitdauer, die ausreichend sind, um das Gemisch in einen mit einer seltenen Erde aktivierten, Terbium enthaltenden Granat-Leuchtstoff umzuwandeln,  
 wobei die Mengen so gewählt sind, daß der mit einer seltenen Erde aktivierte, Terbium enthaltende Granat-Leuchtstoff die Formel  $(\text{Tb}_{1-x-y}\text{A}_x\text{RE}_y)_a\text{D}_z\text{O}_{12}$  hat, worin A ein aus der Gruppe, bestehend aus Y, La, Gd und Sm, ausgewähltes Element ist, RE ein aus der Gruppe, bestehend aus Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu und Kombinationen davon, ausgewähltes Element ist, D ein aus der Gruppe, bestehend aus Al, Ga, In und Kombinationen davon, ausgewähltes Element ist, a in einem Bereich zwischen etwa 2,8 und einschließlich 3 liegt, x in einem Bereich zwischen 0 und etwa 0,5 liegt, y in einem Bereich zwischen etwa 0,0005 und etwa 0,2 liegt und 4 < z < 5 ist.

**[0011]** In noch einem weiteren Aspekt liefert die vorliegende Erfindung eine Lichtquelle, die weißes Licht emittiert, wobei die Lichtquelle aufweist:  
 wenigstens eine LED, die Strahlung mit einer Wellenlänge in einem Bereich zwischen nahem UV- und Blaulicht emittieren kann, und  
 eine Beschichtung, die ein transparentes Material und Partikel eines mit einer seltenen Erde aktivierten, Terbium enthaltenden Granat-Leuchtstoffs aufweist, welcher Terbium und wenigstens ein Element, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus Aluminium, Gallium und Indium, aufweist, wobei der Leuchtstoff mit wenigstens einem Seltenerdmetallion, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus Cer, Praseodym, Neodym, Samarium, Europium, Gadolinium, Dysprosium, Holmium, Erbium, Thulium, Ytterbium und Lutetium, aktiviert wird, wobei die Beschichtung neben der wenigstens einen LED angeordnet ist, der Leuchtstoff einen Teil der von der wenigstens einen LED emittierten Strahlung absorbiert und Licht emittiert, das Wellenlängen im sichtbaren Bereich hat,  
 wobei der mit einer seltenen Erde aktivierte, Terbium enthaltende Granat-Leuchtstoff die Formel  $(\text{Tb}_{1-x-y}\text{A}_x\text{RE}_y)_a\text{D}_z\text{O}_{12}$  hat, worin A ein aus der Gruppe, bestehend aus Y, La, Gd und Sm, ausgewähltes Element ist, RE ein aus der Gruppe, bestehend aus Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu und Kombinationen davon, ausgewähltes Element ist, D ein aus der Gruppe, bestehend aus Al, Ga, In und Kombinationen davon, ausgewähltes Element ist, a in einem Bereich zwischen etwa 2,8 und einschließlich 3 liegt, x in einem Bereich zwischen 0 und etwa 0,5 liegt, y in einem Bereich zwischen etwa 0,0005 und etwa 0,2 liegt und 4 < z < 5 ist.

#### KURZE BESCHREIBUNG DER ZEICHNUNGEN

**[0012]** [Fig. 1](#) zeigt das Anregungsspektrum eines Leuchtstoffs der vorliegenden Erfindung mit der Zusammensetzung  $(\text{Tb}_{0,97}\text{Ce}_{0,03})_3\text{Al}_{4,9}\text{O}_{12}$  bei Raumtemperatur.

**[0013]** [Fig. 2](#) zeigt das Emissionsspektrum des  $(\text{Tb}_{0,97}\text{Ce}_{0,03})_3\text{Al}_{4,9}\text{O}_{12}$ -Leuchtstoffs bei Raumtemperatur.

**[0014]** [Fig. 3](#) zeigt eine Ausführungsform einer Weißlichtquelle unter Verwendung eines Leuchtstoffs der vorliegenden Erfindung.

**[0015]** [Fig. 4](#) zeigt die Farbkoordinaten eines Bereichs von Lichtquellen, hergestellt aus Kombinationen von UV-/blauen LEDs und einem Terbium enthaltenden Leuchtstoff der vorliegenden Erfindung.

#### AUSFÜHRLICHE BESCHREIBUNG DER ERFINDUNG

**[0016]** Die vorliegende Erfindung liefert einen Leuchtstoff, der durch Strahlung mit Wellenlängen im Bereich zwischen nahem UV- und Blaulicht in effizienter Weise angeregt werden kann und in effizienter Weise Licht im sichtbaren Bereich mit einem breiten Spektrum zwischen Blau und Rot (von etwa 490 nm bis etwa 770 nm) emittiert. Der Leuchtstoff hat einen Emissionspeak im Bereich zwischen Grün und Gelb (von etwa 540 nm bis etwa 600 nm), der den Bereich der maximalen Empfindlichkeit des menschlichen Auges beinhaltet. Der Leuchtstoff der vorliegenden Erfindung ist ein mit einer seltenen Erde aktiverter, Terbium enthaltender Granat mit der allgemeinen Formel  $(\text{Tb}_{1-x-y}\text{A}_x\text{RE}_y)_3\text{D}_z\text{O}_{12}$  (im folgenden auch "TAG:Ce" genannt), worin A ein aus der Gruppe, bestehend aus Y, La, Gd und Sm, ausgewähltes Element ist, RE ein aus der Gruppe, bestehend aus Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Dy, Ho, Er, Tm, Yb und Lu, ausgewähltes Element ist, D ein aus der Gruppe, beste-

hend aus Al, Ga und In, ausgewähltes Element ist, x im Bereich von 0 bis etwa 0,5, bevorzugt von 0 bis etwa 0,3, bevorzugter von 0 bis etwa 0,2, liegt, und y im Bereich von etwa 0,0005 bis etwa 0,2, bevorzugt von etwa 0,005 bis etwa 0,1, bevorzugter von etwa 0,005 bis etwa 0,07, liegt, und z im Bereich von etwa 4 bis etwa 5, bevorzugt von etwa 4,5 bis 5, bevorzugter von etwa 4,6 bis weniger als etwa 5, liegt.

**[0017]** In einer bevorzugten Ausführungsform ist der Leuchtstoff mit Cer aktivierter Terbium-Aluminium-Granat mit der Formel  $(\text{Tb}_{1-y}\text{Ce}_y)_a\text{Al}_{4,9}\text{O}_{12}$ , worin y die oben definierten Werte annimmt und a im Bereich von etwa 2,8 bis 3 liegt.

