

(19) 日本国特許庁(JP)

## (12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第5587601号  
(P5587601)

(45) 発行日 平成26年9月10日(2014.9.10)

(24) 登録日 平成26年8月1日(2014.8.1)

(51) Int.Cl.

F 1

<b>C09K 11/80</b>	<b>(2006.01)</b>	C09K 11/80	C Q D
<b>H01L 33/50</b>	<b>(2010.01)</b>	H01L 33/00	4 1 O
<b>C09K 11/64</b>	<b>(2006.01)</b>	C09K 11/64	
<b>C09K 11/59</b>	<b>(2006.01)</b>	C09K 11/64	C P M
<b>C09K 11/56</b>	<b>(2006.01)</b>	C09K 11/64	C P C

請求項の数 11 (全 16 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2009-516014 (P2009-516014)  
 (86) (22) 出願日 平成19年6月11日 (2007.6.11)  
 (65) 公表番号 特表2009-541520 (P2009-541520A)  
 (43) 公表日 平成21年11月26日 (2009.11.26)  
 (86) 國際出願番号 PCT/IB2007/052193  
 (87) 國際公開番号 WO2007/148253  
 (87) 國際公開日 平成19年12月27日 (2007.12.27)  
 審査請求日 平成22年6月9日 (2010.6.9)  
 (31) 優先権主張番号 06115815.0  
 (32) 優先日 平成18年6月21日 (2006.6.21)  
 (33) 優先権主張国 歐州特許庁 (EP)

前置審査

(73) 特許権者 590000248  
 コーニングレッカ フィリップス エヌ  
 ヴェ  
 オランダ国 5 6 5 6 アーエー アイン  
 ドーフェン ハイテック キャンパス 5  
 (74) 代理人 110001690  
 特許業務法人M&Sパートナーズ  
 (72) 発明者 シュミット ペーター  
 オランダ エヌエル-5 6 5 6 アーアー  
 アイントホーフェン プロフ ホルスト  
 ラーン 6  
 (72) 発明者 ベヒテル ハンス ヘルムート  
 オランダ エヌエル-5 6 5 6 アーアー  
 アイントホーフェン プロフ ホルスト  
 ラーン 6

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】少なくとも一つのセラミック球状色変換材料を有する光放出デバイス

## (57) 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

光放出デバイスであって、

少なくとも一つの光源および平均直径が 1 0 0 μm 以上 2 5 0 0 μm 以下である少なくとも一つのセラミック球状色変換材料を有し、前記少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の密度は、対応する単結晶の理論密度の 9 5 % 以上 1 0 0 % 以下であり、前記少なくとも一つのセラミック球状色変換材料は、(a) 少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の材料をプリフォームするステップと、(b) プリフォームされた少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の材料を加圧するステップと、(c) 前記ステップ (b) において成形された少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の任意の二次的な処理ステップと、を含む方法によって得られるものであり、前記ステップ (b) は、少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の静水圧圧縮成形処理を含む、光放出デバイス。

## 【請求項 2】

請求項 1 に記載の光放出デバイスにおいて、前記少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の形状の平均偏差が理想的な球状形状から 1 0 % 以下である光放出デバイス。

**【請求項 3】**

請求項 1 または 2 に記載の光放出デバイスにおいて、前記少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の球の直径は本質的には幅  $s$  が 0 . 1 以下の対数正規分布に従う光放出デバイス。

**【請求項 4】**

請求項 1 乃至 3 の何れかに記載の光放出デバイスにおいて、前記少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の表面粗さが 0 . 0 0 1  $\mu\text{m}$  以上 1  $\mu\text{m}$  以下である光放出デバイス。

**【請求項 5】**

請求項 1 乃至 4 の何れかに記載の光放出デバイスにおいて、前記少なくとも一つのセラミック球状色変換材料は、以下のグループから選択される材料から本質的には製造され、そのグループは、

(  $L_{u_{1-x-y-a-b}}Y_xGd_y$  )<sub>3</sub> ( $Al_{1-z-c}Ga_zSi_c$ )<sub>5</sub>  $O_{12-c}N_c : Ce_aPr_b$  ( 0  $x$  1 , 0  $y$  1 , 0  $z$  0 . 1 , 0 <  $a$  0 . 2 , 0 <  $b$  0 . 1 および 0 <  $c$  < 1 ),

(  $Sr_{1-x-y}Ba_xCa_y$  )<sub>2-z</sub>  $Si_{5-a}Al_aN_{8-a}O_a : Eu_z^{2+}$  ( 0  $a$  5 , 0 <  $x$  1 , 0  $y$  1 および 0 <  $z$  0 . 1 ),

(  $Sr_{1-a-b}Ca_bBa_c$  )  $Si_xNyO_z : Eu_a^{2+}$  ( 0 . 0 0 2  $a$  0 . 2 , 0 . 0  $b$  0 . 2 5 , 0 . 0  $c$  0 . 2 5 , 1 . 5  $x$  2 . 5 , 1 . 5  $y$  2 . 5 , 1 . 5  $z$  2 . 5 ),

(  $Sr_{1-u-v-x}Ca_vBa_x$  )<sub>2</sub> ( $SiO_4$ ) :  $Eu_u$  ( 0  $x$  1 , 0  $u$  0 . 1 , 0  $v$  1 ),

