

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2017年11月2日(02.11.2017)



(10) 国際公開番号
WO 2017/188191 A1

- (51) 国際特許分類:
G02B 5/20 (2006.01) H01L 33/50 (2010.01)
C09K 11/08 (2006.01) H01S 5/02 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2017/016240
- (22) 国際出願日: 2017年4月24日(24.04.2017)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2016-087114 2016年4月25日(25.04.2016) JP
- (71) 出願人: 日本特殊陶業株式会社(NGK SPARK PLUG CO., LTD.) [JP/JP]; 〒4678525 愛知県名古屋市長瑞穂区高辻町14番18号 Aichi (JP).
- (72) 発明者: 佐藤 友美(SATO Yumi); 〒9813292 宮城県仙台市泉区明通三丁目24番1号 株式会社NTKセラテック内 Miyagi (JP). 傳井 美史(TSUTAI Yoshifumi); 〒9813292 宮城県仙台市泉区明通三丁目24番1号 株式会社NTKセラテック内 Miyagi (JP). 阿部 誉史(ABE Takashi);

〒9813292 宮城県仙台市泉区明通三丁目24番1号 株式会社NTKセラテック内 Miyagi (JP). 佐藤 豊(SATO Yutaka); 〒9813292 宮城県仙台市泉区明通三丁目24番1号 株式会社NTKセラテック内 Miyagi (JP).

(74) 代理人: 福地 武雄(FUKUCHI Takeo); 〒1500031 東京都渋谷区桜丘町3番1号 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): 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, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, 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, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(54) Title: WAVELENGTH CONVERSION MEMBER, PRODUCTION METHOD THEREFOR, AND LIGHT EMITTING DEVICE

(54) 発明の名称: 波長変換部材、その製造方法および発光装置

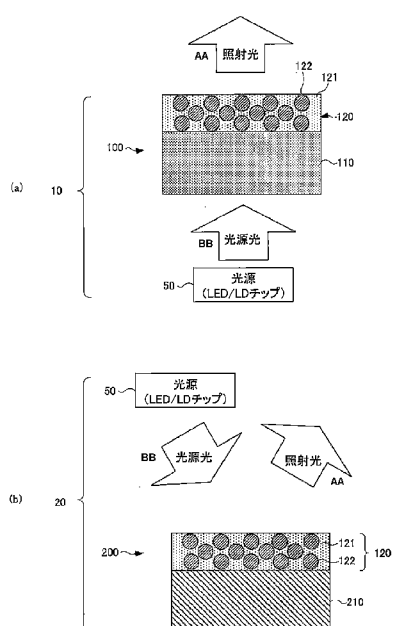


FIG. 1:
50 Light source (LED/LD chip)
AA Emitted light
BB Light source light

(57) Abstract: Provided are a wavelength conversion member and a light emitting device that can suppress the transmission of light source light by reducing the gaps between particles without reducing the light conversion efficiency of large-diameter fluorescent particles. Specifically provided is a wavelength conversion member 100 that converts light of a specific wavelength range to light of a different wavelength, and that is equipped with a substrate 110 comprising an inorganic material, and a fluorescent layer 120 joined to the substrate 110 and comprising fluorescent particles 122 which emit converted light in response to absorbed light and a translucent ceramic 121 which binds together the fluorescent particles 122. The fluorescent particles 122 include two types of particles having a prescribe particle size distribution. From among the two types of particles, the ratio of the average particle size of large particles having a large average particle size and the average particle size of small particles having a small average particle size is in the range of 2 to 4, and the ratio of the volume of the large particles and the volume of the small particles is 5.7 or lower.

WO 2017/188191 A1

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (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), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類 :

- 国際調査報告 (条約第21条(3))
- 請求の範囲の補正の期限前の公開であり、補正を受理した際には再公開される。(規則48.2(h))

(57) 要約 : 大粒径の蛍光体粒子による光の変換効率を低下させることなく、空隙を減少させて、光源光の透過を抑制することができる波長変換部材および発光装置を提供する。特定範囲の波長の光を他の波長の光に変換する波長変換部材100であって、無機材料からなる基材110と、基材110に接合され、吸収光に対し変換光を発する蛍光体粒子122と蛍光体粒子122同士を結合する透光性セラミックス121とからなる蛍光体層120と、を備え、蛍光体粒子122は、所定の粒子径の分布を有する2種類の粒子を含み、2種類の粒子のうち、平均粒子径の大きい大粒子の平均粒子径と平均粒子径の小さい小粒子の平均粒子径との比が2~4であり、大粒子の体積と小粒子の体積との比が5.7以下である。

明 細 書

発明の名称：波長変換部材、その製造方法および発光装置

技術分野

[0001] 本発明は、特定範囲の波長の光を他の波長の光に変換する波長変換部材、その製造方法および発光装置に関する。

背景技術

[0002] 発光素子として、例えば青色LED素子に接触するようにエポキシやシリコンなどに代表される樹脂に蛍光体粒子を分散させた波長変換部材を配置したものが知られている。そして、近年では、LEDに代えて、エネルギー効率がよく、小型化、高出力化に対応しやすい、レーザダイオード(LD)が用いられたアプリケーションが増えてきている。

[0003] レーザは局所的に高いエネルギーの光を照射するため、集中的にレーザ光が照射された樹脂は、その照射箇所が焼け焦げる。これに対し、波長変換部材を構成する樹脂に代えて無機バインダを使用し、無機材料のみで形成された波長変換部材を用いることが知られている(特許文献1~6)。

[0004] 一方、構造用材料について、充填の均一性および充填率を高めるために2粒度のセラミックス粒子を組み合わせる技術も開示されている(特許文献7)。特許文献7には、金属-セラミックス複合材料のプリフォームを、微粒の平均粒径の比を6~20に調整した2粒度のセラミックス粒子で構成するのが好ましいことが記載されている。

先行技術文献

特許文献

- [0005] 特許文献1：特開2015-90887号公報
特許文献2：特開2015-38960号公報
特許文献3：特開2015-65425号公報
特許文献4：特開2014-241431号公報
特許文献5：特開2015-119172号公報

特許文献6：特開2015-138839号公報

特許文献7：特開2011-137186号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 上記のような波長変換部材を用いた発光装置として、レーザダイオード（LD）を用いたアプリケーションが増えてきている。このような無機材料のみで形成された波長変換部材について、蛍光体層が大粒径の蛍光体粒子で形成されている場合、波長の変換効率は向上する。しかし、発熱を抑えるために粒子径に対する膜厚の比を小さくすると粒子間の空隙部分が多く、励起光の透過が生じやすい。特に蛍光のみを多く取出す用途については光源光の透過を抑制する必要がある。

[0007] 本発明は、このような事情に鑑みてなされたものであり、大粒径の蛍光体粒子による光の変換効率を低下させることなく、空隙を減少させて、光源光の透過を抑制することができる波長変換部材、その製造方法および発光装置を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0008] （1）上記の目的を達成するため、本発明の波長変換部材は、特定範囲の波長の光を他の波長の光に変換する波長変換部材であって、無機材料からなる基材と、前記基材に接合され、吸収光に対し変換光を発する蛍光体粒子と前記蛍光体粒子同士を結合する透光性セラミックスとからなる蛍光体層と、を備え、前記蛍光体粒子は、所定の粒子径の分布を有する2種類の粒子を含み、前記2種類の粒子のうち、平均粒子径の大きい大粒子の平均粒子径と平均粒子径の小さい小粒子の平均粒子径との比が2～4であり、前記大粒子の体積と前記小粒子の体積との比が5.7以下であることを特徴としている。

