



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公開本

(11)公開編號：TW 201716544 A

(43)公開日：中華民國 106 (2017) 年 05 月 16 日

(21)申請案號：105125921

(22)申請日：中華民國 105 (2016) 年 08 月 15 日

(51)Int. Cl. : C09K11/63 (2006.01)

F21K2/00 (2006.01)

H01L33/50 (2010.01)

(30)優先權：2015/08/19 日本

JP2015-162155

(71)申請人：宇部興產股份有限公司 (日本) UBE INDUSTRIES, LTD. (JP)

日本

(72)發明人：酒井拓馬 SAKAI, TAKUMA (JP)；兒玉努 KODAMA, TSUTOMU (JP)；植田秋 UEDA, AKI (JP)；岩下和樹 IWASHITA, KAZUKI (JP)

(74)代理人：閻啟泰；林景郁

申請實體審查：無 申請專利範圍項數：10 項 圖式數：4 共 29 頁

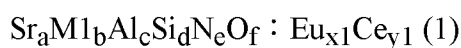
(54)名稱

螢光體及其製造方法以及發光裝置

(57)摘要

提供一種被控制為特定之粒徑並且異相之生成受到抑制，而發光特性尤其是發光強度較習知優異之螢光體及其製造方法以及發光裝置。

一種螢光體，含有下述式(1)之組成所表示之結晶相，其特徵在於進而含有硼 100~2500ppm。



(此處，M1 係選自由 Ca、Ba 及 Mg 所組成之群中之 1 種以上之金屬元素， $2 \leq a \leq 8$ ， $0 \leq b \leq 3$ ， $2 \leq c \leq 7$ ， $10 \leq d \leq 25$ ， $15 \leq e \leq 37$ ， $0 \leq f \leq 3$ ， $0 < x1 + y1 \leq 0.6$)。

指定代表圖：

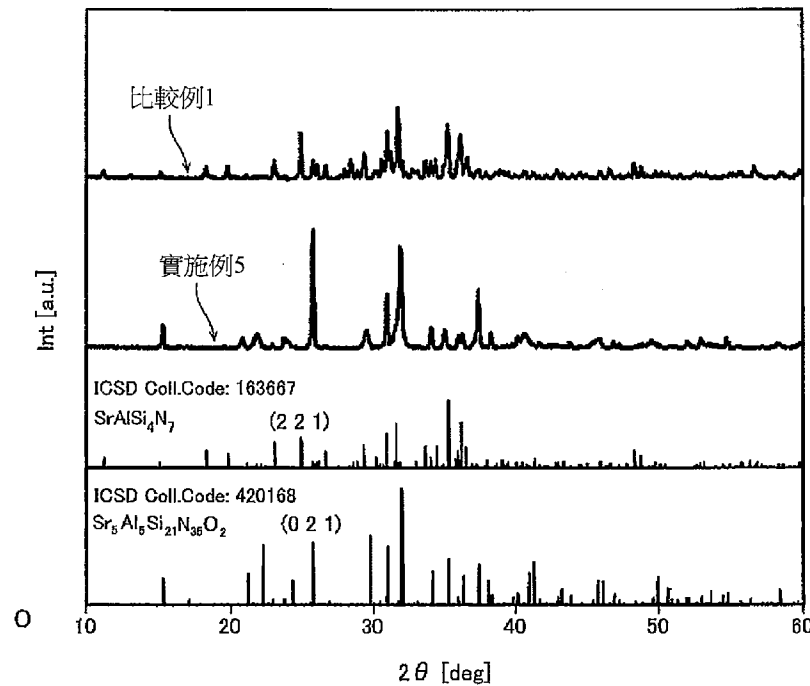


圖 1

201716544

發明摘要

※ 申請案號：105725921

※ 申請日：105.8.15

※IPC 分類：

C09F 63 (2006.01)

F21K 33 (2006.01)

H01L 50 (2010.01)

【發明名稱】(中文/英文)

螢光體及其製造方法以及發光裝置

【中文】

提供一種被控制為特定之粒徑並且異相之生成受到抑制，而發光特性尤其是發光強度較習知優異之螢光體及其製造方法以及發光裝置。

一種螢光體，含有下述式(1)之組成所表示之結晶相，其特徵在於進而含有硼 100~2500 ppm。



(此處，M1 係選自由 Ca、Ba 及 Mg 所組成之群中之 1 種以上之金屬元素， $2 \leq a \leq 8$ ， $0 \leq b \leq 3$ ， $2 \leq c \leq 7$ ， $10 \leq d \leq 25$ ， $15 \leq e \leq 37$ ， $0 \leq f \leq 3$ ， $0 < x1 + y1 \leq 0.6$)。

【英文】

無

【代表圖】

【本案指定代表圖】：第（ 1 ）圖。

【本代表圖之符號簡單說明】：

無

【本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式】：

無

發明專利說明書

(本說明書格式、順序，請勿任意更動)

【發明名稱】(中文/英文)

螢光體及其製造方法以及發光裝置

【技術領域】

【0001】 本發明係關於一種螢光體及其製造方法以及發光裝置，尤其是關於一種顯現綠色發光之螢光體及其製造方法以及發光裝置。

【先前技術】

【0002】 以往，白色發光二極體（白色 LED）廣泛應用將釋放藍光之半導體發光元件與黃色之螢光體組合，藉由藍色與黃色之混色而獲得白光之雙色混色類型者。然而，該雙色混色類型之白色 LED 所發出之白光存在演色性較差之問題。因此，作為其他構成，開發有如下三色混色類型之白色 LED，該三色混色類型之白色 LED 係將發出藍光之半導體發光元件、與綠色、紅色之 2 種螢光體進行組合，利用來自半導體發光元件之光激發各螢光體，藉此利用藍色、綠色、紅色之混色而獲得白光。

【0003】 作為顯現綠色發光之螢光體，開發有各種組成之綠色螢光體。例如於專利文獻 1 及非專利文獻 1 中，作為 LED 等所使用之綠色螢光體，記載有具有 $\text{Sr}_{5-y-z-a}\text{M}_y\text{Si}_{23-x}\text{Al}_{3+x}\text{O}_{x+2a}\text{N}_{37-x-2a} : \text{Eu}_z\text{Ce}_{z1}$ 組成之螢光體，尤其是於專利文獻 1 之實施例中記載有具有 $\text{Sr}_{4.9}\text{Al}_5\text{Si}_{21}\text{O}_2\text{N}_{35} : \text{Eu}_{0.1}$ 組成之螢光體。

【0004】 又，例如於專利文獻 2 中記載有如下螢光體：含有含規定結晶中之外側區域中之氧濃度與內側區域中之氧濃度之比且經 Eu 活化之

$\text{Sr}_3\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$ 屬結晶之粒子，且於利用波長 250～500 nm 之光激發時，顯現於波長 490～580 nm 之間具有發光峰之發光。

【0005】 [專利文獻 1]日本專利特表 2011-505451 號公報

[專利文獻 2]日本專利特開 2013-43937 號公報

[非專利文獻]

【0006】 [非專利文獻 1]Chemistry-A European Journal 2009, 15, 5311 - 5319

【發明內容】

[發明所欲解決之課題]

【0007】 然而，專利文獻 1 及非專利文獻 1 所記載之綠色螢光體存在發光特性並不充分，尤其是發光強度低之問題。又，如非專利文獻 1 所記載般具有如下問題，即由於 $\text{SrAlSi}_4\text{N}_7$ 或 $\text{Sr}_2\text{Si}_5\text{N}_8$ 等橙色～紅色螢光體以異相之形式生成，故而必須以機械方式去除。進而，專利文獻 2 所記載之螢光體雖其發光強度對熱之穩定性高，但期待螢光體本身之發光特性進一步提昇。

【0008】 又，關於白色 LED 用螢光體，已知有若粒徑過大，則變得難以均勻地分散於樹脂中，而色調產生偏差之問題，從而必須控制為特定之粒徑範圍。又，若為了使粒徑較小而進行粉碎、分級，則會產生微粒子而成為降低亮度之主因，因此必須在無需粉碎步驟下控制為特定之粒徑。

