

---

Octroiraad



⑩ A **Terinzagelegging** ⑪ **7905162**

Nederland

⑲ NL

---

⑤4 **Lagedrukkwikdampontladingslamp.**

⑤1 Int.Cl.<sup>3</sup>: H01J61/44, H01J61/30, A61N5/06, C09K11/46, C03C3/24.

⑦1 Aanvrager: N.V. Philips' Gloeilampenfabrieken te Eindhoven.

⑦4 Gem.: Ir. R.A. Bijl c.s.  
Internationaal Octrooibureau B.V.  
Prof. Holstlaan 6  
5656 AA Eindhoven.

---

②1 Aanvraag Nr. 7905162.

②2 Ingediend 3 juli 1979.

③2 --

③3 --

③1 --

②3 --

⑥1 --

⑥2 --

---

④3 Ter inzage gelegd 6 januari 1981.

De aan dit blad gehechte stukken zijn een afdruk van de oorspronkelijk ingediende beschrijving met conclusie(s) en eventuele tekening(en).

---

N.V. Philips' Gloeilampenfabrieken te Eindhoven

"Lagedrukkwikdampontladingslamp"

De uitvinding heeft betrekking op een lagedrukkwikdampontladingslamp voor bestralingsdoeleinden met een ontladingsbuis uit glas met een absorptiekant gelegen tussen 280 en 305 nm, welke buis aan de binnenzijde is voorzien van  
5 een luminescerende laag.

Het is bekend, dat straling in het golflengtegebied van 305-320 nm een gunstige therapeutische werking kan hebben, bijvoorbeeld bij de behandeling van psoriasis en andere huidziekten (zie het artikel van H. Tronnier et al in Afinidad, mei 1977, p. 285-290). Een lamp van de in  
10 de aanhef genoemde soort, die beoogt selektief in het genoemde golflengtegebied te stralen, is bekend uit de Duitse ter visie gelegde octrooiaanvraag 2.707.894. De bekende lamp is voorzien van een luminescerende laag uit een  
15 luminescerend met cerium geactiveerd strontiumaluminaat. Deze luminescerende stof, die nader beschreven is in de Nederlandse octrooiaanvragen 7214862 (PHN 6604) en 7401935 (PHN 7352), heeft een betrekkelijk brede emissieband (halfwaardebreedte circa 45 nm) met een maximum bij onge-  
20 veer 310 nm, zodat ongeveer de helft van de door deze stof uitgezonden straling in het UVB-gedeelte van het erytheemgebied (290-315 nm) is gelegen. Bij de maximale erytheemgevoeligheid (circa 297 nm) bedraagt de intensiteit van deze stof nog circa 75% van de topwaarde bij 310 nm. Aangezien  
25 bij fototherapie in het algemeen slechts een geringe hoeveelheid erytheemstraling toelaatbaar is wordt in de bekende lamp een filter toegepast. Daartoe maakt men de ontladingsbuis, die de luminescerende laag draagt, uit glas met een absorptiekant tussen 280 en 305 nm, dat wil zeggen dat  
30 de transmissiecurve van het glas een waarde van 10% bereikt bij een golflengte in het gebied van 280 tot 305 nm, waarbij deze curve beneden die golflengte nog geringere waarden bezit. Als gevolg daarvan zendt de lamp beneden 280 nm nagenoeg geen straling uit en is ook de straling in het gebied

7905162

van 280 tot 305 nm beperkt.

De bovengenoemde Duitse octrooiaanvraag 2.707.894 toont een dergelijke lamp uit glas, waarvan de transmissie nagenoeg 0% is bij 295 nm. Een groot nadeel van deze bekende lamp is, dat het nuttige rendement klein is. 5 Gevonden is namelijk, dat de lamp per watt totaal in het UV (250-400 nm) uitgezonden straling slechts ongeveer 0,14 watt nuttige straling in het gebied van 307,5 tot 317,5 nm oplevert. Dit heeft tot gevolg, dat lange be- 10 stralingstijden met de daaraan verbonden nadelen noodzakelijk zijn. Een verder nadeel van de bekende lamp is, dat de door de lamp uitgezonden erytheemstraling aanzienlijk groter is dan de minimale hoeveelheid die theoretisch mogelijk is. Omdat namelijk de erytheemgevoeligheidskurve 15 (als gedefinieerd door de Commission Internationale de l'Eclairage) in het gebied van 307,5 tot 317,5 nm nog waarden heeft van 20% tot bijna 0%, vertoont straling in dit golflengtegebied ook erytheemwerking. Straling met een equi-energie-spektrum in dit gebied, bijvoorbeeld, 20 bevat in dit gebied per watt circa 0,08 erytheemwatt, hetgeen dan de minimaal bereikbare hoeveelheid is. De bekende lamp blijkt echter circa 0,17 erytheemwatts per watt nuttige straling uit te zenden. Bij een bepaalde toelaatbare erytheembelasting betekent dit een beperking 25 van de dosis nuttige straling per behandeling en dus een toename van het aantal vereiste behandelingen.

