



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公告本

(11)證書號數：TW I742280 B

(45)公告日：中華民國 110 (2021) 年 10 月 11 日

(21)申請案號：107116526

(22)申請日：中華民國 107 (2018) 年 05 月 16 日

(51)Int. Cl. : C09K11/77 (2006.01)

C09K11/80 (2006.01)

C01F17/00 (2020.01)

H01L33/00 (2010.01)

(30)優先權：2017/05/19 日本

2017-100133

(71)申請人：日商日亞化學工業股份有限公司 (日本) NICHIA CORPORATION (JP)
日本

(72)發明人：鈴木朋和 SUZUKI, TOMOKAZU (JP)

(74)代理人：陳長文

(56)參考文獻：

TW 201326367A1

EP 0936682A1

US 8198798B2

US 2002/180338A1

US 2007/103057A1

審查人員：游瀚霆

申請專利範圍項數：6 項 圖式數：8 共 37 頁

(54)名稱

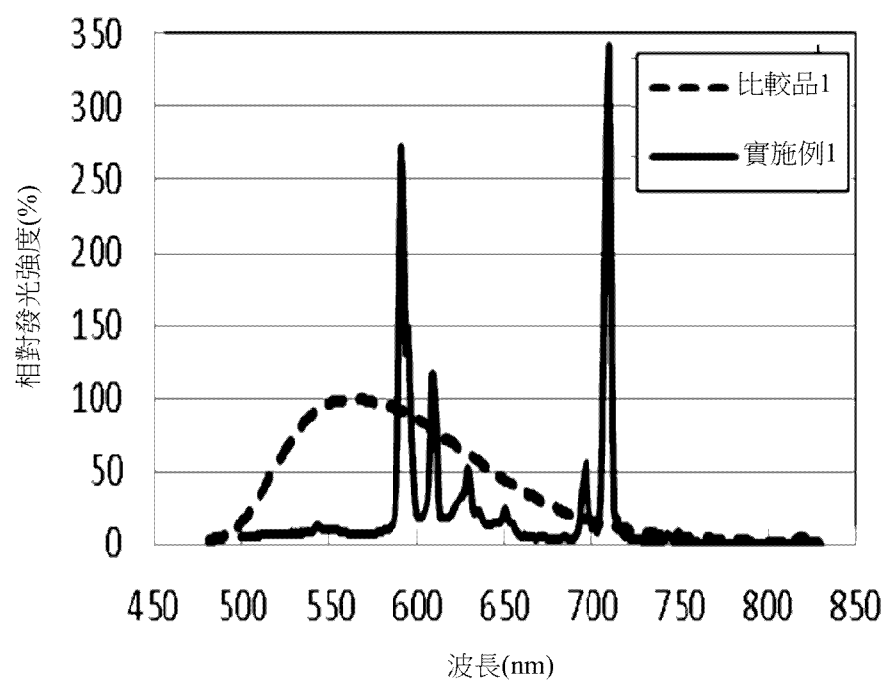
具有稀土類鋁鎳酸鹽之組成之螢光體及發光裝置

(57)摘要

本發明提供一種發光强度高之具有稀土類鋁鎳酸鹽之組成之螢光體及使用其之發光裝置。本發明係一種具有稀土類鋁鎳酸鹽之組成之螢光體，其包含選自由 Y、Gd、La、Lu、Sc 及 Sm 所組成之群中之至少一種稀土類元素 Ln、選自 Al 及 Ga 中之至少一種第 13 族元素、Tb、Ce、及 Eu，且於以上述 Al 與 Ga 之合計莫耳比 5 為基準時，上述 Ln、Tb、Ce 與 Eu 之合計莫耳比為 3，上述 Tb 之莫耳比為 3 與變數 a 之積，上述 Ce 之莫耳比為 3 與變數 b 之積，上述 Eu 之莫耳比為 3 與變數 c 之積，上述 Ga 之莫耳比為 5 與變數 d 之積，上述變數 a 為 0.25 以上且未達 1，上述變數 b 為 0.008×10^{-2} 以上且 1.5×10^{-2} 以下，上述變數 c 為 0.012×10^{-2} 以上且 2×10^{-2} 以下，上述變數 d 為 0 以上且 0.85 以下。