【0009】 本發明係鑒於上述問題而完成者，其目的在於提供一種被控制為特定之粒徑並且異相之生成受到抑制，而發光特性尤其是發光強度較

以往優異之螢光體及其製造方法以及發光裝置。

[解決課題之技術手段]

【0010】 為了達成以上之目的，本發明人等反覆進行努力研究，結果發現：藉由使經銷及／或銻活化之綠色螢光體含有特定量之硼，可控制為特定之粒徑並且抑制異相之生成，而大幅提昇發光強度，從而完成本發明。

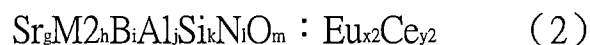
【0011】 即，本發明係關於一種螢光體，其含有下述式（1）之組成所表示之結晶相，其特徵在於：進而含有硼 100～2500 ppm。



（此處，M1 係選自由 Ca、Ba 及 Mg 所組成之群中之 1 種以上之金屬元素， $2 \leq a \leq 8$ ， $0 \leq b \leq 3$ ， $2 \leq c \leq 7$ ， $10 \leq d \leq 25$ ， $15 \leq e \leq 37$ ， $0 \leq f \leq 3$ ， $0 < x1 + y1 \leq 0.6$ ）。

【0012】 又，本發明係關於一種螢光體，其至少含有 $\text{Sr}_5\text{Al}_5\text{Si}_{21}\text{N}_{35}\text{O}_2$ 結構之結晶相，其特徵在於：將 X 射線繞射圖案中之 $\text{Sr}_5\text{Al}_5\text{Si}_{21}\text{N}_{35}\text{O}_2$ 結構之螢光體之來自（021）面的繞射峰強度設為 A，且將 $\text{SrAlSi}_4\text{N}_7$ 結構之螢光體之來自（221）面之繞射峰強度設為 B 時， $B/A < 0.03$ 。

【0013】 又，本發明係關於一種螢光體，其含有下述式（2）之組成所表示之結晶相。



（此處，M2 係選自由 Ca、Ba 及 Mg 所組成之群中之 1 種以上之金屬元素， $2 \leq g \leq 8$ ， $0 \leq h \leq 3$ ， $0.02 \leq i \leq 0.8$ ， $2 \leq j \leq 7$ ， $10 \leq k \leq 25$ ， $15 \leq l \leq 37$ ， $0 \leq m \leq 3$ ， $0 < x2 + y2 \leq 0.6$ ）。

【0014】 又，本發明係關於一種螢光體之製造方法，其具備如下步

驟：將含 Sr 化合物、含 Al 化合物、含 Si 化合物、含 Eu 化合物及／或含 Ce 化合物、以及含 B 化合物進行混合而獲得原料混合物之步驟；與於非活性氣體環境下或還原性氣體環境下將上述原料混合物進行燒製之步驟，其特徵在於：上述含 B 化合物之添加量為上述原料混合物之 250～10000 ppm。

【0015】 進而，本發明係關於一種發光裝置，其特徵在於：具備上述螢光體與對該螢光體照射激發光而使之發光之光源。

[發明之效果]

【0016】 根據本發明，可提供一種被控制為特定之粒徑並且異相之生成受到抑制，而發光特性尤其是發光強度較以往優異之螢光體及其製造方法以及發光裝置。

【圖式簡單說明】

【0017】 圖 1 係表示實施例 5 及比較例 1 中所獲得之螢光體之 X 射線繞射（XRD）圖案之圖。

圖 2 係表示實施例 5 及比較例 1 中所獲得之螢光體之發射光譜之圖。

圖 3 係實施例 5 及比較例 1 中所獲得之螢光體之掃描式電子顯微鏡照片。

圖 4 係表示實施例 5 中所獲得之螢光體之 B 濃度深度剖面之圖。

【實施方式】

【0018】 1.螢光體

本發明之螢光體含有下述式（1）之組成所表示之結晶相。



(此處，M1 係選自由 Ca、Ba 及 Mg 所組成之群中之 1 種以上之金屬元素， $2 \leq a \leq 8$ ， $0 \leq b \leq 3$ ， $2 \leq c \leq 7$ ， $10 \leq d \leq 25$ ， $15 \leq e \leq 37$ ， $0 \leq f \leq 3$ ， $0 < x1 + y1 \leq 0.6$)。

【0019】 即，本發明之螢光體係經鎔 (Eu) 及／或銻 (Ce) 活化之螢光體，且為於利用波長 330～500 nm 之光激發時，於 500～560 nm 之間具有波峰之綠色螢光體。

【0020】 於本發明之螢光體中，鎔 (Eu) 及／或銻 (Ce) 為活化劑，具有於螢光體中以發光原子之形式進行發光之性質。螢光體中之鎔之莫耳比即上述 $x1$ 之值為 $0 \leq x1 \leq 0.3$ 之範圍內，較佳為 $0.001 \leq x1 \leq 0.25$ 之範圍內，更佳為 $0.1 \leq x1 \leq 0.15$ 之範圍內。若 $x1$ 之值超過 0.3，則發光原子變成高濃度從而相互接近而相互抵消發光，因此發光強度容易變弱。又，螢光體中之銻之莫耳比、即上述 $y1$ 之值為 $0 \leq y1 \leq 0.3$ 之範圍內，較佳為 $0 \leq y1 \leq 0.1$ 之範圍內，更佳為 $0 \leq y1 \leq 0.0001$ 之範圍內。 $x1 + y1$ 之值為 $0 < x1 + y1 \leq 0.6$ 之範圍，較佳為 $0.001 \leq x1 + y1 \leq 0.25$ 之範圍內，更佳為 $0.1 \leq x1 + y1 \leq 0.15$ 之範圍。於本發明中亦包含為不含有 Eu 之組成之情形，即 $x1$ 之值為 0 之情形；或者為不含有 Ce 之組成之情形，即 $y1$ 之值為 0 之情形，但必須為至少含有 Eu 或 Ce 中之任一元素之組成，即 $x1 + y1 > 0$ 之組成。

【0021】 又，於本發明之螢光體中，螢光體中之鋇 (Sr) 之莫耳比為 $2 \leq a \leq 8$ 之範圍內，較佳為 $4 \leq a \leq 8$ 之範圍內，更佳為 $4.5 \leq a \leq 6$ 之範圍內，更佳為 $4.75 \leq a \leq 5.25$ 之範圍內。於 a 之值為 $2 \leq a \leq 8$ 之範圍內之情形時，可獲得半值寬窄之高亮度之綠色螢光體。

【0022】 又，於本發明之螢光體中，M1 係選自由鈣 (Ca)、鋇 (Ba) 及鎂 (Mg) 所組成之群中之 1 種以上之金屬元素，上述 b 之值較佳為 $0 \leq b \leq 3$ 之範圍內。於本發明中亦包含為不含有 Ca、Ba 及 Mg 中之任一者之組成之情形、即上述 b 之值為 0 之情形。

【0023】 又，於本發明之螢光體中，螢光體中之鋁 (Al) 之莫耳比為 $2 \leq c \leq 7$ 之範圍內，較佳為 $3 \leq c \leq 7$ 之範圍內，較佳為 $4 \leq c \leq 6$ 之範圍內。於 c 之值為 $2 \leq c \leq 7$ 之範圍內之情形時，可獲得半值寬窄之高亮度之綠色螢光體。

【0024】 又，於本發明之螢光體中，螢光體中之矽 (Si) 之莫耳比為 $10 \leq d \leq 25$ 之範圍內，較佳為 $15 \leq d \leq 25$ 之範圍內，更佳為 $19.5 \leq d \leq 22.5$ 之範圍內，更佳為 $20.5 \leq d \leq 21.5$ 之範圍內。於 d 之值為 $10 \leq d \leq 25$ 之範圍內之情形時，可獲得半值寬窄之高亮度之綠色螢光體。

【0025】 進而，於本發明之螢光體中，螢光體中之氮 (N) 之莫耳比為 $15 \leq e \leq 37$ 之範圍內，較佳為 $32 \leq e \leq 37$ 之範圍內，更佳為 $34 \leq e \leq 36$ 之範圍內，更佳為 $34.5 \leq e \leq 35.5$ 之範圍內。於 e 之值為 $15 \leq e \leq 37$ 之範圍內之情形時，可獲得半值寬窄之高亮度之綠色螢光體。

