

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

(19) Weltorganisation für geistiges
Eigentum

Internationales Büro

(43) Internationales
Veröffentlichungsdatum
1. September 2016 (01.09.2016)



(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 2016/135057 A1

(51) Internationale Patentklassifikation:
C09K 11/80 (2006.01)

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2016/053540

(22) Internationales Anmeldedatum:
19. Februar 2016 (19.02.2016)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:
10 2015 102 842.5
27. Februar 2015 (27.02.2015) DE

(71) Anmelder: **LEUCHTSTOFFWERK BREITUNGEN GMBH** [DE/DE]; Lange Sömmle 17, Breitungen, 98597 (DE). **FRAUNHOFER-GESELLSCHAFT ZUR FÖRDERUNG DER ANGEWANDTEN FORSCHUNG E.V.** [DE/DE]; Hansastraße 27c, 80686 München (DE).

(72) Erfinder: **RÖSLER, Sven**; Scheidlerstraße 26, 99817 Eisenach (DE). **RÖSLER, Sylke**; Scheidlerstraße 26, 99817 Eisenach (DE). **KEMPFERT, Wolfgang**; Marienthaler Weg 5, 36448 Bad Liebenstein (DE). **BARTH, Stefan**; Karl-Günther-Straße 22, 07749 Jena (DE). **LUDWIG, Henry**; Rudolf-Scheffel-Straße 2b, 07548 Gera (DE). **OVERBACH, Uta**; Am Stichel 13, 07629 Reichenbach (DE).

(74) Anwalt: **ENGEL, Christoph K.**; Marktplatz 6, 98527 Suhl (DE).

(81) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare nationale Schutzrechtsart): 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, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, 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.

(84) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare regionale Schutzrechtsart): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), europäisches (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).

Erklärungen gemäß Regel 4.17:

— *Erfindererklärung (Regel 4.17 Ziffer iv)*

Veröffentlicht:

— *mit internationalem Recherchenbericht (Artikel 21 Absatz 3)*

(54) Title: PHOSPHOR COMPOSITE CERAMIC AND METHOD FOR THE PRODUCTION THEREOF

(54) Bezeichnung : LEUCHTSTOFFKOMPOSITKERAMIK SOWIE VERFAHREN ZU DEREN HERSTELLUNG

(57) Abstract: The present invention first relates to a phosphor composite ceramic which can be used, for example, for the conversion of light within a white luminous LED. The invention also relates to a method for producing a phosphor composite ceramic. The phosphor composite ceramic according to the invention comprises a polycrystalline ceramic material, in which a plurality of individual particles of a phosphor are introduced. The particles of the phosphor are respectively enclosed in the structure of the ceramic material. According to the invention, the ceramic material is formed by a spinel.

(57) Zusammenfassung: Die vorliegende Erfindung betrifft zunächst eine Leuchtstoffkompositkeramik, die beispielsweise zur Konvertierung von Licht innerhalb einer weißleuchtenden LED verwendet werden kann. Im Weiteren betrifft die Erfindung ein Verfahren zur Herstellung einer Leuchtstoffkompositkeramik. Die erfindungsgemäße Leuchtstoffkompositkeramik umfasst einen polykristallinen keramischen Werkstoff, in welchen eine Vielzahl einzelner Partikel eines Leuchtstoffes eingebracht ist. Die Partikel des Leuchtstoffes sind jeweils im Gefüge des keramischen Werkstoffes eingeschlossen. Erfindungsgemäß ist der keramische Werkstoff durch einen Spinell gebildet.



WO 2016/135057 A1

**Leuchtstoffkompositkeramik sowie Verfahren zu deren
Herstellung**

5

10

Die vorliegende Erfindung betrifft zunächst eine Leuchtstoffkompositkeramik, die beispielsweise zur Konvertierung von Licht innerhalb einer weißleuchtenden LED verwendet werden kann. Im Weiteren betrifft die Erfindung ein Verfahren zur Herstellung einer Leuchtstoffkompositkeramik.

15

20

25

30

Aus dem Stand der Technik bekannte weißleuchtende LEDs bestehen im Wesentlichen aus einem Grundkörper, einem blau emittierenden Halbleiterchip und einer den Halbleiterchip überdeckenden Schicht aus einem Leuchtstoff, der in einer Matrix aus organischem Material eingebunden ist. Dieser Aufbau, insbesondere die Schicht aus dem konvertierenden Leuchtstoff, ist mit einigen Nachteilen behaftet. Da ist zum einen die begrenzte photochemische Stabilität der zumeist verwendeten organischen Binder, wie z. B. Epoxid oder Silikon, gegenüber der intensiveren blauen Strahlung des Halbleiterchips. Aber auch die steigende Temperatur in der Umgebung des Halbleiterchips führt zu irreversiblen Schädigungen des organischen Matrixmaterials. Darüber hinaus bewirkt die erhöhte Temperatur am Ort des Leuchtstoffes, die sowohl durch Wärmeentwicklung im Halbleiterchip als auch durch Wärmeentwicklung im Leuchtstoff selbst aufgrund von Stokes'schen Verlusten und einer Quanteneffizienz kleiner Eins hervorgerufen wird, eine reversible thermische Löschung der Emission.

Die gemäß dem Stand der Technik verwendeten organischen Matrixmaterialien haben eine geringe thermische Leitfähigkeit