Het doel van de uitvinding is een lamp voor be- stralingsdoeleinden te verschaffen met hoog nuttig rendement en een relatief sterk verminderde intensiteit van erytheem- 30 straling.

Een lagedrukkwikdampontladingslamp voor bestralings- doeleinden met een ontladingsbuis uit glas met een absorp- tiekant gelegen tussen 280 en 305 nm, welke buis aan de binnenzijde is voorzien van een luminescerende laag, is 35 volgens de uitvinding daardoor gekenmerkt, dat de luminescerende laag een luminescerende stof bevat, die de karakteristieke lijnemissie van gadolinium bij 312 nm vertoont.

De uitvinding berust op het inzicht, dat een

hoog nuttig rendement in combinatie met een geringe erytheembelasting slechts dan bereikt kan worden, indien zeer strikte eisen worden gesteld aan de toe te passen luminescerende stof. Behalve een hoog rendement bij excitatie door 254 nm-straling moet de stof een emissie hebben, die nagenoeg geheel gekoncentreerd is in het gebied van 305-320 nm. In dat geval is namelijk praktisch alle door de stof uitgezonden straling nuttige straling. en zal de hoeveelheid erytheemstraling de theoretisch minimaal mogelijke waarde benaderen. Gevonden is, dat stoffen met gadolinium-emissie uitstekend aan deze voorwaarden voldoen. Het Gd-ion bezit een karakteristiek emissiespektrum, dat wil zeggen <sup>dat</sup> het spektrum weinig afhankelijk is van het gastrooster, waarin het luminescerende ion is ingebouwd. De Gd-emissie bestaat uit een zeer smalle band (in feite enkele dicht bij elkaar gelegen emissielijnen) met maximum bij circa 312 nm. De halfwaarde-breedte van deze emissieband bedraagt slechts 2 à 4 nm. Voorts blijkt de Gd-luminescentie in verschillende grondroosters zeer efficiënt op te treden.

Met een lamp volgens de uitvinding wordt een hoog nuttig rendement verkregen. Waar bij de bekende lamp per watt in het UV (250-400 nm) uitgezonden straling slechts 0,14 Watt nuttige straling (307,5-317,5 nm) verkregen wordt, is deze fraktie nuttige straling in een lamp volgens de uitvinding ongeveer een faktor 4 à 5 hoger, namelijk circa 0,50 à 0,75 watt per watt. Een groot voordeel van een lamp volgens de uitvinding is de geringe fraktie erytheemstraling; deze blijkt namelijk, afhankelijk van de gekozen glassoort, tot circa 0,09 erytheemwatt per watt nuttige straling beperkt te kunnen worden, welke waarde de theoretisch mogelijke minimale hoeveelheid dicht benadert.

Een uitvoeringsvorm van een lamp volgens de uitvinding, waaraan de voorkeur wordt gegeven, is daardoor gekenmerkt, dat de luminescerende laag een met Gd en Bi geactiveerd borat bevat volgens de formule

$\text{La}_{1-x-y}\text{Gd}_x\text{Bi}_y\text{B}_3\text{O}_6$ , waarin  $0,15 \leq x$ ,  $0,001 \leq y \leq 0,05$  en  $x+y \leq 1$ . Deze boraten, die nader zijn beschreven in de ter

visie gelegde Nederlandse octrooiaanvraag 7607724 (PHN 8464),  
emitteren zeer efficiënt de karakteristieke Gd-straling.  
Bij excitatie door de kwikresonantiestraling met golf-  
lengte van circa 254 nm kunnen met deze stoffen kwantum-  
5 rendementen van 70 à 75% bereikt worden.