Provided are a fluorescent material, and a light emitting device using the fluorescent material. The fluorescent material has a composition of a rare earth aluminum gallate containing at least one rare earth element Ln selected from the group consisting of Y, Gd, La, Lu, Sc and Sm; at least one Group 13 element selected from Al and Ga; Tb; Ce; and Eu. When a total molar composition ratio of Al and Ga is set to 5, a total molar ratio of Ln, and Tb, Ce and Eu is 3, a molar ratio of Tb is a product of 3 and a parameter a, a molar ratio of Ce is a product of 3 and a parameter b, a molar ratio of Eu is a product of 3 and a parameter c, a molar ratio of Ga is a product of 5 and a parameter d, the parameter a is 0.25 or more and less than 1, the parameter b is 0.008×10^{-2} or more and 1.5×10^{-2} or less, the parameter c is 0.012×10^{-2} or more and 2×10^{-2} or less, and the parameter d is 0 or more and 0.85 or less.

指定代表圖：



【圖1】



I742280

【發明摘要】

【中文發明名稱】

具有稀土類鋁鎵酸鹽之組成之螢光體及發光裝置

【英文發明名稱】

FLUORESCENT MATERIAL HAVING COMPOSITION OF RARE EARTH ALUMINUM-GALLATE, AND LIGHT EMITTING DEVICE

【中文】

本發明提供一種發光強度高之具有稀土類鋁鎵酸鹽之組成之螢光體及使用其之發光裝置。

本發明係一種具有稀土類鋁鎵酸鹽之組成之螢光體，其包含選自由Y、Gd、La、Lu、Sc及Sm所組成之群中之至少一種稀土類元素Ln、選自Al及Ga中之至少一種第13族元素、Tb、Ce、及Eu，且於以上述Al與Ga之合計莫耳比5為基準時，上述Ln、Tb、Ce與Eu之合計莫耳比為3，上述Tb之莫耳比為3與變數a之積，上述Ce之莫耳比為3與變數b之積，上述Eu之莫耳比為3與變數c之積，上述Ga之莫耳比為5與變數d之積，上述變數a為0.25以上且未達1，上述變數b為 0.008×10^{-2} 以上且 1.5×10^{-2} 以下，上述變數c為 0.012×10^{-2} 以上且 2×10^{-2} 以下，上述變數d為0以上且0.85以下。

【英文】

Provided are a fluorescent material, and a light emitting device using the fluorescent material. The fluorescent material has a composition of a rare earth aluminum gallate containing at least one rare earth element Ln selected from the group consisting of Y, Gd, La, Lu, Sc and Sm; at least one Group 13 element selected from Al and Ga; Tb; Ce; and Eu. When a total molar composition ratio of Al and Ga

is set to 5, a total molar ratio of Ln, and Tb, Ce and Eu is 3, a molar ratio of Tb is a product of 3 and a parameter a, a molar ratio of Ce is a product of 3 and a parameter b, a molar ratio of Eu is a product of 3 and a parameter c, a molar ratio of Ga is a product of 5 and a parameter d, the parameter a is 0.25 or more and less than 1, the parameter b is 0.008×10^{-2} or more and 1.5×10^{-2} or less, the parameter c is 0.012×10^{-2} or more and 2×10^{-2} or less, and the parameter d is 0 or more and 0.85 or less.