von etwa 0,15 W/mK bis 0,25 W/mK, sodass die entstehende Wärme nur unzureichend abgeführt werden kann. Ein weiterer Nachteil der Einbindung des Leuchtstoffes in die Matrix aus dem organischen Material besteht darin, dass an den Grenzflächen zwischen den Körnern des Leuchtstoffes und dem organischen Matrixmaterial eine erhebliche Rückstreuung der Anregungsstrahlung stattfindet. Als Ursache für diese starken Rückstreuverluste muss die beträchtliche Brechzahl-Differenz $\Delta n > 0,3$ zwischen dem anorganischen Leuchtstoff und dem organischen Material der Matrix in Betracht gezogen werden. So kommt es einerseits beim Einkoppeln der Anregungsstrahlung aus der organischen Matrix in den Leuchtstoff zu erheblicher Rückstreuung aufgrund von Totalreflexion an der Grenzfläche. Diese reflektierte Strahlung wird weitgehend vom Halbleiterchip absorbiert. Hierdurch muss mit Verlusten von bis zu 30 % gerechnet werden. Aber auch das Auskoppeln der konvertierten Strahlung aus dem Leuchtstoff in die organische Matrix ist mit großen Verlusten aufgrund von Totalreflexion verbunden. Die genannten Nachteile können zum Teil dadurch umgangen werden, dass das organische Material der Matrix durch das anorganische Material Korund Al_2O_3 ersetzt wird. Im Falle dieses anorganischen Matrixsystems ist diese Differenz der Brechungsindizes wesentlich kleiner, sodass damit die Rückstreuverluste deutlich geringer ausfallen. Der wesentliche Nachteil der Al_2O_3 -Matrix der Keramik besteht jedoch darin, dass Korund aufgrund seiner hexagonalen Kristallstruktur eine Doppelbrechung aufweist, die in der polykristallinen Keramik zu Streuverlusten führt. Streuverluste entstehen in polykristallinem Gefüge durch Streuung an Poren, Defekten an der Oberfläche, Rauheit sowie durch Aufspaltung des Lichtstrahles in zwei Komponenten beim Übergang von einem Kristallit des Gefüges in den nächsten Kristallit, was eine Doppelbrechung darstellt. Dieser Effekt der Doppelbrechung

betrifft alle nicht kubischen Kristalle. Wenn mehrere Mechanismen zu Streuverlusten führen, ist in der Regel eine Dickenabhängigkeit der Transmission des Materials gegeben; d. h. mit zunehmender Materialstärke nimmt die Transmission ab.

Die WO 02/057198 A2 beschreibt die Zusammensetzung, Herstellung und Verwendung von polykristallinen Leuchtstoffkeramiken für Festkörperlaser. Diese hochtransparenten Konversionselemente haben den Nachteil, dass sich die Anregungsstrahlung aufgrund fehlender Streuzentren geradlinig durch das Material bewegt. Die Homogenität des abgestrahlten Lichtes über den Raumwinkel ist somit ungenügend.

Die US 2004/0145308 A1 zeigt eine Leuchtstoffkeramik, die aus Yttriumaluminat (YAG) besteht, nachträglich mit einer Aktivatorlösung getränkt und abschließend thermisch behandelt wird. Besonders nachteilig ist bei dieser Lösung, dass die Aktivierung nicht homogen erfolgt und somit in der Leuchtstoffkeramik keine gleichmäßige Strahlungskonversion stattfinden kann.

Die DE 103 49 038 A1 beschreibt eine Leuchtstoffkeramik, die aus Cer-aktiviertem Yttriumaluminat (YAG:Ce) mit einem geringen Anteil an Al_2O_3 als Sinterhilfsmittel besteht. Die nötigen Streuzentren sollen durch verbliebene Poren und Fremdphasen bereitgestellt werden. Zwar liefert diese Lösung eine Konversionsschicht mit verbesserter Wärmeleitfähigkeit von bis zu 15 W/mK, jedoch ist der Herstellungsaufwand wegen des fast 100%igen Einsatzes von YAG:Ce hoch. Insbesondere die recht großen Leuchtstoffkörner des Ausgangsmaterials weisen

eine nur geringe Sinteraktivität auf, welche die Ausbildung einer Keramik wesentlich erschwert.

Die US 8.883.116 B2 zeigt die Verwendung von
5 alpha-Aluminiumoxid als Matrix für einen Leuchtstoff, um Leuchtstoffpulver mit Partikelgrößen im Sub-Mikrometer-Bereich herstellen zu können, welches zur inneren Beschichtung einer Leuchtstofflampe dienen soll.

10 Die DE 10 2006 037 730 A1 lehrt einen keramischen aus einem Leuchtstoffmaterial bestehenden Leuchtstoffkörper. Bei dem Leuchtstoffmaterial handelt es sich bevorzugt um einen YAG-Leuchtstoff der Zusammensetzung
(Y, Gd, Lu, Tb)₃(Al, Ga)₅O₁₂:Ce, sodass es sich bei dem
15 beschriebenen Leuchtstoffkörper um einen monolithischen Keramikformkörper bestehend aus einem phasenreinen polykristallinen YAG handelt.

Die WO 2005/119797 A1 zeigt eine aus YAG:Ce bestehende
20 Leuchtstoffkeramik, deren Herstellung und deren spezielle Formgebung als Linse, Dom, Fresnell-Linse o. ä.

Die EP 0 816 537 A2 beschreibt eine poröse, polykristalline und mehrphasige Keramik sowie deren Herstellung und
25 Formgebung. Die Phasen der Keramik bestehen aus Selten-Erd-Aluminaten mit Granat- und/oder Perowskitstruktur, wobei die YAP-Phase YAlO₃ eine orthorhombische Kristallstruktur besitzt und demzufolge eine Doppelbrechung zeigt. Ein Einsatz als Konversionselement scheint zudem wenig aussichtsreich aufgrund
30 der Vielzahl an Poren und der damit verbundenen erheblichen Rückstreuung.

Die WO 2010/024981 A1 zeigt eine poröse Keramik, die neben Poren und Leuchtstoffpartikeln auch SnO:In als Matrixmaterial enthält.

5 Die WO 2010/141291 A1 beschreibt eine Keramik, die aus einem Granatleuchtstoff und aus einer zweiten Phase, bestehend aus Verbindungen des Al-Y-O-Systems, zusammengesetzt ist. Auch bei dieser Lösung ist die letztere Kristallphase doppelbrechend.

10 Die WO 2009/072029 A2 lehrt eine Leuchtstoffkeramik aus $\text{Sr}_{1-x-y}\text{M}_y\text{Si}_2\text{O}_2\text{N}_2:\text{Eu}_x$, deren Reflexionseigenschaften durch eine spezielle Führung des heißen isostatischen Pressens verändert wurde.