(  $Ca_{1-x-y}Sr_x$  )  $S : Eu^{2+y}$  ( 0  $x$  1 , 0  $y$  0 . 0 1 ),

(  $Ca_{1-x-y-z}Sr_xBa_yMg_z$  )<sub>1-n</sub> ( $Al_{1-a+b}Ba$ )  $Si_{1-b}N_{3-b}O_b : RE_n$  ( 0  $x$  1 , 0  $y$  1 , 0  $z$  1 , 0  $a$  1 , 0 <  $b$  1 および 0 . 0 0 2  $n$  0 . 2 および  $RE$  は  $Eu$  および / または  $Ce$  から選択される。 ),

$M_x^{v+}Si_{12-(m+n)}Al_{m+n}O_nN_{16-n}$  (  $x = m / v$  、  $M$  は金属であり、好ましくは  $Li$  、  $Mg$  、  $Ca$  、  $Y$  、  $Sc$  、  $Ce$  、  $Pr$  、  $Nf$  、  $Sm$  、  $Eu$  、  $Gd$  、  $Tb$  、  $Dy$  、  $Ho$  、  $Er$  、  $Tm$  、  $Yb$  、  $Lu$  またはそれらの混合物を含むグループから選択される。 ) あるいは、

それらの混合物である光放出デバイス。

**【請求項 6】**

請求項 1 乃至 5 の何れかに記載の光放出デバイスにおいて、前記少なくとも一つのセラミック球状色変換材料は  $n$  ( 屈折率 ) が 1 . 3 以上のマトリックス材料で少なくとも一部が囲まれている光放出デバイス。

**【請求項 7】**

少なくとも一つの光源を有する光放出デバイスに用いられる、平均直径が 1 0 0  $\mu\text{m}$  以上 2 5 0 0  $\mu\text{m}$  以下であり、かつ、対応する単結晶の理論密度の 9 5 % 以上 1 0 0 % 以下の密度を有する少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の供給方法であって、

( a ) 少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の材料をプリフォームするステップと、

( b ) プリフォームされた少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の材料を加圧するステップと、

( c ) 前記ステップ ( b ) において成形された少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の任意の二次的な処理ステップと、を含み

前記ステップ ( b ) が少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の静水圧圧縮成形処理を含む、

方法。

**【請求項 8】**

請求項 7 に記載の少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の供給方法において、噴

10

20

30

40

50

霧乾燥ステップを含む方法。

**【請求項 9】**

請求項7または8に記載の方法において、前記ステップ( b )が少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の 1500 パール以上 10000 パール以下の静水圧圧縮成形を含む方法。

**【請求項 10】**

請求項7または8に記載の方法において、前記ステップ( b )が少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の 2500 パール以上 5500 パール以下の静水圧圧縮成形を含む方法。

**【請求項 11】**

請求項1乃至6の何れかに記載の光放出デバイスおよび／または請求項7または8の方法で製造される少なくとも一つのセラミック球状色変換材料を含むシステムにおいて、1以上の次の用途で使用される前記システム：

事務照明システム、

家庭用途システム、

店舗照明システム、

家庭照明システム、

アクセント照明システム、

スポット照明システム、

劇場照明システム、

光ファイバー用途のシステム、

投影システム、

自己点灯( self - light )ディスプレイシステム、

ピクセルで構成された( pixelated )ディスプレイシステム、

セグメント化された( segmented )ディスプレイシステム、

警標システム、

医療照明用システム、

指標( indicator sign )システム

装飾照明システム、

携帯システム、

自動車用途、および

温室照明システム。

**【発明の詳細な説明】**

**【技術分野】**

**【0001】**

本発明は光放出デバイスに関し、特に LED 分野に関する。

**【背景技術】**

**【0002】**

遷移金属または希土類金属を活性化材料としてホスト材料へ添加したケイ酸塩、リン酸塩(たとえば、りん灰石)およびアルミニン酸塩を含有する蛍光体は周知である。特に、近年実用的になってきた青色 LED のように、蛍光材料と組み合わせた青色 LED を使用した白色光放出デバイスの開発が精力的に推進されてきている。光源として LED を有する白色光放出デバイスは低消費電力であること、および、既存の白色光源より長期間の有効寿命が期待され、液晶パネルのバックライト、屋内および屋外照明備品、自動車パネルのバックライト、自動車のフロントライトおよび信号灯の光源、投射装置の光源等の用途に向けた開発が進められている。

**【発明の開示】**

**【発明が解決しようとする課題】**

**【0003】**

しかしながら、最新技術の LED の製造、特に色変換材料用途では、複雑な技法を含ん

10

20

30

40

50

ている。本発明における色変換材料は、特に、光放出デバイスからの光を吸収することが可能で、たいていの用途では緑色光および／または赤色光を含むであろう異波長の光を放出する材料を意味し、および／または含む。

#### 【0004】

本発明の目的は、多くの用途において容易に L E D を強化 ( b u i l d - u p ) するこ  
とが可能な光放出デバイスを提供することである。

#### 【課題を解決するための手段】

#### 【0005】

この目的は本発明の請求項 1 の光放出デバイスによって解決される。すなわち、少なくとも一つの光源と、平均直径が  $25 \mu m$  以上  $2500 \mu m$  以下である少なくとも一つのセラミック球状色変換材料を有する光放出デバイスが提供される。一例を挙げると、光源は、無機 L E D 、有機 L E D またはレーザーダイオードであってもよい。  
10

#### 【発明の効果】

#### 【0006】

光放出デバイスおよび／または光放出デバイス用の少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の使用は、本発明における広範囲の用途に対して少なくとも一つの次の利点を持つことが示された。

#### 【0007】

光放出デバイスは球状色変換材料を有し、この材料は、球間の摩擦が小さいので低圧力下で、外部からの力および／または自己集合 ( s e l f - a s s e m b l y ) によって密に詰まった構造に集合し得る。  
20