**[0018]** In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform ist Aluminium teilweise durch Gallium, Indium oder eine Kombination davon ersetzt. In diesem Fall hat der Leuchtstoff die Formel  $(\text{Tb}_{1-y}\text{Ce}_y)_3(\text{Al}_{1-r-s}\text{Ga}_r\text{In}_s)_z\text{O}_{12}$ , worin y und z wie oben definiert sind und  $0 \leq r \leq 0,5$ , wenn  $0 \leq s \leq 0,5$ , oder  $0 < r \leq 0,5$ , wenn  $0 \leq s \leq 0,5$  und  $r + s < 1$ . Vorzugsweise liegt r in einem Bereich von etwa 0,005 bis etwa 0,3 und bevorzugter von etwa 0,05 bis etwa 0,2, und s liegt bevorzugt in einem Bereich von etwa 0,005 bis etwa 0,3 und bevorzugter von etwa 0,05 bis etwa 0,2.

**[0019]** In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform ist Terbium teilweise durch eines unter Y, Gd, Sm oder eine Kombination davon ersetzt, und Aluminium ist nicht ersetzt. In diesem Fall hat der Leuchtstoff die Formel  $(\text{Tb}_{1-y-u-v-w}\text{Ce}_y\text{Y}_u\text{Gd}_v\text{Sm}_w)_3\text{Al}_z\text{O}_{12}$ , worin y und z wie oben definiert sind,  $0 \leq u, v, w \leq 0,5$  und  $0,0005 \leq y + u + v + w < 1$ . Jeder von u, v und w liegt bevorzugt in einem Bereich von etwa 0,005 bis etwa 0,3 und bevorzugter von etwa 0,005 bis etwa 0,1.

**[0020]** In noch einer weiteren bevorzugten Ausführungsform hat der Leuchtstoff die Formel  $(\text{Tb}_{1-x-y}\text{A}_x\text{Ce}_y)_3\text{Al}_z\text{O}_{12}$ , worin A Y oder Gd ist,  $0 < x \leq 0,5$  ist, und y und z sind wie oben definiert.

**[0021]** Ein Leuchtstoff der vorliegenden Erfindung wird hergestellt durch ein Verfahren, welches die folgenden Schritte umfaßt: (1) Bereitstellen von stöchiometrischen Mengen von sauerstoffhaltigen Verbindungen von Terbium, sauerstoffhaltigen Verbindungen von wenigstens einem Seltenerdmetall, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Dy, Ho, Er, Tm, Yb und Lu, und sauerstoffhaltigen Verbindungen von wenigstens einem aus der Gruppe, bestehend aus Al, Ga und In, ausgewählten Element, (2) Vermischen der sauerstoffhaltigen Verbindungen unter Bildung eines Gemischs und (3) Anheizen bzw. Erhitzen des Gemischs in einer reduzierenden Atmosphäre bei einer Temperatur und für eine Zeitdauer, die ausreichend sind, um das Gemisch in einen mit einer seltenen Erde aktivierte, Terbium enthaltenden Granat-Leuchtstoff umzuwandeln.

**[0022]** In einem weiteren Aspekt der vorliegenden Erfindung wird eine Menge eines Fluorids wenigstens eines Metalls, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus Terbium, Aluminium, Gallium und Indium, vor dem oder während des Schritts des Vermischens als Flußmittel zu dem Gemisch der sauerstoffhaltigen Verbindungen zugegeben. Eine Menge einer Fluoridverbindung von weniger als etwa 20, bevorzugt von weniger als etwa 10 Gewichtsprozent des Gesamtgewichts des Gemischs ist für Flußzwecke angemessen.

**[0023]** Die sauerstoffhaltigen Verbindungen können mittels irgendeines mechanischen Verfahrens, einschließlich, jedoch nicht beschränkt auf Röhren oder Mischen in einem Hochgeschwindigkeitsmischer oder einem Bandmischer, miteinander gemischt werden. Die sauerstoffhaltigen Verbindungen können vereinigt und gemeinsam in einer Schüsselmühle, einer Hammermühle oder einer Strahlmühle pulverisiert werden. Das Mischen kann durch Naßmahlen erfolgen, insbesondere wenn das Gemisch der sauerstoffhaltigen Verbindungen zu einer Lösung für die anschließende Präzipitation gemacht werden soll. Wenn das Gemisch naß ist, kann es zuerst getrocknet werden, ehe es unter einer reduzierenden Atmosphäre bei einer Temperatur von etwa 900°C bis etwa 1700°C, bevorzugt von etwa 1000°C bis etwa 1600°C, bevorzugter von etwa 1200°C bis etwa 1500°C, für eine Zeitdauer, die ausreichend ist, um das gesamte Gemisch in die Granat-Endzusammensetzung umzuwandeln, angeheizt bzw. erhitzt wird. Das Anheizen kann in einem chargenweisen oder einem kontinuierlichen Verfahren, vorzugsweise unter Röhren oder Mischen, erfolgen, um einen guten Gas-Feststoff-Kontakt sicherzustellen. Die Anheizzeit ist abhängig von der Menge an Gemisch, die angeheizt werden soll, der Geschwindigkeit von Gas, das durch die Anheizausrustung geleitet wird, und der Qualität des Gas-Feststoff-Kontakts in der Anheizausrustung. Typischerweise ist eine Anheizzeit von bis zu etwa 10 Stunden angemessen. Die reduzierende Atmosphäre umfaßt typischerweise ein reduzierendes Gas, wie Wasserstoff, Kohlenmonoxid oder eine Kombination davon, optional verdünnt mit einem Inertgas, wie Stickstoff, Helium, Neon, Argon, Krypton, Xenon oder einer Kombination davon. Alternativ kann der das Gemisch enthaltende Tiegel in einem zweiten verschlossenen Tiegel verpackt sein, welcher Kohlenstoffpartikel hoher Reinheit enthält und in Luft angeheizt wird, so daß die Kohlenstoffpartikel mit dem in Luft vorliegenden Sauerstoff reagieren, wodurch Kohlenmonoxid erzeugt wird, welches notwendig ist, um die reduzierende Atmosphäre bereitzustellen.

## BEISPIEL

**[0024]** Die folgenden Mengen an Oxiden von Terbium, Cer und Aluminium und Aluminiumfluorid wurden gründlich trockengemischt.

Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub>: 6,805 g

CeO<sub>2</sub>: 0,194 g

Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>: 3,062 g

AlF<sub>3</sub>: 0,105 g

**[0025]** Dieses Gemisch wurde in einen ersten Tiegel gegeben, der in einem zweiten, verschlossenen Tiegel angeordnet wurde, welcher Partikel von Kokosnußkohle enthielt, die mit dem Gemisch verpackt wurden, und das kombinierte Gemisch wurde für 5 Stunden in einer reduzierenden Atmosphäre, die eine Kombination aus 10 (Volumen-) % H<sub>2</sub> in Stickstoff und Gas, erzeugt durch die Umsetzung von Kokosnußkohle, ist, in einem Kasstenofen auf 1450°C angeheizt bzw. erhitzt. Nach Ablauf von 5 Stunden wurde der Feststoff unter dem gleichen Strom von H<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>-Gemisch gekühlt. Der resultierende Leuchtstoff hat die Zusammensetzung (Tb<sub>0,97</sub>Ce<sub>0,03</sub>)<sub>3</sub>Al<sub>4,9</sub>O<sub>12</sub>, bestimmt mittels Elementaranalyse. Das Anregungsspektrum und das Emissionsspektrum unter einer 450 nm-Anregung des Leuchtstoffs wurden gemessen und sind in [Fig. 1](#) bzw. 2 gezeigt. Der Leuchtstoff der vorliegenden Erfindung zeigt ein breites Emissionsspektrum im sichtbaren Bereich von etwa 490 nm bis etwa 770 nm. Somit deckt die Emission den Bereich zwischen Blau-Grün- und Rotlicht ab. Daher sollte eine Kombination aus diesem Emissionsspektrum und Blaulicht, welches beispielsweise durch eine Blaulicht emittierende LED emittiert wird, ein weißes Licht bereitstellen.

**[0026]** Eines oder mehrere der Ausgangsmaterialien für die Leuchtstoffsynthese können andere sauerstoffhaltige Verbindungen als Oxide sein, wie z. B. Nitrate, Sulfate, Acetate, Citrate oder Chlorate. Beispielsweise werden Mengen von Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub>, Al(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>·9H<sub>2</sub>O, Ce(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>·6H<sub>2</sub>O und AlF<sub>3</sub> gemischt und in einer Salpetersäurelösung gelöst. Die Stärke der Säurelösung wird so gewählt, daß sie die sauerstoffhaltigen Verbindungen rasch löst, und die Auswahl liegt innerhalb des Fachwissens eines Fachmanns auf dem Gebiet. Ammoniumhydroxid wird dann in Inkrementen zu der Tb, Ce und Al enthaltenden sauren Lösung unter Röhren zugegeben, um ein Gemisch aus Hydroxiden von Tb, Ce und Al zu präzipitieren. Eine organische Base, wie Methanolamin, Ethanolamin, Propanolamin, Dimethanolamin, Diethanolamin, Dipropanolamin, Trimethanolamin, Triethanolamin oder Tripropanolamin, kann anstelle von Ammoniumhydroxid verwendet werden. Das Präzipitat wird filtriert, mit entionisiertem Wasser gewaschen und getrocknet. Das getrocknete Präzipitat wird in einer Kugelmühle gemahlen oder auf andere Weise gründlich gemischt und dann in Luft bei etwa 400°C bis etwa 1600°C für eine Zeitspanne, die ausreichend ist, um eine im wesentlichen vollständige Dehydratisierung des Ausgangsmaterials sicherzustellen, kalziniert. Das Kalzinieren kann bei einer konstanten Temperatur durchgeführt werden. Alternativ kann die Kalzinierungstemperatur von Umgebungstemperatur auf die Endtemperatur erhöht und dort für die Dauer der Kalzinierung gehalten werden. Das kalzinierte Material wird auf ähnliche Weise für eine ausreichende Zeitspanne unter einer reduzierenden Atmosphäre, wie H<sub>2</sub>, CO oder einem Gemisch von einem dieser Gase mit einem Inertgas, oder einer Atmosphäre, erzeugt durch eine Reaktion zwischen einer Kokosnußkohle und den Abbauprodukten der sauerstoffhaltigen Verbindungen, auf 1200–1600°C angeheizt bzw. erhitzt, um das gesamte kalzinierte Material in die gewünschte Leuchtstoffzusammensetzung umzuwandeln.

**[0027]** In einem weiteren Aspekt der Erfindung haben die Leuchtstoffe eine höhere Quantenausbeute, wenn ihre Zusammensetzungen nicht-stöchiometrisch sind. Tabelle 1 unten zeigt, daß eine hohe Quantenausbeute für Leuchtstoffe mit der allgemeinen Formel Tb<sub>a</sub>Al<sub>b</sub>O<sub>12</sub>·Ce<sup>3+</sup>, worin sowohl a/b etwas anderes als 0,6 ist als auch b kleiner als 5 ist, erzielt wird. Die in Tabelle 1 aufgeführte relative Quantenausbeute wird mit einem standardmäßigen Cer-aktivierten Yttrium-Aluminat-Granat-Leuchtstoff verglichen.

Tabelle 1

Probe Charge Nr.	a/b	b	Chargengröße (g)	Anheizbedingung	Relative Quantenausbeute (%)
D0213	0,594	4,9	150	verpackt in Kohlenstoff	98
D0207	0,594	4,9	100	verpackt in Kohlenstoff	93
D0208	0,594	4,9	100	angeheizt in H <sub>2</sub>	97
D0215	0,594	4,9	250	verpackt in Kohlenstoff	88
D0220	0,582	5	250	verpackt in Kohlenstoff	88
D0225	0,613	4,75	250	zweimal angeheizt in Kohlenstoffverpackung	92

## WEISSLICHT EMITTIERENDE VORRICHTUNG

**[0028]** Die Aufnahme eines mit einer seltenen Erde aktivierten, Terbium enthaltenden Leuchtstoffs der vorliegenden Erfindung in eine Vorrichtung, welche eine Blaulicht im Bereich von etwa 400 nm bis etwa 480 nm emittierende LED aufweist, sollte eine Weißlichtquelle bereitstellen, die elektrische Energie in effizienter Weise einsetzt. Die Weißlichtquelle kann so hergestellt werden, daß sie eine Punktquellenvorrichtung unter Verwendung einer blauen LED oder einer großflächige Leuchtvorrichtung unter Verwendung einer Mehrzahl blauer LEDs bereitstellt.