【指定代表圖】

圖 1

【代表圖之符號簡單說明】

無

【發明說明書】

【中文發明名稱】

具有稀土類鋁鎵酸鹽之組成之螢光體及發光裝置

【英文發明名稱】

FLUORESCENT MATERIAL HAVING COMPOSITION OF RARE EARTH ALUMINUM-GALLATE, AND LIGHT EMITTING DEVICE

【技術領域】

【0001】

本發明係關於一種具有稀土類鋁鎵酸鹽之組成之螢光體及使用其之發光裝置。

【先前技術】

【0002】

業界開發有各種將發光二極體(Light Emitting Diode : LED)晶片等光源、與螢光體組合而成之發光裝置。例如將發藍光之LED晶片、與發黃光之螢光體組合，而開發出發白光之發光裝置。作為藉由受到來自LED晶片之藍光而被激發而發黃光之螢光體，已知有經具有石榴石結構之鈾活化之稀土類鋁酸鹽螢光體，例如 $Y_3Al_5O_{12} : Ce$ (YAG : Yttrium Aluminium Garnet)。

【0003】

將發藍光之LED晶片、與受到藍光而發黃光之 $Y_3Al_5O_{12} : Ce$ 所表示之YAG系螢光體組合而得之白色發光係紅色系之發光較弱。亦已知有為了彌補紅色系之發光，亦與 $CaAlSiN_3 : Eu$ 、 $K_2SiF_6 : Mn$ 、 $3.5MgO \cdot 0.5MgF_2 \cdot GeO_2 : Mn$ 所表示之發紅光之螢光體組合而成之發光裝置。

【0004】

為了彌補 $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$ 所表示之YAG系螢光體不足之紅色成分，提出有改變了成為活化劑之元素之種類或成為活化劑之元素之莫耳比的具有稀土類鋁鎳酸鹽之組成之螢光體(專利文獻1至3)。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

【0005】

[專利文獻1]日本專利特開2002-363555號公報

[專利文獻2]日本專利特開2006-233158號公報

[專利文獻3]日本專利特開2007-126670號公報

【發明內容】

[發明所欲解決之問題]

【0006】

然而，專利文獻1至3中揭示之具有稀土類鋁鎳酸鹽之組成之螢光體有無法獲得所需之紅色系發光得以彌補之發光之情況。

【0007】

本發明之目的在於提供一種補強紅色成分、發光強度較高之具有稀土類鋁鎳酸鹽之組成之螢光體及使用其之發光裝置。

[解決問題之技術手段]

【0008】

用以解決上述課題之方法包含以下之態樣。

【0009】

本發明之第一態樣係一種具有稀土類鋁鎳酸鹽之組成之螢光體，其

包含選自由Y、Gd、La、Lu、Sc及Sm所組成之群中之至少一種稀土類元素Ln、選自Al及Ga中之至少一種第13族元素、Tb、Ce、及Eu，且於以上述Al與Ga之合計莫耳比5為基準時，上述Ln、Tb、Ce與Eu之合計莫耳比為3，上述Tb之莫耳比為3與變數a之積，上述Ce之莫耳比為3與變數b之積，上述Eu之莫耳比為3與變數c之積，上述Ga之莫耳比為5與變數d之積，上述變數a為0.25以上且未達1，上述變數b為 0.008×10^{-2} 以上且 1.5×10^{-2} 以下，上述變數c為 0.012×10^{-2} 以上且 2×10^{-2} 以下，上述變數d為0以上且0.85以下。

【0010】

本發明之第二態樣係包含上述螢光體及激發光源之發光裝置。

[發明之效果]

【0011】

根據本發明之一態樣，可提供一種補強紅色成分、發光強度較高之具有稀土類鋁鎳酸鹽之組成之螢光體及使用其之發光裝置。

【圖式簡單說明】

【0012】

圖1係表示實施例1之螢光體之發光光譜及比較例1之螢光體之發光光譜之圖。

圖2係表示實施例1之螢光體之激發光譜及比較例1之螢光體之激發光譜之圖。

圖3係表示實施例2、實施例6至10之螢光體及比較例5之螢光體之各螢光體中所含之Tb量(變數a)所對應的各螢光體於波長591 nm時之相對發光強度(%)的圖表。

圖4係表示實施例2、實施例11至18之螢光體及比較例6至8之螢光體之各螢光體中所含之Ce量(變數b)所對應的各螢光體於波長591 nm時之相對發光強度(%)的圖表。