#### 【0008】

最小平均直径  $25 \mu m$  の球の（原子の寸法と比較した）巨視的な性質によれば、少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の使用によって非常に正確な球の注入 ( d o s i n g ) ができるので、優れた色度制御が可能になる。

#### 【0009】

少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の球状形状によれば広範な用途での素晴らしい光変換、光混合、および光外部結合特性を得ることが可能になる。

#### 【0010】

このような少なくとも一つのセラミック球状色変換材料を含む光放出デバイスばかりではなく、少なくとも一つのセラミック球状色変換材料も本発明の広範な用途において供給され、および／または、高度ではないが効率的な技法、例えば以下に記述されている技法、を使用して製造されることが可能である。  
30

#### 【0011】

球状色変換材料の正確な堆積制御によれば、改良された発光特性を持つ異なる色変換材料の組み合わせを簡単に実現できる。

#### 【発明を実施するための最良の形態】

#### 【0012】

本発明における用語“球状”は、理想的な球状形状からの少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の形状の平均偏差が  $10\%$  以下であることを特に意味し、および／または、含み、この範囲は本発明の好適な実施形態である。ここで平均偏差は、セラミック球状色変換材料の全体の平均直径と一部の直径との平均差異を示す。  
40

#### 【0013】

特に好適な、理想的な球状形状からの少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の形状の平均偏差は  $5\%$  以下であり、より好適には  $2\%$  以下であり、最も好適には  $1\%$  以下である。

#### 【0014】

本発明における用語“セラミック材料”は、微細孔の総量が制御されている、または、微細孔が無い結晶または多結晶の圧縮 ( c o m p a c t ) 材料または複合材料を、特に意味し、および／または、含む。  
50

## 【0015】

本発明における用語“多結晶材料”は、特に、主成分の体積密度が90パーセントよりも大きく、その80パーセントを超える部分が単結晶ドメインからなり、それぞれのドメインは直径が0.5μmよりも大きく、異なる結晶方向を有している材料を意味し、および／または、含む。単結晶ドメインは、アモルファスまたはガラス状の材料または追加の結晶成分とつながっていてもよい。

## 【0016】

本発明の好適な実施形態によれば、光放出デバイスは、少なくとも一つの光源および、平均直径が100μm以上2000μm以下、より好適には200μm以上1500μm以下、さらにより好適には250μm以上1000μm以下、最も好適には300μm以上750μm以下の少なくとも一つのセラミック球状色変換材料を含んで供給される。10

## 【0017】

好適な実施形態によれば、少なくとも一つのセラミック球状色変換材料は、対応する単結晶の理論密度の95%以上100%以下の密度を有している。これによって、散乱光が減少するので、少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の発光特性が向上されるかもしれないという点で本発明が広範な用途にとって有利であることを示した。散乱が少ないとことで、セラミック球状色変換材料中の平均光路長は減少し、従って、光の放射ではない損失量が低減する。

## 【0018】

より好ましくは少なくとも一つのセラミック球状色変換材料は、対応する単結晶の理論密度の97%以上100%以下の密度、さらにより好適には98%以上100%以下、なおより好適には98.5%以上100%以下、最も好適には99.0%以上100%以下の密度を有している。20

## 【0019】

本発明の一実施形態によれば、少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の球の直径は、本質的に、幅(s)が0.1以下である対数正規分布に従う。対数正規分布は直径“a”及び平均直径“a<sub>0</sub>”を有するセラミック球状色変換材料の数n(a)が次式に従う分布を示す。

## 【数1】

$$n(a) = \frac{N}{as\sqrt{2\pi}} \exp\left[-\frac{\ln^2(a/a_0)}{2s^2}\right]$$

30

## 【0020】

ここで、“s”はn(a)の分布幅を示す。Nはセラミック球状色変換材料の総数を示す。直径の大きさがより均一になると、本発明の広範な用途において、特に、少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の自己組み立てが簡単になることが示された。

## 【0021】

好ましくは、少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の球の直径は、本質的には、幅(s)が0.08以下、より好適には幅(s)が0.06以下である対数正規分布に従う。40

## 【0022】

本発明の好適な実施形態によれば、少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の表面(単数または複数)の表面粗さ(表面の平面性の破壊、表面の特徴である最高部と最深部との間の差の二乗平均平方根として測定される)は0.001μm以上1μm以下である。

## 【0023】

本発明の一つの実施形態によれば、少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の表面(単数または複数)の表面粗さは0.005μm以上0.8μm以下であり、本発明の一実施形態によれば0.01μm以上0.5μm以下であり、本発明の一実施形態によれば0.02μm以上0.2μm以下であり、本発明の一実施形態によれば0.03μm以上50

0.15 μm 以下である。

#### 【0024】

本発明の好適な実施形態によれば、少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の比表面積は  $10^{-7} \text{ m}^2 / \text{g}$  以上  $0.1 \text{ m}^2 / \text{g}$  以下である。ここで、比表面積は全セラミック球状色変換材料の全表面積の和をセラミック球状色変換材料の全質量で除算したものを意味する。

#### 【0025】

本発明の好適な実施形態によれば、少なくとも一つのセラミック球状色変換材料は本質的には次のグループから選択された材料から作製される。

#### 【0026】

$(\text{Lu}_{1-x-y-a-b}\text{Y}_x\text{Gd}_y)_3(\text{Al}_{1-z-c}\text{Ga}_z\text{Si}_c)_5\text{O}_{12-c}\text{N}_c : \text{Ce}_a\text{Pr}_b (0 < a < 0.2, 0 < b < 0.1 \text{ および } 0 < c < 1),$

