

(19)日本国特許庁(JP)

(12)公開特許公報(A)

(11)公開番号  
特願2022-16603  
(P2022-16603A)

(43)公開日 令和4年1月21日(2022.1.21)

|                         |                 |
|-------------------------|-----------------|
| (51)国際特許分類              | F I             |
| C 0 9 K 11/08 (2006.01) | C 0 9 K 11/08 B |
| C 0 9 K 11/00 (2006.01) | C 0 9 K 11/00 Z |
| C 0 9 K 11/80 (2006.01) | C 0 9 K 11/80 J |
|                         | C 0 9 K 11/08 J |

審査請求 有 請求項の数 8 O L (全23頁)

|                   |                             |         |                           |
|-------------------|-----------------------------|---------|---------------------------|
| (21)出願番号          | 特願2021-190689(P2021-190689) | (71)出願人 | 000226057                 |
| (22)出願日           | 令和3年11月25日(2021.11.25)      |         | 日亜化学工業株式会社                |
| (62)分割の表示         | 特願2019-130523(P2019-130523) |         | 徳島県阿南市上中町岡 4 9 1 番地 1 0 0 |
|                   | )の分割                        | (74)代理人 | 110000707                 |
| 原出願日              | 令和1年7月12日(2019.7.12)        |         | 特許業務法人竹内・市澤国際特許事務所        |
| (31)優先権主張番号       | 特願2019-75690(P2019-75690)   | (72)発明者 | 近藤 匡毅                     |
| (32)優先日           | 平成31年4月11日(2019.4.11)       |         | 徳島県阿南市上中町岡 4 9 1 番地 1 0 0 |
| (33)優先権主張国・地域又は機関 | 日本国(JP)                     |         | 日亜化学工業株式会社内               |
|                   |                             | (72)発明者 | 武富 正蔵                     |
|                   |                             |         | 徳島県阿南市上中町岡 4 9 1 番地 1 0 0 |
|                   |                             |         | 日亜化学工業株式会社内               |
|                   |                             | (72)発明者 | 大栗 裕史                     |
|                   |                             |         | 徳島県阿南市上中町岡 4 9 1 番地 1 0 0 |
|                   |                             |         | 日亜化学工業株式会社内               |

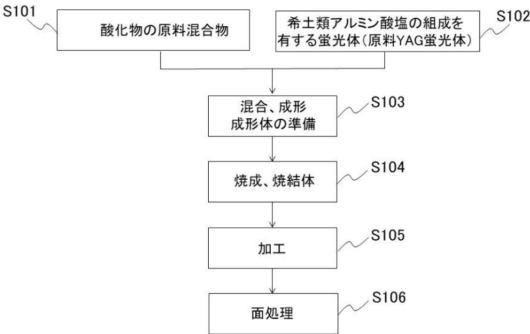
(54)【発明の名称】 希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法

(57)【要約】

【課題】希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法を提供する。

【解決手段】希土類アルミン酸塩の組成を有する蛍光体と、Y、La、Lu、Gd及びTbからなる群から選択される少なくとも一種の希土類元素Lnを含む酸化物、Ceを含む酸化物、Alを含む酸化物、及び必要に応じてGa及びScから選択される少なくとも一種の元素M1を含む酸化物、を含む原料混合物と、を混合して成形体を準備することと、前記成形体を焼成し、焼結体を得ることを含む、希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法である。

【選択図】図1



## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

希土類アルミン酸塩の組成を有する蛍光体と、

Y、La、Lu、Gd及びTbからなる群から選択される少なくとも一種の希土類元素Lnを含む酸化物、Ceを含む酸化物、Alを含む酸化物、及び必要に応じてGa及びScから選択される少なくとも一種の元素M1を含む酸化物、を含む原料混合物と、を混合して成形体を準備することと、

前記成形体を焼成し、焼結体を得ることを含む、希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法。

## 【請求項 2】

前記蛍光体のフィッシャーサブシブサイザー法で測定した平均粒径が、0.3 μm以上10 μm以下の範囲内である、請求項 1 に記載の希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法。

## 【請求項 3】

前記希土類元素Lnを含む酸化物、Ceを含む酸化物、Alを含む酸化物、及び必要に応じて元素M1を含む酸化物の平均粒径が、それぞれ0.01 μm以上1.5 μm以下の範囲内である、請求項 1 又は 2 に記載の希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法。

## 【請求項 4】

前記蛍光体と前記原料混合物の合計量に対して、前記蛍光体が10質量%以上90質量%以下の範囲に含まれる成形体を準備する、請求項 1 から 3 のいずれか 1 項に記載の希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法。

## 【請求項 5】

フィッシャーサブシブサイザー法で測定した平均粒径が0.3 μm以上1.0 μm以下の範囲内の希土類アルミン酸塩の組成を有する第1蛍光体と、フィッシャーサブシブサイザー法で測定した平均粒径が1.1 μm以上10 μm以下の範囲内の希土類アルミン酸塩の組成を有する第2蛍光体と、を混合して成形体を準備することと、  
前記成形体を焼成し、焼結体を得ることを含む、希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法。

## 【請求項 6】

前記第1蛍光体が、共沈法により形成された、請求項 5 に記載の製造方法。

## 【請求項 7】

前記第1蛍光体と前記第2蛍光体の合計量に対して、前記第1蛍光体が10質量%以上90質量%以下の範囲内で含まれる成形体を準備する、請求項 5 又は 6 に記載の希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法。

## 【請求項 8】

前記希土類アルミン酸塩が、Y、La、Lu、Gd及びTbからなる群から選択される少なくとも一種の希土類元素Lnと、Ceと、Alと、必要に応じてGa及びScから選択される少なくとも一種の元素M1とを含み、前記希土類元素LnとCeの合計のモル比が3であり、Alと前記元素M1の合計のモル比が0.95以上1.05以下の変数kと5の積であり、Ceのモル比が0.003以上0.017以下の変数nと3の積である組成を有する、請求項 1 から 7 のいずれか 1 項に記載の希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法。

## 【請求項 9】

前記希土類アルミン酸塩が、下記式 (I) で表される組成を有する、請求項 1 から 8 のいずれか 1 項に記載の希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法。

$$(Ln_1 - nCe_n)_3 (Al_1 - mM^1_m)_5 k O_{12} \quad (I)$$

(式 (I) 中、Lnは、Y、La、Lu、Gd及びTbからなる群から選択される少なくとも一種の希土類元素であり、M<sup>1</sup>は、Ga及びScから選択される少なくとも一種の元素であり、m、n、kは、それぞれ  $0 \leq m \leq 0.02$ 、 $0.003 \leq n \leq 0.017$ 、 $0.95 \leq k \leq 1.05$  を満たす数である。)

## 【請求項 10】

前記成形体を酸素含有雰囲気のもとで焼成する、請求項 1 から 9 のいずれか 1 項に記載の希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法。

## 【請求項 11】

前記成形体を焼成する温度が、1200℃以上1800℃未満の範囲である、請求項1から10のいずれか1項に記載の希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法に関する。

## 【背景技術】

## 【0002】

発光ダイオード（Light Emitting Diode、以下「LED」とも称する。）やレーザーダイオード（Laser Diode、以下「LD」とも称する。）と、LEDやLDから発せられた光の波長を変換する蛍光体を含む波長変換部材を備えた発光装置が知られている。このような発光装置は、例えば車載用、一般照明用、液晶表示装置のバックライト、プロジェクターなどの光源に用いられている。

10

## 【0003】

発光装置に備えられる波長変換部材として、例えば、特許文献1には、一次粒子が1μm未満の粒径を有する酸化物の出発原料を成形したグリーン成形体を、焼結して得られる単相セラミックス変換部材が開示されている。

## 【先行技術文献】

## 【特許文献】

20

## 【0004】

【特許文献1】特開2017-197774号公報

## 【発明の概要】

## 【発明が解決しようとする課題】

## 【0005】

しかしながら、特許文献1の単相セラミックス変換部材は、一次粒子の粒径を調整した出発原料を焼結することによって、焼結体の密度及び多孔性を調整し、光の散乱を強めているが、発光効率をさらに向上することが求められている。また、例えばセラミックス変換部材をレーザー光源に用いる場合には、励起光を入射する面と同一の面から出射される出射光の光の広がりや少なくて、光を目的の位置に集光することを求められる場合がある。

30

そこで本発明の一態様は、発光効率が高い希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法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】

## 【0006】

本発明の第一の態様は、希土類アルミン酸塩の組成を有する蛍光体と、Y、La、Lu、Gd及びTbからなる群から選択される少なくとも一種の希土類元素Lnを含む酸化物、Ceを含む酸化物、Alを含む酸化物、及び必要に応じてGa及びScから選択される少なくとも一種の元素M1を含む酸化物、を含む原料混合物と、を混合して成形体を準備することと、前記成形体を焼成し、焼結体を得ることを含む、希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法である。

40

## 【0007】

本発明の第二の態様は、フィッシャーサブミクロメーター法で測定した平均粒径が0.3μm以上1.0μm以下の範囲内で希土類アルミン酸塩の組成を有する第1蛍光体と、フィッシャーサブミクロメーター法で測定した平均粒径が1.1μm以上10μm以下の範囲内の希土類アルミン酸塩の組成を有する第2蛍光体と、を混合して成形体を準備することと、前記成形体を焼成し、焼結体を得ることを含む、希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法である。

## 【発明の効果】

## 【0008】

50

本発明の一態様によれば、発光効率が高い希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【0009】

【図1】図1は、本発明の第一の態様の希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法を示すフローチャートである。

【図2】図2は、本発明の第二の態様の希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法を示すフローチャートである。

【図3】図3は、発光装置の一例を示す概略構成を示す図である。

【図4】図4は、希土類アルミン酸塩焼結体を含む蛍光体デバイスの一例の概略構成を示す平面図である。

10

【図5】図5は、蛍光体デバイスの一例の概略構成を示す側面図である。

【図6】図6は、実施例1に係る希土類アルミン酸塩焼結体の断面SEM写真である。

【図7】図7は、実施例2に係る希土類アルミン酸塩焼結体の断面SEM写真である。

【図8】図8は、実施例3に係る希土類アルミン酸塩焼結体の断面SEM写真である。

【図9】図9は、比較例1に係る希土類アルミン酸塩焼結体の断面SEM写真である。

【図10】図10は、比較例2に係る希土類アルミン酸塩焼結体の断面SEM写真である。

【発明を実施するための形態】

【0010】

20

以下、本発明に係る希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法を実施形態に基づいて説明する。ただし、以下に示す実施形態は、本発明の技術思想を具体化するための例示であって、本発明は、以下の希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法に限定されない。なお、色名と色度座標との関係、光の波長範囲と単色光の色名との関係は、JIS Z 8110に従う。