Een tweede voordelige uitvoeringsvorm van een  
lamp volgens de uitvinding is daardoor gekenmerkt, dat de  
luminescerende laag een met Gd en Pb geactiveerd ternair  
aluminaat met hexagonale magnetoplumbietstructuur bevat,  
10 welk aluminaat de samenstelling ABC bezit, waarin A van  
25-99 mol.%  $\frac{1}{2}$  Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, van 1-35 mol.% PbO en eventueel  
 $\frac{1}{2}$  La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> voorstelt, waarin B Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> voorstelt, waarbij ten  
hoogste 20 mol.% van het Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> door Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> vervangen is,  
en waarin C MgO en/of ZnO voorstelt, waarbij tot 10 mol.%  
15 van het Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> door een equivalente hoeveelheid SiO<sub>2</sub> tezamen  
met MgO en/of ZnO vervangen kan zijn, waarbij tot 70  
mol.% van A door SrO en/of CaO en tegelijkertijd een  
equivalente hoeveelheid van C door  $\frac{1}{2}$  Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> vervangen kan  
zijn, en waarbij de gehalten A, B en C voldoen aan de  
20 voorwaarden  $[A] \geq 0,02$ ,  $0,55 \leq [B] \leq 0,95$  en  $[C] \geq \frac{1}{2}[A]$ .  
Deze luminescerende aluminaten zijn nader beschreven in  
de nog niet ter visie gelegde Nederlandse octrooiaanvraag  
7811436 (PHN 9288) en blijken hoge kwantumrendementen te  
bezitten. De stoffen volgens de formules Gd<sub>0,90</sub>Pb<sub>0,15</sub>MgAl<sub>11</sub>O<sub>19</sub>  
25 en Gd<sub>0,88</sub>Pb<sub>0,18</sub>ZnAl<sub>11</sub>O<sub>19</sub>, bijvoorbeeld, hebben een kwantum-  
rendement (254 nm-excitatie) van 50 à 55%.

Een verdere voorkeursuitvoeringsvorm van een lamp  
volgens de uitvinding is daardoor gekenmerkt, dat de  
luminescerende laag een met Gd en Pb geactiveerd silikaat  
30 van Sr en/of Ca en van Y en/of La bevat volgens de for-  
mule (Sr,Ca)<sub>3-p</sub>Pb<sub>p</sub>(Y,La)<sub>2-q</sub>Gd<sub>q</sub>Si<sub>6</sub>O<sub>18</sub>, waarin  $0,01 \leq p \leq 0,50$   
en  $0,05 \leq q \leq 2,0$ . Deze silikaten bezitten bij 254 nm-  
excitatie een kwantumrendement voor de Gd-luminescentie  
van circa 60%.

35 Het is voordelig voor de ontladingsbuis van een  
lamp volgens de uitvinding een glas te kiezen met absorp-  
tiekant tussen 295 en 305 nm. Men bereikt dan namelijk  
minimale waarden voor de erytheembelasting, omdat ook de

in de ontlading opgewekte kwiklijnen bij 297 en 303 nm nagenoeg volledig worden geabsorbeerd.

De voorkeur wordt gegeven aan dergelijke lampen, waarvan het glas bevat

5 60 - 75 mol.%  $\text{SiO}_2$ ,

10-25 mol.% van tenminste een alkalimetaaloxysde,

7-15 mol.% van tenminste een der aardalkalimetaaloxysden en  $\text{MgO}$ ,

0-2 mol.%  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,

10 0,01-0,1 mol.%  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ .

Een groot voordeel van deze glazen, die behalve de

genoemde oxyden eventueel nog kleine hoeveelheden (van

0-1 mol.%) van een loutermiddel zoals  $\text{Sb}_2\text{O}_3$  en  $\text{As}_2\text{O}_3$  kunnen

bevatten, is dat zij goedkoop zijn, omdat zij ook in grote

15 hoeveelheden toegepast worden voor lagedrukkwikdampon-  
tladingslampen voor algemene verlichtingsdoeleinden

Uitvoeringsvoorbeelden van lampen, volgens de uitvinding zullen nader worden beschreven aan de hand van een tekening en een aantal metingen.

20 In de tekening toont

fig. 1 schematisch en in doorsnede een lamp volgens de uitvinding en geeft

fig. 2 in een grafiek de spektrale energieverdeling weer van de door een dergelijke lamp uitgezonden  
25 straling.