【0026】 又，於本發明之螢光體中，螢光體中之氧 (O) 之莫耳比為 $0 \leq f \leq 3$ 之範圍內，較佳為 $0.1 \leq f \leq 2.3$ 之範圍內。於 f 之值為 $0 \leq f \leq 3$ 之範圍內之情形時，可獲得半值寬窄之高亮度之綠色螢光體。

【0027】 此處，本發明之螢光體之特徵在於進而含有硼。相對於螢光體整體之硼之含量為 100~2500 ppm，較佳為 200~1500 ppm，更佳為 300~1500 ppm。若硼之含量低於 100 ppm，則發光強度不會提昇，即便遠遠多於

2500 ppm，發光強度亦變低。硼之含量可使用電感耦合電漿發射光譜分析（ICP-AES）裝置進行測量。

【0028】 進而，關於本發明之螢光體，其螢光體最表面之硼元素濃度較佳為 20000~100000 ppm，更佳為 30000~60000 ppm。於本發明中，所謂螢光體最表面之硼元素濃度，可定義為於對螢光體最表面照射 X 射線時可獲得光電子之距外側數 nm 之深度處所測得之硼元素濃度。螢光體最表面之硼元素濃度可使用 X 射線光電子光譜（XPS）裝置進行測量。

【0029】 螢光體粒子於大多情況下其組成於粒子表面附近與粒子內部會不同，確認組成變動。於本發明中，可將距螢光體最表面 100 nm（外側~100 nm）之深度區域定義為螢光體表面，又，將超過螢光體表面（距外側超過 100 nm）之深度區域定義為螢光體內部。螢光體內部未見組成變動。

本發明之螢光體較佳為螢光體最表面之硼元素濃度高於螢光體內部之硼元素濃度。若螢光體最表面之硼元素濃度高於螢光體內部之硼元素濃度，則可獲得半值寬窄之高亮度之綠色螢光體。具體而言，螢光體最表面之硼元素濃度較佳為相對於距螢光體最表面 200 nm 內部所存在之硼之元素濃度，具有 5~8 倍左右之差。距螢光體最表面 200 nm 內部所存在之硼之元素濃度可定義為於自螢光體最表面蝕刻至 200 nm 後，對蝕刻後之表面照射 X 射線時可獲得光電子之距蝕刻後之表面數 nm 之深度處測得的硼之元素濃度，可使用 X 射線光電子光譜（XPS）裝置進行測量。

【0030】 又，本發明之螢光體較佳為發射光譜之半值寬為 70 nm 以下。此處，所謂半值寬，意指於將縱軸設為發光強度，將橫軸設為波長時，測量測量發射光譜並將其峰值下之發光強度設為 I 時，成為 I/2 時之波長

寬度。於半值寬如上述般相對較窄之情形時，可獲得高發光強度。

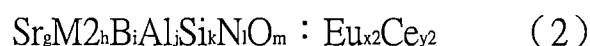
【0031】 又，關於本發明之螢光體，於將利用 X 射線繞射 (XRD) 裝置所測得之 X 射線繞射圖案中之 $\text{Sr}_5\text{Al}_5\text{Si}_{21}\text{N}_{35}\text{O}_2$ 結構之螢光體之來自 (021) 面的繞射峰強度設為 A，將 $\text{SrAlSi}_4\text{N}_7$ 結構之螢光體之來自 (221) 面之繞射峰強度設為 B 時， $B/A < 0.03$ ，較佳為 $B/A < 0.01$ ，更佳為 $B/A = 0$ 。所謂 $\text{Sr}_5\text{Al}_5\text{Si}_{21}\text{N}_{35}\text{O}_2$ 結構，係與 ICSD Coll Code：420168 相同形狀之結晶結構，亦含有 Sr 之一部分經選自由 Ca、Ba 及 Mg 所組成之群中之 1 種以上之金屬元素取代之螢光體的結晶結構。又，所謂 $\text{SrAlSi}_4\text{N}_7$ 結構，係與 ICSD Coll Code：163667 相同形狀之結晶結構，亦含有 Sr 之一部分經選自由 Ca、Ba 及 Mg 所組成之群中之 1 種以上之金屬元素取代之螢光體的結晶結構。於本發明中， $B/A < 0.03$ 係意指以異相 (雜質) 之形式含於本發明之螢光體中之 $\text{SrAlSi}_4\text{N}_7$ 結構之結晶之量較少。由於 $\text{SrAlSi}_4\text{N}_7$ 結構之結晶之量少，故而可獲得發射光譜之半值寬窄之高亮度之綠色螢光體。

【0032】 又，本發明之螢光體較佳利用雷射繞射／散射式粒度分佈測量裝置所測得之 D_{10} 徑為 $20 \sim 30 \mu\text{m}$ 。若 D_{10} 徑為 $20 \sim 30 \mu\text{m}$ ，則微粒較少而發光強度變大。若 D_{10} 徑超過 $30 \mu\text{m}$ ，則於製成發光裝置、具體而言製成白色發光 LED 時，難以均勻地分散於樹脂中，而色調容易產生偏差。

【0033】 進而，本發明之螢光體較佳為根據掃描式電子顯微鏡照片而測得之 Heywood 徑 (圓當量徑) 之平均值未達 $32 \mu\text{m}$ 。例如，Heywood 徑可使用 Mounitech 股份有限公司製造之圖像分析式粒度分佈測量軟體「Mac-View」，讀入粉體圖像而進行計算。若 Heywood 徑之平均值未達 $32 \mu\text{m}$ ，則於尤其是用作白色 LED 之發光元件之情形時，可在無需粉碎下獲

得所需之粒度，故而較佳。

【0034】 又，本發明之螢光體含有下述式（2）之組成所表示之結晶相。



（此處，M2 係選自由 Ca、Ba 及 Mg 所組成之群中之 1 種以上之金屬元素， $2 \leq g \leq 8$ ， $0 \leq h \leq 3$ ， $0.02 \leq i \leq 0.8$ ， $2 \leq j \leq 7$ ， $10 \leq k \leq 25$ ， $15 \leq l \leq 37$ ， $0 \leq m \leq 3$ ， $0 < x_2 + y_2 \leq 0.6$ ）。

【0035】 上述 x_2 之值為 $0 \leq x_2 \leq 0.3$ 之範圍內，較佳為 $0.001 \leq x_2 \leq 0.25$ 之範圍內，更佳為 $0.1 \leq x_2 \leq 0.15$ 之範圍內。若 x_2 之值超過 0.3，則發光原子變成高濃度從而相互接近而相互抵消發光，因此發光強度容易變弱。又，上述 y_2 之值為 $0 \leq y_2 \leq 0.3$ 之範圍內，較佳為 $0 \leq y_2 \leq 0.1$ 之範圍內，更佳為 $0 \leq y_2 \leq 0.0001$ 之範圍內。 $x_2 + y_2$ 之值為 $0 < x_2 + y_2 \leq 0.6$ 之範圍，較佳為 $0.001 \leq x_2 + y_2 \leq 0.25$ 之範圍內，更佳為 $0.1 \leq x_2 + y_2 \leq 0.15$ 之範圍。於本發明中亦包含為不含有 Eu 之組成之情形，即 x_2 之值為 0 之情形；或者為不含有 Ce 之組成之情形，即 y_2 之值為 0 之情形，但必須為至少含有 Eu 或 Ce 中之任一元素之組成，即 $x_2 + y_2 > 0$ 之組成。

【0036】 又，於本發明之螢光體中，螢光體中之鋇（Sr）之莫耳比為 $2 \leq g \leq 8$ 之範圍內，較佳為 $4 \leq g \leq 8$ 之範圍內，更佳為 $4.5 \leq g \leq 6$ 之範圍內，更佳為 $4.75 \leq g \leq 5.25$ 之範圍內。於 g 之值為 $2 \leq g \leq 8$ 之範圍內之情形時，可獲得半值寬窄之高亮度之綠色螢光體。

【0037】 又，於本發明之螢光體中，M2 係選自由鈣（Ca）、鋇（Ba）及鎂（Mg）所組成之群中之 1 種以上之金屬元素，上述 h 之值較佳為 $0 \leq h$