【0011】

希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法1

第一実施態様の希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法は、希土類アルミン酸塩の組成を有する蛍光体（以下、「原料YAG蛍光体」とも称する。）と、Y、La、Lu、Gd及びTbからなる群から選択される少なくとも一種の希土類元素Lnを含む酸化物、Ceを含む酸化物、Alを含む酸化物、及び必要に応じてGa及びScから選択される少なくとも一種の元素M1を含む酸化物を含む原料混合物と、を混合して成形体を準備することと、前記成形体を焼成し、焼結体を得ることを含む。

30

【0012】

原料YAG蛍光体と原料混合物は、焼成によって、結晶が成長し、共に賦活元素となるCeを含むため、希土類アルミン酸塩の組成を有する蛍光体の結晶相を形成する。得られる希土類アルミン酸塩焼結体は、原料混合物中の酸化物が結晶を形成し、その結晶が成長した酸化物成長結晶相と、原料YAG蛍光体の結晶が成長した蛍光体成長結晶相とを有する。酸化物成長結晶相と蛍光体成長結晶相は、それぞれの粒界が密接した状態で焼結体を構成する。原料混合物に含まれる酸化物から形成された酸化物成長結晶相と、原料YAG蛍光体の結晶が成長した蛍光体成長結晶相とでは、結晶成長の成長速度が異なると推測される。このため希土類アルミン酸塩焼結体の結晶相の周囲には、各結晶相の成長速度の違いにより空隙が形成される。希土類アルミン酸塩焼結体は、各結晶相の周囲に分散された状態の空隙を含むため、この空隙によって効率的に入射光を拡散させ、空隙に近接する結晶相によって波長変換する。希土類アルミン酸塩焼結体が板状に成形された場合、励起光が入射された面と同じ面から波長変換効率が高く、光束の高い光を出射することができる。また、希土類アルミン酸塩焼結体は、円相当の粒径の異なる二種の結晶相を有することが好ましく、結晶相間でも光が乱反射して、励起光を波長変換するため、励起光の入射面と同一面から波長変換された光を出射する場合に光の広がり抑制し、目的の位置に集光する出射光を発することができる。

40

【0013】

50

希土類アルミ酸塩焼結体中に含まれる酸化物成長結晶相と蛍光体成長結晶相とは、結晶相の大きさは異なるが、成長した結晶相は、同じ希土類アルミン酸塩の組成を有するため、酸化物成長結晶相であるか、蛍光体成長結晶相であるか、結晶相の原料の由来を推測することは難しい。本明細書において、希土類アルミン酸塩焼結体に含まれる結晶相は、酸化物成長結晶相と、蛍光体成長結晶相とを区別することなく、希土類アルミン酸塩の組成を有する結晶相と称する。

#### 【0014】

図1は、第一実施態様の希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法の一例を示すフローチャートである。図1を参照にして、第一実施態様の希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法の工程を説明する。希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法は、原料YAG蛍光体と、各酸化物を含む原料混合物とを混合して成形体を準備する工程S103と、成形体を焼成して焼結体を得る工程S104を含む。希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法は、成形体を準備する工程S103の前工程として、各酸化物を含む原料混合物を準備する工程S101と、希土類アルミン酸塩の組成を有する蛍光体（原料YAG蛍光体）を準備する工程S102と、を含んでいてもよい。また、第一実施態様の希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法は、焼結体を得る工程S104の後工程として、得られた焼結体を所望の大きさ又は厚さに切断して加工する工程S105を含んでいてもよく、さらに面処理する工程S106を含んでいてもよい。

10

#### 【0015】

希土類アルミン酸塩の組成を有する蛍光体

20

焼結体の原料の一つである、原料YAG蛍光体は、平均粒径が $0.3\mu\text{m}$ 以上 $10\mu\text{m}$ 以下の範囲内であることが好ましく、 $0.3\mu\text{m}$ 以上 $9\mu\text{m}$ 以下の範囲内であってもよく、 $0.4\mu\text{m}$ 以上 $8\mu\text{m}$ 以下の範囲内であってもよく、 $0.5\mu\text{m}$ 以上 $8\mu\text{m}$ 以下の範囲内であってもよい。原料YAG蛍光体の平均粒径が $0.3\mu\text{m}$ 以上 $10\mu\text{m}$ 以下の範囲内であれば、原料混合物である酸化物から成長した酸化物成長結晶相と、蛍光体成長結晶相が生成され、酸化物成長結晶相と蛍光体成長結晶相の結晶相の成長速度の違いにより、結晶相の周囲に、入射光を散乱させる空隙が形成された焼結体を得ることができる。また、原料YAG蛍光体の平均粒径が $0.3\mu\text{m}$ 以上 $10\mu\text{m}$ 以下の範囲内であれば、円相当径の平均粒径が $0.3\mu\text{m}$ 以上 $10\mu\text{m}$ 以下の結晶相が含まれ、結晶相の周囲に存在する空隙によって散乱された入射光を効率よく結晶相で波長変換して、入射光が入射された面と同一の面から波長変換された発光効率の高い光を出射させることができる。本明細書において、平均粒径は、例えばFisher Sub-Sieve Sizer Model 95（Fisher Scientific社製）を用いて、気温 $25^{\circ}\text{C}$ 、湿度 $70\% \text{RH}$ の環境下において、 $1\text{cm}^3$ 分の試料（蛍光体、各酸化物原料）をそれぞれ計り取り、専用の管状容器にパッキングした後、一定圧力の乾燥空気を流し、差圧から比表面積を読み取る、フィッシャーサブシーブサイザー（Fisher Sub-Sieve Sizer）法（以下、「FSSS法」とも称する。）により測定した平均粒径（Fisher Sub-Sieve Sizer's Number）をいう。

30

#### 【0016】

原料混合物

40

原料混合物に含まれる希土類元素Lnを含む酸化物、Ceを含む酸化物、Alを含む酸化物、及び必要に応じて元素M1を含む酸化物の平均粒径は、それぞれ $0.01\mu\text{m}$ 以上 $1.5\mu\text{m}$ 以下の範囲内であることが好ましく、より好ましくは $0.02\mu\text{m}$ 以上 $1.0\mu\text{m}$ 以下の範囲内であり、さらに好ましくは $0.02\mu\text{m}$ 以上 $0.7\mu\text{m}$ 以下の範囲内である。原料混合物に含まれる酸化物は、平均粒径がそれぞれ $0.01\mu\text{m}$ 以上 $1.5\mu\text{m}$ 以下の範囲内であると、原料YAG蛍光体又は原料YAG蛍光体の結晶が成長した蛍光体成長結晶相とは異なる大きさの酸化物成長結晶相が希土類アルミン酸塩焼結体に形成される。酸化物と原料YAG蛍光体とは、結晶の成長速度の違いにより、これらの結晶相の周囲に空隙が形成される。希土類アルミン酸塩焼結体中の空隙の大きさは、原料混合物中の酸化物の粒径の大きさに依存する傾向がある。原料混合物中の酸化物の平均粒径が $0.01$

50

$\mu\text{m}$ 以上 $1.5\mu\text{m}$ 以下の範囲内である比較的小さい粒径の酸化物を用いると、結晶相の周囲に比較的小さな空隙が均一に分布して形成され、入射光の散乱性を高めた焼結体を得られる。焼結体に含まれる空隙の大きさは、焼成温度に近い融点を有する原料混合物中の酸化物の粒径の大きさに依存する傾向があると推測される。焼結体に含まれる空隙の大きさは、原料混合物の中でも希土類元素Lnを含む酸化物の粒径の大きさに依存する傾向があると推測される。例えば、Y、La、Lu、Gd及びTbからなる群から選択される少なくとも一種の希土類元素Lnを含む酸化物の融点は、 $2100^{\circ}\text{C}$ 以上 $2500^{\circ}\text{C}$ 以下の範囲内である。小さい空隙を多く含む焼結体を得る場合には、希土類元素Lnを含む酸化物の平均粒径が、 $0.01\mu\text{m}$ 以上 $1.0\mu\text{m}$ 以下の範囲内であることが好ましく、より好ましくは $0.01\mu\text{m}$ 以上 $0.8\mu\text{m}$ 以下の範囲内である。希土類元素Lnを含む酸化物以外の酸化物、例えばAlを含む酸化物、Gaを含む酸化物、希土類元素Ln以外の希土類元素、例えばScを含む酸化物、Ceを含む酸化物は、希土類元素Lnを含む酸化物よりも平均粒径が大きくてもよい。Alを含む酸化物、Ceを含む酸化物、及び必要に応じて元素M1を含む酸化物は、その平均粒径が $0.8\mu\text{m}$ を超えて $1.5\mu\text{m}$ 以下の範囲内であってもよく、 $0.9\mu\text{m}$ 以上 $1.0\mu\text{m}$ 以下の範囲内であってもよい。

10

20

30

40

50

#### 【0017】

原料混合物に含まれる酸化物は、具体的には、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ 、 $\text{La}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Lu}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Gd}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Tb}_2\text{O}_3$ 、 $\text{CeO}_2$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Ga}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Sc}_2\text{O}_3$ が挙げられる。原料混合物に含まれる各酸化物は、前述の希土類アルミン酸塩の組成となるモル比となるように混合されるか、後述の式(I)で表される組成となるモル比となるように混合されることが好ましい。

#### 【0018】

原料YAG蛍光体の質量比率

原料YAG蛍光体と、原料混合物を混合して成形し、成形体を得る工程において、成形体中の質量比は、原料YAG蛍光体と原料混合物の合計100質量%に対して、原料YAG蛍光体が、10質量%以上90質量%以下の範囲内であることが好ましく、20質量%以上80質量%以下の範囲内であることがより好ましく、30質量%以上70質量%以下の範囲内であることがより好ましい。原料YAG蛍光体と原料混合物の合計100質量%に対して、原料YAG蛍光体の質量比が10質量%以上90質量%以下の範囲内であれば、円相当の粒径が $0.1\mu\text{m}$ 以上 $1.0\mu\text{m}$ 以下の第1結晶相と、円相当の粒径が $1.1\mu\text{m}$ 以上 $1.5\mu\text{m}$ 以下の第2結晶相の大きさの異なる2つの結晶相が生成され、これらの結晶相の周囲に、これらの結晶相の成長速度の違いによって空隙が形成された焼結体を得ることができる。成形体を準備する工程と、成形体を焼成して焼結体を得る工程は、後述する。