15 Die WO 2006/097876 A1 beschreibt eine Kompositkeramik aus YAG:Ce als Leuchtstoff und Al_2O_3 als Matrixbildner. Der Leuchtstoff ist mit max. 20 Vol.-% enthalten. Al_2O_3 besitzt eine hohe Wärmeleitfähigkeit von etwa 35 W/mK und bestimmt als Hauptkomponente die Wärmeleitfähigkeit der gesamten

20 Kompositkeramik. Ein Nachteil dieser Lösung besteht darin, dass durch die Verwendung von Al_2O_3 erhebliche Streuverluste infolge von Doppelbrechung auftreten. Diese Verluste lassen sich zum Teil kompensieren, wenn die Kompositkeramik aus Körnern zusammengesetzt ist, deren Dimension kleiner ist als die

25 Lichtwellenlänge. Die Bereitstellung derartiger submikroskaliger Leuchtstoffe ist sehr aufwändig und zudem sind derartige Leuchtstoffe wenig effizient. Daher sind nachträgliche Strukturierungen der Keramikoberfläche zur Verbesserung der Abstrahlhomogenität vorgeschlagen.

30 Die EP 1 369 935 A1 lehrt, dass der Leuchtstoffgehalt in einem Leuchtstoff-Matrix-Konversionselement 20 Vol.-% nicht

überschreiten soll, damit die Rückstreuverluste unter denen der Standard-LEDs von 20 % bis 30 % bleiben.

Die WO 2014/053951 A1 zeigt ein Konversionselement, welches
5 eine Al_2O_3 -Keramik umfasst, in deren Inneren sich ein
leuchtstoffgefüllter Hohlraum ausgebildet ist. Aufgrund der
guten Wärmeleitfähigkeit der Al_2O_3 -Keramik wird eine
hervorragende Wärmeabfuhr vom Leuchtstoff postuliert. Der
Aufbau des Elementes und deren Verarbeitung erscheinen jedoch
10 sehr aufwändig. Teile der Al_2O_3 -Keramik können auch durch eine
Spinell-, YAG- oder AlON-Keramik ersetzt sein.

Die WO 2007/063460 A1 beschreibt ein kombiniertes keramisches
Konversionselement, bei welchem die Leuchtstoffkeramik auf
15 einen keramischen Träger, der eine geeignete Brechzahl und
Wärmeleitung aufweist, aufgesintert wird. Als
Trägermaterialien kommen dabei insbesondere Al_2O_3 , Si,
Al-Si-O-N-Verbindungen, MgAl_2O_4 , YAG sowie diverse Metalle in
Betracht. Problematisch bei dieser Lösung sind der aufwändige
20 mehrstufige Herstellungsprozess und die Gefahr der Abplatzung
von Schichtteilen bei der abschließenden Trennung der Wafer in
einzelne Konversionselemente.

Die WO 2013/142276 A1 beschreibt ein kombiniertes keramisches
25 Konversionselement, bei welchem durch den keramischen Prozess
bereits die Endform vorgebildet wird.

Die WO 2014/056903 A1 zeigt, dass auf einem Trägermaterial
auch mehrere Schichten unterschiedlicher Leuchtstoffkeramiken
30 aufgebracht werden können. In allen Fällen ist die
Wärmeleitung innerhalb einer Schicht jedoch noch immer
deutlich geringer als innerhalb der Trägerschicht.

Die WO 2014/013406 A1 zeigt die Möglichkeit, Konversionskeramiken und Leuchtstoff-Binder-Pasten zu kombinieren.

5 In der WO 2008/017353 A1 ist die Möglichkeit erwähnt, eine gefertigte Leuchtstoffkeramik abschließend auf der einem Halbleiterchip zugewandten Seite zu entspiegeln, um die Rückstreuung der Anregungsstrahlung zu verringern. Die dafür
10 nötige Schichtdicke d soll dem Zusammenhang $d = \lambda_{\text{LED}} / (4 * d_{\text{Keramik}})$ entsprechen, wobei λ_{LED} die Wellenlänge der Anregungsstrahlung und d_{Keramik} den Brechungsindex der Keramik darstellt. Es wird zudem eine Oberflächenstrukturierung der Keramik auf der dem Halbleiterchip abgewandten Seite durch Nutzung eines
15 entsprechend strukturierten Presswerkzeuges oder durch nachträgliches Aufbringen von Nanopartikeln vorgestellt, wodurch die Rückstreuung des emittierten Lichtes verringert werden soll.

Die Aufgabe der vorliegenden Erfindung besteht ausgehend vom
20 Stand der Technik darin, eine Leuchtstoffkompositkeramik und ein Verfahren zu deren Herstellung bereitzustellen, in welcher ein effizienter Leuchtstoff eingebracht ist und das Licht in der Leuchtstoffkompositkeramik kaum Streuverluste erfährt.

25 Die genannte Aufgabe wird gelöst durch eine Leuchtstoffkompositkeramik gemäß dem beigefügten Anspruch 1. Die Aufgabe wird weiterhin gelöst durch ein Verfahren zum Herstellen einer Leuchtstoffkompositkeramik gemäß dem beigefügten nebengeordneten Anspruch 7 sowie durch eine
30 Leuchtstoffkompositkeramik gemäß dem beigefügten nebengeordneten Anspruch 10.

Die erfindungsgemäße Leuchtstoffkompositkeramik dient der Konversion elektromagnetischer Strahlung; insbesondere der Konversion von Licht, beispielsweise in einer weißleuchtenden LED. Die erfindungsgemäße Leuchtstoffkompositkeramik kann
5 daher auch als keramisches Konvertermaterial bezeichnet werden. Sie umfasst einen polykristallinen keramischen Matrixwerkstoff, in welchem eine Vielzahl einzelner Partikel eines Leuchtstoffes verteilt ist; besonders bevorzugt homogen verteilt ist. Entsprechend besteht die erfindungsgemäße
10 Leuchtstoffkompositkeramik zumindest aus dem keramischen Matrixwerkstoff und dem Leuchtstoff, wobei der keramische Matrixwerkstoff eine keramische Matrix bildet, welche für die den Leuchtstoff anregende Strahlung und die vom Leuchtstoff emittierbare Strahlung zumindest teilweise transparent ist.
15 Der Leuchtstoff ist mit mindestens einem Aktivator dotiert, um als ein technischer Leuchtstoff fungieren zu können.