≤ 3 之範圍內。於本發明中亦包含為不含有 Ca、Ba 及 Mg 中之任一者之組成之情形、即上述 h 之值為 0 之情形。

【0038】 又，於本發明之螢光體中，螢光體中之硼 (B) 之莫耳比為 $0.02 \leq i \leq 0.8$ 之範圍內，較佳為 $0.04 \leq i \leq 0.4$ 之範圍內。於 i 之值為 $0.04 \leq i \leq 0.4$ 之範圍內之情形時，可獲得半值寬窄之高亮度之綠色螢光體。

【0039】 又，於本發明之螢光體中，螢光體中之鋁 (Al) 之莫耳比為 $2 \leq j \leq 7$ 之範圍內，較佳為 $3 \leq j \leq 7$ 之範圍內，更佳為 $4 \leq j \leq 6$ 之範圍內。於 j 之值為 $2 \leq j \leq 7$ 之範圍內之情形時，可獲得半值寬窄之高亮度之綠色螢光體。

【0040】 又，於本發明之螢光體中，螢光體中之矽 (Si) 之莫耳比為 $10 \leq k \leq 25$ 之範圍內，較佳為 $15 \leq k \leq 25$ 之範圍內，更佳為 $19.5 \leq k \leq 22.5$ 之範圍內，更佳為 $20.5 \leq k \leq 21.5$ 之範圍內。於 k 之值為 $10 \leq k \leq 25$ 之範圍內之情形時，可獲得半值寬窄之高亮度之綠色螢光體。

【0041】 進而，於本發明之螢光體中，螢光體中之氮 (N) 之莫耳比為 $15 \leq l \leq 37$ 之範圍內，較佳為 $32 \leq l \leq 37$ 之範圍內，更佳為 $34 \leq l \leq 36$ 之範圍內，更佳為 $34.5 \leq l \leq 35.5$ 之範圍內。於 l 之值為 $15 \leq l \leq 37$ 之範圍內之情形時，可獲得半值寬窄之高亮度之綠色螢光體。

【0042】 又，於本發明之螢光體中，螢光體中之氧 (O) 之莫耳比為 $0 \leq m \leq 3$ 之範圍內，較佳為 $0.1 \leq m \leq 2.3$ 之範圍內。於 m 之值為 $0 \leq m \leq 3$ 之範圍內之情形時，可獲得半值寬窄之高亮度之綠色螢光體。

【0043】 2.螢光體之製造方法

本發明之螢光體例如可藉由如下製造方法進行製造，該製造方法具

備：將含 Sr 化合物、含 Al 化合物、含 Si 化合物、含 Eu 化合物及／或含 Ce 化合物、以及含 B 化合物進行混合，進而視需要混合含 M 化合物（此處，M 係選自由 Ca、Ba 及 Mg 所組成之群中之 1 種以上之金屬元素）而獲得原料混合物之步驟（混合步驟）；與於含非活性氣體環境下或還原性氣體環境下將上述原料混合物進行燒製之步驟（燒製步驟）；及視需要進行粉碎、分級之步驟。

【0044】 (1) 混合步驟

含 Sr 化合物、含 Al 化合物、含 Si 化合物、含 Eu 化合物、含 Ce 化合物、含 B 化合物、含 M 化合物之各含原料化合物係分別自氮化物、氮氧化物、氧化物或藉由熱分解而成為氧化物之前驅物物質中選擇。

【0045】 作為含鋇（Sr）化合物之具體例，並無特別限定，例如可較佳地使用選自由氮化鋇（ Sr_3N_2 ）、碳酸鋇（ SrCO_3 ）、氧化鋇（ SrO ）所組成之群中之 1 種以上之粉末，可尤佳地使用氮化鋇（ Sr_3N_2 ）之粉末。

【0046】 作為含鋁（Al）化合物之具體例，並無特別限定，例如可較佳地使用選自由氮化鋁（ AlN ）、氧化鋁（ Al_2O_3 ）、碳酸鋁（ $\text{Al}_2(\text{CO}_3)_3$ ）所組成之群中之 1 種以上之粉末，可尤佳地使用氮化鋁（ AlN ）之粉末。

【0047】 作為含矽（Si）化合物之具體例，並無特別限定，例如可較佳地使用選自由非晶質氮化矽（ Si_3N_4 ）、結晶性氮化矽（ Si_3N_4 ）、二氧化矽（ SiO_2 ）所組成之群中之 1 種以上之粉末，可尤佳地使用非晶質氮化矽（ Si_3N_4 ）、結晶性氮化矽（ Si_3N_4 ）之粉末。

【0048】 作為含鎔（Eu）化合物之具體例，並無特別限定，例如可較佳地使用選自由氧化鎔（III）（ Eu_2O_3 ）、氧化鎔（II）（ EuO ）、氮化鎔（ EuN ）、

金屬鎔 (Eu) 所組成之群中之 1 種以上之粉末。

【0049】 作為含銻 (Ce) 化合物之具體例，並無特別限定，例如可較佳地使用選自由氮化銻 (CeN)、氧化銻 (CeO_2)、金屬銻 (Ce) 所組成之群中之 1 種以上之粉末。

【0050】 又，本發明之特徵在於：除上述含原料化合物以外，亦於原料混合物之 250~10000 ppm 之範圍內添加含 B 化合物。藉由添加含 B 化合物 250~10000 ppm，可使 100~2500 ppm 之硼含於所獲得之螢光體中。又，於未添加含 B 化合物之情形時，於所獲得之螢光體中含有較多之作為異相（雜質）之 $\text{SrAlSi}_4\text{N}_7$ 結構之結晶，但可知藉由添加含 B 化合物 250~10000 ppm，可減少 $\text{SrAlSi}_4\text{N}_7$ 結構之結晶之量。含 B 化合物之添加量較佳為 750~10000 ppm，更佳為 1000~5000 ppm。

【0051】 作為含硼 (B) 化合物之具體例，並無特別限定，例如可較佳地使用選自由氮化硼 (BN)、氧化硼 (B_2O_3)、氫氧化硼 (B(OH)_3) 所組成之群中之 1 種以上之粉末。

【0052】 又，於本發明中，可視需要而混合含 M 化合物（此處，M 係選自由 Ca、Ba 及 Mg 所組成之群中之 1 種以上之金屬元素）。

【0053】 作為含 M 化合物中之含鈣 (Ca) 化合物之具體例，並無特別限定，例如可較佳地使用選自由氮化鈣 (Ca_3N_2)、碳酸鈣 (CaCO_3)、氧化鈣 (CaO) 所組成之群中之 1 種以上之粉末。

【0054】 作為含 M 化合物中之含鋇 (Ba) 化合物之具體例，並無特別限定，例如可較佳地使用選自由氮化鋇 (Ba_3N_2)、碳酸鋇 (BaCO_3)、氧化鋇 (BaO) 所組成之群中之 1 種以上之粉末。

【0055】 作為含 M 化合物中之含鎂 (Mg) 化合物之具體例，並無特別限定，例如可較佳地使用選自由氮化鎂 (Mg_3N_2)、碳酸鎂 (MgCO_3)、氧化鎂 (MgO) 所組成之群中之 1 種以上之粉末。

【0056】 該等含原料化合物可分別單獨使用 1 種，亦可併用 2 種以上。各含原料化合物較佳為純度為 99 質量%以上。關於上述含原料化合物，由於其混合比大致直接成為式 (1) 之組成比，故而以成為所需之組成比之方式調整混合比。但是，由於氧量、氮量不會始終固定，故而可考慮原料中所含有之氧含量及氮含量而設定原料之調配比，藉此調整為目標之氧量及氮量。

【0057】 又，於燒製中，為了促進燒結而於更低溫生成，可添加成為燒結助劑之含 Li 化合物。作為所使用之含 Li 化合物，可列舉：氧化鋰、碳酸鋰、金屬鋰、氮化鋰，可單獨使用該等粉末之各者，亦可進行併用。又，關於含 Li 化合物之添加量，相對於下述燒製步驟中所獲得之燒製物 1 mol，以 Li 元素計較佳為 0.01~0.5 mol。含 Li 化合物於燒製步驟中容易揮發，而幾乎不含有於螢光體粉末中。