#### 【0019】

希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法2

第二実施態様の希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法は、FSSS法で測定した平均粒径が $0.3\mu\text{m}$ 以上 $1.0\mu\text{m}$ 以下の範囲内の希土類アルミン酸塩の組成を有する第1蛍光体（以下、「第1原料YAG蛍光体」とも称する。）と、FSSS法で測定した平均粒径 $1.1\mu\text{m}$ 以上 $1.0\mu\text{m}$ 以下の範囲内に希土類アルミン酸塩の組成を有する第2蛍光体（以下、「第2原料YAG蛍光体」とも称する。）と、を混合して成形体を準備することと、前記成形体を焼成し、焼結体を得ることを含む。

#### 【0020】

第1原料YAG蛍光体と、第2原料YAG蛍光体とは、焼成によって、互いにネック形成（粒子同士が結合を形成）され、焼結体を得られる。第1原料YAG蛍光体と、第2原料YAG蛍光体とは、平均粒径が異なるため、ネック形成する際の反応速度が異なり、結晶相の周囲に空隙が形成される。希土類アルミン酸塩焼結体は、大きさの異なる第1原料YAG蛍光体由来の結晶相と、第2原料YAG蛍光体由来の結晶相の各結晶相の周囲に分散された状態の空隙を含むため、この空隙によって効率的に入射光を拡散させ、空隙に近接する結晶相によって波長変換する。このため、希土類アルミン酸塩焼結体が板状に成形さ

れた場合、励起光が入射された面と同じ面から波長変換効率が高く、光束の高い光を出射することができる。また、希土類アルミン酸塩焼結体は、円相当の粒径が異なる二種の結晶相を有するため、結晶相間でも光が乱反射して、励起光を波長変換するため、励起光の入射面と同一面から波長変換された光を出射する場合に光の広がりを抑制し、目的の位置に集光する出射光を発することができる。

#### 【0021】

図2は、第二実施態様の希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法の一例を示すフローチャートである。図2を参照にして、第二実施態様の希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法の工程を説明する。希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法は、第1原料YAG蛍光体と、第2原料YAG蛍光体とを混合して成形体を準備する工程S203と、成形体を焼成して焼結体を得る工程S204を含む。希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法は、成形体を準備する工程S203の前工程として、第1原料YAG蛍光体を準備する工程S201と、第2原料YAG蛍光体を準備する工程S202を含んでいてもよい。また、第二実施態様の希土類アルミン酸塩焼結体の製造方法は、焼結体を得る工程S204の後工程として、得られた焼結体を所望の大きさ又は厚さに切断して加工する工程S205を含んでいてもよく、さらに面処理する工程S206を含んでいてもよい。

10

#### 【0022】

##### 第1原料YAG蛍光体

FSSS法により測定される平均粒径が $0.3\mu\text{m}$ 以上 $1.0\mu\text{m}$ 以下の範囲内の第1原料YAG蛍光体は、共沈法により形成された希土類アルミン酸塩の組成を有する蛍光体であることが好ましい。共沈法によりYAG蛍光体を形成すると、比較的小さい平均粒径を有するYAG蛍光体を得ることができる。また、共沈法により形成されたYAG蛍光体は、乾式法によって形成されたYAG蛍光体と、形成法の違いによって、焼成時の反応速度が異なり、各結晶相の周囲に比較的小さな円相当の孔径を有する空隙が形成されやすくなると推測される。

20

#### 【0023】

共沈法によってYAG蛍光体を形成する方法としては、例えば、希土類アルミン酸塩の組成に含まれる構成元素を含む酸化物、又は高温で容易に酸化物になる化合物を原料として準備し、化学量論比を考慮しながら、希土類アルミン酸塩の組成となるように、各化合物を秤量する。希土類アルミン酸塩の組成となるように秤量した各化合物を、液体に溶解し、その溶解液に沈殿剤を入れて共沈させて、共沈物を得る。その共沈物を焼成して得た酸化物と、必要に応じて他の原料、例えば希土類アルミン酸塩の組成に含まれる酸化物を秤量して、それらの原料を湿式又は乾式で混合する。原料には、フラックスを加えてもよい。共沈して得られた酸化物と、他の原料と、必要に応じてフラックスとを含む混合物を焼成することによって、共沈法により形成したYAG蛍光体を得ることができる。高温で容易に酸化物になる化合物としては、例えば、希土類アルミン酸塩の組成を構成する元素を含む水酸化物、シュウ酸塩、炭酸塩、塩化物、硝酸塩、硫酸塩等が挙げられる。高温で容易に酸化物になる化合物としては、希土類アルミン酸塩の組成を構成する元素からなる金属、例えばアルミニウム金属であってもよい。酸化物としては、前述の原料混合物に用いる酸化物と同様の酸化物を用いることができる。金属又は各化合物を溶解させる液体としては、脱イオン水等が挙げられる。沈殿剤としては、シュウ酸又はシュウ酸塩、炭酸塩、炭酸水素アンモニウム等が挙げられる。シュウ酸塩としてはシュウ酸アンモニウムが挙げられる、炭酸塩としては、炭酸アンモニウム等が挙げられる。

30

40

#### 【0024】

##### 第2原料YAG蛍光体

FSSS法により測定される平均粒径が $1.1\mu\text{m}$ 以上 $10\mu\text{m}$ 以下の範囲内の第2原料YAG蛍光体は、平均粒径が前記範囲内であれば、製造方法は限定されない。第2原料YAG蛍光体は、前述の共沈法又はその他の方法によって形成された希土類アルミン酸塩の組成を有する蛍光体を用いることができる。

#### 【0025】

50

### 第1原料YAG蛍光体の質量比率

第1原料YAG蛍光体と第2原料YAG蛍光体とを混合して成形し、成形体を得る工程において、成形体中の質量比は、第1原料YAG蛍光体と第2原料YAG蛍光体の合計100質量%に対して、第1原料YAG蛍光体が、10質量%以上90質量%以下の範囲内であることが好ましく、20質量%以上80質量%以下の範囲内であることがより好ましく、30質量%以上70質量%以下の範囲内であることがより好ましい。第1原料YAG蛍光体と第2原料YAG蛍光体の合計100質量%に対して、第1原料YAG蛍光体の質量比率が10質量%以上90質量%以下の範囲内であれば、円相当の粒径が0.1  $\mu\text{m}$ 以上1.0  $\mu\text{m}$ 以下の第1結晶相と、円相当の粒径が1.1  $\mu\text{m}$ 以上15  $\mu\text{m}$ 以下の第2結晶相の大きさの異なる2つの結晶相が生成され、これらの結晶相の周囲に、これらの結晶相の成長速度の違いによって空隙が形成された焼結体を得ることができる。

10

#### 【0026】

#### 成形体の準備

原料YAG蛍光体と、各酸化物を含む原料混合物とを混合して成形体を形成する方法、又は、第1原料YAG蛍光体と第2原料YAG蛍光体とを混合して成形体を形成する方法としては、プレス成形法等の知られている方法を採用することができる。プレス成形法としては、例えば金型プレス成形法、JIS Z 2500:2000、No. 2109で用語が定義されている、冷間静水等方圧加圧法(Cold Isostatic Pressing、以下、「CIP」とも称する。)などが挙げられる。その他に一軸で圧縮して成形してもよい。成形方法は、成形体の形状を整えるために、2種の方法を採用してもよく、例えば金型プレス成形をした後に、CIPを行ってもよく、ローラベンチ法により一軸で圧縮した後に、CIPを行ってもよい。CIPは、水を媒体とする冷間静水等方圧加圧法により成形体をプレスすることが好ましい。

20

#### 【0027】

金型プレス成形時の圧力又は一軸で圧縮して成形する場合の圧力は、好ましくは5 MPaから50 MPaであり、より好ましくは5 MPaから30 MPaである。金型プレス成形時の圧力又は一軸で圧縮して成形する場合の圧力が前記範囲であれば、成形体を所望の形状に整えることができる。

#### 【0028】

CIPにおける圧力は、好ましくは50 MPaから200 MPaであり、より好ましくは50 MPaから180 MPaである。CIPにおける圧力が50 MPa以上200 MPa以下の範囲内であると、焼成により相対密度が90%以上であり、空隙率が1%以上10%以下の範囲内である希土類アルミン酸塩焼結体を得ることが可能な成形体を形成することができる。

30

#### 【0029】

#### 焼成

焼結体は、成形体を焼成して得られる。成形体の焼成は、酸素含有雰囲気のもとで行うことが好ましい。雰囲気中の酸素の含有量は、好ましくは5体積%以上、より好ましくは10体積%以上、さらに好ましくは15体積%以上であり、大気(酸素含有量が20体積%以上)雰囲気であってもよい。雰囲気中の酸素の含有量が1体積%未満の酸素を含まない雰囲気中では、酸化物の表面が溶融し難く、酸化物同士が溶融して希土類アルミン酸塩の組成を有する結晶構造が生成され難く、空隙を有する焼結体を得られ難い場合がある。雰囲気中の酸素量の測定は、例えば焼成装置に流入する酸素量によって測定してもよく、20℃の温度、大気圧(101.325 kPa)の圧力で測定してもよい。

40

#### 【0030】

焼成の温度は、1200℃以上1800℃未満の範囲であることが好ましく、1400℃以上1790℃以下の範囲内であることがより好ましく、1600℃以上1780℃以下の範囲内であることがさらに好ましい。成形体を焼成する温度が1200℃以上であれば、各結晶相の成長速度の違いにより、これらの結晶相の周囲に分散した空隙が形成された焼結体を得ることができる。成形体を焼成する温度が1800℃未満であれば、各結晶相

50

の粒界がなくなるように溶解させることなく、希土類アルミン酸塩焼結体の断面において、各結晶相の周囲に分散した空隙を含み、各結晶相の粒界が区別できる焼結体を得ることができる。

#### 【0031】

得られた焼結体は、還元雰囲気中でアニール処理してもよい。得られた焼結体を還元雰囲気中でアニール処理することによって、焼結体中の結晶相に含まれる酸化された賦活元素であるセリウムが還元されて、各結晶相における波長変換効率の低下と発光効率の低下を抑制することができる。還元雰囲気は、ヘリウム、ネオン及びアルゴンからなる群から選ばれる少なくとも一種の希ガス又は窒素ガスと、水素ガス又は一酸化炭素ガスとを含む雰囲気であればよく、雰囲気中に少なくともアルゴン又は窒素ガスと、水素ガス又は一酸化炭素ガスとを含むことがより好ましい。