Bei den Partikeln des Leuchtstoffes handelt es sich insbesondere um Körner. Die Partikel des Leuchtstoffes sind
20 jeweils im Gefüge des polykristallinen keramischen Matrixwerkstoffes eingeschlossen. Die erfindungsgemäße Leuchtstoffkompositkeramik ist dadurch gekennzeichnet, dass der polykristalline keramische Matrixwerkstoff, bei welchem es sich nicht um einen Leuchtstoff handelt, und der genannte
25 Leuchtstoff gemeinsam einem keramischen Prozess unterzogen worden sind. Es handelt sich bei der erfindungsgemäßen Leuchtstoffkompositkeramik somit nicht um eine so genannte Leuchtstoffkeramik, die lediglich aus einem Leuchtstoffmaterial besteht, welches einem keramischen Prozess
30 unterzogen worden ist. Auch handelt es sich nicht um eine Verbundkeramik bestehend aus mehreren Schichten.

Erfindungsgemäß ist der keramische Matrixwerkstoff durch einen kubischen Spinell gebildet; d. h. der keramische Matrixwerkstoff umfasst im Wesentlichen einen Spinell. Bei dem Spinell handelt es sich eine chemische Verbindung des
5 allgemeinen Typs AB_2X_4 , wobei A und B Metallkationen sind, deren Oxidationszahl die Summe 8 ergibt, und X überwiegend ein zweiwertiges Chalkogenid- Anion, wie z. B. O^{2-} bzw. S^{2-} ist. Das Kristallgitter der Spinelle wird durch eine kubisch dichteste Kugelpackung der Anionen gebildet, deren Tetraederlücken zu
10 einem Achtel und deren Oktaederlücken zur Hälfte mit den entsprechenden Metallkationen besetzt sind. Die Chalkogenid-Anionen können dabei partiell durch Pnictid-Anionen ersetzt werden, sodass daraus hoch komplexe Spinell-Verbindungen entstehen, wie z. B. die kubischen Defektspinelle der
15 Zusammensetzung $Al_{23-x/3}O_{27+x}N_{5-x}$, bei denen die positive Überschussladung der Al^{3+} -Ionen durch dreiwertige N^{3-} -Anionen kompensiert wird und die als Aluminiumoxynitrid (AlON) in der technischen Keramik als transparentes optisches Material zur Anwendung kommen. Besonders bevorzugt handelt es sich bei dem
20 Spinell um $MgAl_2O_4$, $ZnAl_2O_4$ oder AlON, d. h. der Spinell umfasst im Wesentlichen $MgAl_2O_4$, $ZnAl_2O_4$ oder AlON. Besonders bevorzugt besteht der keramische Matrixwerkstoff aus $MgAl_2O_4$, $ZnAl_2O_4$ oder AlON oder auch aus Mischungen der genannten Spinelle.

25 Kubische transparente Materialien, wie die Spinelle (z. B. $MgAl_2O_4$, $ZnAl_2O_4$, AlON) weisen gegenüber hexagonalen Materialien wie Al_2O_3 geringere Streuverluste und damit höhere Werte der Transmission auf, da sie keine Doppelbrechung bewirken. Aufgrund der kubischen Kristallstruktur ist hierbei eine
30 Reduzierung der Korngröße im Gefüge in den Bereich der Wellenlänge des sichtbaren Lichtes wie im Falle von Al_2O_3 nicht zwingend erforderlich. Die erfindungsgemäße Leuchtstoffkompositkeramik zeichnet sich durch den Spinell als

anorganischen Matrixbildner im Gegensatz zu organischen Bindern aus. Der Spinell führt zu einer hohen Wärmeleitfähigkeit der Leuchtstoffkompositkeramik von etwa 15 W/mK, die deutlich größer als die in kunststoffbasierten Kompositen ist. Der Leuchtstoff der erfindungsgemäßen Leuchtstoffkompositkeramik weist im Falle einer bevorzugten Ausführungsform, bei welcher der Leuchtstoff durch einen YAG-Leuchtstoff gebildet ist, ebenfalls eine Wärmeleitfähigkeit von etwa 15 W/mK auf. Aufgrund dieser sehr ähnlich großen Wärmeleitfähigkeit sind thermische Spannungen, die zu Verlustprozessen führen würden, in der erfindungsgemäßen Leuchtstoffkompositkeramik vermieden.

Der Leuchtstoff der erfindungsgemäßen Leuchtstoffkompositkeramik weist im Falle einer bevorzugten Ausführungsform, bei welcher der Leuchtstoff durch einen YAG-Leuchtstoff gebildet ist, eine Brechzahl auf, die sich von der Brechzahl des Spinells um nur weniger als 0,2 unterscheidet. Hingegen unterscheiden sich bei den aus dem Stand der Technik bekannten organisch basierten Leuchtstoffkompositen die Brechzahlen von Leuchtstoff und Binder um deutlich mehr als 0,3. Folglich sind die durch die Brechzahldifferenz hervorgerufenen Rückstreuungen bei der erfindungsgemäßen Leuchtstoffkompositkeramik deutlich verringert.

Bei bevorzugten Ausführungsformen der erfindungsgemäßen Leuchtstoffkompositkeramik besteht diese überwiegend aus dem keramischen Matrixwerkstoff. Entsprechend besteht die erfindungsgemäße Leuchtstoffkompositkeramik überwiegend aus dem Spinell. Der Anteil des Spinells an der Leuchtstoffkompositkeramik beträgt bevorzugt zwischen 60 Ma.-% und 99,9 Ma.-%.

Bei bevorzugten Ausführungsformen der erfindungsgemäßen Leuchtstoffkompositkeramik beträgt der Anteil des Leuchtstoffes an der Leuchtstoffkompositkeramik zwischen 0,1 Ma.-% und 40 Ma.-%. Dieser Anteil beträgt besonders
5 bevorzugt zwischen 3 Ma.-% und 10 Ma.-%.

Der Leuchtstoff ist bevorzugt durch einen Konversionsleuchtstoff gebildet, der durch elektromagnetische Strahlung in einem ersten Wellenlängenbereich anregbar ist,
10 wodurch vom Leuchtstoff elektromagnetische Strahlung in einem zweiten vom ersten Wellenlängenbereich verschiedenen Wellenlängenbereich emittierbar ist. Diese Eigenschaft des Leuchtstoffes verleiht der Leuchtstoff auch der gesamten Leuchtstoffkompositkeramik. Die elektromagnetische Strahlung
15 des ersten Wellenlängenbereiches und die elektromagnetische Strahlung des zweiten Wellenlängenbereiches sind bevorzugt jeweils durch Licht, UV-Strahlung und/oder IR-Strahlung gebildet. Besonders bevorzugt ist die elektromagnetische Strahlung des ersten Wellenlängenbereiches durch blaues Licht
20 gebildet. Besonders bevorzugt ist die elektromagnetische Strahlung des zweiten Wellenlängenbereiches durch grünes, gelbes, oranges und/oder rotes Licht gebildet.