[0009] これにより、大粒子による光の変換効率を低下させることなく、空隙を減少させて、光源光の透過を抑制することができる。また、光源光のレーザパワー密度が大きくても蓄熱による急激な消光を抑制できる。

[0010] （2）また、本発明の波長変換部材は、前記大粒子の体積と前記小粒子の

体積との比は、4以下であることを特徴としている。これにより、さらに効率よく光源光の透過を抑制できる。

[0011] (3) また、本発明の波長変換部材は、前記大粒子の体積と前記小粒子の体積との比は、1.5以上であることを特徴としている。これにより、大粒径の蛍光強度を維持させることができ、さらに粒子間の界面を減少させて熱抵抗を小さくし、消光を抑制できる。

[0012] (4) また、本発明の波長変換部材は、前記大粒子の平均粒子径は、10～20 μm であり、前記小粒子の平均粒子径は、2.5～10 μm であることを特徴としている。これにより、発光装置用に適した波長変換部材を構成できる。

[0013] (5) また、本発明の発光装置は、特定範囲の波長の光源光を発生させる光源と、前記光源光を吸収し、他の波長の光に変換し発光する(1)から(4)のいずれかに記載の波長変換部材と、を備えることを特徴としている。これにより、光源光の透過を防止して蛍光を多く取出し、さらにレーザパワー密度が大きくても蓄熱による急激な消光が生じ難い発光装置を実現できる。

[0014] (6) また、本発明の波長変換部材の製造方法は、特定範囲の波長の光を他の波長の光に変換する波長変換部材の製造方法であって、平均粒子径の異なる蛍光体粒子を準備し、前記蛍光体粒子のそれぞれを所定の割合で含むペーストを作製する工程と、前記ペーストを基材に塗布する工程と、前記ペーストが塗布された基材を熱処理する工程と、を含むことを特徴としている。これにより、大粒径の蛍光体粒子による光の変換効率を低下させることなく、空隙を減少させて、光源光の透過を抑制することができる。

発明の効果

[0015] 本発明によれば、大粒径の蛍光体粒子による光の変換効率を低下させることなく、空隙を減少させて、光源光の透過を抑制することができる。

図面の簡単な説明

[0016] [図1] (a)、(b) それぞれ本発明の透過型および反射型の発光装置を示す

模式図である。

[図2] (a) ~ (c) それぞれ本発明の波長変換部材の作製工程を示す説明図である。

[図3]波長変換部材に対する透過型の評価システムを示す説明図である。

[図4]レーザパワー密度に対する透過した光源光の発光強度を示すグラフである。

[図5] (a) ~ (c) それぞれ波長変換部材の部分的な断面を示すSEM写真である。

[図6] (a)、(b) それぞれレーザパワー密度 40 W/mm^2 のときの波長に対する発光強度を示すグラフおよびその拡大したグラフである。

[図7]レーザパワー密度に対する蛍光の発光強度を示すグラフである。

発明を実施するための形態

[0017] 次に、本発明の実施の形態について、図面を参照しながら説明する。説明の理解を容易にするため、各図面において同一の構成要素に対しては同一の参照番号を付し、重複する説明は省略する。なお、構成図において、各構成要素の大きさは概念的に表したものであり、必ずしも実際の寸法比率を表すものではない。

[0018] [透過型の発光装置の構成]

図1 (a) は、透過型の発光装置を示す模式図である。図1に示すように、発光装置10は、光源50および波長変換部材100を備え、波長変換部材100を透過した光源光および波長変換部材100内で光源光による励起で発生した光を合わせて照射光を放射している。照射光は例えば白色光とすることができる。

[0019] 光源50には、LED (Light Emitting Diode) またはLD (Laser Diode) のチップを用いることができる。LEDは、発光装置10の設計に応じて特定範囲の波長を有する光源光 (励起光) を発生させる。例えば、LEDは、青色光を発生させる。また、LDを用いた場合には波長や位相のばらつきの少ないコヒーレント光を発生できる。なお、光源50は、これらに限られ

ず、可視光以外を発生させるものであってもよいが、紫外光、紫色光、青色光、または緑色光を発生させるものが好ましい。このような発光装置10は、例えば工場、球場や美術館等の高所から広範囲を照らす公共施設の照明、または自動車のヘッドランプ等の長距離を照らす照明に応用すると高い効果が見込める。

[0020] [透過型の波長変換部材の構成]

波長変換部材100は、基材110および蛍光体層120を備え、板状に形成され、光源光を透過させつつ、光源光により励起して波長の異なる光を発生させる。例えば、青色光の光源光を透過させつつ、蛍光体層で変換された緑と赤や黄色の蛍光を透過させて放射できる。基材110は、板状に形成され、例えば、光源光を透過させるガラスやサファイア等の無機材料で構成できる。基材110は、高い熱伝導性を有するサファイアからなることが好ましい。

[0021] (蛍光体層)

蛍光体層120は、基材110上に膜として設けられ、蛍光体粒子122と透光性セラミックス121とで形成されている。透光性セラミックス121は、蛍光体粒子122同士を結合するとともに基材110と蛍光体粒子122とを結合している。これにより、高エネルギー密度の光の照射に対して、照射側の熱が発生しやすい部分が、放熱材として機能する基材110と接合しているため効率よく放熱でき、蛍光体の温度消光を抑制できる。透過型において、蛍光体層120の膜厚は、2~400 μm であればよく、30~80 μm であることが好ましい。

[0022] 基材110との界面およびその近傍で透光性セラミックス成分が蛍光体粒子間の隙間を埋める構造となっている。これにより、基材110への放熱経路が確保され、放熱機能が高くなる。

[0023] 透光性セラミックス121は、蛍光体粒子122を保持するための無機バインダであり、例えばシリカ(SiO₂)、リン酸アルミニウムで構成される。蛍光体粒子122には、例えばイットリウム・アルミニウム・ガーネット

ト系蛍光体（YAG系蛍光体）およびルテチウム・アルミニウム・ガーネット系蛍光体（LAG系蛍光体）を用いることができる。

[0024] その他、蛍光体粒子122は、発光させる色の設計に応じて以下のような材料から選択できる。例えば、 $BaMgAl_{10}O_{17}:Eu$ 、 $ZnS:Ag$ 、 Cl 、 $BaAl_2S_4:Eu$ あるいは $CaMgSi_2O_6:Eu$ などの青色系蛍光体、 $Zn_2SiO_4:Mn$ 、 $(Y, Gd)BO_3:Tb$ 、 $ZnS:Cu, Al$ 、 $(M1)_2SiO_4:Eu$ 、 $(M1)(M2)_2S:Eu$ 、 $(M3)_3Al_5O_{12}:Ce$ 、 $SiAlON:Eu$ 、 $CaSiAlON:Eu$ 、 $(M1)Si_2O_2N:Eu$ あるいは $(Ba, Sr, Mg)_2SiO_4:Eu$ 、 Mn などの黄色または緑色系蛍光体、 $(M1)_3SiO_5:Eu$ あるいは $(M1)S:Eu$ などの黄色、橙色または赤色系蛍光体、 $(Y, Gd)BO_3:Eu$ 、 $Y_2O_2S:Eu$ 、 $(M1)_2Si_5N_8:Eu$ 、 $(M1)AlSiN_3:Eu$ あるいは $YPVO_4:Eu$ などの赤色系蛍光体が挙げられる。なお、上記化学式において、M1は、Ba, Ca, SrおよびMgからなる群のうち少なくとも1つが含まれ、M2は、GaおよびAlのうち少なくとも1つが含まれ、M3は、Y, Gd, LuおよびTeからなる群のうち少なくとも1つが含まれる。なお、上記の蛍光体粒子122は一例であり、波長変換部材100に用いられる蛍光体粒子122が必ずしも上記に限られるわけではない。