圖5係表示實施例2、實施例19至25之螢光體及比較例9至10之螢光體之各螢光體中所含之Eu量(變數c)所對應的各螢光體於波長591 nm時之相對發光強度(%)的圖表。

圖6係表示實施例5、實施例26至32之螢光體及比較例11之螢光體之各螢光體中所含之Ga量(變數d)所對應的各螢光體於波長591 nm時之相對發光強度(%)的圖表。

圖7係表示比較例1至4之螢光體之發光光譜之圖。

圖8係表示比較例1至4之螢光體之激發光譜之圖。

【實施方式】

【0013】

以下，基於實施形態說明本發明之螢光體及發光裝置。然而，以下所示之實施形態係用以將本發明之技術思想具體化之例示，本發明並不限定於以下之螢光體及發光裝置。再者，色名與色度座標之關係、光之波長範圍與單色光之色名之關係依據JIS Z8110。

【0014】

本發明之第一實施形態係具有稀土類鋁鎳酸鹽之組成之螢光體，其包含選自由Y、Gd、La、Lu、Sc及Sm所組成之群中之至少一種稀土類元素Ln、選自Al及Ga中之至少一種第13族元素、Tb、Ce、及Eu，且於以上述Al與Ga之合計莫耳比5為基準時，上述Ln、Tb、Ce與Eu之合計莫耳比為3，上述Tb之莫耳比為3與變數a之積，上述Ce之莫耳比為3與變數b之

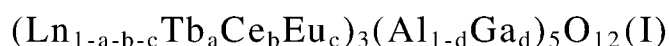
積，上述Eu之莫耳比為3與變數c之積，上述Ga之莫耳比為5與變數d之積，上述變數a為0.25以上且未達1，上述變數b為 0.008×10^{-2} 以上且 1.5×10^{-2} 以下，上述變數c為 0.012×10^{-2} 以上且 2×10^{-2} 以下，上述變數d為0以上且0.85以下。

【0015】

第一實施形態之螢光體除構成稀土類鋁鎂酸鹽之晶體結構之選自由Y、Gd、La、Lu、Sc及Sm所組成之群中之至少一種稀土類元素Ln、選自鋁(Al)及Ga(鎂)中之至少一種第13族元素、及氧(O)以外，亦包含鉕(Tb)、銪(Ce)、及鎳(Eu)之三種元素作為必需之元素。具有稀土類鋁鎂酸鹽之組成之螢光體藉由包含特定量之Tb、Ce、Eu之三種鐳元素，而構成石榴石型之晶體結構之稀土類元素之一部分與Tb、Ce及Eu之三種元素置換，補強紅色成分，藉由來自激發光源之光而發光，於發光光譜中於波長591 nm附近出現陡峭之強發光峰，具有較高之發光強度。螢光體之構成稀土類鋁鎂酸鹽之組成之稀土類元素Ln較佳為選自由Y、Gd、La、Lu及Sc所組成之群中之至少一種。

【0016】

具有稀土類鋁鎂酸鹽之組成之螢光體較佳為具有下述式(I)所表示之組成。



式(I)中，Ln為選自由Y、Gd、La、Lu、Sc及Sm所組成之群中之至少一種稀土類元素，變數a、b、c及d分別為滿足 $0.25 \leq a < 1$ 、 $0.008 \times 10^{-2} \leq b \leq 1.5 \times 10^{-2}$ 、 $0.012 \times 10^{-2} \leq c \leq 2 \times 10^{-2}$ 、 $0 \leq d \leq 0.85$ 之數。