$(\text{Sr}_{1-x-y}\text{Ba}_x\text{Ca}_y)_{2-z}\text{Si}_{5-a}\text{Al}_a\text{N}_{8-a}\text{O}_a : \text{Eu}_z^{2+} (0 < a < 5, 0 < x < 1, 0 < y < 1 \text{ および } 0 < z < 0.1),$

$(\text{Sr}_{1-a-b}\text{Ca}_b\text{Ba}_c)\text{Si}_x\text{Ny}\text{O}_z : \text{Eu}_a^{2+} (0.002 < a < 0.2, 0.02 < b < 0.25, 0.0 < c < 0.25, 1.5 < x < 2.5, 1.5 < y < 2.5, 1.5 < z < 2.5),$

$(\text{Sr}_{1-u-v-x}\text{Ca}_v\text{Ba}_x)_2(\text{SiO}_4) : \text{Eu}_u (0 < x < 1, 0 < u < 0.1, 0 < v < 1),$

$(\text{Ca}_{1-x-y}\text{Sr}_x)\text{S} : \text{Eu}_y^{2+} (0 < x < 1, 0 < y < 0.01),$

$(\text{Ca}_{1-x-y-z}\text{Sr}_x\text{Ba}_y\text{Mg}_z)_{1-n}(\text{Al}_{1-a+b}\text{Ba})\text{Si}_{1-b}\text{N}_{3-b}\text{O}_b : \text{RE}_n (0 < x < 1, 0 < y < 1, 0 < z < 1, 0 < a < 1, 0 < b < 1 \text{ および } 0.002 < n < 0.2, \text{ RE は Eu および / または Ce から選択される。}),$

$\text{M}_x^{v+}\text{Si}_{12-(m+n)}\text{Al}_{m+n}\text{O}_n\text{N}_{16-n} (x = m / v, M \text{ は金属であり、 M は好ましくは Li, Mg, Ca, Y, Sc, Ce, Pr, Nf, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu またはそれらの混合物を含むグループから選択される。}),$   
またはそれらの混合物である。

#### 【0027】

用語 “本質的に (essential) ” は、特に、少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の 95 % 以上、好ましくは 97 % 以上、最も好適には 99 % 以上がこの材料からなることを意味する。しかしながら、いくつかの用途では、微量の添加剤がバルク組成物中に存在してもよい。これらの添加剤は、特に、例えば当業者にとってフラックスとして知られる種類のものを含む。適切なフラックスはアルカリ土類またはアルカリ金属酸化物およびフッ化物、  $\text{SiO}_2$  および同種のものおよびこれらの混合物を含む。

#### 【0028】

本発明の好適な実施形態によれば、光放出デバイスは、色変換特性を有しない材料からなる少なくとも一つのさらなる球状材料を有する。

#### 【0029】

こうすることで、光変換および光非変換の球の混合物を、光放出デバイスの色特性を本発明の広範な用途で非常に容易に調整するために設置することが可能である。このように本発明は光放出デバイスの色特性の設定および / または調整方法にも関することは言うまでもないことである。

#### 【0030】

好適な実施形態によれば、少なくとも一つのさらなる球状材料は平均直径が  $2.5 \mu\text{m}$  以上  $2500 \mu\text{m}$  以下であり、好適な実施形態によれば、少なくとも一つのさらなる球状材料の平均直径は、少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の直径の 5 % よりも小さい範囲で外れている。

#### 【0031】

好適な実施形態によれば、少なくとも一つのさらなる球状材料は、本質的にはガラス、

10

20

30

40

50

セラミックス、ガーネット（YAG等）、酸化物、ボラート、ホスファート、硫化物またはそれらの混合物のグループから選択された材料から作製される。

#### 【0032】

好適な実施形態によれば、少なくとも一つのさらなる球状材料の表面粗さは0.005μm以上0.8μm以下であり、本発明の一実施形態によれば0.01μm以上0.5μm以下であり、本発明の一実施形態によれば0.02μm以上0.2μm以下であり、本発明の一実施形態によれば0.03μm以上0.15μm以下である。

#### 【0033】

好適な実施形態によれば、少なくとも一つのさらなる球状材料の形状の平均偏差は、理想的な球状形状から5%以内であり、より好適には2%以内であり、最も好適には1%以内である。 10

#### 【0034】

本発明の好適な実施形態によれば、少なくとも一つのセラミック球状色変換材料は、n（屈折率）が1.3以上のマトリックス材料で少なくとも一部が囲まれている。好ましくは少なくとも一つのセラミック球状色変換材料はn（屈折率）が1.5以上、より好適には1.7以上、最も好適には1.8以上のマトリックス材料で少なくとも一部が囲まれている。

#### 【0035】

本発明の好適な実施形態によれば、少なくとも一つのセラミック球状色変換材料は、n（屈折率）が $n_{cv} - 0.1$ 以下のマトリックス材料で少なくとも一部が囲まれている（ここで $n_{cv}$ は少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の屈折率である）。好ましくは少なくとも一つのセラミック球状色変換材料は、n（屈折率）が $n_{cv}$ 以下のマトリックス材料で少なくとも一部が囲まれている（ここで $n_{cv}$ は少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の屈折率である）。 20