[0025] 蛍光体粒子122は、所定の粒子径の分布を有する2種類の粒子を含んでいる。つまり、粒子径の分布が各々で異なる蛍光体粒子を2種類含んでいる。所定の粒子径の分布とは、例えば正規分布、ガウス分布のように一つのピークを有する分布である。2種類の粒子には、平均粒子径の大きい大粒子および平均粒子径の小さい小粒子が含まれ、これら2粒度の粒子により全体の70体積%以上が占められている。

[0026] そして、大粒子の平均粒子径と小粒子の平均粒子径との比が2~4であり、大粒子の体積と小粒子の体積との比が5.7以下である。このように大粒子に対し、小粒子が8.5:1.5の割合以上になるように混合されることで、大粒子による光の変換効率を低下させることなく、空隙を減少させて、

光源光の透過を抑制することができる。また、レーザパワー密度の大きい光源光を入射させても蓄熱による急激な消光を抑制できる。

[0027] 具体的には、大粒子の平均粒子径は、 $10 \sim 20 \mu\text{m}$ であり、小粒子の平均粒子径は、 $2.5 \sim 10 \mu\text{m}$ であることが好ましい。これにより、発光装置10用に適した波長変換部材100を構成できる。平均粒子径は、研磨断面のSEM像より全粒子の粒子径を計測し、粒度分布の度数データを作成して算出できる。2粒度に分かれている場合でもピーク2点の粒子径を各平均粒子径として得ることができ、ピークが重なり合う場合でも、ピークの肩から概算の平均粒子径を算出できる。

[0028] 大粒子の体積と小粒子の体積との比は、 5.7 以下であることが好ましい。すなわち、大粒子に対し、小粒子が体積比で $8.5 : 1.5$ の割合以上になるように混合されることで空隙を減らし、さらに効率よく光源光の透過を抑制できる。

[0029] 一方、あまり小粒子が多くなり過ぎると粒子間の界面が多くなり熱抵抗が高くなる。そして、低パワー密度のレーザ照射でも蓄熱が生じる。そのため、大粒子の体積と小粒子の体積との比は、 1.5 以上であることが好ましい。すなわち、大粒子に対し、小粒子が体積比で $6 : 4$ の割合以下になるように混合されることで、粒子間の界面を減少させて熱抵抗を小さくし、消光を抑制できる。

[0030] 平均粒子径の粒度分布のデータを使って、その粒度分布が対称な正規分布、かつ粒子が真球であると仮定し、その最頻値（平均値または中央値であってもよい）の度数比を割り出す。さらに平均粒子径を各粒子の直径として、その粒子1つの体積を計算し、その体積に各々の度数比を掛け合わせることで体積比を算出できる。

[0031] このように2つの粒子径の分布を有する蛍光体粒子を一定の割合で混合し、大粒子の粒子間の空隙に小粒子を入り込ませることで、光源光の透過を抑制し、かつ、蛍光体層の空隙部分を減らし、放熱経路を確保することができる。

[0032] [反射型の発光装置の構成]

図1(b)は、反射型の発光装置20を示す模式図である。図1(b)に示すように、発光装置20は、光源50および波長変換部材200を備え、例えば波長変換部材200で反射した光源光および波長変換部材100内で光源光の波長を変換した光を合わせて白色光のような照射光を放射させることができる。

[0033] 波長変換部材200は、基材210および蛍光体層120を備え、板状に形成され、光源光を基材210で反射させつつ、光源光に励起して波長の異なる光を発生させる。基材210は、板状に形成され、例えば、光源光を反射させる無機材料で構成できる。基材210は、アルミニウムからなることが好ましい。高い熱伝導性を有する基材210を採用することで、蛍光体層120の蓄熱を抑え、蛍光体粒子の温度上昇を抑制でき、温度消光を防止できる。このように発光装置20であっても同様に高出力で発光させ続けても蛍光性能の低下を防止できる。反射率をより高めるために、基材の表面にはAg膜が形成されていることが好ましい。反射型において、蛍光体層120の膜厚は、2~400 μm であればよく、20~80 μm であることが好ましい。

[0034] [波長変換部材の作製方法]

図2(a)~(c)は、それぞれ本発明の波長変換部材の作製工程を示す説明図である。まず、蛍光体粒子、無機バインダ、分散媒を準備する。蛍光体粒子には、例えばYAG、LAG等の粒子を用いることができる。光源光に対して得ようとする照射光に応じて蛍光体粒子の種類や量を調整する。例えば、青色光に対して白色光を得ようとする場合には、青色光による励起で緑色光および赤色光または黄色光を放射する蛍光体粒子をそれぞれ適量選択する。

[0035] 好ましい無機バインダとして、例えばエタノールにシリコンの前駆体を溶かして得られたエチルシリケートを用いることができる。その他、無機バインダは、加水分解あるいは酸化により酸化ケイ素となる酸化ケイ素前駆体、

ケイ酸化合物、シリカ、およびアモルファスシリカからなる群のうちの少なくとも1種を含む原料を、常温で反応させるか、または、500℃以下の温度で熱処理することにより得られたものであってもよい。酸化ケイ素前駆体としては、例えば、ペルヒドロポリシラザン、エチルシリケート、メチルシリケートを主成分としたものが挙げられる。また、分散媒としては、ブタノール、イソホロン、テルピネオール、グリセリン等の高沸点溶剤を用いることができる。

[0036] 図2(a)に示すように、これらの無機バインダ、分散媒、大小2種の蛍光体粒子を混合してペースト(インク)410を作製する。混合にはボールミル等を用いることができる。一方で、無機材料の基材を準備する。基材には、ガラス、サファイアを用いることができる。基材は板状であることが好ましい。

[0037] 次に、図2(b)に示すように、スクリーン印刷法を用いて、得られたペースト410を平均粒子径に対して上記の膜厚になるように基材110に塗布する。スクリーン印刷は、ペースト410をインキスキージ510で、枠に張られたシルクスクリーン520に押しつけて行なうことができる。スクリーン印刷法以外に、スプレー法、ディスペンサーによる描画法、インクジェット法が挙げられるが、薄い厚みの蛍光体層を安定的に形成するためにはスクリーン印刷法が好ましい。

[0038] そして、図2(c)に示すように、印刷されたペースト410を乾燥させて、炉600内で熱処理することで分散媒を飛ばすとともに無機バインダの有機分を飛ばして無機バインダ中の主金属を酸化(主金属がSiの場合は SiO_2 化)させ、その際に蛍光体層120と基材110とを接着する。このようにして光源光の透過を抑制できる波長変換部材100を製造できる。そして、得られた波長変換部材をLED等の光源に対して適宜配置して作製することができる。