10

#### 【0032】

アニール処理の温度は、焼成温度よりも低い温度であり、1000℃以上1600℃以下の範囲内であることが好ましい。アニール処理の温度は、より好ましくは1000℃以上1600℃以下の範囲内であり、さらに好ましくは1100℃以上1400℃以下の範囲内である。アニール処理の温度が、焼成温度よりも低い温度であり、1000℃以上1600℃以下の範囲内であれば、焼結体中の空隙を低下させることなく、焼結体中の結晶相に含まれる酸化された賦活元素であるセリウムを還元し、波長変換の効率の低下と発光効率の低下を抑制することができる。

#### 【0033】

##### 加工工程

得られた焼結体は、所望の大きさ又は厚さに切断する加工を行ってもよい。切断する方法は、公知の方法を利用することができ、例えば、ブレードダイシング、レーザーダイシング、ワイヤーソーを用いて切断する方法が挙げられる。これらのうち、切断面が高精度に平らになる点からワイヤーソーが好ましい。

20

#### 【0034】

##### 面処理工程

さらに以下に説明する面処理工程を追加してもよい。面処理工程は、得られた希土類アルミン酸塩焼結体又は希土類アルミン酸塩焼結体を切断して得た切断物の表面を面処理する工程である。この面処理工程により、希土類アルミン酸塩焼結体の発光特性の向上のため、希土類アルミン酸塩焼結体の表面を適切な状態とすることができるだけでなく、上述の加工工程と併せて、または単独で、希土類アルミン酸塩焼結体を所望の形状、大きさ又は厚さにすることができる。面処理工程は、希土類アルミン酸塩焼結体を所望の大きさ若しくは厚さに切断して加工する加工工程の前に行ってもよく、加工工程後に行ってもよい。面処理する方法としては、例えば、サンドブラストによる方法、機械研削による方法、ダイシングによる方法、化学的エッチングによる方法等が挙げられる。

30

#### 【0035】

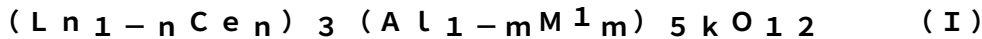
第1原料YAG蛍光体及び第2原料YAG蛍光体を含む原料YAG蛍光体、希土類アルミン酸塩焼結体に含まれる結晶相は、いずれも希土類アルミン酸塩の組成を有する。希土類アルミン酸塩が、Y、La、Lu、Gd及びTbからなる群から選択される少なくとも一種の元素Lnと、Ceと、Alと、必要に応じてGa及びScから選択される少なくとも一種の元素M<sup>1</sup>とを含み、希土類元素LnとCeの合計のモル比が3であり、Alと元素M<sup>1</sup>の合計のモル比が0.95以上1.05以下の範囲内の変数kと5の積であり、Ceのモル比が0.003以上0.017以下の範囲内の変数nと3の積である組成を有することが好ましい。第1原料YAG蛍光体及び第2原料YAG蛍光体を含む原料YAG蛍光体と、希土類アルミン酸塩焼結体に含まれる結晶相を構成する希土類アルミン酸塩とが、いずれもCeを賦活元素とした希土類アルミン酸塩の組成を有する蛍光体であることによって、例えば、ガラス材料のような蛍光体以外の無機材料を含むその他の波長変換部材よりも発光効率の高い焼結体を得ることができる。

40

#### 【0036】

50

第1原料YAG蛍光体及び第2原料YAG蛍光体を含む原料YAG蛍光体、並びに希土類アルミン酸塩焼結体に含まれる結晶相は、いずれも希土類アルミン酸塩の組成を有し、この希土類アルミン酸塩が、下記式(I)で表される組成を有することが好ましい。



式(I)中、Lnは、Y、La、Lu、Gd及びTbからなる群から選択される少なくとも一種の希土類元素であり、M<sup>I</sup>は、Ga及びScから選択される少なくとも一種の元素であり、m、n及びkは、それぞれ $0 \leq m \leq 0.02$ 、 $0.003 \leq n \leq 0.017$ 、 $0.95 \leq k \leq 1.05$ を満たす数である。ただし、前記式(I)における変数m、n及びkは、分析値に基づくLnのモル比とCeのモル比の合計を3としたときの数である。本明細書において、モル比とは、蛍光体の化学組成1モル中の各元素のモル比を表す。

10

【0037】

前記式(I)で表される組成において、Lnは、Y、Gd、Lu及びTbからなる群から選ばれる少なくとも一種の希土類元素であり、二種以上の希土類元素が含まれていてもよい。Ceは、原料YAG蛍光体、酸化物成長結晶相及び蛍光体成長結晶相における賦活元素であり、変数nと3の積は、前記式(I)で表される組成において、Ceのモル比を表す。変数nは、より好ましくは $0.0035 \leq n \leq 0.016$ 、さらに好ましくは $0.0040 \leq n \leq 0.015$ である。前記式(I)で表される組成において、変数mと5とkの積は、元素M<sup>I</sup>のモル比を表す。前記式(I)で表される組成において、所望の色調に波長変換するために、変数mは、 $0.00001 \leq m \leq 0.02$ 、 $0.001 \times 10^{-2} \leq m \leq 0.02$ であってもよく、 $0.00005 \leq m \leq 0.018$ 、 $0.005 \times 10^{-2} \leq m \leq 0.018$ であってもよい。前記式(I)で表される組成において、変数kと5の積は、Al及び元素M<sup>I</sup>の合計のモル比を表す。変数kは、より好ましくは $0.96 \leq k \leq 1.02$ 、さらに好ましくは $0.97 \leq k \leq 1.01$ である。

20

【0038】

希土類アルミン酸塩焼結体

希土類アルミン酸塩焼結体は、希土類アルミン酸塩の組成を有する蛍光体の結晶相と空隙を含み、平面又は断面における結晶相の円相当の平均粒径が $0.3 \mu m$ 以上 $15 \mu m$ 以下の範囲内であり、断面における前記空隙の円相当の孔径が $0.1 \mu m$ 以上 $5 \mu m$ 以下の範囲内であり、相対密度が85%以上99%以下の範囲内であることが好ましい。希土類アルミン酸塩焼結体は、第一実施態様に係る製造方法又は第二実施態様に係る製造方法によって得られたものであることが好ましい。

30

【0039】

希土類アルミン酸塩焼結体に含まれる結晶相の円相当の平均粒径が $0.3 \mu m$ 以上 $15 \mu m$ 以下の範囲内であり、空隙の円相当の孔径が $0.1 \mu m$ 以上 $5 \mu m$ 以下の範囲内であれば、空隙の平均的な大きさが結晶相とほぼ同じであるか、結晶相よりも小さいため、希土類アルミン酸塩焼結体に入射された励起光が、空隙によって散乱され、空隙によって散乱された光が、結晶相によって効率よく波長変換されるため、励起光が入射された面と同じ面から波長変換された光を効率よく出射することができる。

40

【0040】

希土類アルミン酸塩焼結体に含まれる結晶相の円相当の平均粒径は次のように測定した。走査型電子顕微鏡(Scanning Electron Microscope: SEM)を用いて、希土類アルミン酸塩焼結体の平面又は断面のSEM画像を観察し、SEM画像において、粒界で区切られている1つの結晶相の最長直径と最短直径とを測定するか、1つの結晶相の2箇所以上の直径を測定して、最長直径と最短直径の平均値、又は、2箇所以上の直径の平均値を、結晶相の円相当の粒径とすることができる。例えば、希土類アルミン酸塩焼結体の平面又は断面のSEM画像における複数個の結晶相の円相当の粒径を測定し、各結晶相の円相当の粒径の合計値を測定対象とした結晶相の個数で除した値を結晶相の円相当の平均粒径とすることができる。

50

## 【0041】

希土類アルミン酸塩焼結体に含まれる空隙の円相当の孔径は、希土類アルミン酸塩焼結体の断面のSEM画像を観察し、SEM画像において、1つの空隙の最長直径と最短直径を測定するか、1つの空隙の2箇所以上の直径を測定して、1つの空隙の最長直径と最短直径の平均値、又は、1つの空隙の2箇所以上の直径の平均値を、空隙の円相当の孔径とすることができる。

## 【0042】

希土類アルミン酸塩焼結体の相対密度は、好ましくは85%以上99%以下の範囲内であり、より好ましくは89%以上であり、さらに好ましくは90%以上であり、よりさらに好ましくは91%以上であり、特に好ましくは92%以上である。希土類アルミン酸塩焼結体の相対密度が85%以上99%以下の範囲内であると、希土類アルミン酸塩焼結体に入射された励起光を空隙で効率よく散乱させて、散乱させた光を結晶相で効率よく波長変換して、励起光を入射された面と同一の面から波長変換された光を出射することができる。

10

## 【0043】

希土類アルミン酸塩焼結体の相対密度は、希土類アルミン酸塩焼結体の見掛け密度及び希土類アルミン酸塩焼結体の真密度から下記式(1)により算出することができる。

## 【0044】

## 【数1】

20

$$\text{希土類アルミン酸塩焼結体の相対密度(\%)} = (\text{希土類アルミン酸塩焼結体の見掛け密度} \div \text{希土類アルミン酸塩焼結体の真密度}) \times 100 \quad (1)$$

## 【0045】

希土類アルミン酸塩焼結体の見掛け密度は、希土類アルミン酸塩焼結体の質量を希土類アルミン酸塩焼結体の体積で除した値であり、下記式(2)により算出することができる。希土類アルミン酸塩焼結体の真密度は、希土類アルミン酸塩蛍光体の真密度を用いることができる。

30

## 【0046】

## 【数2】

$$\text{希土類アルミン酸塩焼結体の見掛け密度} = \text{希土類アルミン酸塩焼結体の質量(g)} \div \text{希土類アルミン酸塩焼結体の体積(アルキメデス法)(cm}^3\text{)} \quad (2)$$

40

## 【0047】

希土類アルミン酸塩焼結体は、空隙率が1%以上15%未満の範囲であることが好ましい。希土類アルミン酸塩焼結体の空隙率は、100%から希土類アルミン酸塩焼結体の相対密度を引いた値であり、必要であれば、下記式(3)により算出することができる。

## 【0048】

## 【数3】

50

希土類アルミン酸塩焼結体の空隙率(%)=100%-希土類アルミン酸塩焼結体の相対密度(%) (3)

【0049】

希土類アルミン酸塩焼結体は、結晶相の周囲に空隙が分散していることが好ましい。結晶相の周囲に空隙が分散していると、希土類アルミン酸塩焼結体に入射された励起光が、結晶相の周囲に分散している空隙によって散乱され、分散された光が結晶相によって効率的に波長変換されるため、励起光が入射された面と同じ面から波長変換された光を出射することができる。