#### 【0036】

このような屈折特性を持つマトリックス材料は、本発明の広範な用途で光放出デバイスの発光特性を向上できることを示した。

#### 【0037】

マトリックス材料は、好ましくは、ポリマー、特にシリコーンポリマー、ガラス、金属酸化物、好ましくはアルミニウム、シリコンおよび／またはチタン酸化物またはそれらの混合物を含むグループから選択される。 30

#### 【0038】

本発明の好適な実施形態によれば、マトリックス材料は、ポリマー、特にシリコンポリマー、ガラス、またはそれらの混合物および発光材料を含むグループの材料の混合物から選択される。

#### 【0039】

本発明範囲内のいくつかの用途で、特にほんの微量の発光材料がさらに必要とされる場合、この材料をマトリックス中に供給することが可能となり、光放出デバイスがコンパクトになる。

#### 【0040】

本発明の好適な実施形態によれば、少なくとも一つのセラミック球状色変換材料は層類似構造で、および／または層類似（layer-like）構造の光放出デバイスで供給され、好ましくは、本質的には球を最密に配置した組み立て、またはその組み立てにいくらか近い組み立てとなる。 40

#### 【0041】

用語“本質的（essential）”は、特に、80%以上、好ましくは85%以上、最も好適には90%以上の少なくとも一つのセラミック球状色変換材料が球を最密に配置して組み立てられていることを意味する。非発光球が存在する場合には、これらの球は最密に配置した一部であると考える。

#### 【0042】

本発明の好適な実施形態によれば、光放出デバイスは少なくとも二つの異なるセラミック球状色変換材料を含む。好ましくはこれらの少なくとも二つの異なるセラミック球状色変換材料は層類似構造で供給され、好ましくは、本質的には球を最密に配置した組み立て、またはその組み立てにいくらか近い組み立てとなる。

#### 【0043】

本発明の実施形態の範囲内では、このようにすることによって、光放出デバイスの相関色温度を非常に容易に設定および／または調整できることが示された。

#### 【0044】

本発明はさらに本発明による光放出デバイス用のセラミック球状色変換材料の製造および／または供給方法に関し、その方法のステップは、

- (a) 少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の材料をプリフォームするステップ、  
(b) プリフォームされた少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の材料を加圧するステップ、および、  
(c) ステップ(b)において成形された少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の任意の二次的な処理ステップを含む。

#### 【0045】

これによって、広範な用途において好適なセラミック球状色変換材料を容易に製造し、および／または供給することが可能になる。

#### 【0046】

好ましくはステップa)には少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の材料のミリング、ブリシェイピング( pre-shaping )および／またはラフシェイピング( rough shaping )が含まれる。

#### 【0047】

好ましくはステップb)には少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の静水圧圧縮成形が含まれ、圧力は好ましくは1500バール以上10000バール以下であり、より好ましくは2500バール以上5500バール以下である。

#### 【0048】

好ましくは少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の静水圧圧縮成形は溶媒中で行なわれ、好ましくは水中で行なわれる。

#### 【0049】

本発明の好適な実施形態によれば、ステップb)を行なう前に、少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の材料をコーティング層で覆い、この層はその後除去してもよい。

#### 【0050】

これは実際に、少なくとも一つのセラミック球状色変換材料の球状形状を理想的な球状形状に近づけることを手助けしているので、本発明の広範な範囲の用途にとって有用であることを示した。

#### 【0051】

コーティング層は、好ましくは有機高分子材料および／または無機高分子材料、例えばポリオレフィンから選択される。

#### 【0052】

好ましくは、ステップc)には研削および／または研磨が含まれる。

#### 【0053】

本発明はさらに、噴霧乾燥ステップを含む本発明による光放出デバイス用のセラミック球状色変換材料の製造および／または供給方法に関する。この手法は本発明内のいくつかの用途および／または材料に適用できることを示した。

#### 【0054】

本発明の方法で製造されたセラミック球状色変換材料および、本発明による光放出デバイスは、次の1以上の項目の幅広い種類のシステムおよび／または用途で使用してもよい。

10

20

30

40

50

## 【0055】

事務照明システム、  
 家庭用途システム、  
 店舗照明システム、  
 家庭照明システム、  
 アクセント照明システム、  
 スポット照明システム、  
 劇場照明システム、  
 光ファイバー用途のシステム、  
 投影システム、  
 自己点灯 (self-light) ディスプレイシステム、  
 ピクセルで構成された (pixelated) ディスプレイシステム、  
 セグメント化された (segmented) ディスプレイシステム、  
 警標システム、  
 医療照明用システム、  
 指標 (indicator sign) システム、  
 装飾照明システム、  
 携帯システム、  
 自動車用途、および  
 温室照明システム。

10

20

## 【0056】

請求の範囲に記載されている要素および実施形態に記述されている本発明に従って使用されている要素だけではなく前述の要素も、大きさ、形状、材料選択および技術概念に関して当業者に知られている選択基準を制限無く適用できることに特別な例外はない。

## 【0057】

本発明の対象である追加の詳細、特徴、特性および利点は、サブクレーム、図およびそれぞれの図の以下の記述および実施例に開示されており、それらは - 例示的な方法で - 本発明による光放出デバイスのいくつかの実施形態および実施例だけではなく、本発明による光放出デバイスに用いられる少なくとも一つのセラミック球状色変換材料のいくつかの実施形態および実施例として示されている。