【0058】 原料粉末之混合方法並無特別限制，可採用其本身公知之方法，例如進行乾式混合之方法；於與原料各成分實質上不反應之非活性溶劑中進行濕式混合後將溶劑去除之方法等。作為混合裝置，較佳地使用 V 型混合機、滾動式混合機、球磨機、振磨機、介質攪拌研磨機等。

【0059】 (2) 燒製步驟

其次，進行原料混合物之燒製。原料混合物之燒製較佳於非活性氣體環境下或還原性氣體環境下進行燒製。非活性氣體環境可由氮氣或氬氣等

稀有氣體或者該等之混合氣體等非活性氣體所構成。為了為非活性氣體環境，較理想為不含有氧，但亦可含有未達 0.1 vol%（進而未達 0.01 vol%）之程度的氧作為雜質。又，還原性氣體環境可由氮氣或氫氣等稀有氣體與氫氣或一氧化碳氣體之混合氣體所構成。為了為還原性氣體環境，較理想為不含有氧，但亦可含有未達 0.1 vol%（進而未達 0.01 vol%）之程度的氧作為雜質。燒製溫度為 1500~2000℃、更佳為 1600~1800℃之範圍內。燒製時間通常為 0.5~100 小時之範圍內，較佳為 0.5~20 小時之範圍內。燒製壓力只要為常壓以上即可，較佳未達 0.92 MPa。藉由使環境氣體之種類、環境氣體中之氧濃度及氮濃度、燒製溫度、燒製時間之設定變化，可調整目標螢光體之氧量、氮量。

【0060】 （3）粉碎、分級步驟

藉由燒製而獲得之螢光體無需粉碎，例如於用作白色 LED 之發光元件之情形時，可獲得所需之粒度，但此外，視需要進行粉碎，且視情況而分級為所需之粒徑範圍。該情形時之粉碎方法可為濕式粉碎、乾式粉碎中之任一種方法，又，關於分級方法，亦可使用篩分操作、應用流體之操作等粉體之分級通常所使用之任一種操作方法。又，藉由燒製而獲得之螢光體亦可視需要進行利用鹽酸或硝酸等礦酸之酸清洗處理、烘烤處理。

【0061】 3.發光裝置

本發明之螢光體可用於各種發光裝置。本發明之發光裝置至少具備：於上述式（1）所表示之組成成分中進而含有硼 100~2500 ppm 之本發明之螢光體；與對該螢光體照射激發光而使之發光之光源。作為發光裝置之具體例，可列舉：白色發光二極體（白色 LED）、螢光燈、螢光顯示管（VFD）、

陰極射線管（CRT）、電漿顯示面板（PDP）、場發射顯示器（FED）等。其中，白色 LED 係如下發光裝置：具備藍色螢光體、紅色螢光體、本發明之螢光體（綠色螢光體）與例如發出波長 350~430 nm 之紫外光之半導體發光元件，且利用來自發光元件之紫外光激發藍色螢光體、綠色螢光體、紅色螢光體，而利用藍色、紅色、綠色之混色獲得白光。又，作為其他構成，亦可應用於如下發光裝置：具備紅色螢光體、本發明之螢光體（綠色螢光體）、與發出波長 430~500 nm 之藍光之半導體元件，且利用來自發光元件之藍光激發綠色螢光體、紅色螢光體，而利用藍色、紅色、綠色之混色獲得白光。

【0062】 作為藍色發光螢光體之例，可列舉： $(\text{Ba}, \text{Sr}, \text{Ca})_3\text{MgSi}_2\text{O}_8$ ：Eu、 $(\text{Ba}, \text{Sr}, \text{Ca})\text{MgAl}_{10}\text{O}_{17}$ ：Eu、 $(\text{Ba}, \text{Sr}, \text{Mg}, \text{Ca})_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{Cl}, \text{F})_2$ ：Eu 等。又，作為紅色發光螢光體之例，可列舉： $(\text{Ba}, \text{Sr}, \text{Ca})_3\text{MgSi}_2\text{O}_8$ ：Eu、Mn、 $\text{Y}_2\text{O}_3\text{S}$ ：Eu、 $\text{La}_2\text{O}_3\text{S}$ ：Eu、 $(\text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba})_2\text{Si}_5\text{N}_8$ ：Eu、 CaAlSiN_3 ：Eu、 $\text{Eu}_2\text{W}_2\text{O}_9$ 、 $(\text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba})_2\text{Si}_5\text{N}_8$ ：Eu、Mn、 CaTiO_3 ：Pr、Bi、 $(\text{La}, \text{Eu})_2\text{W}_3\text{O}_{12}$ 等。作為半導體發光元件，可列舉 AlGaIn 系半導體發光元件等。

[實施例]

【0063】 以下，基於實施例而具體地說明本發明，但該等並不限定本發明之目的。首先，揭示本實施例中所使用之各測量方法。

【0064】 （結晶相之鑑定）

使用 X 射線繞射（XRD）裝置（理學股份有限公司製造之 Ultima IV），進行結晶相之鑑定。

【0065】 （粒度分佈測量）

使用雷射繞射／散射式粒度分佈測量裝置（日機裝股份有限公司製造之 MT3300EX II），進行粒度分佈測量。

【0066】 （掃描式電子顯微鏡照片，Heywood 徑）

使用掃描式電子顯微鏡（日本電子股份有限公司製造之 JSM-6510）而拍攝掃描式電子顯微鏡照片。又，使用圖像分析式粒度分佈測量軟體「Mac-View」（Mountech 股份有限公司製造），讀入掃描式電子顯微鏡照片而計算 Heywood 徑。

【0067】 （螢光峰值波長、發光強度、光譜之半值寬）

使用分光螢光光度計（日本分光股份有限公司製造，FP-6500），測量於激發波長 450 nm 之螢光光譜，求出螢光峰值波長、及該波長之發光強度、光譜之半值寬。發光強度係將比較例 1 之峰值波長 522.0 nm 之發光強度表示為 100%。

【0068】 （硼含量）

螢光體粉末中之硼含量係使用電感耦合電漿發射光譜分析（ICP-AES）裝置（精工電子納米科技股份有限公司製造，SPS3250UV）進行定量分析。

【0069】 （硼之螢光體最表面元素濃度、內部之元素濃度）

藉由 X 射線光電子光譜（XPS）裝置（Ulvac-Phi 股份有限公司製造之 PHI1800），於 X 射線源：Al-K α 、掠出角：與表面成 45°之條件下，調查存在於螢光體最表面之元素（自外側直至數 nm 可獲得），根據各元素之峰值強度而估算硼之螢光體最表面之元素濃度。

【0070】 （比較例 1）

將氧化鎔（Eu₂O₃）粉末（純度：99.9%）、與氮化鋇（Sr₃N₂）粉末（純

度：99%)、非晶質氮化矽 (Si_3N_4) 粉末 (純度：99%)、氮化鋁 (AlN) 粉末 (純度：99.9%)、碳酸鋰 (Li_2CO_3) 粉末 (純度：99.9%) 以成為表 1 之混合組成之方式於經氮氣沖洗之手套箱內進行稱量，使用乾式振磨機混合 1 小時而獲得混合粉末。將所獲得之混合粉末放入至氮化矽製之坩堝中，添加至石墨電阻加熱式之電爐中，一面使氮氣於電爐內流通，一面於保持常壓之狀態下升溫至 1650°C 後，於 1650°C 保持 7 小時，進而升溫至 1730°C ，於 1730°C 保持 10 小時而獲得燒製物。所獲得之試樣係利用氮化矽製之研鉢進行壓碎直至通過網眼 $32\ \mu\text{m}$ 之篩子為止。將對所獲得之粉末測量 XRD、粒度分佈、螢光光譜、ICP、XPS (PHI1800) 所獲得之評價結果示於表 2。又，將 XRD 圖案示於圖 1，將發射光譜示於圖 2，將掃描式電子顯微鏡照片示於圖 3。