Der Leuchtstoff ist bevorzugt durch einen Granatleuchtstoff gebildet. Der Granatleuchtstoff ist bevorzugt durch einen YAG-Leuchtstoff gebildet. Der YAG-Leuchtstoff weist bevorzugt ein Wirtsgitter der chemischen Formel $Y_3Al_5O_{12}$ auf, welches mit Cer als Aktivator dotiert ist. Der Leuchtstoff ist alternativ
25 bevorzugt durch einen Silikatleuchtstoff gebildet. Der Silikatleuchtstoff weist bevorzugt ein Wirtsgitter der chemischen Formel A_2SiO_4 mit $A = Ba, Sr$ und/oder Ca auf, welches mit Europium als Aktivator dotiert ist. Grundsätzlich
30

kann der Leuchtstoff der erfindungsgemäßen Leuchtstoffkompositkeramik auch durch einen anderen technischen Leuchtstoff oder durch mehrere verschiedene technische Leuchtstoffe gebildet sein.

5

Die mittlere Größe der Partikel des Leuchtstoffes beträgt bevorzugt zwischen 2 µm und 20 µm. Die Partikel des Leuchtstoffes sind bevorzugt homogen in der Leuchtstoffkompositkeramik verteilt. Grundsätzlich sind die Partikel des Leuchtstoffes innerhalb der räumlichen Erstreckung der Leuchtstoffkompositkeramik verteilt.

10

Die erfindungsgemäße Leuchtstoffkompositkeramik ist bevorzugt als eine Scheibe ausgebildet, um insbesondere als eine Konverterscheibe in einer weißleuchtenden LED fungieren zu können. Die Scheibe weist bevorzugt planparallele Oberflächen auf. Die Scheibe besitzt eine Dicke, d. h. einen Abstand der beiden planparallelen Oberflächen bevorzugt zwischen 0,1 mm und 1 mm.

15

20

Die erfindungsgemäße Leuchtstoffkompositkeramik kann überall dort eingesetzt werden, wo neben einer Primärstrahlung eine zweite, unterscheidbare Strahlung benötigt wird, welche durch Konversion aus der ersten Strahlung entsteht. Typische Anwendungsfelder der erfindungsgemäßen Leuchtstoffkompositkeramik sind dabei LEDs, Laserdioden, Projektoren u. ä.

25

Die erfindungsgemäße Leuchtstoffkompositkeramik ist bevorzugt derart ausgebildet, dass sie gemeinsam mit einer blauleuchtenden LED eine weiße Lichtquelle bildet. Das Licht der weißen Lichtquelle trifft im CIE-Diagramm die Weißlichtkurve eines Planck'schen Strahlers bevorzugt dann,

30

wenn die Dicke der Leuchtstoffkompositkeramik im Bereich von 0,1 mm und 1,0 mm liegt und wenn die Leuchtstoffkompositkeramik einen Anteil des Leuchtstoffes zwischen 2 Ma.-% und 40 Ma.-% aufweist.

5

Das erfindungsgemäße Verfahren dient der Herstellung einer Leuchtstoffkompositkeramik. In einem Schritt des Verfahrens wird ein pulverförmiger Spinell bereitgestellt, der als anorganischer Matrixwerkstoff fungieren wird. Weiterhin wird
10 ein Leuchtstoff in Form von Partikel bereitgestellt, die durch den anorganischen Matrixwerkstoff gebunden werden sollen. Der bereitgestellte Leuchtstoff ist bereits mit mindestens einem Aktivator dotiert, um als ein technischer Leuchtstoff fungieren zu können. In einem weiteren Schritt des
15 erfindungsgemäßen Verfahrens werden der pulverförmige Spinell und die Partikel des Leuchtstoffes zu einer Mischung vermischt. Das Vermischen erfolgt bevorzugt homogen. In einem weiteren Schritt wird die Mischung zu einer Leuchtstoffkompositkeramik gesintert. Folglich durchlaufen der
20 Leuchtstoff und der Spinell den keramischen Prozess gemeinsam.

Das Vermischen des pulverförmigen Spinells und der Partikel des Leuchtstoffes erfolgt bevorzugt dadurch, dass der pulverförmige Spinell in einer wässrigen Suspension mit den
25 Partikeln des Leuchtstoffes dispergiert wird. Das Dispergieren erfolgt bevorzugt in eine Mühle, beispielsweise in einer Hochleistungsrührwerkskugelmühle. Zum Dispergieren werden neben dem Spinell und dem Wasser bevorzugt weiterhin ein Verflüssiger und/oder ein Binde- und Gleitmittel genutzt.
30 Durch das Dispergieren entsteht ein Schlicker, welcher bevorzugt über ein Sieb abgesiebt wird.

In einem bevorzugt durchzuführenden Schritt wird die Mischung bzw. der Schlicker zunächst zu einem Granulat granuliert. Hierfür wird der Schlicker bevorzugt in einem Sprühturm versprüht. Das erhaltene Granulat wird bevorzugt über ein Sieb abgesiebt.

In einem weiteren bevorzugt durchzuführenden Schritt erfolgt ein Pressen der Mischung bzw. des Granulates zu einem Grünkörper. Das Pressen erfolgt bevorzugt als Trockenpressen. Das Pressen erfolgt bevorzugt uniaxial mit einer hydraulischen oder servoelektrischen Presse. Der Grünkörper weist bevorzugt die Form einer Scheibe mit einem Durchmesser bevorzugt zwischen 20 mm und 50 mm bzw. einer Kantenlänge bevorzugt zwischen 40 mm und 100 mm und einer Höhe bevorzugt zwischen 0,2 mm und 5 mm auf. Der spezifische Pressdruck beim Pressen liegt bevorzugt im Bereich zwischen 200 MPa und 300 MPa.