30

## 【0058】

図1は本発明の第1実施形態によるセラミック球状色変換材料の第1の組み立てによる部分概略斜視図である。

## 【0059】

図2は本発明の第1実施形態によるセラミック球状色変換材料の組み立てのための準備の部分概略斜視図である。

## 【0060】

図3は、本発明の第2実施形態による光放出デバイスを作製する、作製第一段階の形成デバイスの横断面図である。

## 【0061】

図4は、本発明の第2実施形態による光放出デバイスを作製する、作製第二段階の形成デバイスの横断面図である。

40

## 【0062】

図5は、本発明の第2実施形態による光放出デバイスを作製する、作製第三段階の形成デバイスの横断面図である。

## 【0063】

図6は、図3乃至図5の形成デバイスで作製されたマトリックス材料中に組み込まれた本発明の第2実施形態によるセラミック球状色変換材料の集合図である。

## 【0064】

図7は、本発明の第3の実施形態による光放出デバイスを作製する、作製第一段階の形

50

成デバイスの横断面図である。

**【 0 0 6 5 】**

図 8 は、第 3 および第 4 の実施形態によるセラミック球状色変換材料の二つの異なる組み立て図である。

**【 0 0 6 6 】**

図 9 は、二種類のセラミック球状色変換材料を有する本発明の第 5 の実施形態による光放出デバイスの概略配置を示す図である。

**【 0 0 6 7 】**

図 10 は、本発明の第 6 の実施形態による光放出デバイスの概略配置を示す図である。

**【 0 0 6 8 】**

図 1 は、本発明の第 1 実施形態によるセラミック球状色変換材料 10 の第 1 の集合 30 の部分概略斜視図である。セラミック球状色変換材料 10 は多くの用途で層類似構造の形で容易に供給できることが分かる。

**【 0 0 6 9 】**

図 2 は本発明の第 1 実施形態によるセラミック球状色変換材料を集合させるための準備の部分概略斜視図である。この準備には単純に傾斜板 60 が含まれ、傾斜板と水平軸との間の角度が適切に設定された場合には、セラミック球状色変換材料 10 は、容易に所望の集合が形成されるであろう。本発明の利点は、セラミック球状色変換材料および / またはこのようなセラミック球状色変換材料を用いる光放出デバイスの製造の多くのステップにとって、ここで用いられる技法は、広範な用途で高度な設備を必要することなく、とても容易に準備できるだろうということである。

**【 0 0 7 0 】**

図 3 は、本発明の第 2 実施形態による光放出デバイスを作製する、作製第一段階の形成デバイスの横断面図であり、図 4 および図 5 は第二および第三段階を示す図である。

**【 0 0 7 1 】**

この形成デバイスは単純にいくつかのモールド 12、14 および 18 を有する。最初に、モールド 12 および 14 が供給され、セラミック球状色変換材料 10 が単純にモールドに充填される。セラミック球状色変換材料 10 の量は、好ましくは、光放出デバイスが製造される場合にはいくつかの層を築くように設定される。

**【 0 0 7 2 】**

第二段階では（図 4 に示すように）マトリックス材料 16 および / またはマトリックス前駆物質材料 16 が添加される。製造されるデバイス中でセラミック球状色変換材料 10 間の空間を埋めるであろうこのマトリックス材料は、好ましくは上記のような材料である。

**【 0 0 7 3 】**

最後に、図 5 に示すように、さらなるモールド 18 が現在のモールド 12 および 14 に加えられ、セラミック球状色変換材料 10 およびマトリックス（前駆物質）材料は、セラミック球状色変換材料 10 が層構造を形成するように矢印 A 方向に加圧される。

**【 0 0 7 4 】**

加圧中またはその後に、マトリックス前駆物質材料 16 はポリマーおよび / またはガラス類似構造を形成するように処理されてもよい。これは、例えば、マトリックス前駆物質材料 16 を加熱することによる融解で達成してもよい。

**【 0 0 7 5 】**

図 6 は、図 3 乃至図 5 の形成デバイスで作製されるマトリックス材料中に組み込まれる本発明の第 2 実施形態によるセラミック球状色変換材料の集合（30'）の図である。さらなるステップにおいて、光源 40（図示しないが図 6 において示されている）が加えられる。この光源は当該技術分野における当業者に知られているどのような光源、例えば、A I I n G a N L E D ダイを含んでいてもよい。

**【 0 0 7 6 】**

セラミック球状色変換材料の球の直径およびモールド空間の外形寸法を適切に選択すれ

10

20

30

40

50

ば、次式の最大球実装密度 D が色変換配置 30'において達成され得る。

【0077】

$$D = / (3 \quad 2) = 0.7405$$

【0078】

図7は、本発明の第3の実施形態による光放出デバイスを作製する、作製第一段階の形成デバイスの横断面図である。この形成デバイスの組み立ては、最初からすでに光源40'が供給されている点を除いて、図3乃至図5と類似しているが、モールド12'は異なつて形状をしている。

【0079】

図8は、本発明の第3および第4の実施形態によるセラミック球状色変換材料10の二つの更なる集合図32および34である。適切に形成されていれば、セラミック球状色変換材料10は自分自身で層類似構造32、34に配置することが分かる。セラミック球状色変換材料10の配置の長さd1およびd2は容易に計算することができる。

10

【0080】

長さd1およびd2はセラミック球状色変換材料によって変換される光量に影響するであろうことは言うまでもない。光放出デバイスの配置および/または製造が容易に達成でき、本発明範囲内の広範な用途でセラミック球状色変換材料配置の長さをとても信頼して計算できるので、セラミック球状色変換材料は光放出デバイスの演色特性および/または相関色温度(CCT)の設定および/または調整には信頼性がある。セラミック球状色変換材料の球をさらに追加することで、CCTをシフトさせてもよい。