【0071】 XRD 測量之結果為，獲得圖 1 所示之 XRD 圖案。合成粉末為 $\text{Sr}_5\text{Al}_5\text{Si}_{21}\text{N}_{35}\text{O}_2$ 結構與 $\text{SrAlSi}_4\text{N}_7$ 結構之混相。 $\text{Sr}_5\text{Al}_5\text{Si}_{21}\text{N}_{35}\text{O}_2$ 結構之位於 25.8° 附近之來自 (021) 面之繞射峰之強度 (A) 與 $\text{SrAlSi}_4\text{N}_7$ 結構之位於 24.9° 附近之來自 (221) 面之繞射峰之強度 (B) 的比 (B/A) 為 2.75。又，粒度分佈測量之結果為， D_{10} 徑為 $13.8\ \mu\text{m}$ 。ICP、XPS 測量之結果為，未檢測到硼。若以波長 $450\ \text{nm}$ 進行激發，則獲得圖 2 所示之發射光譜。雖峰值波長為 $522.0\ \text{nm}$ 且為綠色，但半值寬寬達 $111.1\ \text{nm}$ ，而成為含有紅色成分之發光。又，根據圖 3 所示之掃描式電子顯微鏡照片，比較例 1 之粉碎前之 1 次粒徑大，Heywood 徑之平均值為 $35.9\ \mu\text{m}$ ，而於利用網眼 $32\ \mu\text{m}$ 之篩子進行分級時必須進行粉碎，因此粉碎碎片增加。

【0072】 (實施例 1~6)

如表 1 般添加氮化硼 (BN) 粉末 (純度: 99%), 除此以外, 利用與比較例 1 相同之方法進行實施例 1~6。將合成粉末之評價結果示於表 2。XRD 測量之結果為, 位於 25.8° 附近之 $\text{Sr}_5\text{Al}_5\text{Si}_{21}\text{N}_{35}\text{O}_2$ 結構之來自 (021) 面之繞射峰之強度 (A) 與 $\text{SrAlSi}_4\text{N}_7$ 結構之位於 24.9° 附近之來自 (221) 面之繞射峰之強度 (B) 的比 (B/A) 未達 0.03, 尤其是實施例 2~6 之 B/A 為 0, 獲得 $\text{Sr}_5\text{Al}_5\text{Si}_{21}\text{N}_{35}\text{O}_2$ 結構之單相。又, 粒度分佈測量之結果為, D_{10} 徑為 $14.6 \sim 24.5 \mu\text{m}$ 。於圖 1 中表示實施例 5 之 XRD 圖案。

【0073】 ICP 測量之結果為, 硼含量係隨著硼添加量而增加, 為 $110 \sim 2300 \text{ ppm}$ 。又, XPS 測量之結果為, 硼之於螢光體最表面之元素濃度為 $14000 \sim 92000 \text{ ppm}$ 。又, 以波長 450 nm 激發時之發光峰值波長為 $520.5 \sim 524.0 \text{ nm}$ 之綠色, 將比較例 1 設為 100% 時之相對發光強度為 $132.5 \sim 194.9\%$ 。發射光譜之半值寬為 $67.3 \sim 76.4 \text{ nm}$ 。將實施例 5 之發射光譜示於圖 2, 將實施例 5 之掃描式電子顯微鏡照片示於圖 3。

【0074】 於實施例 1~6 中, 硼含量處於 $100 \sim 2500 \text{ ppm}$ 之範圍內, 因此獲得為 $\text{Sr}_5\text{Al}_5\text{Si}_{21}\text{N}_{35}\text{O}_2$ 結構之單相且微粒少, 並且發射光譜半值寬窄之高亮度螢光體。又, 根據圖 3 所示之實施例 5 之粉碎前之掃描式電子顯微鏡照片而確認到實施例 5 為如下情況: 1 次粒徑較比較例 1 小, 此時之 Heywood 徑之平均值為 $26.8 \mu\text{m}$, 而於利用網眼 $32 \mu\text{m}$ 之篩子進行分級時無須進行粉碎, 因此微粒少且粒徑一致。

【0075】 進而, 針對實施例 5 之試樣, 使用 X 射線光電子光譜 (XPS) 裝置 (Ulvac-Phi 股份有限公司製造之 PHI5000), 於 X 射線源: $\text{Al-K}\alpha$ 、掠出角: 與表面成 45° 之條件下以 SiO_2 換算計測量氫氣蝕刻至深度 200 nm 後之

表面之硼的元素濃度。將結果示於表 3、圖 4。利用 XPS 之螢光體最表面之硼元素濃度為 55000 ppm，越往粒子內部，硼之元素濃度越降低，關於距螢光體最表面 100 nm 以上之深度處之硼元素濃度（測量蝕刻後之表面），漸近至 9000 ppm 左右。

【0076】 （比較例 2~4）

如表 1 般改變氮化硼（BN）粉末（純度：99%）之添加量，除此以外，利用與實施例 1 相同之方法進行比較例 2~4。將合成粉末之評價結果示於表 2。XRD 測量之結果為， $\text{Sr}_5\text{Al}_5\text{Si}_{21}\text{N}_{35}\text{O}_2$ 結構之位於 25.8° 附近之來自（021）面之繞射峰值之強度（A）與 $\text{SrAlSi}_4\text{N}_7$ 結構之位於 24.9° 附近之來自（221）面之繞射峰值之強度（B）的比（B/A）為 0.04~0.21，而成為 $\text{Sr}_5\text{Al}_5\text{Si}_{21}\text{N}_{35}\text{O}_2$ 結構與 $\text{SrAlSi}_4\text{N}_7$ 結構之混相。粒度分佈測量之結果為， D_{10} 徑為 11.5~17.0 μm 。ICP 測量之結果為，硼含量於比較例 2 中為 54 ppm，於比較例 3 中為 84 ppm，於比較例 4 中為 3600 ppm。又，XPS 測量之結果為，比較例 2 之硼之於螢光體最表面之元素濃度為 8000 ppm，比較例 3 之硼之於螢光體最表面之元素濃度為 12000 ppm，比較例 4 之硼之於螢光體最表面之元素濃度為 120000 ppm。發光峰值波長為 523.0~524.0 nm 之綠色，將比較例 1 設為 100% 時之相對發光強度為 113.4~120.1%。發射光譜之半值寬為 78.5~90.9 nm。

【0077】 於比較例 2~4 中，硼含量為 100~2500 ppm 之範圍外，因此無法獲得發射光譜半值寬窄之高亮度螢光體。

【0078】 [表 1]

	混合組成[質量%]				BN 添加量[ppm]
	Eu ₂ O ₃	Sr ₃ N ₂	Si ₃ N ₄	AlN	
實施例 1	1.04	28.32	58.54	12.11	300
實施例 2	1.04	28.32	58.54	12.11	750
實施例 3	1.04	28.32	58.54	12.11	1000
實施例 4	1.04	28.32	58.54	12.11	2500
實施例 5	1.04	28.32	58.54	12.11	5000
實施例 6	1.04	28.32	58.54	12.11	10000
比較例 1	1.04	28.32	58.54	12.11	0
比較例 2	1.04	28.32	58.54	12.11	100
比較例 3	1.04	28.32	58.54	12.11	200
比較例 4	1.04	28.32	58.54	12.11	20000

【0079】 [表 2]

	XRD			粒度分佈 D ₁₀ [μm]	ICP B 含量 [ppm]	XPS B 元素 濃度 [ppm]	發射光譜測量		
	A (021) <5,5,21,35,2>	B (221) <1,1,4,7>	B/A				峰值 波長 [nm]	相對發 光強度 [%]	半值寬 [nm]
實施例 1	5052	68	0.01	14.6	110	14000	523.5	132.5	76.4
實施例 2	4981	0	0.00	20.3	220	22000	524.0	163.5	69.8
實施例 3	5283	0	0.00	24.5	340	29000	522.5	189.7	69.0
實施例 4	5920	0	0.00	24.0	750	43000	520.5	194.9	68.1
實施例 5	5502	0	0.00	22.6	1300	60000	522.0	192.9	67.3
實施例 6	5213	0	0.00	22.2	2300	92000	520.5	153.3	67.9
比較例 1	683	1878	2.75	13.8	0	0	522.0	100.0	111.1
比較例 2	3081	641	0.21	14.3	54	8000	524.0	113.4	90.9
比較例 3	3255	183	0.06	11.5	84	12000	523.0	117.7	88.5
比較例 4	5182	214	0.04	17.0	3600	120000	524.0	120.1	78.5