**[0029]** In einer Ausführungsform der vorliegenden Erfindung, wie in [Fig. 3](#) gezeigt, weist eine Weißlichtquelle **10** eine Blaulicht im Bereich von etwa 400 nm bis etwa 480 nm emittierende LED **100** und einen Leuchtstoff der vorliegenden Erfindung auf. Die LED **100** ist in einer Schale **120** mit einer reflektierenden Oberfläche **140** neben der LED **100** montiert. Blaue LEDs, die für Weißlicht emittierende Vorrichtungen geeignet sind, sind LEDs auf Basis von InGaN-Halbleitern, wie diejenigen aus dem oben genannten US-Patent 5,777,350, welches durch Bezugnahme hierin aufgenommen ist. Es können auch andere UV-/blaue LEDs verwendet werden, wie beispielsweise LEDs auf Basis von GaN-Halbleitern, dotiert mit verschiedenen Metallen, um eine große Bandlücke bereitzustellen. Elektrische Leitungen **150** und **152** werden bereitgestellt, um der LED **100** elektrische Energie zuzuführen. Ein transparentes Gußteil **160** weist ein Epoxidharz, ein Silikon oder Glas **180** auf, worin Partikel **200** eines Leuchtstoffes der vorliegenden Erfindung im wesentlichen einheitlich dispergiert sind. Alternativ können die Leuchtstoffpartikel auf die LED **100** aufgebracht oder nur in einem Teil des transparenten Gußteils **160** dispergiert sein. Es können auch andere transparente Polymere verwendet werden, um das transparente Gußteil zu bilden. Zusätzlich können Partikel aus einem lichtstreuenden Material, wie TiO<sub>2</sub> oder Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, zwischen den Leuchtstoffpartikeln in das transparente Gußteil aufgenommen sein, um die Einheitlichkeit des von der Lichtquelle **10** emittierten Lichts zu verbessern. Die Zusammensetzung der aktiven InGaN-Schicht der LED und die in dem Gußteil verwendete Menge an Leuchtstoff können so gewählt werden, daß ein Teil des von der LED emittierten Blaulichts, der nicht durch den Leuchtstoff absorbiert wird, und das von dem Leuchtstoff emittierte Breitspektrumlicht kombiniert werden, um die Weißlichtquelle **10** mit einer gewünschten Farbtemperatur und einem gewünschten CRI bereitzustellen.

**[0030]** [Fig. 4](#) zeigt die Farbkoordinaten eines Bereichs von Lichtquellen, die Weißlicht bereitstellen, welches aus verschiedenen Kombinationen von blauen LEDs und einem Leuchtstoff der vorliegenden Erfindung erzeugt werden kann. In [Fig. 4](#) repräsentiert Punkt A die Koordinate der Peakemission des (Tb<sub>0,97</sub>Ce<sub>0,03</sub>)<sub>3</sub>Al<sub>4,9</sub>O<sub>12</sub>-Leuchtstoffs der vorliegenden Erfindung, die Punkte B und C repräsentieren die Peakemission von blauen LEDs bei 450 nm bzw. 470 nm. Die Linien AB und AC, die die Farbkoordinaten von Lichtquellen repräsentieren, welche eine LED und den (Tb<sub>0,97</sub>Ce<sub>0,03</sub>)<sub>3</sub>Al<sub>4,9</sub>O<sub>12</sub>-Leuchtstoff der vorliegenden Erfindung kombinieren, sind so gezeigt, daß sie den Planckschen Farbort oder den Schwarzkörper-Farbort schneiden. Solche Schnittpunkte repräsentieren die Farbkoordinaten von Weißlichtquellen, die Kombinationen des (Tb<sub>0,97</sub>Ce<sub>0,03</sub>)<sub>3</sub>Al<sub>4,9</sub>O<sub>12</sub>-Leuchtstoffs und der geeigneten blauen LED sind. Computersimulationen einer Vorrichtung, die einen 25%-igen Beitrag an Blaulicht von einer blauen LED, die bei 470 nm emittiert, und einen 75%-igen Beitrag des von dem Leuchtstoff emittierten Lichts kombiniert, ergeben eine Farbtemperatur von

etwa 4300 K, eine Helligkeit von 315 Lumen pro Watt ("Ipw") und einen CRI von 76. Ähnliche Computersimulationen unter Verwendung eines 15%-igen Beitrags an Blaulicht von einer blauen LED, die bei 450 nm emittiert, und eines 85%-igen Beitrags von demselben Leuchtstoff ergeben eine Weißlichtquelle mit einer Farbtemperatur von etwa 3600 K, einer Helligkeit von 342 Ipw und einem CRI von 65. Es kann mehr als einer der Leuchtstoffe der vorliegenden Erfindung in dieselbe Vorrichtung aufgenommen werden, um eine Farbanpassung bereitzustellen.

**[0031]** Eine großflächige Weißlichtquelle für allgemeine Beleuchtung kann hergestellt werden durch Anordnen einer Mehrzahl blauer LEDs auf einer flachen reflektierenden Platte, Bereitstellen geeigneter elektrischer Leitungen zu den einzelnen LEDs, Aufbringen einer Beschichtung, die wenigstens einen Leuchtstoff der vorliegenden Erfindung und ein polymeres Bindemittel, wie ein Epoxidharz, beinhaltet, und dann Versiegeln der gesamten kombinierten Struktur in einer transparenten und hermetischen Abdichtung. Die Leuchtstoff/Polymer-Beschichtung kann direkt auf die einzelnen LEDs aufgebracht werden oder sie kann über die gesamte Plattenoberfläche aufgebracht werden. Im erstgenannten Fall kann eine zusätzliche Polymerbeschichtung auf der gesamten Plattenoberfläche aufgebracht werden, nachdem der Leuchtstoff auf die LEDs aufgebracht wurde. Zusätzlich können Partikel eines inerten Feststoffs, wie  $TiO_2$  oder  $Al_2O_3$ , in der Polymermatrix bereitgestellt werden, um die Einheitlichkeit der Lichtemission aus der Vorrichtung zu steigern.

**[0032]** Während hier verschiedene Ausführungsformen beschrieben wurden, versteht es sich aus der Beschreibung, daß verschiedene Kombinationen von Elementen, Variationen, Äquivalenten oder Verbesserungen darin durch Fachleute auf dem Gebiet vorgenommen werden können und immer noch innerhalb des Schutzmfangs der Erfindung liegen, wie er durch die anhängenden Ansprüche definiert wird.