De lamp van fig. 1 heeft een glazen ontladingsbuis 1 met een lengte van circa 120 cm en een uitwendige diameter van circa 38 mm. De wanddikte van de buis 1 bedraagt circa 0,75 mm en de samenstelling van het glas is:

30 66,30 mol.% (72,6 gew.%)  $\text{SiO}_2$ ,

21,96 mol.% (16,9 gew.%)  $\text{Na}_2\text{O}$ ,

0,685 mol.% (0,8 gew.%)  $\text{K}_2\text{O}$ ,

4,44 mol.% (5,3 gew.%)  $\text{CaO}$ ,

5,19 mol.% (2,6 gew.%)  $\text{MgO}$ ,

35 1,34 mol.% (1,7 gew.%)  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,

0,075 mol.% (0,15 gew.%)  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ .

Dit glas bezit bij circa 304 nm een transmissie van 10%.

Aan de einden van de lamp zijn elektroden 2 en 3 geplaatst, waartussen tijdens bedrijf de ontlading plaatsvindt. De

lamp is voorzien van een mengsel van edelgassen als ontsteekgas en van een kleine hoeveelheid kwik. De buis 1 is aan de binnenzijde voorzien van een luminescerende laag 4, die een luminescerende stof bevat, die de karakteristieke 312nm-straling van Gd uitzendt. De laag 4 kan op gebruikelijke wijze op de buis 1 worden aangebracht, bijvoorbeeld door middel van een suspensie, die de luminescerende stof bevat. Tijdens bedrijf neemt de lamp een vermogen op van 40 W.

#### 10 Voorbeeld 1

Een aantal lampen van de in fig. 1 getoonde soort werd voorzien van een laag uit een luminescerend boraat volgens de formule  $\text{La}_{0,487}\text{Gd}_{0,5}\text{Bi}_{0,013}\text{B}_3\text{O}_6$ . Na 100 uur branden bleken deze lampen over het gehele spektrum (van 250-400 nm), een hoeveelheid straling uit te zenden van 1,800 W. De hoeveelheid nuttige straling in het gebied van 307,5 tot 317,5 nm bleek 1,290 W te bedragen, dat wil zeggen van de in totaal uitgezonden straling is circa 72% nuttige straling. In fig. 2 is de spektrale energieverdeling van de door deze lampen uitgezonden straling grafisch weergegeven. Op de horizontale as is de golflengte  $\lambda$  in nm uitgezet en op de verticale as de uitgezonden stralingsenergie E in W per golflengte-interval van 5 nm.

#### Voorbeeld 2

25 Lampen met een konstruktie als beschreven aan de hand van fig. 1, echter met een buislengte van 150 cm en bestemd voor het opnemen van een vermogen van 80 W, werden voorzien van een luminescerende laag uit dezelfde luminescerende stof als toegepast in voorbeeld 1. Na 100 uren branden werd aan deze lampen gemeten een in totaal (250-400 nm) uitgezonden hoeveelheid straling van 2,75 W. Daarvan bleek 1,45 W (dat wil zeggen circa 53%) uitgezonden te worden in het gebied van 307,5 tot 317,5 nm. De hoeveelheid door de lamp uitgezonden erytheemstraling bleek 0,14 erytheemwatt te bedragen, dat wil zeggen slechts ongeveer 9,6% van de hoeveelheid nuttige straling. Ter vergelijking moge dienen, dat de bekende lampen met een konstruktie gelijk aan de hierboven beschreven lampen, echter voorzien

van een luminescerend met cerium geactiveerd strontium-aluminaat, in totaal (250-400 nm) een hoeveelheid straling van 5,9 W uitzenden. Van deze hoeveelheid straling is echter slechts ongeveer 14% (0,83W) gelegen in het gebied van 307,5-317,5 nm. Voorts bleek de door de bekende lampen uitgezonden hoeveelheid erytheemstraling 16,7% te bedragen van de hoeveelheid nuttige straling (namelijk circa 0,14 erytheemwatt). Bij toepassing van lampen volgens de uitvinding kan men derhalve, vergeleken met de bekende lampen, bij gelijke dosis nuttige straling de bestralingstijd met ruim 40% verkorten, terwijl de erytheemdosis daarbij met eenzelfde percentage verlaagd wordt.