【0080】 [表 3]

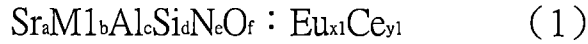
	分析部位	XPS B 元素濃度 [ppm]	內部之 B 相對於螢光體最 表面之 B 之比率[%]
實施例 5	螢光體最表面	55000	100
	蝕刻 2.5 nm 後	33100	60
	蝕刻 5 nm 後	32600	59
	蝕刻 7.5 nm 後	29700	54
	蝕刻 10 nm 後	27500	50
	蝕刻 12.5 nm 後	23000	42
	蝕刻 15 nm 後	23200	42
	蝕刻 17.5 nm 後	20300	37
	蝕刻 20 nm 後	23400	43
	蝕刻 40 nm 後	18200	33
	蝕刻 60 nm 後	14700	27
	蝕刻 80 nm 後	9980	18
	蝕刻 100 nm 後	10060	18
	蝕刻 120 nm 後	7040	13
	蝕刻 140 nm 後	7800	14
	蝕刻 160 nm 後	8810	16
	蝕刻 180 nm 後	8590	16
	蝕刻 200 nm 後	8300	15

【符號說明】

無。

申請專利範圍

1. 一種螢光體，含有下述式(1)之組成所表示之結晶相，其特徵在於：
進而含有硼 100~2500 ppm；



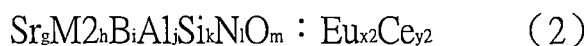
(此處，M1 係選自由 Ca、Ba 及 Mg 所組成之群中之 1 種以上之金屬元素， $2 \leq a \leq 8$ ， $0 \leq b \leq 3$ ， $2 \leq c \leq 7$ ， $10 \leq d \leq 25$ ， $15 \leq e \leq 37$ ， $0 \leq f \leq 3$ ， $0 < x1 + y1 \leq 0.6$)。

2. 如申請專利範圍第 1 項之螢光體，其中 $4 \leq a \leq 8$ ， $3 \leq c \leq 7$ ， $15 \leq d \leq 25$ ， $32 \leq e \leq 37$ 。
3. 如申請專利範圍第 1 或 2 項之螢光體，其利用 X 射線光電子光譜(XPS)裝置所測得之螢光體最表面之硼元素濃度為 20000~100000 ppm。
4. 如申請專利範圍第 1 至 3 項中任一項之螢光體，其中發射光譜之半值寬為 70 nm 以下。

5. 一種螢光體，至少含有 $\text{Sr}_5\text{Al}_5\text{Si}_{21}\text{N}_{35}\text{O}_2$ 結構之結晶相，其特徵在於：

將 X 射線繞射圖案中之 $\text{Sr}_5\text{Al}_5\text{Si}_{21}\text{N}_{35}\text{O}_2$ 結構之螢光體之來自 (021) 面的繞射峰強度設為 A，且將 $\text{SrAlSi}_4\text{N}_7$ 結構之螢光體之來自 (221) 面之繞射峰強度設為 B 時， $B/A < 0.03$ 。

6. 一種螢光體，其含有下述式(2)之組成所表示之結晶相：



(此處，M2 係選自由 Ca、Ba 及 Mg 所組成之群中之 1 種以上之金屬元素， $2 \leq g \leq 8$ ， $0 \leq h \leq 3$ ， $0.02 \leq i \leq 0.8$ ， $2 \leq j \leq 7$ ， $10 \leq k \leq 25$ ， $15 \leq l \leq 37$ ， $0 \leq m \leq 3$ ， $0 < x2 + y2 \leq 0.6$)。

7. 如申請專利範圍第 6 項之螢光體，其中 $4 \leq g \leq 8$ ， $3 \leq j \leq 7$ ， $15 \leq k \leq 25$ ， $32 \leq l \leq 37$ 。

8. 一種螢光體之製造方法，具備如下步驟：

將含 Sr 化合物、含 Al 化合物、含 Si 化合物、含 Eu 化合物及／或含 Ce 化合物、以及含 B 化合物進行混合而獲得原料混合物之步驟；與於非活性氣體環境下或還原性氣體環境下將該原料混合物進行燒製之步驟，