【0017】

於螢光體之稀土類鋁鎵酸鹽之組成中，於以Al與Ga之合計莫耳比5為基準時，於稀土類元素Ln、Tb、Ce、與Eu之合計莫耳比為3，且Tb之莫耳比為3與變數a之積之情形時，表示Tb量之變數a為0.25以上且未達1，較佳為0.3以上且未達1，更佳為0.35以上且未達1，更進而較佳為0.35以上且0.9998以下。於稀土類鋁鎵酸鹽之組成中，若變數a未達0.25，則波長591 nm附近之發光強度變低。

【0018】

於螢光體中，Tb作為1個發光中心發揮作用。於稀土類鋁鎵酸鹽之組成中，藉由表示Tb量之變數a為0.25以上且未達1，能量自Ce向Tb轉移，而於發光光譜中，於波長591 nm附近出現陡峭之強發光峰。另一方面，將Ce作為單獨之活化劑之YAG系螢光體、或具有Ce及Eu兩種活化劑之YAG系螢光體係於發光光譜中，於發黃綠色至黃色光之波長區域出現具有發光峰之寬波峰。

【0019】

於螢光體之稀土類鋁鎵酸鹽之組成中，於以Al與Ga之合計莫耳比5為基準時，於稀土類元素Ln、Tb、Ce、與Eu之合計莫耳比為3，且Ce之莫耳比為3與變數b之積之情形時，表示Ce量之變數b為 0.008×10^{-2} 以上且 1.5×10^{-2} 以下，較佳為 0.01×10^{-2} 以上且 0.95×10^{-2} 以下，更佳為 0.015×10^{-2} 以上且 0.7×10^{-2} 以下。於稀土類鋁鎵酸鹽之組成中，若變數b未達 0.008×10^{-2} 或超過 1.5×10^{-2} ，則波長591 nm附近之發光強度變低。

【0020】

於螢光體中，Ce作為1個發光中心發揮作用。又，於螢光體之稀土類鋁鎵酸鹽之組成中，表示Ce量之變數b為 0.008×10^{-2} 以上且 1.5×10^{-2} 以下，

除Ce以外亦包含Tb及Eu兩個元素，藉此於發光光譜中，自將Ce作為單獨之活化劑之螢光體之於波長550 nm附近具有峰頂之寬峰，於波長591 nm附近出現陡峭之強發光峰。

【0021】

於螢光體之稀土類鋁鎵酸鹽之組成中，於以Al與Ga之合計莫耳比5為基準時，於稀土類元素Ln、Tb、Ce、與Eu之合計莫耳比為3，且Eu之莫耳比為3與變數c之積之情形時，表示Eu量之變數c為 0.012×10^{-2} 以上且 2×10^{-2} 以下，較佳為 0.014×10^{-2} 以上且 1.6×10^{-2} 以下，更佳為 0.02×10^{-2} 以上且 1.2×10^{-2} 以下。於稀土類鋁鎵酸鹽之組成中，若變數c未達 0.012×10^{-2} 或超過 2×10^{-2} ，則波長591 nm附近之發光強度變低。

【0022】

於稀土類鋁鎵酸鹽之組成中，Eu作為1個發光中心發揮作用。又，於螢光體之稀土類鋁鎵酸鹽之組成中，表示Eu量之變數c為 0.012×10^{-2} 以上且 2×10^{-2} 以下，除Ce以外亦包含Tb及Eu，藉此於發光光譜中，能量自Ce轉移至Eu及Tb，自將Ce作為單獨之活化劑之螢光體之於波長550 nm附近具有峰頂之寬峰，於波長591 nm附近出現陡峭之強發光峰。

【0023】

本發明之第一實施形態之螢光體較佳為於稀土類鋁鎵酸鹽之組成中包含Ga。一般而言，已知於具有石榴石結構之YAG系螢光體中，Ga於晶體結構中與Al之位置置換，因此晶體結構變得不穩定，發光強度降低。與該一般見解相反，可知藉由於螢光體之稀土類鋁鎵酸鹽之組成中包含Ga，於發光光譜中，波長591 nm附近之發光強度變得更高。於螢光體之稀土類鋁鎵酸鹽之組成中，表示Ga量之變數d為0以上且0.85以下，較佳