#### Voorbeeld 3

Een aantal lampen van de in fig. 1 weergegeven soort werd voorzien van een luminescerende laag uit een luminescerend silikaat volgens de formule  $\text{Sr}_{2,9}\text{Pb}_{0,1}\text{LaGdSi}_6\text{O}_{18}$ . Na 100 uren branden werd aan deze lampen gemeten een over het gehele ultraviolette deel van het spectrum (250-400 nm) uitgezonden hoeveelheid straling van 1,25 W. Daarvan bleek 0,9 W uitgezonden te worden in het gebied van 307,5 tot 317,5 nm. De spektrale energieverdeling van de uitgezonden straling bleek voor deze lampen nagenoeg gelijk te zijn aan die van de lampen uit voorbeeld 1.

#### CONCLUSIES:

1. Lagedrukkwikdampontladingslamp voor bestralingsdoeleinden met een ontladingsbuis uit glas met een absorptiekant gelegen tussen 280 en 305 nm, welke buis aan de binnenzijde is voorzien van een luminescerende laag, met het kenmerk, dat de luminescerende laag een luminescerende stof bevat, die de karakteristieke lijnemissie van gadolinium bij 312 nm vertoont.
2. Lagedrukkwikdampontladingslamp volgens conclusie 1, met het kenmerk, dat de luminescerende laag een met Gd en Bi geactiveerd boraat bevat volgens de formule  $\text{La}_{1-x-y}\text{Gd}_x\text{Bi}_y\text{B}_3\text{O}_6$ , waarin  $0,15 \leq x$ ,  $0,001 \leq y \leq 0,05$  en  $x+y \leq 1$ .
3. Lagedrukkwikdampontladingslamp volgens conclusie



1, met het kenmerk, dat de luminescerende laag een met Gd en Pb geactiveerd ternair aluminaat met hexagonale magnetoplumbietstructuur bevat, welk aluminaat de samenstelling ABC bezit, waarin A van 25-99 mol.%  $\frac{1}{2}$  Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, van 1-35 mol.% PbO en eventueel  $\frac{1}{2}$  La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> voorstelt, waarin B Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> voorstelt, waarbij ten hoogste 20 mol.% van het Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> door Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> vervangen is, en waarin C MgO en/of ZnO voorstelt, waarbij tot 10 mol.% van het Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> door een equivalente hoeveelheid SiO<sub>2</sub> tezamen met MgO en/of ZnO vervangen kan zijn, waarbij tot 70 mol.% van A door SrO en/of CaO en tegelijkertijd een equivalente hoeveelheid van C door  $\frac{1}{2}$  Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> vervangen kan zijn, en waarbij de gehalten A, B en C voldoen aan de voorwaarden  $[A] \geq 0,02$ ,  $0,55 \leq [B] \leq 0,95$  en  $[C] \geq \frac{1}{2}[A]$ .

4. Lagedrukkwikdampontladingslamp volgens conclusie 1, met het kenmerk, dat de luminescerende laag een met Gd en Pb geactiveerd silikaat van Sr en/of Ca en van Y en/of La bevat volgens de formule

$(\text{Sr,Ca})_{3-p} \text{Pb}_p (\text{Y,La})_{2-q} \text{Gd}_q \text{Si}_6 \text{O}_{18}$ , waarin  $0,01 \leq p \leq 0,50$  en  $0,05 \leq q \leq 2,0$ .

5. Lagedrukkwikdampontladingslamp volgens conclusie 1, 2, 3 of 4, met het kenmerk, dat het glas van de ontlaadingsbuis een absorptiekant heeft tussen 295 en 305 nm.

6. Lagedrukkwikdampontladingslamp volgens conclusie 5, met het kenmerk, dat het glas van de ontlaadingsbuis bevat

- 60 - 75 mol.% SiO<sub>2</sub>,
- 10 - 25 mol.% van tenminste een alkalimetaaloxys,de,
- 7 - 15 mol.% van tenminste een der aardalkalimetaaloxys,den en MgO,
- 0 - 2 mol.% Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>,
- 0,01 - 0,1 mol.% Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