其特徵在於：該含 B 化合物之添加量為該原料混合物之 250~10000 ppm。

9. 如申請專利範圍第 8 項之螢光體之製造方法，其中含 Sr 化合物為 Sr_3N_2 ，含 Al 化合物為 AlN，含 Si 化合物為 Si_3N_4 。

10. 一種發光裝置，具備申請專利範圍第 1 至 7 項中任一項之螢光體與對該螢光體照射激發光而使之發光之光源。

圖式

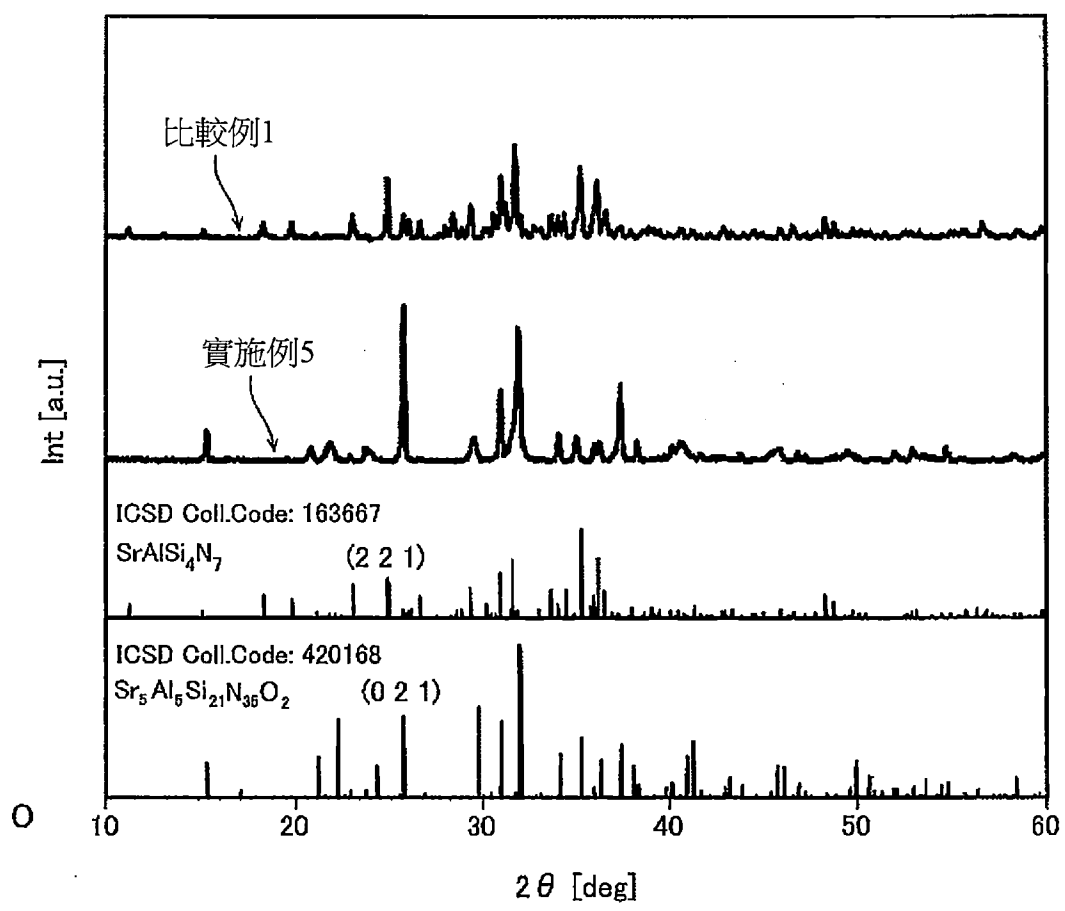


圖1

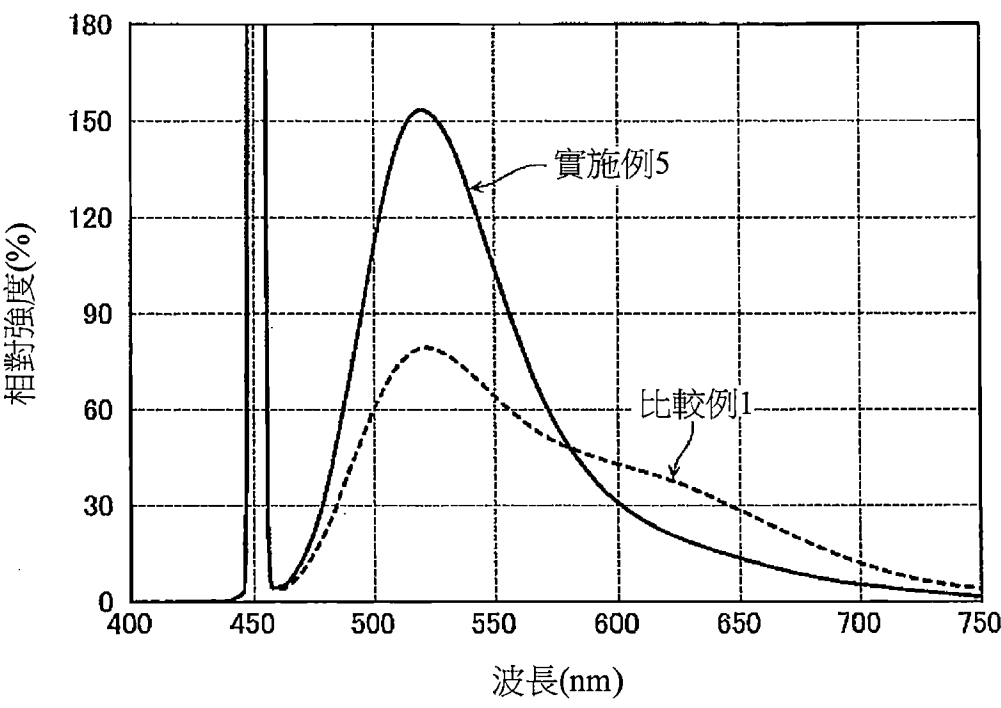


圖2

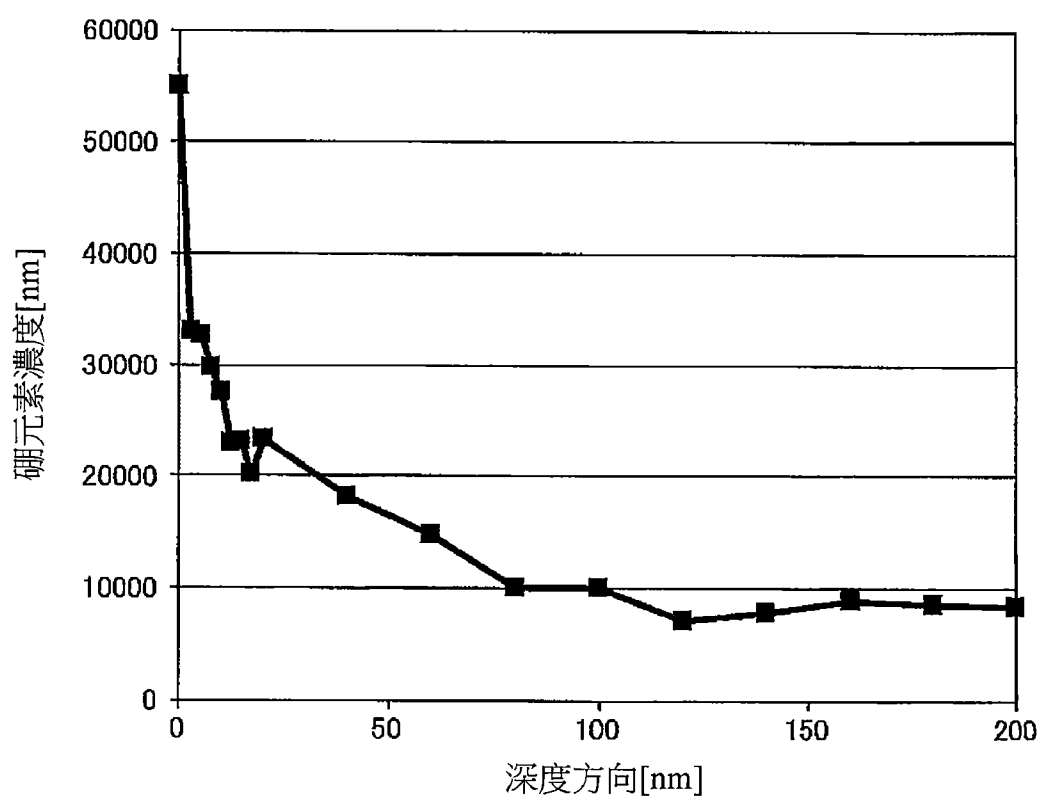


圖4

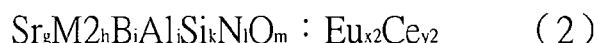
申請專利範圍

1. 一種螢光體，含有下述式 (1) 之組成所表示之結晶相，其特徵在於：
進而含有硼 100～2500 ppm；



(此處，M1 係選自由 Ca、Ba 及 Mg 所組成之群中之 1 種以上之金屬元素， $2 \leq a \leq 8$ ， $0 \leq b \leq 3$ ， $2 \leq c \leq 7$ ， $10 \leq d \leq 25$ ， $15 \leq e \leq 37$ ， $0 \leq f \leq 3$ ， $0 < x1 + y1 \leq 0.6$)。

2. 如申請專利範圍第 1 項之螢光體，其中 $4 \leq a \leq 8$ ， $3 \leq c \leq 7$ ， $15 \leq d \leq 25$ ， $32 \leq e \leq 37$ 。
3. 如申請專利範圍第 1 或 2 項之螢光體，其利用 X 射線光電子光譜(XPS)裝置所測得之螢光體最表面之硼元素濃度為 20000～100000 ppm。
4. 如申請專利範圍第 1 或 2 項之螢光體，其中發射光譜之半值寬為 70 nm 以下。
5. 如申請專利範圍第 3 項之螢光體，其中發射光譜之半值寬為 70 nm 以下。
6. 一種螢光體，至少含有 $\text{Sr}_5\text{Al}_5\text{Si}_{21}\text{N}_{35}\text{O}_2$ 結構之結晶相，其特徵在於：
將 X 射線繞射圖案中之 $\text{Sr}_5\text{Al}_5\text{Si}_{21}\text{N}_{35}\text{O}_2$ 結構之螢光體之來自 (021) 面的繞射峰強度設為 A，且將 $\text{SrAlSi}_4\text{N}_7$ 結構之螢光體之來自 (221) 面之繞射峰強度設為 B 時， $B/A < 0.03$ 。
7. 一種螢光體，其含有下述式 (2) 之組成所表示之結晶相：



(此處，M2 係選自由 Ca、Ba 及 Mg 所組成之群中之 1 種以上之金屬元素， $2 \leq g \leq 8$ ， $0 \leq h \leq 3$ ， $0.02 \leq i \leq 0.8$ ， $2 \leq j \leq 7$ ， $10 \leq k \leq 25$ ， $15 \leq l$

≤ 37 ， $0 \leq m \leq 3$ ， $0 < x^2 + y^2 \leq 0.6$)。

8. 如申請專利範圍第 7 項之螢光體，其中 $4 \leq g \leq 8$ ， $3 \leq j \leq 7$ ， $15 \leq k \leq 25$ ， $32 \leq l \leq 37$ 。

9. 一種螢光體之製造方法，具備如下步驟：

將含 Sr 化合物、含 Al 化合物、含 Si 化合物、含 Eu 化合物及／或含 Ce 化合物、以及含 B 化合物進行混合而獲得原料混合物之步驟；與於非活性氣體環境下或還原性氣體環境下將該原料混合物進行燒製之步驟，

其特徵在於：該含 B 化合物之添加量為該原料混合物之 250～10000 ppm。

10. 如申請專利範圍第 9 項之螢光體之製造方法，其中含 Sr 化合物為 Sr_3N_2 ，含 Al 化合物為 AlN ，含 Si 化合物為 Si_3N_4 。

11. 一種發光裝置，具備申請專利範圍第 1 至 8 項中任一項之螢光體與對該螢光體照射激發光而使之發光之光源。