Das Sintern der Mischung bzw. des Granulates bzw. des Grünkörpers erfolgt bevorzugt in mehreren Teilschritten. Der Grünkörper bzw. das Granulat bzw. die Mischung wird bevorzugt thermisch entbindert; insbesondere durch eine thermische Behandlung bevorzugt zwischen 800 °C und 1.200 °C bevorzugt über eine Zeitdauer zwischen 10 Stunden und 100 Stunden. In einem weiteren bevorzugt durchzuführenden Teilschritt erfolgt ein Vorsintern durch ein Erwärmen in einer H₂- bzw. Formiergasatmosphäre auf eine Temperatur von bevorzugt zwischen 1.200 °C und 1.800 °C; besonders bevorzugt zwischen 1.400 °C und 1.600 °C; sodass ein vorgebrannter Körper entsteht. Das Vorsintern erfolgt bevorzugt so lang, bis keine offene Porosität mehr vorhanden ist. In einem weiteren Teilschritt erfolgt ein Nachverdichten in Form eines Erwärmens des vorgebrannten Körpers auf eine Temperatur zwischen 1.200 °C und 1.800 °C; besonders bevorzugt zwischen 1.400 °C

und 1.600 °C. Das Nachverdichten erfolgt bevorzugt heißisostatisch. Das Nachverdichten erfolgt bevorzugt unter einem Druck von mehr als 10 MPa; besonders bevorzugt mehr als 100 MPa; bevorzugt über eine Dauer von weniger als drei
5 Stunden; besonders bevorzugt zwischen einer und drei Stunden.

Die im Ergebnis des Sinterns erzeugte Leuchtstoffkompositkeramik wird bevorzugt planparallel geschliffen.

10

Ein besonderer Vorteil des erfindungsgemäßen Verfahrens besteht darin, dass der pulverförmige Spinell und der pulverförmige Leuchtstoff keine besondere Feinheit für den keramischen Prozess aufweisen müssen, wodurch der
15 Bereitstellungsaufwand im Vergleich zum Stand der Technik deutlich verringert ist.

20

Die für eine hohe Transparenz der herzustellenden Leuchtstoffkompositkeramik geforderte minimale Absorption erfordert den Einsatz von Ausgangsstoffen höchster Reinheit, die bevorzugt größer als 99,9 % ist. Verunreinigungen sowie eingebrachte Dotierungen würden Defekte bzw. Streuzentren erzeugen, die in jedem Fall die Transmission mindern würden. Die für die Durchsichtigkeit entscheidende Transmission des
25 nichtgestreuten geraden Lichtstrahles wird durch diffuse Streuung selbst bei geringster Restporosität erheblich vermindert. Deshalb ist die Eliminierung letzter hundertstel Prozent an Porosität entscheidend für eine hohe Transmission. Da diese extreme Verdichtung bei minimalem Kornwachstum
30 erfolgen muss, sind hohe Sintertemperaturen bzw. lange Haltezeiten nicht anwendbar. Deshalb kommt der heißisostatischen Nachverdichtung zur Erreichung nahezu theoretischer Dichte eine entscheidende Rolle zu. Zur

Erreichung derartiger Gefüge stellt das Trockenpressen als Formgebungsverfahren eine kostengünstige Herstellungstechnologie dar.

5 Bei bevorzugten Ausführungsformen des erfindungsgemäßen Verfahrens wird die Mischung bzw. der Grünkörper beim Sintern bis auf eine Sinterdichte von mehr als 99,5 % der theoretischen Dichte verdichtet.

10 Bei bevorzugten Ausführungsformen des erfindungsgemäßen Verfahrens weisen die Partikel des bereitgestellten Leuchtstoffes eine mittlere Größe zwischen 2 µm und 20 µm auf. Die Partikel des bereitgestellten Leuchtstoffes weisen bevorzugt eine Größe zwischen 2 µm und 20 µm auf.

15 Bei bevorzugten Ausführungsformen des erfindungsgemäßen Verfahrens weisen die Partikel bzw. Körner des bereitgestellten pulverförmigen Spinells eine mittlere Größe zwischen 0,3 µm und 20 µm auf. Die Partikel bzw. Körner des
20 bereitgestellten pulverförmigen Spinells weisen bevorzugt eine Größe zwischen 0,3 µm und 20 µm auf.

Das erfindungsgemäße Verfahren dient bevorzugt der Herstellung der erfindungsgemäßen Leuchtstoffkompositkeramik. Besonders
25 bevorzugt dient das erfindungsgemäße Verfahren der Herstellung bevorzugter Ausführungsformen der erfindungsgemäßen Leuchtstoffkompositkeramik. Die für die erfindungsgemäße Leuchtstoffkompositkeramik und deren bevorzugten Ausführungsformen angegebenen Merkmale sind bevorzugt auch
30 durch das erfindungsgemäße Verfahren zu realisieren. Beispielsweise sind die quantitativen Angaben der Zusammensetzung der erfindungsgemäßen Leuchtstoffkompositkeramik bevorzugt als quantitative Angaben

für die Mengen der Ausgangsstoffe des erfindungsgemäßen Verfahrens zu verwenden.

5 Einen weiteren Gegenstand der Erfindung bildet eine Leuchtstoffkompositkeramik, die mit dem erfindungsgemäßen Verfahren herstellbar ist.

Weitere Vorteile, Einzelheiten und Weiterbildungen der Erfindung ergeben sich aus der nachfolgenden Beschreibung
10 mehrerer Ausführungsbeispiele.