### Patentansprüche

1. Mit einer seltenen Erde aktivierter, Terbium enthaltender Granat-Leuchtstoff mit der Formel  $(Tb_{1-x-y}A_x-RE_y)_aD_zO_{12}$ ; wobei A ein Element aus der aus Y, La, Gd und Sm bestehenden Gruppe ist, RE ein Aktivator aus der aus Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu und Kombinationen daraus bestehenden Gruppe ist, D ein Element aus der aus Al, Ga, In, und Kombinationen daraus bestehenden Gruppe ist, a in einem Bereich zwischen ca. 2,8 und einschließlich 3, x in einem Bereich zwischen 0 und ca. 0,5, y in einem Bereich zwischen ca. 0,0005 und ca. 0,2 liegt und  $4 < z < 5$  ist.
2. Mit einer seltenen Erde aktivierter, Terbium enthaltender Granat-Leuchtstoff nach Anspruch 1, wobei x in einem Bereich zwischen 0 und ca. 0,3, y in einem Bereich zwischen ca. 0,005 und ca. 0,1 und z in einem Bereich zwischen ca. 4,6 und weniger als 5 liegt.
3. Mit einer seltenen Erde aktivierter, Terbium enthaltender Granat-Leuchtstoff nach Anspruch 1 mit der Formel  $(Tb_{1-y}Ce_y)_3Al_zO_{12}$ , wobei y in einem Bereich zwischen ca. 0,0005 und ca. 0,2 liegt und  $4 < z < 5$  ist.
4. Mit einer seltenen Erde aktivierter, Terbium enthaltender Granat-Leuchtstoff nach Anspruch 3, wobei y in einem Bereich zwischen ca. 0,005 und ca. 0,1 und z in einem Bereich zwischen ca. 4,6 und weniger als 5 liegt.
5. Mit einer seltenen Erde aktivierter, Terbium enthaltender Granat-Leuchtstoff nach Anspruch 1, wobei der Leuchtstoff die Formel  $(Tb_{1-y}Ce_{y3})(Al_{1-r-s}Ga_rIn_s)_zO_{12}$  hat, wobei y in einem Bereich zwischen ca. 0,0005 und ca. 0,2, z in einem Bereich zwischen ca. 4,6 und weniger als 5 liegt,  $0 < r \leq 0,5$ ,  $0 \leq s \leq 0,5$  und  $r + s < 1$  ist.
6. Mit einer seltenen Erde aktivierter, Terbium enthaltender Granat-Leuchtstoff nach Anspruch 1, wobei der Leuchtstoff die Formel  $(Tb_{1-y}Ce_{y3})(Al_{1-r-s}Ga_rIn_s)_zO_{12}$  hat, wobei y in einem Bereich zwischen ca. 0,0005 und ca. 0,2, z in einem Bereich zwischen ca. 4 und ca. 5,  $0 \leq r \leq 0,5$ ,  $0 \leq s \leq 0,5$  und  $r + s < 1$  ist.
7. Verfahren zur Herstellung eines mit einer seltenen Erde aktivierte, Terbium enthaltenden Granat-Leuchtstoffs, wobei das Verfahren folgende Schritte aufweist:  
Bereitstellen einer Sauerstoff-Verbindung aus Terbium, Sauerstoffverbindungen aus mindestens einem Seltenen Erdmetall aus der aus Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Dy, Ho, Er, Tm, Yb und Lu bestehenden Gruppe, und Sauerstoffverbindungen aus mindestens einem Element aus der aus Al, Ga und In bestehenden Gruppe;  
Vermischen der Sauerstoffverbindungen, um eine Mischung zu bilden und Anheizen der Mischung in einer reduzierenden Umgebung bei ausreichender Temperatur und Dauer, um die Mischung in einen mit einer seltenen Erde aktivierte, Terbium enthaltenden Granat-Leuchtstoff umzuwandeln;  
wobei die Mengen so gewählt werden, dass der mit einer seltenen Erde aktivierte, Terbium enthaltende Gra-

nat-Leuchtstoff die Formel  $(Tb_{1-x-y}A_xRE_y)_aD_zO_{12}$  hat, wobei A ein Element aus der aus Y, La, Gd und Sm bestehenden Gruppe ist, RE ein Element aus der aus Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu und Kombinationen daraus bestehenden Gruppe ist, D ein Element aus der aus Al, Ga, In und Kombinationen daraus bestehenden Gruppe ist, a in einem Bereich zwischen ca. 2,8 und einschließlich 3, x in einem Bereich zwischen 0 und ca. 0,5 und y in einem Bereich zwischen ca. 0,0005 und ca. 0,2 liegt und  $4 < z < 5$  ist.

8. Verfahren zur Herstellung eines mit einer seltenen Erde aktivierte, Terbium enthaltenden Granat-Leuchtstoffs, wobei das Verfahren folgende Schritte aufweist:

Bereitstellen einer Sauerstoff-Verbindung aus Terbium, Sauerstoffverbindungen aus mindestens einem Selten-erdmetall aus der aus Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Dy, Ho, Er, Tm, Yb und Lu bestehenden Gruppe, und Sauer-

stoffverbindungen aus mindestens einem Element aus der aus Al, Ga und In bestehenden Gruppe;

Vorbereiten einer ersten Lösung, die Sauerstoffverbindungen aufweist;

Bereitstellen einer zweiten Lösung, die eine Base aufweist;

Hinzufügen der zweiten Lösung zur ersten Lösung, um einen Niederschlag zu erhalten;

Abtrennen des Niederschlags;

Kalzinieren des Niederschlags in einer oxidierenden Umgebung bei einer Temperatur und Dauer, die ausreichend sind, um den Niederschlag zu dehydrieren; und

Anheizen der Mischung in einer reduzierenden Umgebung bei einer Temperatur und Dauer, die ausreichend sind, um die Mischung in einen mit einer seltenen Erde aktivierte, Terbium enthaltenden Granat-Leuchtstoff umzuwandeln;

wobei die Mengen so gewählt sind, dass der mit einer seltenen Erde aktivierte, Terbium enthaltende Granat-Leuchtstoff die Formel  $(Tb_{1-x-y}A_xRE_y)_aD_zO_{12}$  hat, wobei A ein Element aus der aus Y, La, Gd und Sm bestehenden Gruppe ist; RE ein Element aus der aus Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu und Kombinationen daraus bestehenden Gruppe ist; D ein Element aus der aus Al, Ga, In und Kombinationen daraus bestehenden Gruppe ist; a in einem Bereich zwischen ca. 2,8 und einschließlich 3, x in einem Bereich zwischen 0 und ca. 0,5; y in einem Bereich zwischen ca. 0,0005 und ca. 0,2 und  $4 < z < 5$  ist.

9. Verfahren nach Anspruch 7 oder 8, das weiterhin das Zufügen eines Fluorids zu der ersten Lösung aus mindestens einem Metall aus der aus Tb, Al, Ga, In, Y, La, Ga, Sm, Ce, Pr, Nd, Eu, Dy, Ho, Er, Tm, Yb und Lu bestehenden Gruppe aufweist.

10. Verfahren nach Anspruch 7 oder 8, wobei die Sauerstoffverbindungen aus der aus Oxiden, Nitraten, Sulfaten, Acetaten, Citraten, Chloraten und Verbindungen daraus bestehenden Gruppe sind.

11. Verfahren nach Anspruch 8, wobei das Kalzinieren bei einer Temperatur in einem Bereich zwischen ca. 400°C und ca. 1600°C vorgenommen wird.

12. Verfahren nach Anspruch 8, wobei die oxidierende Umgebung aus der aus Sauerstoff, Luft und daraus bestehenden Mischungen mit einem Edelgas, das aus der aus Stickstoff, Helium, Neon, Argon, Krypton und Xenon bestehenden Gruppe ist.