10

【0050】

希土類アルミン酸塩焼結体は、平面又は断面における円相当の粒径が0.1 μm以上1.0 μm以下の範囲内である第1結晶相と、平面又は断面における円相当の粒径が1.1 μm以上15 μm以下の範囲内である第2結晶相を含むことが好ましい。希土類アルミン酸塩焼結体が、円相当の粒径の異なる二種の結晶相を有すると、大きさの異なる第1結晶相と第2結晶相との界面でも光が乱反射して、励起光を波長変換するため、励起光の入射面と同一面から波長変換された光を出射する場合に光の広がりを抑制して、目的の位置に集光する波長変換された光を出射することができる。

20

【0051】

希土類アルミン酸塩焼結体に含まれる第1結晶相と第2結晶相は、結晶相の大きさに差がある方が、空隙が形成されやすい傾向がある。一方、空隙が大きすぎると、励起光が空隙で散乱されずに、透過してしまう場合がある。第1結晶相の円相当径が0.1 μm以上1.0 μm以下の範囲内であり、第2結晶相の円相当の粒径が、1.1 μm以上15 μm以下の範囲内であると、円相当の孔径が0.1 μm以上5.0 μm以下の空隙が各結晶相の周囲に存在し、適度の大きさの空隙によって励起光が効率よく散乱され、結晶相で効率よく波長変換されるため、励起光が入射された面と同一の面から、目的の位置に集光する波長変換された光を出射することができる。

【0052】

希土類アルミン酸塩焼結体は、断面における645 μm<sup>2</sup>の単位面積あたりの空隙の平均個数が5個以上30個以下の範囲内であることが好ましい。希土類アルミン酸塩焼結体に含まれる空隙が、断面における単位面積当たり、5個以上30個以下含まれていれば、空隙がほぼ均等に希土類アルミン酸塩焼結体に含まれており、空隙で励起光を効率よく散乱させて、周囲の結晶相によって効率よく波長変換し、希土類アルミン酸塩焼結体の発光効率を高くすることができる。希土類アルミン酸塩焼結体の断面における645 μm<sup>2</sup>の単位面積あたりの空隙の個数は、6個以上28個以下の範囲内でもよく、8個以上25個以下の範囲内でもよく、10個以上25個以下の範囲内でもよい。

30

【0053】

希土類アルミン酸塩焼結体に含まれる空隙の単位面積あたりの個数は、SEMを用いて、希土類アルミン酸塩焼結体の任意の断面のSEM画像を観察し、1つのSEM画像を4分割した単位面積645 μm<sup>2</sup>当たり空隙の個数を測定し、各単位面積あたりの空隙の個数を合計して測定対象とした単位面積の個数で除した値、この場合は4で割ることによって単位面積あたりの空隙の平均個数を算出することができる。希土類アルミン酸塩焼結体の断面における単位面積あたりの空隙の平均個数は、例えば希土類アルミン酸塩焼結体の断面の任意の5箇所をSEM画像で観察し、5箇所のそれぞれを4分割して個々の単位面積を645 μm<sup>2</sup>とし、5箇所のSEM画像を4分割した20個の単位面積645 μm<sup>2</sup>に含まれる空隙の数の合計を測定対象とした単位面積個数の20で除して求めることができる。

40

【0054】

50

希土類アルミン酸塩焼結体は、励起光が入射される入射面（第1の主面）と、波長変換された光が出射する出射面（第1の主面）とが同一の面である反射型の波長変換部材として用いることができる。希土類アルミン酸塩焼結体は、励起光の入射面と光の出射面が同一面となる反射型の波長変換部材として用いる場合には、希土類アルミン酸塩焼結体の厚さには制限されず、希土類アルミン酸塩焼結体が板状体である場合には、板厚は、好ましくは $90\text{ }\mu\text{m}$ 以上 $250\text{ }\mu\text{m}$ 以下の範囲内であり、より好ましくは $100\text{ }\mu\text{m}$ 以上 $240\text{ }\mu\text{m}$ 以下の範囲内である。

#### 【0055】

板状に成形された希土類アルミン酸塩焼結体は、励起光が入射され入射面と光が出射される出射面が同一の面である場合に、入射光の光径を $100\%$ としたときに、出射光の光径が $100\%$ 未満であることが好ましく、より好ましくは $95\%$ 以下であり、さらに好ましくは $94\%$ 以下である。このように、入射光の光径に対して、入射面と同一面から出射される出射光の光径が、入射光の光径 $100\%$ に対して、 $100\%$ 未満であれば、出射光の光の広がり方が抑制され、希土類アルミン酸塩焼結体から出射された光を目的の位置に集光することができる。希土類アルミン酸塩焼結体の一つ面に入射される入射光の光径は、光源から出射された光の光径である。入射光の光径は、例えば色彩輝度計によって測定することができる。入射光の光径は、好ましくは $1\text{ mm}$ 以上 $5\text{ mm}$ 以下の範囲内であり、より好ましくは $2\text{ mm}$ 以上 $4\text{ mm}$ 以下の範囲内である。希土類アルミン酸塩焼結体の入射光入射された面と同一の面から出射される出射光の光径は、希土類アルミン酸塩焼結体から出射される光の発光輝度を、色彩輝度計によって測定し、得られた発光スペクトルにおいて最大輝度を示す位置を中心（測定中心）とし、発光スペクトルにおいて最大輝度の $100$ 分の $1$ となる輝度（以下、「 $1/100$ 輝度」と称する場合がある。）となる2か所の位置の測定中心からの距離（ $\text{mm}$ ）を絶対値として測定し、発光スペクトルにおける最大輝度から最大輝度の $1/100$ 輝度となる2か所の位置の測定中心からの距離（ $\text{mm}$ ）の絶対値の和を出射光の光径として測定することができる。

#### 【0056】

得られる希土類アルミン酸塩焼結体は、波長変換部材として、光源と組み合わせることによって、プロジェクター用光源などの発光装置に用いることができる。

#### 【0057】

発光装置

発光装置は、前記希土類アルミン酸塩焼結体と、励起光源とを備える。

#### 【0058】

励起光源は、LEDチップ又はLDチップからなる半導体発光素子であることが好ましい。半導体発光素子は、窒化物系半導体（ $\text{In}_x\text{Al}_y\text{Ga}_{1-x-y}\text{N}$ 、 $0 \leq x$ 、 $0 \leq y$ 、 $x+y \leq 1$ ）を用いることができる。励起光源として半導体発光素子を用いることによって、高効率で入力に対する出力のリニアリティが高く、機械的衝撃にも強い安定した発光装置を得ることができる。希土類アルミン酸塩焼結体は、窒化物系半導体発光素子から発せられた光の波長を変換し、波長変換された混色光を発する発光装置を構成することが可能となる。窒化物系半導体発光素子は、例えば $350\text{ nm}$ 以上 $500\text{ nm}$ 以下の波長範囲の光を発するものであることが好ましい。希土類アルミン酸塩焼結体は、窒化物系半導体発光素子からの励起光を波長変換して、 $500\text{ nm}$ 以上 $650\text{ nm}$ 未満の範囲に発光ピーク波長を有する出射光を発することが好ましい。

#### 【0059】

励起光源は、半導体レーザーであることがより好ましい。励起光源である半導体レーザーから出射された励起光を、希土類アルミン酸塩焼結体を波長変換部材として用いて、希土類アルミン酸塩焼結体に入射させ、希土類アルミン酸塩焼結体によって波長が変換された光を集光させて、レンズアレイ、偏光変換素子、色分離光学系などの複数の光学系によって赤色光、緑色光、及び青色光に分離して、画像情報に応じて変調し、カラーの画像光を形成してもよい。励起光源として半導体レーザーから出射された励起光は、ダイクロイックミラー又はコリメート光学系などの光学系を通じて希土類アルミン酸塩焼結体に入射さ

せてもよい。

【0060】

図3は、発光装置100の一例を示す概略構成を示す図である。発光装置100は、励起光源101と、コリメートレンズ102と、3つのコンデンサレンズ103、105及び106と、ダイクロイックミラー104と、ロッドインテグレーター107と、希土類アルミン酸塩焼結体を含む蛍光体デバイス110とを含むことが好ましい。励起光源101は、半導体レーザーを用いることが好ましい。励起光源101は、複数の半導体レーザーを用いてもよく、複数の半導体レーザーをアレイ状又はマトリクス状に配置したものであってもよい。コリメートレンズ102は、複数のコリメートレンズがアレイ状に配置されたコリメートレンズアレイであってもよい。励起光源101から出射されたレーザー光は、コリメートレンズ102によって略平行光となり、コンデンサレンズ103によって集光され、ダイクロイックミラー104を通して、さらにコンデンサレンズ105によって集光される。コンデンサレンズ105によって集光されたレーザー光は、希土類アルミン酸塩焼結体を含む蛍光体デバイス110によって波長変換され、所望の波長範囲に発光ピーク波長を有する光が、蛍光体デバイス110から出射される。蛍光体デバイス110から出射された波長変換された光は、コンデンサレンズ106によって集光され、ロッドインテグレーター107に入射され、被照明領域における照度分布の均一性を高めた光が、発光装置100から出射される。希土類アルミン酸塩焼結体を含む発光装置100は、プロジェクター用光源に用いることができる。

10

【0061】

図4は、蛍光体デバイスの一例の概略構成を示す平面図である。蛍光体デバイス110は、少なくとも希土類アルミン酸塩焼結体111を備える。蛍光体デバイス110は、円板状の希土類アルミン酸塩焼結体111を備え、希土類アルミン酸塩焼結体111を回転させるための回転機構112を備えていてもよい。回転機構112は、モータ等の駆動機構と連結され、希土類アルミン酸塩焼結体111を回転させることによって放熱することができる。

20

【0062】

図5は、蛍光体デバイスの一例の概略構成を示す側面図である。蛍光体デバイス110は、希土類アルミン酸塩焼結体111と接して放熱体113を備えていてもよい。蛍光体デバイス110は、回転機構112によって希土類アルミン酸塩焼結体111を回転させて放熱させるとともに、希土類アルミン酸塩焼結体111で発生した熱を放熱体113に伝達して、放熱体113から容易に蛍光体デバイス110の外部に放熱することができる。