20

【0081】

変換される二次光の量は、色変換組み立ての厚さでとても正確に制御可能である。この厚さは、球を最密に配置した組み立ての場合には下記の値になってもよい。

【0082】

$$d_n = 2 \quad 3 r n$$

【0083】

ここで、 $d_n$ は集合させられた球の層の厚さであり、rは球の半径であり、nは六角形に実装された球層の数である。実際この値は、本質的に、本発明範囲内の多くの用途で、ほんのわずかな偏差しか発生しなかった。

【0084】

30

図9は、二種類のセラミック球状色変換材料を有する本発明の第5の実施形態による光放出デバイスの概略配置を示す図である。

【0085】

この実施形態では、二つのセラミック球状色変換材料10および20の二つの集合36、38があり、それらはお互いに接して層類似構造で供給される。光放出デバイスは、さらにセラミック球状色変換材料で二次光40bに変換される一次光40aを放出する光源40(A1InGaNLLEDダイ等)を有する。二次光40bは、セラミック球状色変換材料の特性に依存する一定量の一次光40aをも有してもよい。二つのセラミック球状色変換材料は材料が異なり、放出特性も異なるであろうから、LEDの発光特性を変化させることが可能となる。

40

【0086】

図9(または、さらにもっと異なるセラミック球状色変換材料が存在する他の実施形態-図示せず-)による光放出デバイスを提供する場合にも光放出デバイスの演色特性および/または相関色温度(CCT)の調整および/または設定が可能であることは言うまでもない。

【0087】

また、さらに別の実施形態(図示せず)によれば、さらに別の色変換材料をマトリックス材料16に(図3に示すように)組み込む。製造される光放出デバイスでは、さらに別の層を使用する必要なく、やはり二種類の色変換材料が存在するであろう。これは、本発明の範囲内のいくつかの用途にとって有利であることを示している。

50

## 【0088】

二つの球状材料が存在するさらに別の実施形態（図示しないが、図9と類似している）では、ひとつは色変換をし、他のもう一つは色変換をしない。この場合にも、光放出デバイスの相関色温度（CCT）の調整および／または設定が可能である。非色変換材料は、ある意味で色変換材料に対する“希釈（diluting）”材料の役目をする。このような構造によれば、多くの用途で色変換球と非色変換球との比さえ変化させれば、異なるCCT（あるいは他の光学特徴）を有する同じ大きさの光放出デバイスに容易に到達できる。

## 【0089】

図10は、本発明の第6の実施形態による光源40を有する光放出デバイスの概略配置を示す図である。この実施形態では、セラミック球状色変換材料は、光を反射できる“ガラスドーム”50として設置される。光源40はセラミック球状色変換材料の方向に光を放出する。このような構造によれば、セラミック球状色変換材料の変換効率はさらに向上させることができる。10

## 【0090】

本発明は、本発明のさらに別の実施形態によるセラミック球状色変換材料の製造方法を示す次の実施例I（単に説明だけである）によってさらに理解されよう。

## 【0091】

## 実施例I

$\text{Al}_2\text{O}_3$  (99.99%、平均粒径350nm)、 $\text{Y}_2\text{O}_3$  (99.99%、平均粒径700nm) および  $\text{CeO}_2$  (>98.5%、平均粒径40nm) を、イソプロパノール中で高純度アルミナのミリング媒体（ニッカト-製、SSA-W999）で粉碎した。ポリビニルピチラールバインダー（積水製、BM-S）を添加後に、粉末懸濁液を乾燥させ、顆粒直径が80～120μmの範囲の顆粒を形成するように粒状化にした。そして顆粒を平均直径800μmのビーズに常温圧縮（cold pressed）し、空気中500でデバインドした（debindered）。

## 【0092】

そしてビーズを防水性のポリエチレンコーティング層で覆った。ポリエチレンコーティングでは200～400の範囲の温度での流動層コーティングを適用したが、代わりに静電塗装またはフロックコーティングを使用してもよい。30

## 【0093】

そしてコーティングされたビーズは2000～4500バールの範囲の圧力で冷間等方圧加圧された。加圧後に、残留有機バインダーおよびコーティングは1000で12時間、空気中でビーズを焼成して除去された（加熱勾配（heating ramp），50K/h）。デバインドされたセラミック素地を1750の一酸化炭素雰囲気中で2時間かけて焼結した。

## 【0094】

焼結および適度な研磨によるデアグロメレーション後、セラミックYAG:Ce球を1700、500バールアルゴン(4.8)で熱間等方圧加圧した。そして、最終的な表面仕上げおよび直径に到達するまで、市販されているミリングおよび研磨用添加剤を用いてローラベンチ上で湿式粉碎により、透明球を研削および／または研磨した。洗浄後、セラミック球を空気中1350で4時間かけて後焼きなまし（post annealed）をした。

## 【0095】

この結果セラミック球状色変換材料は平均直径が450μmで、理想的な球状形状からの形状の平均偏差が1%未満となった。

## 【0096】

前述された詳細な実施形態の要素および特徴の特定の組み合わせは一例にすぎず、これらの教示と、本明細書および参照として取り入れられた特許／特許出願の他の教示との交換および置換も明確に考慮される。当業者であれば、請求項に記載されている本発明の精40

10

20

30

40

50

神および範囲から逸脱することなく、本明細書に記述されたものの変形、修正、および他の実施形態を想到可能であることを当業者は理解するであろう。従って、前述の記載は実施例にすぎず、限定して解釈すべきではない。本発明の範囲は、特許請求の範囲およびそれらと均等の範囲によって定義される。さらに、明細書および請求項に使用されている参照記号は請求項に記載される本発明の範囲を限定するものではない。