13. Verfahren nach Anspruch 7 oder 8, wobei die reduzierende Umgebung ein Gas aufweist, das aus der aus Wasserstoff, Kohlenmonoxid, Mischungen daraus und Mischungen daraus mit einem Edelgas bestehenden Gruppe ist, wobei das Edelgas aus der aus Stickstoff, Helium, Neon, Argon, Krypton, Xenon und Mischungen daraus bestehenden Gruppe ist.

14. Verfahren nach Anspruch 7 oder 8, wobei das Anheizen bei einer Temperatur im Bereich zwischen ca. 900°C und ca. 1700°C vorgenommen wird.

15. Lichtquelle, die weißes Licht emittiert, wobei die Lichtquelle aufweist:

mindestens eine LED, die Strahlen mit einer Wellenlänge in einem Bereich zwischen nahem UV- und Blaulicht emittieren kann und

eine Beschichtung, die ein transparentes Material und Partikel eines mit einer seltenen Erde aktivierte, Terbium enthaltenden Granat-Leuchtstoffs aufweist, welcher Terbium und mindestens ein Element aus der aus Aluminium, Gallium und Indium bestehenden Gruppe aufweist; wobei der Leuchtstoff mit mindestens einem Sel tenerdmetallion aktiviert wird, das aus der aus Cer, Praseodym, Neodym, Samarium, Europium, Gadolinium, Dysprosium, Holmium, Erbium, Thulium, Ytterbium und Lutetium bestehenden Gruppe ist, wobei die Beschichtung neben der mindestens einen LED angeordnet ist, der Leuchtstoff einen Teil der von der mindestens einen LED emittierten Strahlung absorbiert und Licht emittiert, das Wellenlängen im sichtbaren Bereich hat; wobei der mit einer seltenen Erde aktivierte, Terbium enthaltende Granat-Leuchtstoff die Formel  $(Tb_{1-x-y}A_x-$

$\text{RE}_y\text{D}_z\text{O}_{12}$  hat; wobei A ein Element aus der aus Y, La, Gd und Sm bestehenden Gruppe ist, RE ein Element aus der aus Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu und Kombinationen daraus bestehenden Gruppe ist, D ein Element aus der aus Al, Ga, In und Kombinationen daraus bestehenden Gruppe ist, a in einem Bereich zwischen ca. 2,8 und einschließlich 3, x in einem Bereich zwischen 0 und ca. 0,5, y in einem Bereich zwischen ca. 0,0005 und ca. 0,2 und  $4 < z < 5$  ist.

16. Lichtquelle nach Anspruch 15, wobei die von der mindestens einen LED emittierten Strahlung in einem Bereich zwischen ca. 315 nm und ca. 480 nm ist und der Leuchtstoff Licht emittieren kann, das Wellenlängen in einem Bereich zwischen ca. 490 nm und ca. 770 nm hat.

17. Lichtquelle nach Anspruch 15, wobei der mit einer seltenen Erde aktivierte, Terbium enthaltende Granat-Leuchtstoff die Formel  $(\text{Tb}_{1-y}\text{Ce}_y)_3(\text{Al}_{1-r-s}\text{Ga}_r\text{In}_s)_z\text{O}_{12}$  hat, wobei y in einem Bereich zwischen ca. 0,0005 und ca. 0,2, z in einem Bereich zwischen ca. 4 und ca. 5,  $0 \leq r \leq 0,5$ ,  $0 < s \leq 0,5$  und  $r + s < 1$  ist.

18. Lichtquelle nach Anspruch 15, wobei x in einem Bereich zwischen 0 und ca. 0,3, y in einem Bereich zwischen ca. 0,005 und ca. 0,1 und z in einem Bereich zwischen ca. 4,6 und weniger als 5 ist.

19. Lichtquelle nach Anspruch 15, wobei der mit einer seltenen Erde aktivierte, Terbium enthaltende Granat-Leuchtstoff die Formel  $(\text{Tb}_{1-y}\text{Ce}_y)_3\text{Al}_z\text{O}_{12}$  hat, wobei y in einem Bereich zwischen ca. 0,0005 und ca. 0,2 und z in einem Bereich zwischen ca. 4,6 und weniger als 5 ist.

20. Lichtquelle nach Anspruch 15, wobei der mit einer seltenen Erde aktivierte, Terbium enthaltende Granat-Leuchtstoff die Formel  $(\text{Tb}_{1-y}\text{Ce}_y)_3(\text{Al}_{1-r-s}\text{Ga}_r\text{In}_s)_z\text{O}_{12}$  hat, wobei y in einem Bereich zwischen ca. 0,0005 und ca. 0,2, z in einem Bereich zwischen ca. 4,6 und weniger als Ca.  $5,0 < r \leq 0,5$ ,  $0 \leq s \leq 0,5$  und  $r + s < 1$  ist.

21. Lichtquelle nach Anspruch 15, wobei der mit einer seltenen Erde aktivierte, Terbium enthaltende Granat-Leuchtstoff die Formel  $(\text{Tb}_{1-y-u-v-w}\text{Ce}_y\text{Y}_u\text{Gd}_v\text{Sm}_w)_3\text{Al}_z\text{O}_{12}$  hat, wobei y in einem Bereich zwischen ca. 0,0005 und ca. 0,2, z in einem Bereich zwischen ca. 4,6 und weniger als  $5,0 \leq u, v, w \leq 0,5$  und  $0,0005 \leq y + u + v + w < 1$  ist.