30

【実施例】

【0063】

以下、本発明を実施例により具体的に説明する。本発明は、これらの実施例に限定されるものではない。

【0064】

第1原料YAG蛍光体（共沈法によるYAG蛍光体）の製造例

塩化イットリウム（ $YCl_3$ ）、塩化セリウム（ $CeCl_3$ ）、塩化アルミニウム（ $AlCl_3$ ）を、 $(Y_{0.99}Ce_{0.01})_3Al_5$ で表される組成となるように計量して、脱イオン水に溶解し、混合溶液を作製した。この混合溶液を $(NH_3)_2CO_3$ 溶液に投入し、共沈法により、 $(Y_{0.99}Ce_{0.01})_3Al_5$ で表される混合物を得た。この混合物をアルミナルツボに入れ、大気雰囲気下、 $1300^{\circ}C$ から $1600^{\circ}C$ の範囲で10時間焼成して焼成物を得た。得られた焼成物を、乾式ふるいを通して分級し、 $(Y_{0.99}Ce_{0.01})_3Al_5O_{12}$ で表される組成を有する第1原料YAG蛍光体（共沈YAG蛍光体）を準備した。第1原料YAG蛍光体（共沈YAG蛍光体）の平均粒径は、後述する方法で測定すると、 $0.3\mu m$ であった。

40

【0065】

第2原料YAG蛍光体aの製造例

酸化イットリウム（ $Y_2O_3$ ）、酸化セリウム（ $CeO_2$ ）、酸化アルミニウム（ $Al_2$

50

03)を、 $(Y_{0.97}Ce_{0.03})_3Al_5O_{12}$ で表される組成となるように計量して、混合し、フラックスとしてフッ化アルミニウム( $AlF_3$ )を添加して、ボールミルで混合した。この混合物をアルミナルツボに入れ、還元性雰囲気下、 $1400^{\circ}C$ から $1600^{\circ}C$ の範囲で10時間焼成して焼成物を得た。得られた焼成物を、純水中に分散させ、ふるいを介して種々の振動を加えながら溶媒流を流して、湿式ふるいを通過させ、次いで脱水、乾燥し、乾式ふるいを通過させて分級し、 $(Y_{0.97}Ce_{0.03})_3Al_5O_{12}$ で表される組成を有する第2原料YAG蛍光体aを準備した。第2原料YAG蛍光体aの平均粒径は、後述する方法で測定すると、 $1.1\mu m$ であった。表1において、本製造例の第2原料YAG蛍光体aと記載した。

【0066】

第2原料YAG蛍光体bの製造例

酸化イットリウム( $Y_2O_3$ )、酸化セリウム( $CeO_2$ )、酸化アルミニウム( $Al_2O_3$ )を、 $(Y_{0.99}Ce_{0.01})_3Al_5O_{12}$ で表される組成となるように計量して、混合したこと以外は、第2原料YAG蛍光体aの製造方法と同様に、 $(Y_{0.99}Ce_{0.01})_3Al_5O_{12}$ で表される組成を有する第2原料YAG蛍光体bを準備した。第2原料YAG蛍光体bの平均粒径は、後述する方法で測定すると、 $1.1\mu m$ であった。表1において、本製造例の第2原料YAG蛍光体b記載した。

【0067】

酸化イットリウム

平均粒径が $0.05\mu m$ である酸化イットリウム粒子(酸化イットリウムの純度が99.9質量%)を用いた。

【0068】

酸化アルミニウム

平均粒径が $0.6\mu m$ である酸化アルミニウム粒子(酸化アルミニウムの純度が99.9質量%)を用いた。

【0069】

酸化セリウム

平均粒径が $0.2\mu m$ である酸化セリウム粒子(酸化セリウムの純度が99.9質量%)を用いた。

【0070】

平均粒径

第1原料YAG蛍光体、第2原料YAG蛍光体a、第2原料YAG蛍光体b、酸化イットリウム粒子、酸化アルミニウム粒子、酸化セリウム粒子について、Fisher Sub-Sieve Sizer Model 95(Fisher Scientific社製)を用いて、気温 $25^{\circ}C$ 、湿度70%RHの環境下において、 $1cm^3$ 分の試料(蛍光体、各酸化物原料)をそれぞれ計り取り、専用の管状容器にパッキングした後、一定圧力の乾燥空気を流し、差圧から比表面積を読み取り、FSSS法による平均粒径を算出した。結果は上述のとおりである。

【0071】

実施例1

第1粒子を原料混合物とし、第2粒子を平均粒径が $1.1\mu m$ の第2原料YAG蛍光体aとし、第1粒子及び第2粒子に含まれる各元素の合計が $(Y_{0.97}Ce_{0.03})_3Al_5O_{12}$ で表される組成となるように計量した。原料混合物は、平均粒径が $0.05\mu m$ である酸化イットリウム( $Y_2O_3$ )と、平均粒径が $0.2\mu m$ である酸化セリウム( $CeO_2$ )と、平均粒径が $0.6\mu m$ である酸化アルミニウム( $Al_2O_3$ )とを、 $(Y_{0.97}Ce_{0.03})_3Al_5O_{12}$ で表される組成となるように計量し、混合した。第一粒子として用いた原料混合物と、第二粒子として用いた第2原料YAG蛍光体aの質量比率(第一/第二比率)を表1に示す。原料混合物と、第2原料YAG蛍光体aとを、乾式ボールミルで混合し、成形体用の混合粉体を準備した。混合粉体から混合媒体であるボールを除いた後、混合粉体を金型に充填し、 $5MPa(51kgf/cm^2)$ の圧力で

10

20

30

40

50

直径65mm、厚さ15mmの円筒形状の成形体を形成した。得られた成形体を、包装容器に入れて真空包装し、冷間静水等方圧加圧装置（神戸製鋼所（KOBELCO）社製）を用いて176MPaでCIPを行い、成形体を得た。得られた成形体を焼成炉（丸祥電気社製）により焼成を行い、希土類アルミン酸塩焼結体を得た。焼成の条件は、大気雰囲気（101.3MPa、酸素濃度：約20体積%）であり、温度が1650℃であり、焼成時間が6時間であった。得られた希土類アルミン酸塩焼結体をワイヤーソーで適切な形状および大きさに切断した後、その切断物の表面を平面研削機で研磨した。そして、最終的に板厚が230μmである実施例1の希土類アルミン酸塩焼結体を得た。

【0072】

実施例2及び3

第1粒子として原料混合物と、第2粒子として第2原料YAG蛍光体aとを、表1に示す配合比率で混合し、得られた成形体を焼成する温度を、表1に示す温度としたこと以外は、実施例1と同様にして実施例2及び3の希土類アルミン酸塩焼結体を得た。

【0073】

実施例4及び5

第1粒子を原料混合物とし、第2粒子を平均粒径が1.1μmの第2原料YAG蛍光体bとし、第1粒子及び第2粒子に含まれる各元素の合計が $(Y_{0.99}Ce_{0.01})_3Al_5O_{12}$ で表される組成となるように計量し、第1粒子と第2粒子とを表1に示す配合比率で混合し、得られた成形体を焼成する温度を、表1に示す温度としたこと以外は、実施例1と同様にして、実施例4及び5の希土類アルミン酸塩焼結体を得た。

【0074】

実施例6

第1粒子を原料混合物とし、第2粒子を平均粒径が0.3μmの第1原料YAG蛍光体（共沈YAG蛍光体）をとし、第1粒子及び第2粒子に含まれる各元素の合計が $(Y_{0.99}Ce_{0.01})_3Al_5O_{12}$ で表される組成となるように計量し、第1粒子と第2粒子とを表1に示す配合比率で混合し、得られた成形体を焼成する温度を、表1に示す温度としたこと以外は、実施例1と同様にして、実施例6の希土類アルミン酸塩焼結体を得た。

【0075】

比較例1

原料混合物を用いることなく、平均粒径が1.1μmの第2原料YAG蛍光体aを用い、成形体を焼成する温度を、表1に示す温度としたこと以外は実施例1と同様にして、希土類アルミン酸塩焼結体を得た。得られた希土類アルミン酸塩焼結体をワイヤーソーで適切な形状および大きさに切断した後、その切断物の表面を平面研削機で研磨した。そして、最終的に板厚が195μmである比較例1の希土類アルミン酸塩焼結体を得た。なお、比較例1の希土類アルミン酸塩焼結体を、実施例1から6と同じ板厚が230μmとなるようにした場合には、後述する光径比が大きくなる。そのため、比較例1の希土類アルミン酸塩焼結体では、板厚を実施例1から6の希土類アルミン酸塩焼結体よりも薄くした。

【0076】

比較例2

第1原料YAG蛍光体、第2原料YAG蛍光体a及び第2原料YAG蛍光体bを用いることなく、原料混合物を用いたこと以外は、実施例1と同様にして、希土類アルミン酸塩焼結体を得た。得られた希土類アルミン酸塩焼結体をワイヤーソーで適切な形状および大きさに切断した後、その切断物の表面を平面研削機で研磨した。そして、最終的に板厚が230μmである比較例2の希土類アルミン酸塩焼結体を得た。

【0077】

比較例3

原料混合物及び第2原料YAG蛍光体a及び第2原料YAG蛍光体bを用いることなく、第1原料YAG蛍光体（共沈YAG蛍光体）を用いたこと以外は、実施例1と同様にして、希土類アルミン酸塩焼結体を得た。得られた希土類アルミン酸塩焼結体をワイヤーソー

10

20

30

40

50

で適切な形状および大きさに切断した後、その切断物の表面を平面研削機で研磨した。そして、最終的に板厚が  $230\text{ }\mu\text{m}$  である比較例 3 の希土類アルミン酸塩焼結体を得た。

【0078】

各実施例及び比較例の希土類アルミン酸塩焼結体について、以下の分析を行った。結果を表 1 に示すか、後述した。

【0079】

相対密度

各実施例及び比較例の各希土類アルミン酸塩焼結体の相対密度を測定した。結果を表 1 に示す。各実施例及び比較例の希土類アルミン酸塩焼結体の相対密度は上述した式 (1) により算出した。希土類アルミン酸塩焼結体の見掛け密度は、上述した式 (2) より算出した。希土類アルミン酸塩焼結体の真密度は、YAG 蛍光体の真密度とした。第 1 原料 YAG 蛍光体 (共沈 YAG 蛍光体)、第 2 原料 YAG 蛍光体 a 及び第 2 原料 YAG 蛍光体 b とともに、真密度は  $4.60\text{ g/cm}^3$  とした。

10

【0080】

相対光束 (%)

各実施例及び比較例の希土類アルミン酸塩焼結体に対して、レーザーダイオードから波長が  $455\text{ nm}$  のレーザー光を入射光の光径が  $3.5\text{ mm}$  となるようにして照射して希土類アルミン酸塩焼結体に入射し、レーザー光を入射した面と同一の面から出射された光の放射束を、積分球で測定した。比較例 1 の放射束を  $100\%$  とし、比較例 1 の放射束に対する各実施例及び比較例の希土類アルミン酸塩焼結体のサンプルを測定した放射束を相対光束 (%) として表した。