Ausführungsbeispiel 1:

Ein feinstdisperses Spinell- Pulver (MgAl_2O_4) mit einer mittleren Korngröße $d_{50} = 300 \text{ nm}$ wird mit einer
15 Hochleistungsrührwerkskugelmühle in einer wässrigen Suspension mit einem Leuchtstoff auf Basis YAG:Ce^{3+} ($d_{50} = 1 \text{ }\mu\text{m}$ bis $20 \text{ }\mu\text{m}$) dispergiert. Es werden 2.700 g Spinellpulver unter Zusatz von $3,0 \text{ l}$ destilliertem Wasser; $0,5 \text{ Ma.-%}$ bis $3,0 \text{ Ma.-%}$ Verflüssiger und $1,5 \text{ Ma.-%}$ bis 7 Ma.-% Binde- und Gleitmittel
20 für eine Dauer von z. B. 30 min im Kreislauf dispergiert. Danach wird der Schlicker über ein $100 \text{ }\mu\text{m}$ -Sieb abgesiebt. Für die Herstellung eines Pressgranulates wird der Schlicker in einem Sprühturm bei einer Turmtemperatur von $200 \text{ }^\circ\text{C}$ bis $300 \text{ }^\circ\text{C}$ versprüht. Das erhaltene Granulat wird nochmals über ein
25 $315 \text{ }\mu\text{m}$ -Sieb abgesiebt und die Granulatgrößenverteilung bestimmt. Der X_{50} -Wert liegt üblicherweise in einem Bereich zwischen $20 \text{ }\mu\text{m}$ und $60 \text{ }\mu\text{m}$; vorzugsweise bei $40 \text{ }\mu\text{m}$. Das Granulat besitzt nach dieser Behandlung in der Regel eine Feuchte von max. $1 \text{ }\%$.

30 Das uniaxiale Pressen der Bauteile erfolgt auf einer hydraulischen bzw. servoelektrischen Presse. Es werden Scheiben mit einem Durchmesser von 20 mm bis 50 mm und einer

Höhe von 0,2 mm bis 5 mm hergestellt. Der spezifische Pressdruck liegt im Bereich zwischen 200 MPa und 300 MPa; vorzugsweise 200 MPa.

5 Die thermische Entbinderung der Grünkörper erfolgt in einem Kammerofen mit thermischer Nachverbrennung. In Stufen wird die Temperatur über einen Zeitraum von 20 bis 80 Stunden auf 1.000 °C erhöht. Danach wird über einen Zeitraum 360 min definiert auf Raumtemperatur abgekühlt.

10

Die Vorsinterung erfolgt in einem Hochtemperaturofen in H₂- bzw. Formiergasatmosphäre. Dazu werden die entbinderten Formkörper mit einer Aufheizrate von 2 K/min bis zu einer Temperatur von 1.400 °C bis 1.600 °C aufgeheizt und mit einer Haltezeit so lange gesintert, bis keine offene Porosität mehr vorhanden ist. Die Abkühlung erfolgte mit 10 K/min.

15

Die vorgesinterten Formkörper werden in einer heißisostatischen Presse unter Argonatmosphäre bei einem Druck von ≥ 100 MPa für zwei Stunden bei 1.400 °C bis 1.600 °C nachverdichtet.

20

Die Bauteile werden auf einer Feinschleifmaschine; vorzugsweise mit einer Körnung: Diamant D64C50; planparallel geschliffen.

25

Ausführungsbeispiel 2:

Ein weiteres Beispiel ist eine Kompositkeramik, die wie das Ausführungsbeispiel 1 aufbereitet wird, wobei der Leuchtstoff YAG:Ce³⁺ durch Lu₃(Al_{1-x}Ga_x)₅O₁₂:Ce³⁺ als Leuchtstoffbestandteil substituiert wird und durch Trockenpressen planare Formkörper unterschiedlicher Geometrie hergestellt werden.

30

Ausführungsbeispiel 3:

Ein feinstdisperses Spinell-Pulver (MgAl_2O_4) mit einer mittleren Korngröße $d_{50} = 300 \text{ nm}$ wird mit einer Hochleistungsrührwerkskugelmühle in einer wässrigen Suspension mit einem Leuchtstoff auf Basis YAG:Ce^{3+} ($d_{50} = 1 \text{ }\mu\text{m}$ bis $20 \text{ }\mu\text{m}$) dispergiert. Es werden 200 g Spinellpulver unter Zusatz von 0,1 l destilliertem Wasser und 0,5 Ma.-% bis 3,0 Ma.-% Verflüssiger für eine Dauer von z. B. 30 min im Kreislauf dispergiert. Danach wird der Schlicker über ein $100 \text{ }\mu\text{m}$ -Sieb abgesiebt und in eine Form beliebiger Geometrie gegossen. Anschließend wird der Grünkörper aus der Form entnommen und 24 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet. Die thermische Entbinderung der Grünkörper erfolgt in einem Kammerofen. Die entbünderten Formkörper werden mit einer Aufheizrate von 2 K/min in H_2 - bzw. Formiergasatmosphäre bis zu einer Temperatur von $1.400 \text{ }^\circ\text{C}$ bis $1.600 \text{ }^\circ\text{C}$ aufgeheizt und mit einer Haltezeit so lange gesintert, bis keine offene Porosität mehr vorhanden ist. Abgekühlt wird beispielsweise mit einer Geschwindigkeit von 10 K/min. Die vorgesinterten Formkörper werden in einer heißisostatischen Presse unter Argonatmosphäre bei einem Druck von $\geq 100 \text{ MPa}$ für zwei Stunden bei $1.400 \text{ }^\circ\text{C}$ bis $1.600 \text{ }^\circ\text{C}$ nachverdichtet. Die Bauteile werden auf einer Feinschleifmaschine; vorzugsweise mit einer Körnung: Diamant D64C50; planparallel geschliffen.

Patentansprüche

1. Leuchtstoffkompositkeramik, umfassend einen keramischen Matrixwerkstoff, in welchem eine Vielzahl einzelner Partikel eines Leuchtstoffes eingebracht ist, wobei die
5 Partikel jeweils im Gefüge des keramischen Matrixwerkstoffes eingeschlossen sind, dadurch gekennzeichnet, dass der keramische Matrixwerkstoff durch einen Spinell gebildet ist.
2. Leuchtstoffkompositkeramik nach Anspruch 1, dadurch
10 gekennzeichnet, dass der Anteil des Leuchtstoffes an der Leuchtstoffkompositkeramik zwischen 0,1 Ma.-% und 40 Ma.-% beträgt.
3. Leuchtstoffkompositkeramik nach Anspruch 1 oder 2, dadurch
15 gekennzeichnet, dass der Anteil des Spinells an der Leuchtstoffkompositkeramik zwischen 60 Ma.-% und 99,9 Ma.-% beträgt.
4. Leuchtstoffkompositkeramik nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, dass der Leuchtstoff durch einen Granatleuchtstoff gebildet ist.
- 20 5. Leuchtstoffkompositkeramik nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, dass die mittlere Größe der Partikel des Leuchtstoffes zwischen 2 µm und 20 µm beträgt.
6. Leuchtstoffkompositkeramik nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, dass sie als eine Scheibe mit
25 planparallelen Oberflächen ausgebildet ist und eine Dicke zwischen 0,1 mm und 1 mm besitzt.