Es folgen 4 Blatt Zeichnungen

Anhängende Zeichnungen

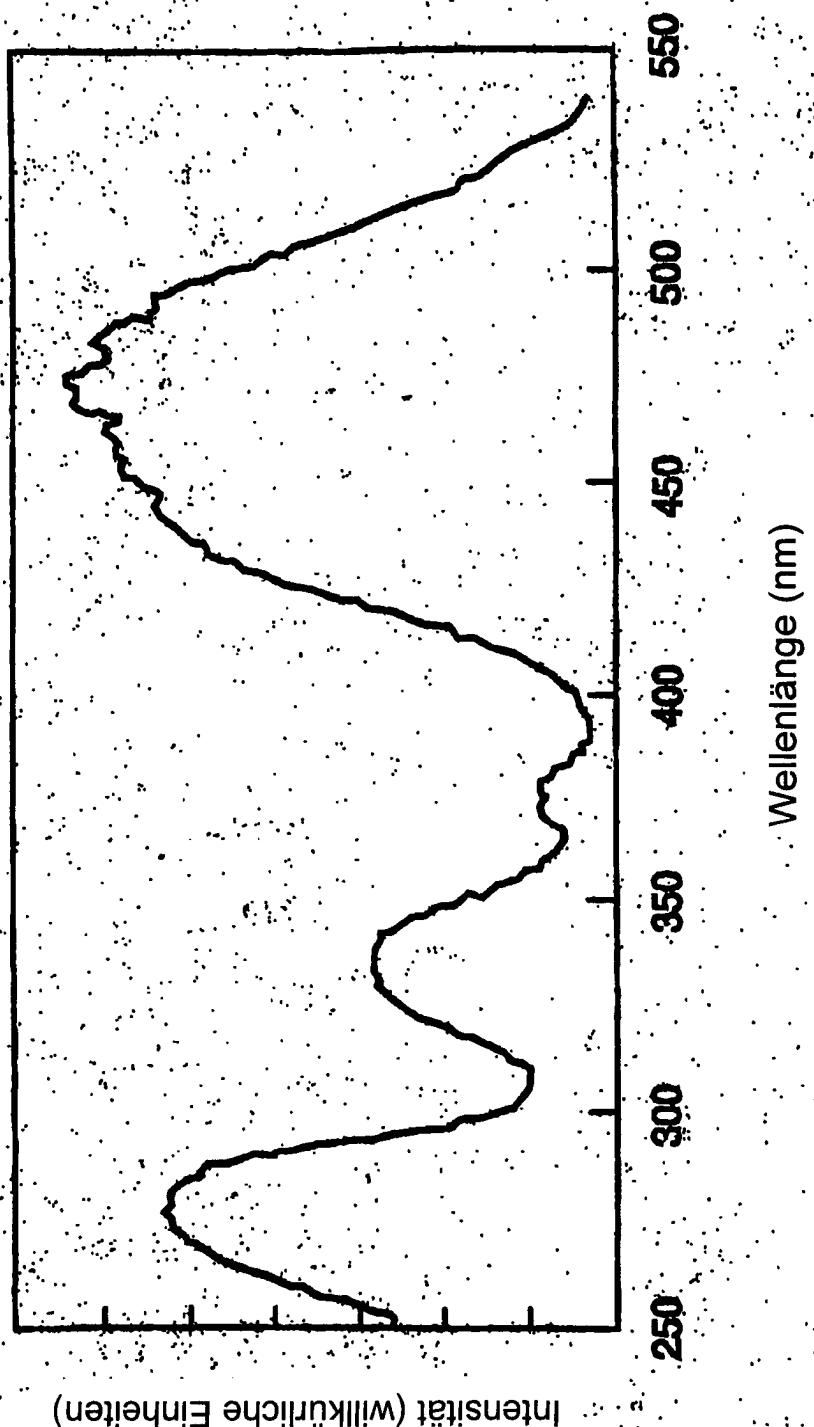
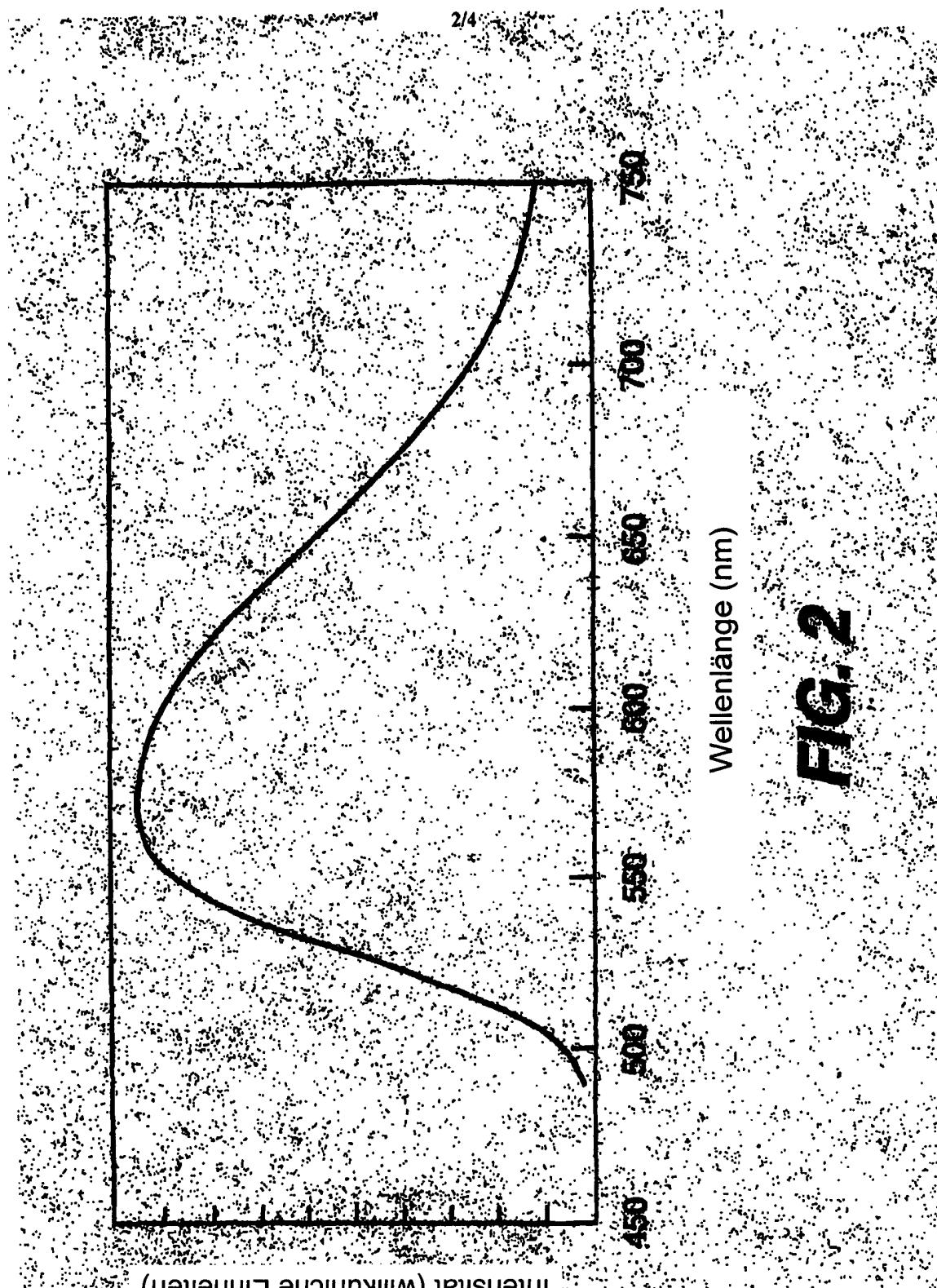