20

【0081】

光径比 (出射光の光径 / 入射光の光径)

各実施例及び比較例の希土類アルミン酸塩焼結体に対して、レーザーダイオードから波長が  $455\text{ nm}$  のレーザー光を入射光の光径が、レーザー光が入射された第 1 の主面上で  $3.5\text{ mm}$  となるように照射し、レーザー光の光径を希土類アルミン酸塩焼結体の第 1 の主面に入射される入射光の光径とした。レーザー光が入射された第 1 の主面と同一の面から出射された出射光の光径は、各実施例及び比較例の希土類アルミン酸塩焼結体から出射された光の発光輝度を色彩輝度計で測定し、得られた発光スペクトルにおいて最大輝度を示す位置を中心 (測定中心) とし、発光スペクトルにおいて最大輝度の  $100$  分の  $1$  となる輝度 ( $1/100$  輝度) となる 2 か所の位置の測定中心からの距離 (mm) を絶対値として測定し、最大輝度から最大輝度の  $1/100$  輝度となる測定中心から 2 か所の位置の距離 (mm) の絶対値の和を第 1 の主面から出射された出射光の光径として測定した。第 1 の主面に入射される入射光に対する同一面である第 1 の主面から出射された出射光の光径の光径比を求めた。

30

【0082】

結晶相の円相当の平均粒径 ( $\mu\text{m}$ )

走査型電子顕微鏡 (SEM) を用いて、各実施例及び比較例の希土類アルミン酸塩焼結体の平面又は断面の SEM 画像を観察し、SEM 画像において、粒界で区切られている 1 つの結晶相の最長直径と最短直径とを測定するか、1 つの結晶相の 2 箇所以上の直径を測定して、1 つの結晶相の最長直径と最短直径の平均値、又は、1 つの結晶相の 2 箇所以上の直径の平均値を、結晶相の円相当の粒径とした。測定対象として 10 個の結晶相の円相当の粒径を測定し、測定対象である結晶相の個数で除した数値を結晶相の円相当の平均粒径とした。

40

【0083】

空隙の円相当の孔径 ( $\mu\text{m}$ )

走査型電子顕微鏡 (SEM) を用いて、各実施例及び比較例の希土類アルミン酸塩焼結体の断面の SEM 画像を観察し、SEM 画像において、1 つの空隙の最長直径と最短直径を測定するか、1 つの空隙の 2 箇所以上の直径を測定して、1 つの空隙の最長直径と最短直径の平均値、又は、1 つの空隙の 2 箇所以上の直径の平均値を、空隙の円相当の孔径とし

50

た。

【0084】

単位面積当たりの空隙の個数

走査型電子顕微鏡（SEM）を用いて、各実施例及び比較例の希土類アルミン酸塩焼結体の任意の断面のSEM画像を観察し、1つのSEM画像を4分割した単位面積 $645\mu\text{m}^2$ 当たり空隙の個数を測定し、各単位面積当たりの空隙の個数を合計して測定対象とした単位面積の個数で除した値、この場合は4で割ることによって単位面積当たりの空隙の平均個数を算出した。希土類アルミン酸塩焼結体の断面における単位面積当たりの空隙の平均個数は、希土類アルミン酸塩焼結体の断面の任意の5箇所をSEM画像で観察し、5箇所のそれぞれを4分割して個々の単位面積を $645\mu\text{m}^2$ とし、5箇所のSEM画像を4分割した20個の単位面積 $645\mu\text{m}^2$ に含まれる空隙の数の合計を測定対象とした単位面積個数の20で除して求めた。

【0085】

SEM写真

走査型電子顕微鏡（SEM）を用いて、各実施例及び比較例のSEM写真を得た。図6から8は、それぞれ実施例1から3の希土類アルミン酸塩焼結体の断面のSEM写真であり、図9及び10は、それぞれ比較例1及び2の希土類アルミン酸塩焼結体の断面のSEM写真である。

【0086】

【表1】

|      | 作製条件            |                 |                       |                                | 相対密度<br>(%) | 結晶相<br>(円相当の<br>平均粒径)<br>( $\mu\text{m}$ ) | 空隙の個数<br>(単位面積<br>$645\mu\text{m}^2$<br>当たり) | 相対光束<br>(%) | 光径比<br>出射/入射 |
|------|-----------------|-----------------|-----------------------|--------------------------------|-------------|--------------------------------------------|----------------------------------------------|-------------|--------------|
|      | 第1粒子            | 第2粒子            | 第1粒子/<br>第2粒子<br>質量比率 | 焼成温度<br>( $^{\circ}\text{C}$ ) |             |                                            |                                              |             |              |
| 実施例1 | 原料<br>混合物       | 第2原料<br>YAG蛍光体a | 50/50                 | 1650                           | 92.7        | 4.5                                        | 27.5                                         | 103.3       | 82.5         |
| 実施例2 |                 |                 | 70/30                 | 1600                           | 91.8        | 4.3                                        | 14.0                                         | 103.6       | 76.0         |
| 実施例3 |                 |                 | 50/50                 |                                | 91.1        | 6.5                                        | 27.0                                         | 104.5       | 73.6         |
| 実施例4 |                 | 第2原料<br>YAG蛍光体b | 70/30                 |                                | 93.4        | 6.1                                        | 6.7                                          | 101.2       | 92.1         |
| 実施例5 |                 |                 | 50/50                 | 1680                           | 93.6        | 4.7                                        | 14.8                                         | 101.0       | 93.9         |
| 実施例6 |                 | 第1原料<br>YAG蛍光体  | 70/30                 | 1550                           | 92.9        | 5.9                                        | 9.7                                          | 110.3       | 72.9         |
| 比較例1 | 第2原料<br>YAG蛍光体a | —               | 100                   | 1675                           | 93.9        | 2.3                                        | 12.0                                         | 100.0       | 100.0        |
| 比較例2 | 原料混合物           | —               | 100                   | 1600                           | 93.5        | 7.4                                        | 13.0                                         | 90.8        | 164.1        |
| 比較例3 | 第1原料<br>YAG蛍光体  | —               | 100                   | 1550                           | 95.8        | 4.8                                        | 11.7                                         | 94.1        | 96.8         |

【0087】

実施例1から6に係る希土類アルミン酸塩焼結体は、いずれも比較例1の希土類アルミン酸塩焼結体よりも、相対光束が高く、光径比が小さく、光の広がりが抑制されていた。実施例1から6に係る希土類アルミン酸塩焼結体は、比較例1に係る希土類アルミン酸塩焼結体よりも相対密度が小さくなるが、相対光束が高くなることから、焼結体の結晶相の周囲に空隙が分散されており、焼結体中に入射された励起光を空隙で効率よく散乱させて、空隙に近接する結晶相で効率よく波長変換して、入射面と同一面から波長変換された光を

出射させることができるため、相対光束が高くなったと考えられる。

【0088】

実施例4及び5に係る希土類アルミン酸塩焼結体は、比較例2に係る希土類アルミン酸塩焼結体と比較して、相対密度及び空隙率に大きな差はないが、相対光束は、比較例2よりも10%以上高くなった。また、実施例4及び5に係る希土類アルミン酸塩焼結体は、相対密度に大きな差のない比較例2の希土類アルミン酸塩焼結体と比較して、光径比がかなり小さくなっていた。この結果から、実施例4及び5に係る希土類アルミン酸塩焼結体は、平面における円相当の粒径が異なる第1結晶相と第2結晶相の2種の結晶相を有し、粒径の異なる結晶相の間でも光が乱反射して、励起光を波長変換するため、励起光の入射面と同一面から波長変換された光を出射する際に光の広がりを抑制することができたと考えられる。

10

【0089】

実施例1から6に係る希土類アルミン酸塩焼結体は、希土類アルミン酸塩の組成を有する蛍光体の結晶相と空隙を含み、平面における円相当の粒径が0.1  $\mu\text{m}$ 以上1.0  $\mu\text{m}$ 以下の第1結晶相と、円相当の粒径が1.1  $\mu\text{m}$ 以上15  $\mu\text{m}$ 以下の第2結晶相が含まれていた。第1結晶相と第2結晶相の粒径が異なるのは、原料混合物中に含まれる酸化物が結晶成長して形成された酸化物成長結晶相と、原料YAG蛍光体が結晶成長して形成された蛍光体成長結晶相とでは、結晶の成長速度が異なるためと推測された。

【0090】

実施例1から3に係る希土類アルミン酸塩焼結体は、図6から8に示される断面SEM写真において、平面における円相当の粒径が0.1  $\mu\text{m}$ 以上1.0  $\mu\text{m}$ 以下の第1結晶相1と、円相当の粒径が1.1  $\mu\text{m}$ 以上15  $\mu\text{m}$ 以下の第2結晶相2が含まれていることが確認できた。また、実施例1から3に係る希土類アルミン酸塩焼結体は、希土類アルミン酸塩焼結体に含まれる空隙3が、第1結晶相と第2結晶相の周囲にほぼ均等に分散されていた。実施例1から3に係る希土類アルミン酸塩焼結体は、空隙3で励起光を効率よく散乱させて、周囲の結晶相によって効率よく波長変換したため、相対光束が高くなった。また、実施例1から3に係る希土類アルミン酸塩焼結体は、円相当の粒径の異なる第1結晶相1及び第2結晶相2が含まれているため、第1結晶相1と第2結晶相2との界面でも光が乱反射して、励起光を波長変換するため、励起光の入射面と同一面から波長変換された光を出射する場合に光の広がりを抑制することができ、光径比が小さくなった。

20

30

【0091】

比較例1に係る希土類アルミン酸塩焼結体は、図9に示される断面SEM写真において、円相当の粒径が1.0  $\mu\text{m}$ 以下の第1結晶相はほとんど確認できなかった。比較例2に係る希土類アルミン酸塩焼結体は、図10に示される断面SEM写真において、各結晶相の粒径に大きな差が見られなかった。また、空隙の形状および大きさ、分布が不均一であり、実施例よりも空隙の大きさが比較的大きかった。

【産業上の利用可能性】

【0092】

本発明の一態様に係る製造方法によって得られた希土類アルミン酸塩焼結体は、LEDやLDの励起光源と組み合わせて、車載用や一般照明用の照明装置、液晶表示装置のバックライト、プロジェクター用光源の波長変換部材として利用することができる。