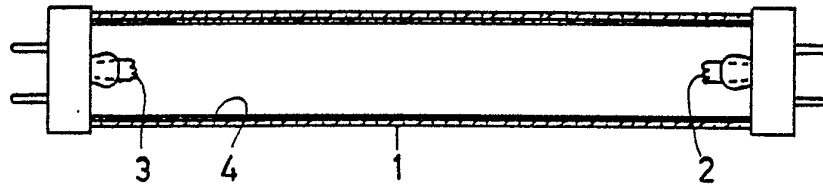


FIG.1

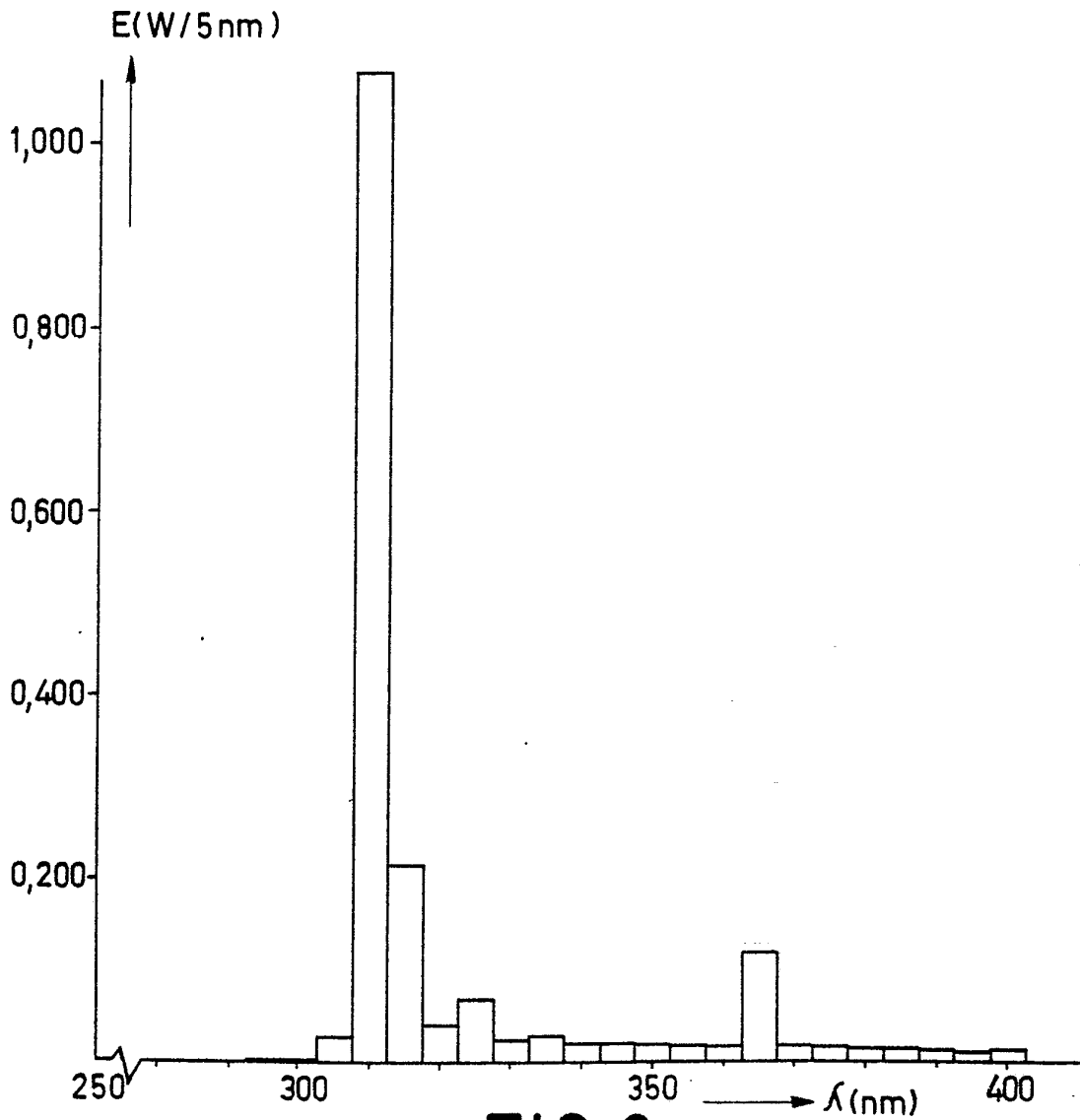


FIG.2

7905162

N.V. Philips' Gloeilampenfabrieken  
EINDHOVEN

PHN 9508