7. Verfahren zur Herstellung einer Leuchtstoffkompositkeramik, folgende Schritte umfassend:
- Bereitstellen eines pulverförmigen Spinells;
 - Bereitstellen eines Leuchtstoffes in Form von Partikeln;
 - 5 - Vermischen des pulverförmigen Spinells und der Partikel des Leuchtstoffes zu einer Mischung; und
 - Sintern der Mischung zu einer Leuchtstoffkompositkeramik.
8. Verfahren nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, dass das Vermischen des pulverförmigen Spinells und der Partikel des Leuchtstoffes dadurch erfolgt, dass der pulverförmige Spinell in einer wässrigen Suspension mit den Partikeln des Leuchtstoffes dispergiert wird.
- 10
9. Verfahren nach Anspruch 7 oder 8, dadurch gekennzeichnet, dass das Sintern der Mischung durch Erwärmen der Mischung auf eine Temperatur zwischen 1.200 °C und 1.800 °C erfolgt.
- 15
10. Leuchtstoffkompositkeramik, herstellbar durch ein Verfahren nach einem der Ansprüche 7 bis 9.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/EP2016/053540

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

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, 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 2010/033075 A1 (NAUM SOSHCHIN [TW] ET AL) 11 February 2010 (2010-02-11) paragraphs [0020] - [0026]; table 1 -----	1-10
X	WO 2013/143645 A1 (MERCK PATENT GMBH [DE]) 3 October 2013 (2013-10-03) claims 1-14 -----	7-9
A	WO 2006/072919 A2 (PHILIPS INTELLECTUAL PROPERTY [DE]; KONINKL PHILIPS ELECTRONICS NV [NL]) 13 July 2006 (2006-07-13) page 5, line 2 - line 13 -----	1-6,10
A	EP 1 640 431 A1 (JAPAN SCIENCE & TECH CORP [JP]) 29 March 2006 (2006-03-29) claims 1-18 -----	1-10
	-/-	



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

4 May 2016

Date of mailing of the international search report

12/05/2016

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

Kövecs, Monika

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No

PCT/EP2016/053540

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	EP 2 653 521 A1 (UBE INDUSTRIES [JP]) 23 October 2013 (2013-10-23) examples 1-9 -----	1-10

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/EP2016/053540

Patent document cited in search report		Publication date		Patent family member(s)	Publication date
US 2010033075	A1	11-02-2010	TW	201000601 A	01-01-2010
			US	2010033075 A1	11-02-2010

WO 2013143645	A1	03-10-2013	CN	104220398 A	17-12-2014
			EP	2831016 A1	04-02-2015
			JP	2015514144 A	18-05-2015
			KR	20140148445 A	31-12-2014
			SG	11201405877U A	27-11-2014
			TW	201348175 A	01-12-2013
			US	2015041712 A1	12-02-2015
			WO	2013143645 A1	03-10-2013

WO 2006072919	A2	13-07-2006	NONE		

EP 1640431	A1	29-03-2006	EP	1640431 A1	29-03-2006
			WO	2004101711 A1	25-11-2004

EP 2653521	A1	23-10-2013	CN	103270138 A	28-08-2013
			EP	2653521 A1	23-10-2013
			JP	5354114 B2	27-11-2013
			KR	20130111606 A	10-10-2013
			TW	201231435 A	01-08-2012
			US	2013328095 A1	12-12-2013
			WO	2012081566 A1	21-06-2012

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
INV. C09K11/80
ADD.

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

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
C09K

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

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

EPO-Internal, WPI Data

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	US 2010/033075 A1 (NAUM SOSHCHIN [TW] ET AL) 11. Februar 2010 (2010-02-11) Absätze [0020] - [0026]; Tabelle 1 -----	1-10
X	WO 2013/143645 A1 (MERCK PATENT GMBH [DE]) 3. Oktober 2013 (2013-10-03)	7-9
A	Ansprüche 1-14 -----	1-6,10
A	WO 2006/072919 A2 (PHILIPS INTELLECTUAL PROPERTY [DE]; KONINKL PHILIPS ELECTRONICS NV [NL]) 13. Juli 2006 (2006-07-13) Seite 5, Zeile 2 - Zeile 13 -----	1-10
A	EP 1 640 431 A1 (JAPAN SCIENCE & TECH CORP [JP]) 29. März 2006 (2006-03-29) Ansprüche 1-18 -----	1-10
	-/-	



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

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

"E" frühere Anmeldung oder Patent, die bzw. das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

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

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

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

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

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

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

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

4. Mai 2016

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

12/05/2016

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Kövecs, Monika

C. (Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	EP 2 653 521 A1 (UBE INDUSTRIES [JP]) 23. Oktober 2013 (2013-10-23) Beispiele 1-9 -----	1-10

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2016/053540

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung		Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
US 2010033075	A1	11-02-2010	TW	201000601 A		01-01-2010
			US	2010033075 A1		11-02-2010

WO 2013143645	A1	03-10-2013	CN	104220398 A		17-12-2014
			EP	2831016 A1		04-02-2015
			JP	2015514144 A		18-05-2015
			KR	20140148445 A		31-12-2014
			SG	11201405877U A		27-11-2014
			TW	201348175 A		01-12-2013
			US	2015041712 A1		12-02-2015
			WO	2013143645 A1		03-10-2013

WO 2006072919	A2	13-07-2006	KEINE			

EP 1640431	A1	29-03-2006	EP	1640431 A1		29-03-2006
			WO	2004101711 A1		25-11-2004

EP 2653521	A1	23-10-2013	CN	103270138 A		28-08-2013
			EP	2653521 A1		23-10-2013
			JP	5354114 B2		27-11-2013
			KR	20130111606 A		10-10-2013
			TW	201231435 A		01-08-2012
			US	2013328095 A1		12-12-2013
			WO	2012081566 A1		21-06-2012