[0039] [実施例]

(1. 光源光の透過抑制の評価)

(1-1) 試料の作製方法

実施例1～4、比較例1～4の波長変換部材を作製した。まず、2種類の粒子径（平均粒子径6 μ m、18 μ m）の蛍光体粒子（YAG、以下同様）について、それぞれ無機バインダと分散媒としてエチルシリケートとテルピネオールを混合して2種類のペーストを作製し、2種類の粒子が下表に示す混合比（体積比）で構成されるよう2種類のペーストを混合した。作製されたペーストを、スクリーン印刷法を用いて40 μ mの厚みになるよう基材となるサファイア板に塗布し、熱処理して波長変換部材の試料を得た。なお、本蛍光体粒子の粒径は、熱処理によって、粒子が分割したり、または粒子同士が結合したりしないので、波長変換部材における蛍光体粒子の平均粒子径は、原料における蛍光体粒子の平均粒子径と同等の数値となる。

[0040] また、蛍光体の平均粒子径は、レーザ回折／散乱式粒子径分布測定装置「HORIBA（堀場製作所）LA-960」を用いて測定した。また、体積比は、各粒子径の蛍光体の重量から密度を除すことで体積比を算出した。

[表1]

	蛍光体粒子の混合割合	
	粒子径 18 μ m	粒子径 6 μ m
比較例1	10	0
比較例2	9	1
実施例1	8.5	1.5
実施例2	8	2
実施例3	7	3
実施例4	6	4
比較例3	5	5
比較例4	0	10

[0041] (1-2) 評価方法

上記のようにして得られた比較例1～4、実施例1～4に対して光源光の発光強度の評価を行なった。具体的には試料にレーザを照射し、レーザ入力値に対する透過した光源光の発光強度を調べた。なお、蛍光の発光強度とは、上記の評価システムを用いた場合に輝度計に示される数字を無次元化した

相対強度である。

[0042] 図3は、波長変換部材に対する透過型の評価システムを示す説明図である。図3に示すように、透過型の評価システム700は、光源710、平凸レンズ720、両凸レンズ730、バンドパスフィルタ735、パワーメータ740で構成されている。波長変換部材Sからの透過光を集光して測定できるように各要素が配置されている。

[0043] バンドパスフィルタ735は、波長480nmを閾値として光をカットするフィルタであり、透過した光源光を測定する際には波長の大きい側をカットするフィルタが用いられる。また、蛍光の発光強度を測定する際には波長の小さい側をカットするフィルタが用いられる。このように、透過した光源光（励起光）を蛍光と切り分けるために、両凸レンズとパワーメータの間に設置される。

[0044] このように構成されたシステムにおいて、平凸レンズ720に入った光源光は、波長変換部材の試料S上の焦点へ集光される。そして、試料Sから生じた放射光を両凸レンズ730で集光し、その集光された光についてバンドパスフィルタ735でカットした光の強度をパワーメータ740で測定する。この測定値を蛍光の発光強度とする。レーザ光をレンズで集光し、照射面積を絞ることで、低出力のレーザでも単位面積あたりのエネルギー密度が上げられる。このエネルギー密度をレーザパワー密度とする。

[0045] 図4は、レーザパワー密度に対する透過した光源光の発光強度を示すグラフである。図4に示すように、比較例1と比較例4を比べると、大粒子のみの試料のほうが小粒子よりも透過する光源光の強度が高いことが確認された。

[0046] 小粒子を含む波長変換部材は基材上に密に蛍光体粒子が配置されており、光源光が透過されにくい。大粒子のみの波長変換部材は、蛍光体粒子間に空隙が多く存在しているので、光源光が透過していると考えられる。

[0047] 比較例2、実施例1～4については、小粒子の割合を増やすほど励起光の強度が低下している傾向を確認できた。実施例2、3については透過した励

起光の強度が同程度であった。蛍光体の小粒子と大粒子を混合して波長変換部材を作製することで、大粒子同士の間隙を小粒子が埋める構造となり、励起光の透過を抑制していると考えられる。

[0048] 以上の結果を踏まえ、比較例1、4、実施例2の試料を切断し、断面をSEMにより観察した。図5(a)～(c)は、それぞれ波長変換部材の部分的な断面を示すSEM写真である。図5(a)に示すように、比較例1の試料では、大粒径の蛍光体粒子の間に空隙があることを確認できた。また、図5(b)に示すように、比較例4の試料では、小粒径の蛍光体粒子が充填されていることを確認できた。図5(c)に示すように、実施例2の試料については2粒度のうち大粒径の蛍光体粒子の間隙に小粒径の蛍光体粒子が充填されていることを確認できた。

[0049] (2. スペクトル評価)

図6(a)、(b)は、それぞれレーザーパワー密度 40 W/mm^2 のときの発光スペクトルを示すグラフおよびその拡大したグラフである。図6(a)、(b)に示すように、比較例1では、青色光に当たる波長の範囲で強度が大きくなっており、実施例1～4では、比較例1の蛍光の強度を維持したまま、青色光に当たる波長の範囲について光源光の透過を抑制していることが確認された。

[0050] (3. 蓄熱抑制の評価)

上記の実施例1～3、比較例1、2、4の試料に対し、透過型のレーザー照射試験を行ない、レーザーパワー密度に対して蛍光の発光強度を確認した。図7は、それぞれレーザーパワー密度に対する蛍光の発光強度を示すグラフである。

[0051] 比較例1と比較例4を比べると、大粒子のみの比較例1の試料の方が小粒子のみの比較例4の試料よりも、測定された蛍光の発光強度が高いことが確認された。大粒径の蛍光体粒子の方が、小粒径の蛍光体粒子よりも蛍光への変換効率が高いことによるものと考えられる。一方、実施例1～3については、大粒子に1.5～3割(15%～30%)の小粒子を混合しても、大粒

子の変換効率が優性であり発光強度を低下させることがないことを確認できた。

[0052] また、大粒子のみの比較例1の試料では、蓄熱による蛍光消光が、 $41\text{ W}/\text{mm}^2$ のレーザパワー密度以上で急激に発生しているのに対し、小粒子のみの比較例4の試料では、高レーザパワー密度でも蓄熱による蛍光消光は非常に緩やかであった。

[0053] 小粒子は、粒子が小さいことで基材上に密に配置されるため、蛍光体粒子間の空隙が少ない構造となっており、蛍光体層にて発熱した熱を放熱する経路を確保しやすく、蓄熱による蛍光の消光が緩やかになっていると考えられる。

[0054] 一方で、大粒子の集合には空隙部が多く存在するため、空隙部の空気による蓄熱が起こり高パワー密度のレーザを照射されると急激に蛍光消光してしまうと考えられる。なお、実施例1～3については、小粒子の割合を増やすほど蓄熱による蛍光消光のタイミングが高エネルギー側にシフトし、蛍光の発光強度の低下傾向が緩やかになっていた。

[0055] 小粒子を1割混合した比較例2では $56\text{ W}/\text{mm}^2$ で蛍光消光が確認されたが、1.5～3割（15%～30%）混合した実施例1～3では消光は緩やかであり、蛍光体層への蓄熱の抑制効果が確認できた。