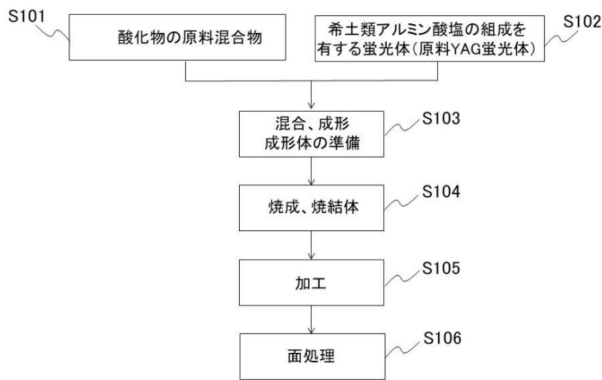
40

【符号の説明】

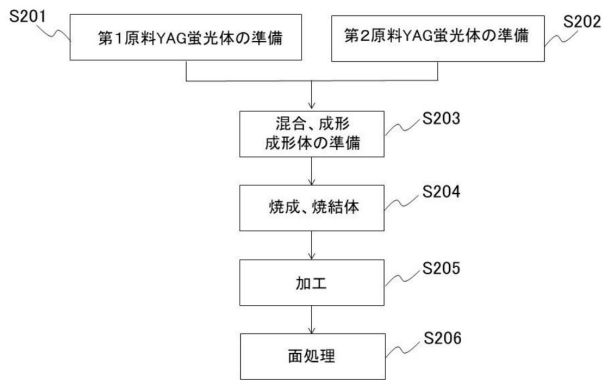
【0093】

1：第1結晶相、2：第2結晶相、3：空隙、100：発光装置、101：励起光源、102：コリメートレンズ、103、105及び106：コンデンサレンズ、104：ダイクロイックミラー、107：ロッドインテグレーダー、110：蛍光体デバイス、111：希土類アルミン酸塩焼結体、112：回転機構、113：放熱体。

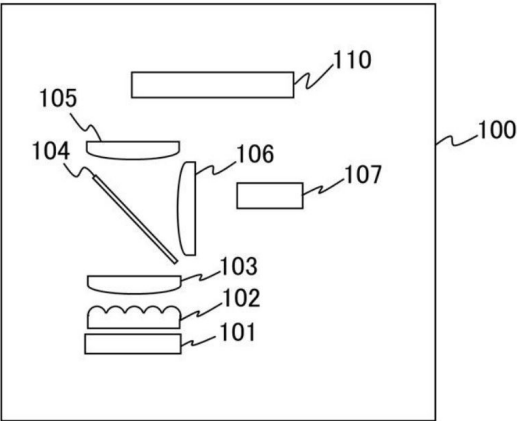
【図面】  
【図 1】



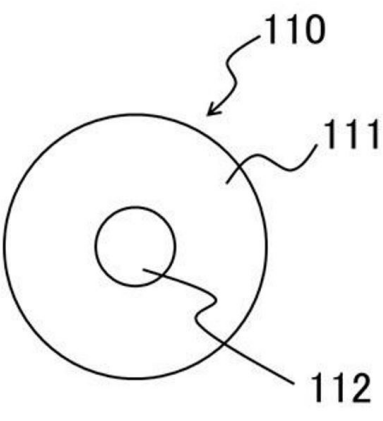
【図 2】



【図 3】



【図 4】



10

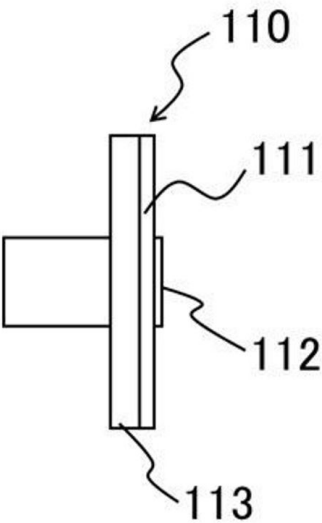
20

30

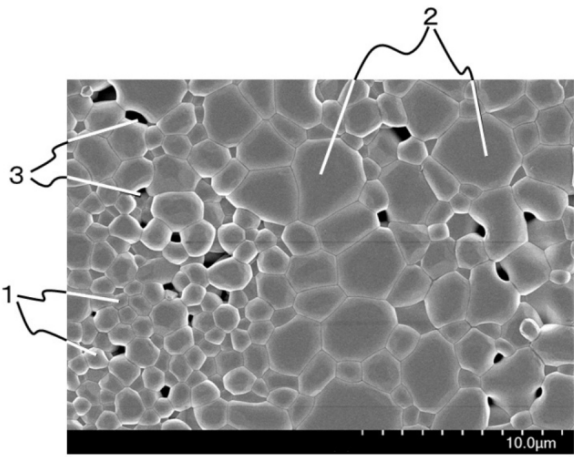
40

50

【図 5】



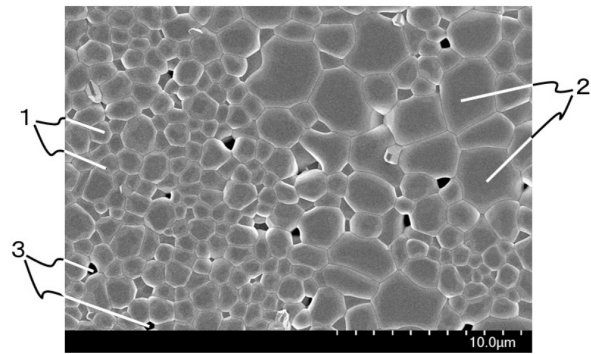
【図 6】



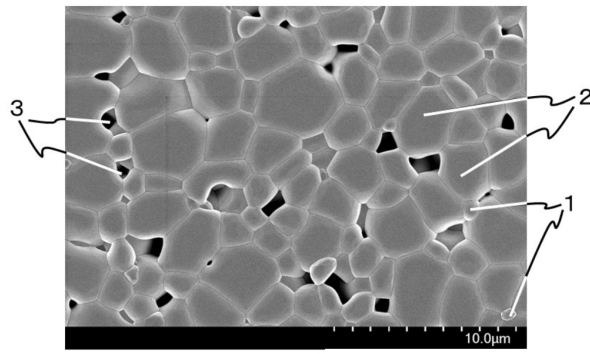
10

20

【図 7】



【図 8】

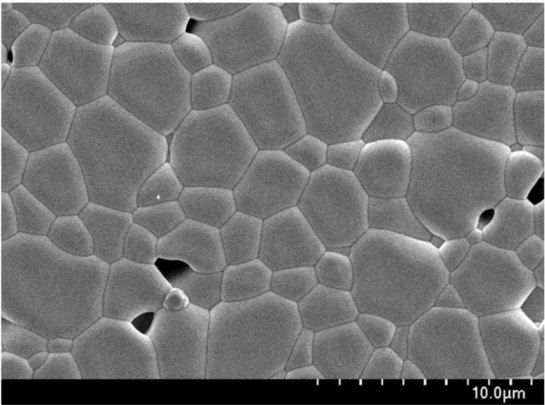


30

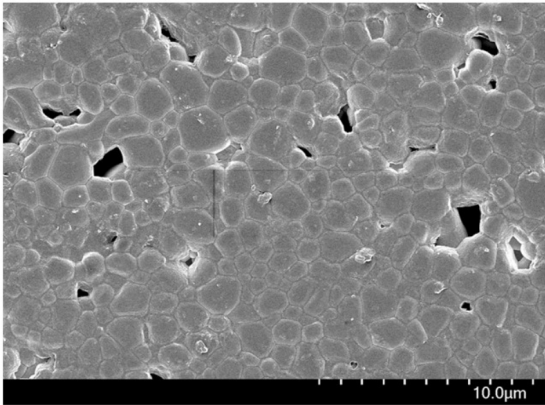
40

50

【図 9】



【図 10】



10

20

30

40

50

【手続補正書】

【提出日】令和3年11月26日(2021.11.26)

【手続補正1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

希土類アルミン酸塩の組成を有する蛍光体の結晶相と、空隙と、を含み、  
平面又は断面における前記結晶相の円相当の平均粒径が  $0.3\ \mu\text{m}$  以上  $15\ \mu\text{m}$  以下の範囲内であり、  
前記平面又は前記断面における前記空隙の円相当の孔径が  $0.1\ \mu\text{m}$  以上  $5\ \mu\text{m}$  以下の範囲内である、希土類アルミン酸塩焼結体。

10

【請求項2】

前記結晶相が、下記式 (I) で表される希土類アルミン酸塩の組成を有する、請求項1に記載の希土類アルミン酸塩焼結体。

$(\text{Ln}_1 - \text{nCe}_n)_3(\text{Al}_1 - \text{mM}^1_{\text{m}})_5\text{kO}_{12}$  (I)

(前記式 (I) 中、 $\text{Ln}$  は、Y、La、Lu、Gd 及び Tb からなる群から選択される少なくとも一種の希土類元素であり、 $\text{M}^1$  は、Ga 及び Sc から選択される少なくとも一種の元素であり、 $\text{m}$ 、 $\text{n}$  及び  $\text{k}$  は、それぞれ  $0 \leq \text{m} \leq 0.02$ 、 $0.003 \leq \text{n} \leq 0.017$ 、 $0.95 \leq \text{k} \leq 1.05$  を満たす数である。)

20

【請求項3】

希土類アルミン酸塩焼結体の真密度に対する希土類アルミン酸塩焼結体の見掛け密度により算出される、相対密度が 85% 以上 99% 以下の範囲内である請求項1又は2に記載の希土類アルミン酸塩焼結体。

【請求項4】

前記平面又は前記断面における円相当の粒径が  $0.1\ \mu\text{m}$  以上  $1.0\ \mu\text{m}$  以下の範囲内である第1結晶相と、前記平面又は前記断面における円相当の粒径が  $1.1\ \mu\text{m}$  以上  $15\ \mu\text{m}$  以下の範囲内である第2結晶相と、を含む、請求項1から3のいずれか1項に記載の希土類アルミン酸塩焼結体。

30

【請求項5】

前記空隙が前記第1結晶相又は前記第2結晶相の周囲に存在する、請求項4に記載の希土類アルミン酸塩焼結体。

【請求項6】

断面における  $645\ \mu\text{m}^2$  の単位面積あたりの空隙の平均個数が 5 個以上 30 個以下の範囲内である、請求項1から5のいずれか1項に記載の希土類アルミン酸塩焼結体。

【請求項7】

前記結晶相と、前記空隙と、からなる請求項1から6のいずれか1項に記載の希土類アルミン酸塩焼結体。

40

【請求項8】

請求項1から7のいずれか1項に記載の希土類アルミン酸塩焼結体と、 $350\ \text{nm}$  以上  $500\ \text{nm}$  以下の範囲内に発光ピーク波長を有する発光素子と、を備えた発光装置。