【図面の簡単な説明】

【0097】

【図1】本発明の第1実施形態によるセラミック球状色変換材料の第1の組み立てによる部分概略斜視図である。

【図2】本発明の第1実施形態によるセラミック球状色変換材料の組み立てのための準備の部分概略斜視図である。

10

【図3】本発明の第2実施形態による光放出デバイスを作製する、作製第一段階の形成デバイスの横断面図である。

【図4】本発明の第2実施形態による光放出デバイスを作製する、作製第二段階の形成デバイスの横断面図である。

【図5】本発明の第2実施形態による光放出デバイスを作製する、作製第三段階の形成デバイスの横断面図である。

【図6】図3乃至図5の形成デバイスで作製されたマトリックス材料中に組み込まれた本発明の第2実施形態によるセラミック球状色変換材料の集合図である。

【図7】本発明の第3の実施形態による光放出デバイスを作製する、作製第一段階の形成デバイスの横断面図である。

20

【図8】第3および第4の実施形態によるセラミック球状色変換材料の二つの更なる組み立て図である。

【図9】二種類のセラミック球状色変換材料を有する本発明の第5の実施形態による光放出デバイスの概略配置を示す図である。

【図10】本発明の第6の実施形態による光放出デバイスの概略配置を示す図である。

【図1】

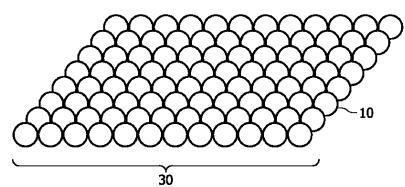


FIG. 1

【図2】

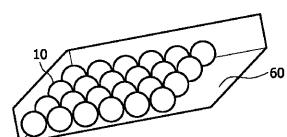


FIG. 2

【図3】

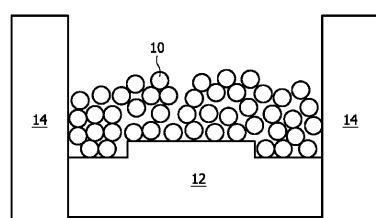


FIG. 3

【図4】

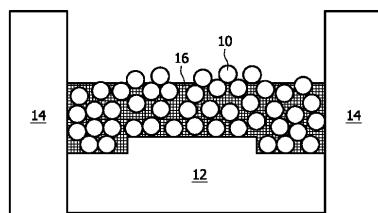


FIG. 4

【図5】

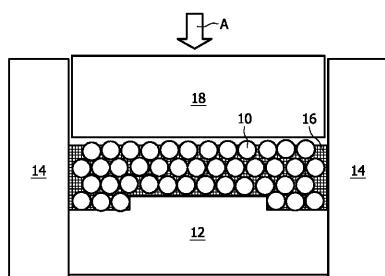


FIG. 5

【図6】

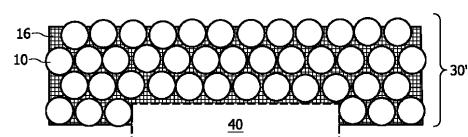


FIG. 6

【図7】

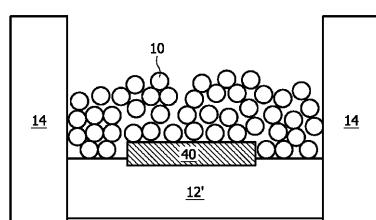


FIG. 7

【図8】

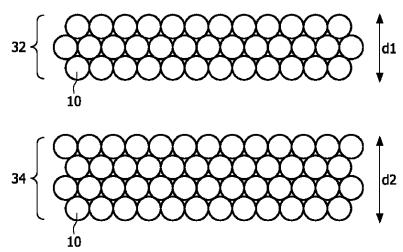


FIG. 8

【図9】

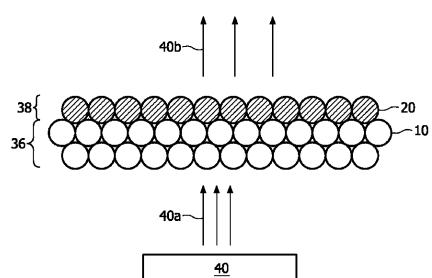


FIG. 9

【図 10】

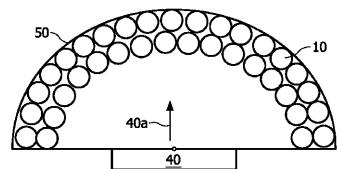


FIG. 10

---

フロントページの続き

(51)Int.Cl.	F I		
C 0 9 K 11/08	(2006.01)	C 0 9 K 11/59	C Q H
		C 0 9 K 11/56	C P R
		C 0 9 K 11/08	B

審査官 安藤 達也

(56)参考文献 特開平06-264053(JP, A)  
特開2005-294185(JP, A)  
特開2005-041942(JP, A)  
特開2004-235546(JP, A)  
特開2006-257353(JP, A)  
国際公開第03/092081(WO, A1)  
国際公開第02/042393(WO, A1)  
特表2008-527688(JP, A)  
特表2001-513697(JP, A)  
米国特許出願公開第2005/0224828(US, A1)  
特開2005-277331(JP, A)  
特開2003-286480(JP, A)  
特開2004-228464(JP, A)  
特開2005-197234(JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C 0 9 K 11 / 0 0 ~ C 0 9 K 11 / 8 9  
H 0 1 L 3 3 / 0 0 ~ H 0 1 L 3 3 / 6 4