[0056] （4. 粒子径の比別評価）

（4-1）試料の作製方法

平均粒子径 $18\ \mu\text{m}$ の大粒子の蛍光体と、平均粒子径18、9、6、4、5、3.5、 $3\ \mu\text{m}$ の6種類の小粒子の蛍光体について、各々無機バインダと分散媒としてエチルシリケートとテルピネオールを混合してペーストを作製し、大粒子と小粒子の混合比（体積比）が8：2になるよう2種類のペーストを混合した。作製されたペーストを、スクリーン印刷法を用いて $40\ \mu\text{m}$ の厚みになるよう基材となるサファイア板に塗布し、熱処理して波長変換部材の試料を得た。

[0057] （4-2）評価方法

上記方法で作製した試料について、透過型のレーザ照射試験を行ない、50 W/mm²のレーザパワーにおける、蛍光の発光強度と透過した光源光の強度を確認した。また、粒子径比1.0のときの蛍光と光源光の発光強度を100%とした場合、各粒子径比における相対発光強度を求めた。

[0058] (4-3) 結果

結果は下表の通りであった。大粒子と小粒子の粒子径比が2.0~4.0のとき、大粒径のみの蛍光強度を90%以上維持したまま、光源光の透過を70%未満に減少させることができた。なお、上記の実施例では、蛍光体粒子の材料としてYAGを用いているが、LAG等の他の材料であっても同様の効果が見込まれる。

[表2]

	大粒径 粒子径	小粒径 粒子径	大/小 粒子径比	発光強度		相対発光強度	
				蛍光	光源光	蛍光 [%]	光源光 [%]
比較例	18	18	1.0	15.8	21.6	100.0	100.0
実施例	18	9	2.0	15.4	14.8	97.5	68.5
実施例	18	6	3.0	15.3	9.2	96.8	42.6
実施例	18	4.5	4.0	15.3	6.4	96.8	29.6
比較例	18	3.5	5.1	14.2	4.2	89.9	19.4
比較例	18	3	6.0	13.5	2.1	85.4	9.7

符号の説明

- [0059] 10、20 発光装置
 50 光源
 100 波長変換部材
 110、210 基材
 120 蛍光体層
 121 透光性セラミックス
 122 蛍光体粒子
 410 ペースト
 510 インキスキージ

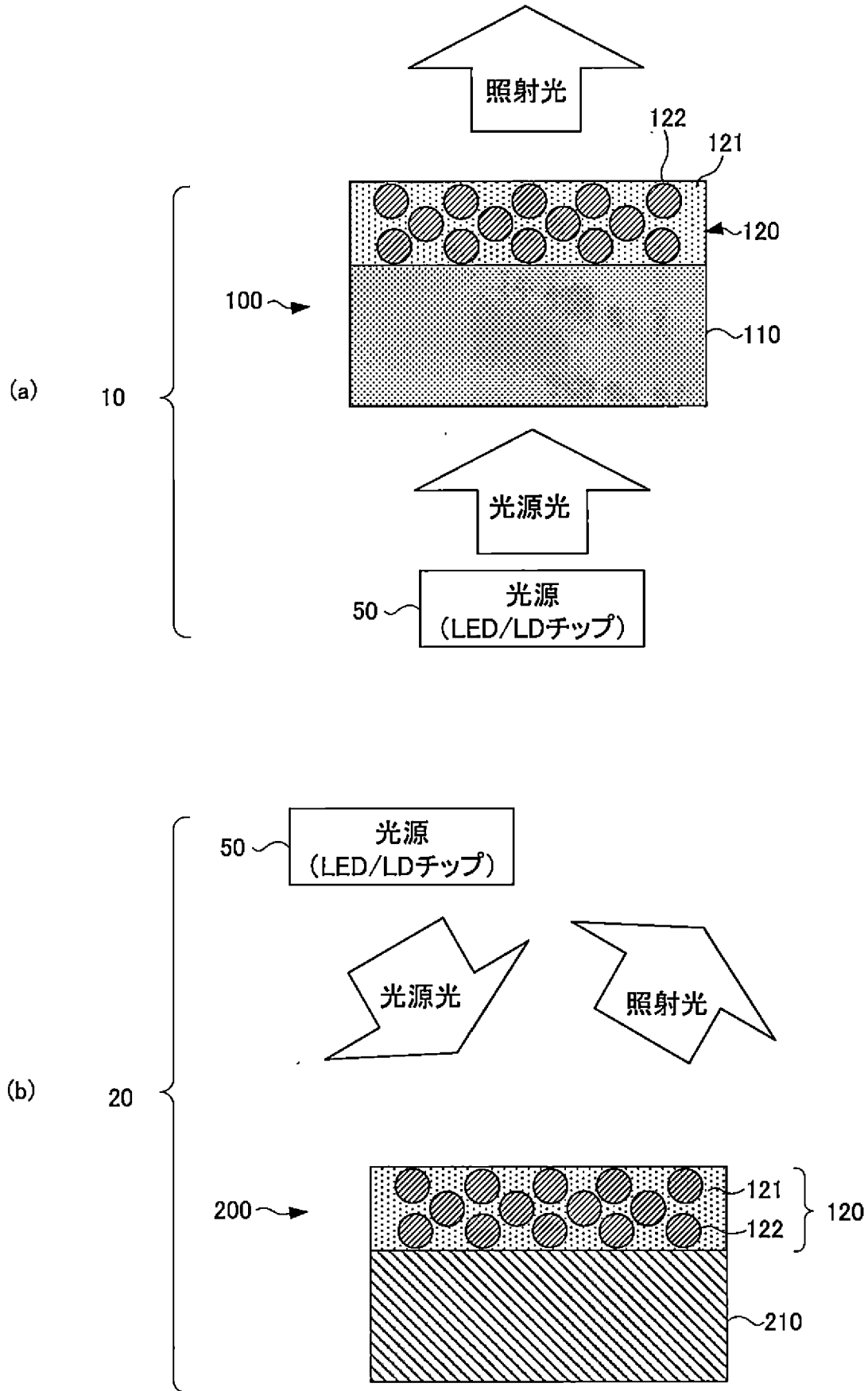
- 520 シルクスクリーン
- 600 炉
- 700 評価システム
- 710 光源
- 720 平凸レンズ
- 730 両凸レンズ
- 735 バンドパスフィルタ
- 740 パワーメータ