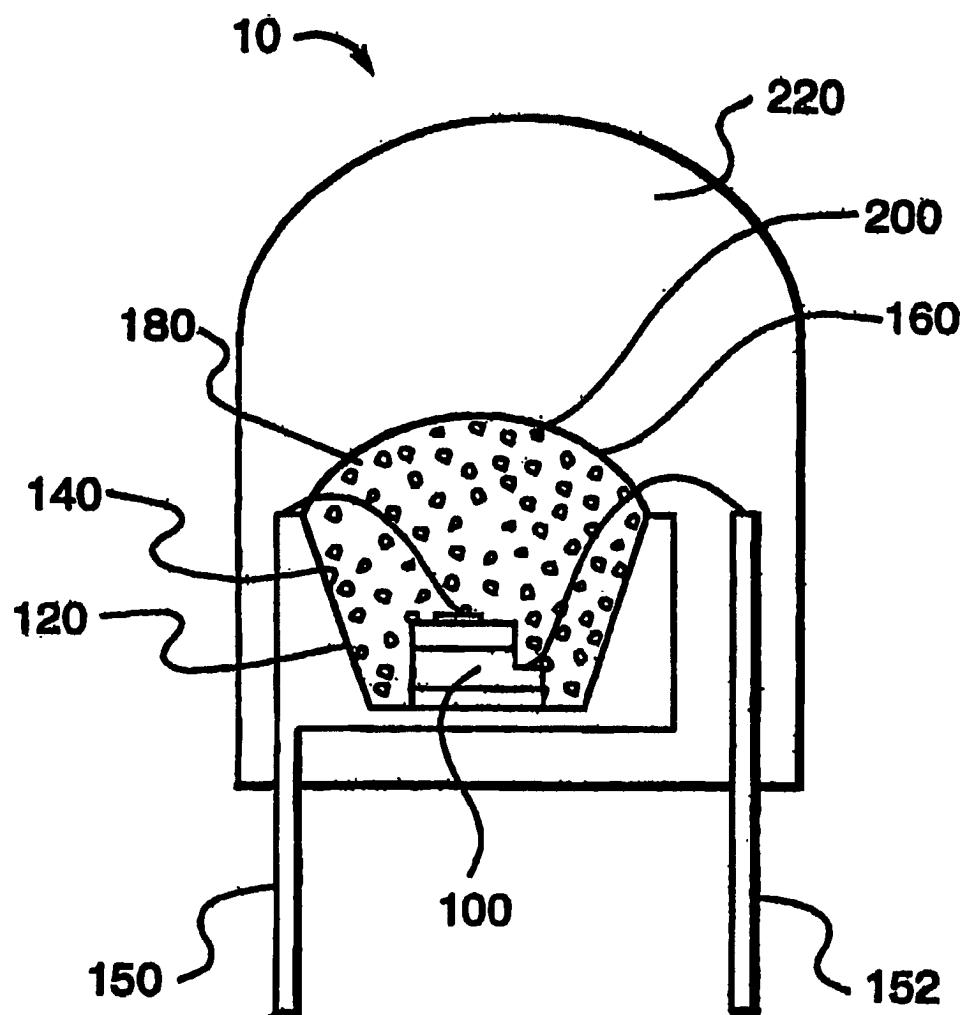
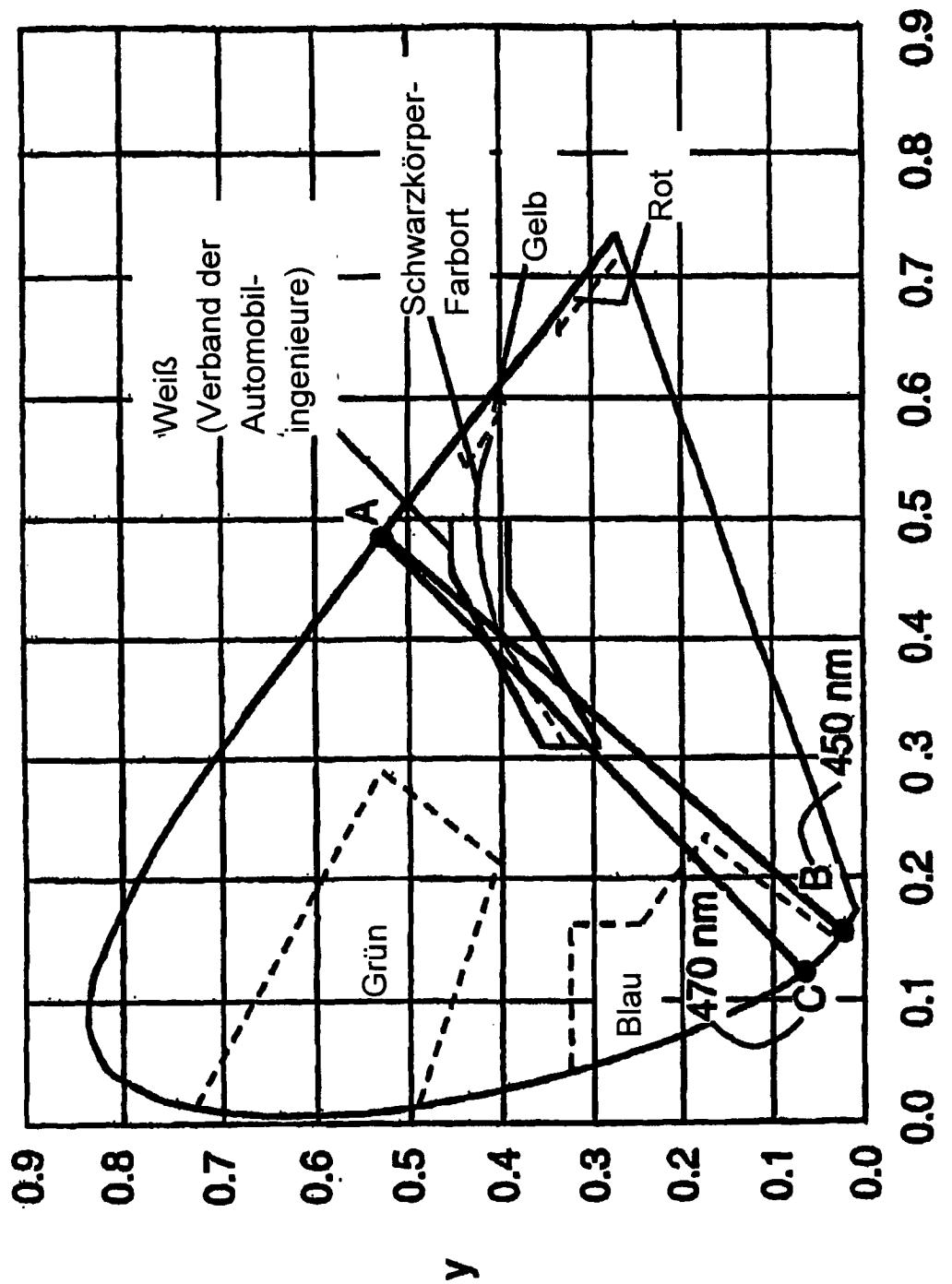


FIG. 1





**FIG. 3**



**FIG. 4**