請求の範囲

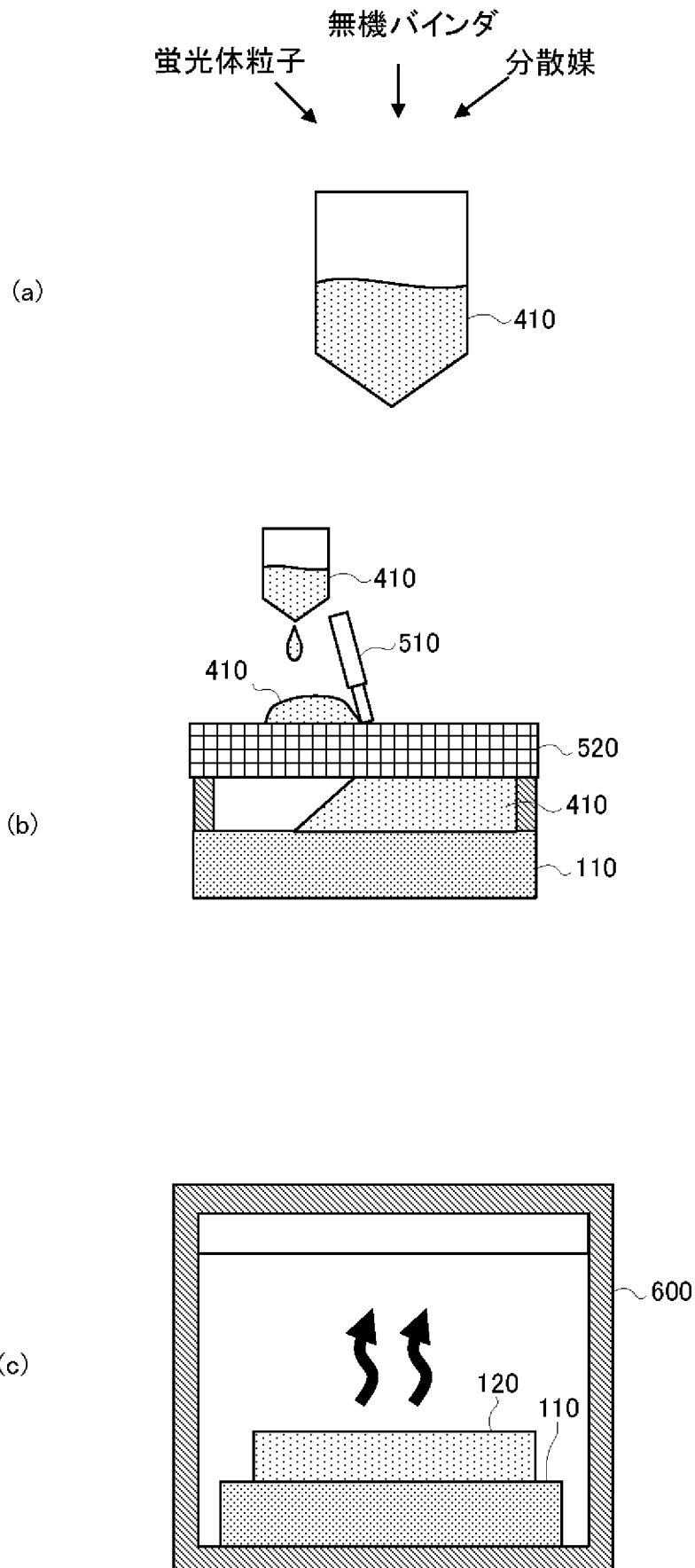
- [請求項1] 特定範囲の波長の光を他の波長の光に変換する波長変換部材であって、
無機材料からなる基材と、
前記基材に接合され、吸収光に対し変換光を発する蛍光体粒子と前記蛍光体粒子同士を結合する透光性セラミックスとからなる蛍光体層と、を備え、
前記蛍光体粒子は、所定の粒子径の分布を有する2種類の粒子を含み、
前記2種類の粒子のうち、平均粒子径の大きい大粒子の平均粒子径と平均粒子径の小さい小粒子の平均粒子径との比が2～4であり、
前記大粒子の体積と前記小粒子の体積との比が5.7以下であることを特徴とする波長変換部材。
- [請求項2] 前記大粒子の体積と前記小粒子の体積との比は、4以下であることを特徴とする請求項1記載の波長変換部材。
- [請求項3] 前記大粒子の体積と前記小粒子の体積との比は、1.5以上であることを特徴とする請求項1または請求項2記載の波長変換部材。
- [請求項4] 前記大粒子の平均粒子径は、10～20 μm であり、
前記小粒子の平均粒子径は、2.5～10 μm であることを特徴とする請求項1から請求項3のいずれかに記載の波長変換部材。
- [請求項5] 特定範囲の波長の光源光を発生させる光源と、
前記光源光を吸収し、他の波長の光に変換し発光する請求項1から請求項4のいずれかに記載の波長変換部材と、を備えることを特徴とする発光装置。
- [請求項6] 特定範囲の波長の光を他の波長の光に変換する波長変換部材の製造方法であって、
平均粒子径の異なる蛍光体粒子を準備し、前記蛍光体粒子のそれぞれを所定の割合で含むペーストを作製する工程と、

前記ペーストを基材に塗布する工程と、
前記ペーストが塗布された基材を熱処理する工程と、を含むことを
特徴とする波長変換部材の製造方法。

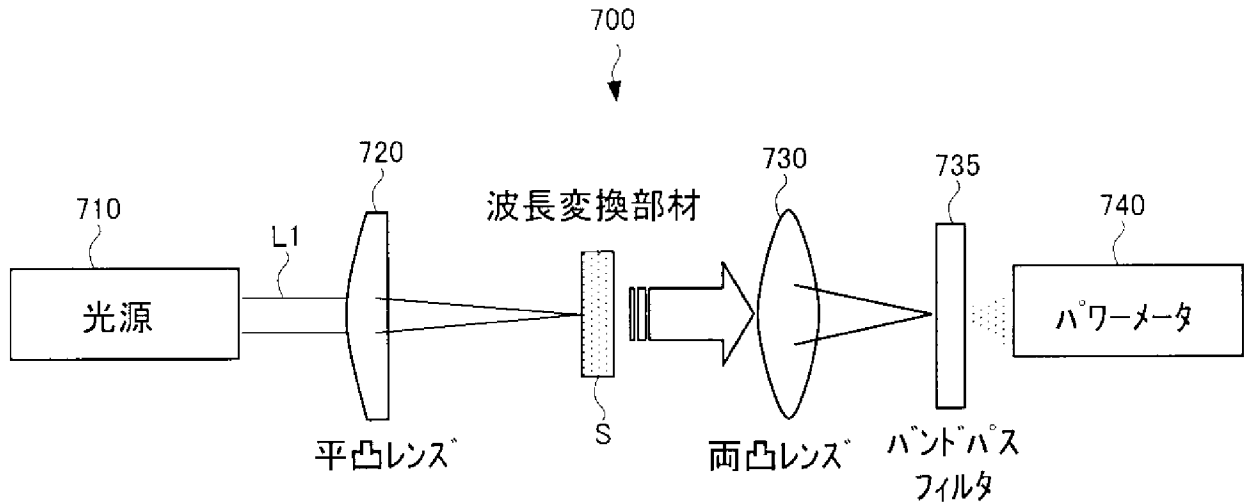
[図1]



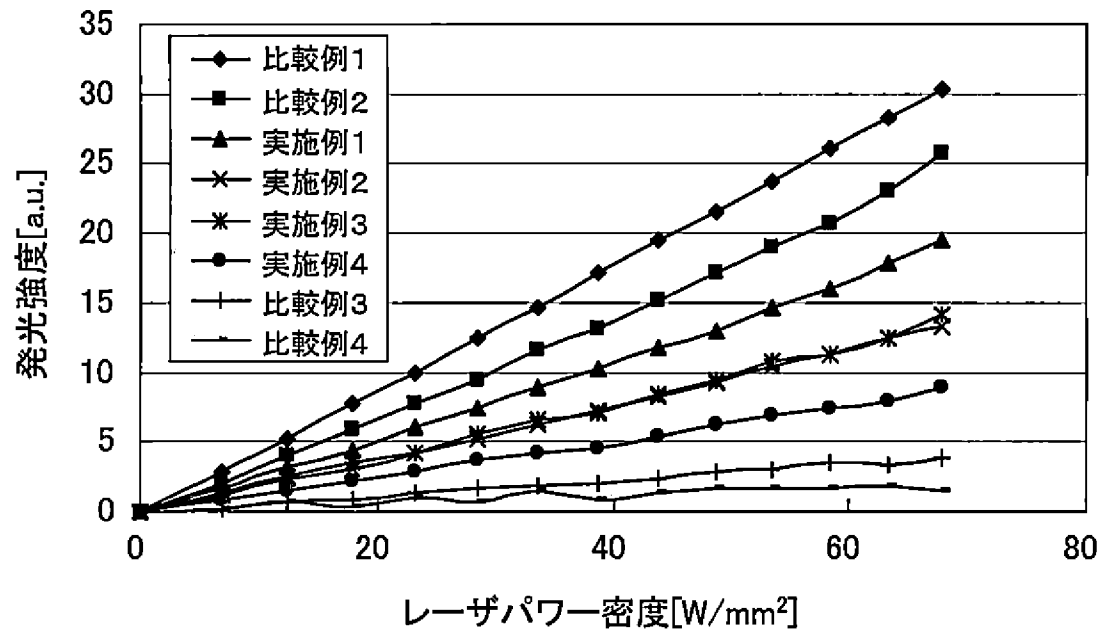
[図2]



[図3]

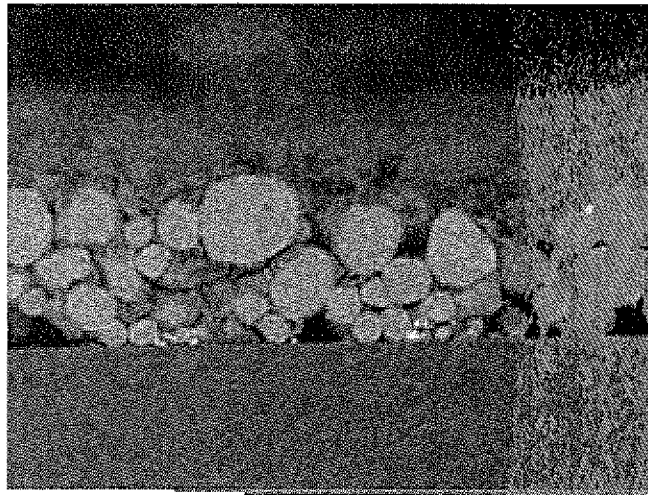


[図4]



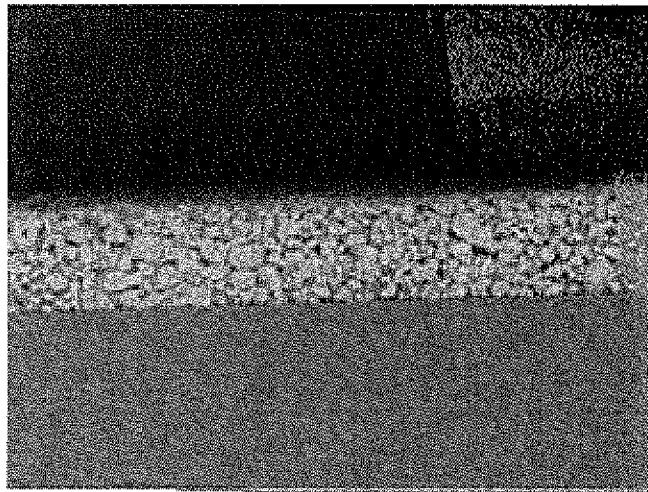
[図5]

(a)



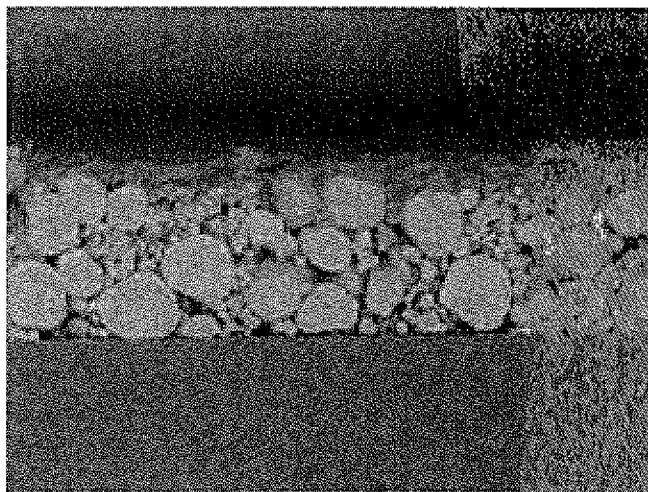
Miniscope5130 2016/02/04 11:45 NL D5.1 × 1.0λ 100 μm

(b)



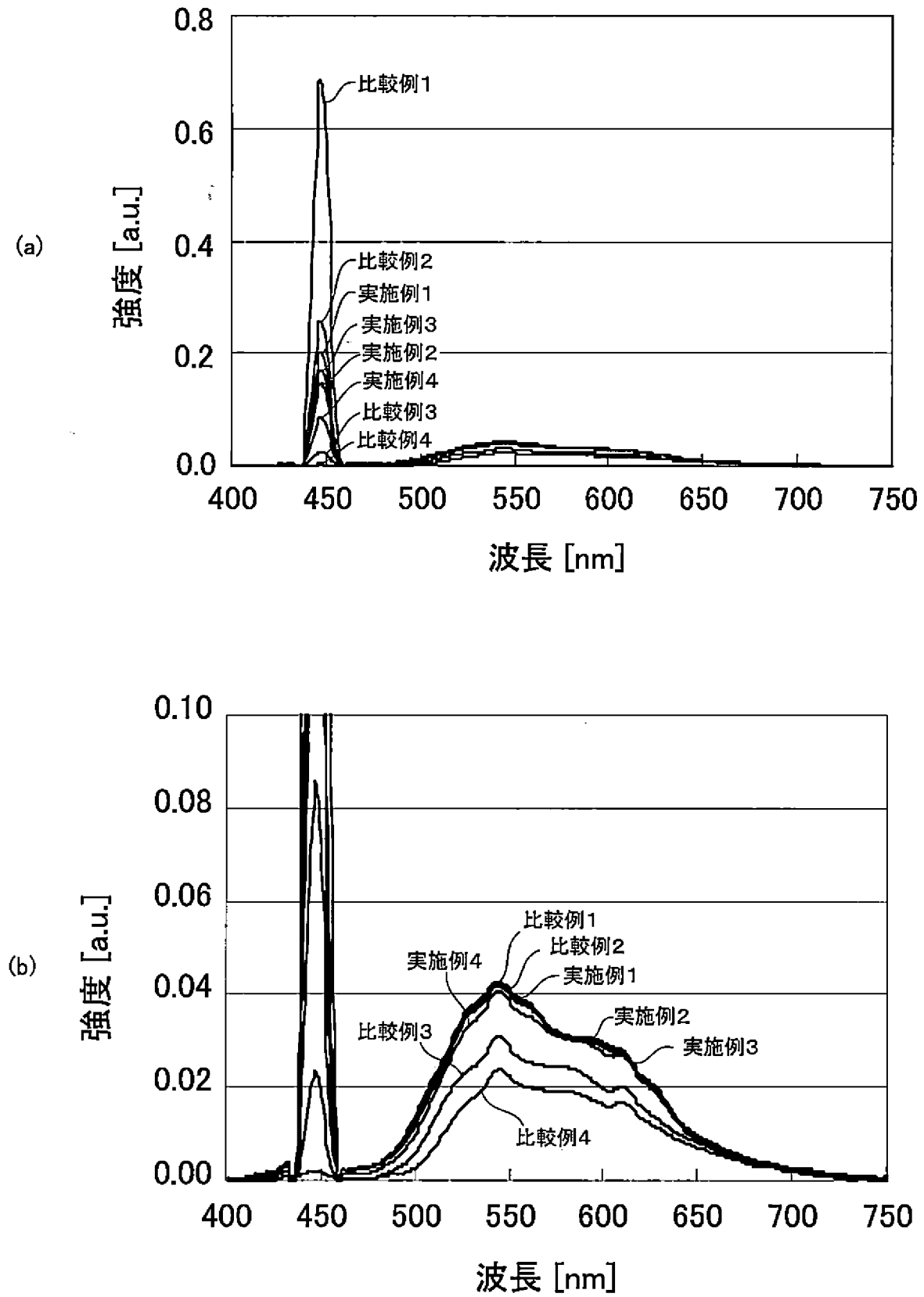
Miniscope5172 2016/02/04 14:53 NL D5.7 × 1.0λ 100 μm

(c)

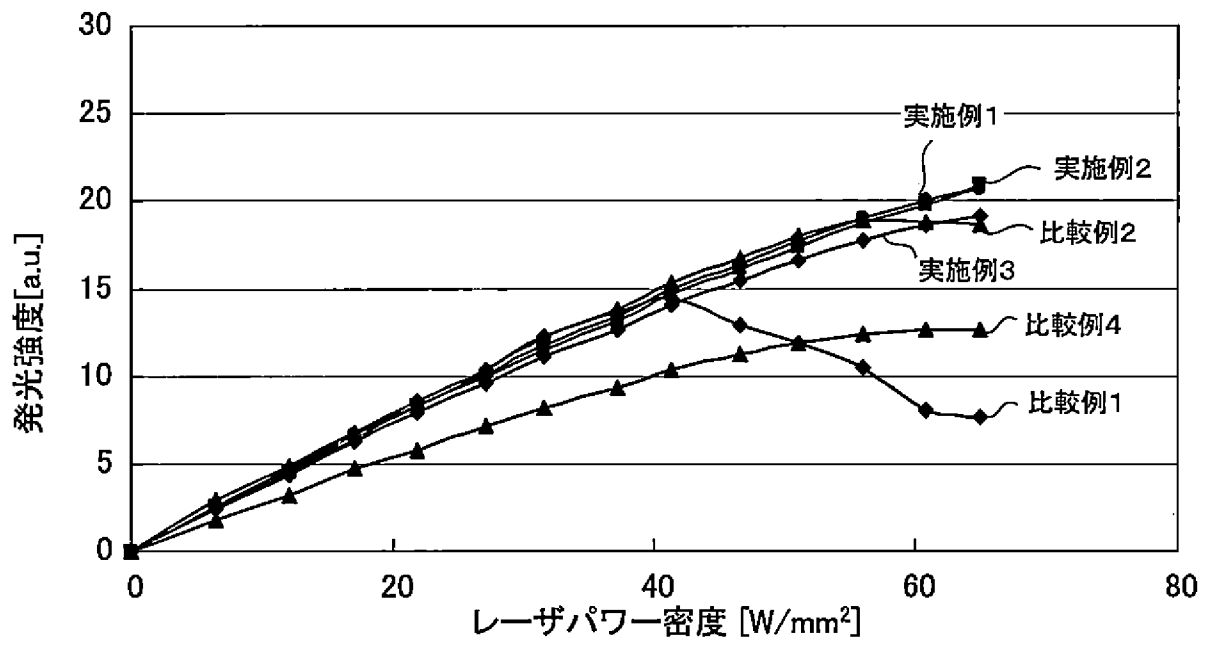


Miniscope5146 2016/02/04 13:52 NL D5.5 × 1.0λ 100 μm

[図6]



[図7]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/016240

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

G02B5/20(2006.01)i, C09K11/08(2006.01)i, H01L33/50(2010.01)i, H01S5/02(2006.01)i

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)

G02B5/20, C09K11/08, H01L33/50, H01S5/02

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2017
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2017	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2017

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y A	JP 2011-238811 A (Konica Minolta Opto, Inc.), 24 November 2011 (24.11.2011), claims 1 to 6; paragraph [0042] & US 2011/0279012 A1 claims 1 to 5; paragraphs [0101] to [0103]	6 1-5
Y A	JP 2015-119172 A (Nihon Ceratec Co., Ltd.), 25 June 2015 (25.06.2015), paragraph [0047] & KR 10-2015-0055578 A & TW 201535800 A	6 1-5
A	JP 2015-149394 A (Stanley Electric Co., Ltd.), 20 August 2015 (20.08.2015), entire text & US 2015/0219291 A1	1-6

 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
04 September 2017 (04.09.17)Date of mailing of the international search report
12 September 2017 (12.09.17)Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/016240

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2009-280793 A (Kyocera Corp.), 03 December 2009 (03.12.2009), entire text (Family: none)	1-6
A	JP 4-332457 A (Toshiba Lighting & Technology Corp.), 19 November 1992 (19.11.1992), entire text (Family: none)	1-6
P, X P, A	JP 2016-204561 A (Taiheiyo Cement Corp.), 08 December 2016 (08.12.2016), claims 1 to 5; fig. 1 (comparative example 9) (Family: none)	1-5 6

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. G02B5/20(2006.01)i, C09K11/08(2006.01)i, H01L33/50(2010.01)i, H01S5/02(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. G02B5/20, C09K11/08, H01L33/50, H01S5/02

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2017年
日本国実用新案登録公報	1996-2017年
日本国登録実用新案公報	1994-2017年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y A	JP 2011-238811 A（コニカミノルタオプト株式会社）2011.11.24, [請求項1]-[請求項6], [0042] & US 2011/0279012 A1, Claims 1-5, [0101]-[0103]	6 1-5
Y A	JP 2015-119172 A（株式会社日本セラテック）2015.06.25, [0047] & KR 10-2015-0055578 A & TW 201535800 A	6 1-5
A	JP 2015-149394 A（スタンレー電気株式会社）2015.08.20, 全文 & US 2015/0219291 A1	1-6

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

04.09.2017

国際調査報告の発送日

12.09.2017

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（ISA/J P）
 郵便番号100-8915
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

中村 博之

電話番号 03-3581-1101 内線 3271

20

3709

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2009-280793 A (京セラ株式会社) 2009. 12. 03, 全文 (ファミリーなし)	1-6
A	JP 4-332457 A (東芝ライテック株式会社) 1992. 11. 19, 全文 (ファミリーなし)	1-6
P, X P, A	JP 2016-204561 A (太平洋セメント株式会社) 2016. 12. 08, [請求項 1]-[請求項 5], [図 1] (比較例 9) (ファミリーなし)	1-5 6