為0.1以上且0.8以下，更佳為0.15以上且0.75以下。於螢光體之稀土類鋁鎵酸鹽之組成中，表示Ga量之變數d為0.85以下，藉此於發光光譜中，可進一步提高波長591 nm附近之發光強度。

【0024】

本發明之第一實施形態之螢光體係發光色之色度於CIE1931系之色度座標中，較佳為 $0.420 \leq x \leq 0.600$ 、 $0.300 \leq y \leq 0.530$ 之範圍，更佳為 $0.450 \leq x \leq 0.590$ 、 $0.350 \leq y \leq 0.525$ 之範圍，進而較佳為 $0.480 \leq x \leq 0.580$ 、 $0.400 \leq y \leq 0.520$ 之範圍。若螢光體之發光色之色度係CIE1931系之色度座標中之x、y為上述範圍，則螢光體之紅色成分被補強，發出接近紅色之橙色光至接近黃色之橙色光。本發明之一實施形態之螢光體藉由近紫外至藍色區域之光激發，具體而言吸收380 nm以上且485 nm以下之波長範圍之光的發光色之色度較佳為CIE1931系之色度座標中之x、y之範圍為上述範圍。

【0025】

具有稀土類鋁鎵酸鹽之組成之螢光體之製造方法

作為製造具有稀土類鋁鎵酸鹽之組成之螢光體之方法，可列舉以下之方法。

【0026】

可列舉如下方法：對包含選自由Y、Gd、La、Lu、Sc及Sm所組成之群中之至少一種稀土類元素Ln之化合物、包含選自Al及Ga中之至少一種第13族元素之化合物、包含Tb之化合物、包含Ce之化合物及包含Eu之化合物，以於以上述Al與Ga之合計莫耳組成比5為基準時，上述Ln、Tb、Ce與Eu之合計莫耳比為3，Tb之莫耳比為3與變數a之積，Ce之莫耳比為3

與變數b之積，Eu之莫耳比為3與變數c之積，Ga之莫耳比為5與變數d之積，變數a為0.25以上且未達1，較佳為變數a為0.25以上且0.9998以下，變數b為 0.008×10^{-2} 以上且 1.5×10^{-2} 以下，變數c為 0.012×10^{-2} 以上且 2×10^{-2} 以下，變數d成為0以上且0.85以下之方式，將成為各原料之化合物混合，獲得原料混合物，對該原料混合物進行熱處理，而獲得具有稀土類鋁鎳酸鹽之組成之螢光體。

【0027】

包含稀土類元素之化合物

作為包含稀土類元素之化合物，可列舉包含選自由Y、Gd、La、Lu、Sc及Sm所組成之群中之至少一種稀土類元素Ln之氧化物、氫氧化物、氮化物、氮氧化物、氟化物、氯化物。該等化合物亦可為水合物。包含稀土類元素Ln之化合物中，至少一部分亦可使用金屬單體或包含稀土類元素之合金。

【0028】

作為包含稀土類元素之化合物，具體而言，可列舉 Y_2O_3 、 $Y(OH)_3$ 、YN、 YF_3 、 YCl_3 、 Gd_2O_3 、 $Gd(OH)_3$ 、GdN、 GdF_3 、 $GdCl_3$ 、 Lu_2O_3 、 LuF_3 、 $LuCl_3$ 、 La_2O_3 、 $La(OH)_3$ 、 LaF_3 、 $LaCl_3$ 、 Sc_2O_3 、ScN、 ScF_3 、 $ScCl_3$ 、 Sm_2O_3 、SmN、 SmF_3 、 $SmCl_3$ 。包含稀土類元素之化合物可單獨使用一種，亦可將兩種以上組合使用。包含稀土類元素之化合物較佳為氧化物。其原因在於氧化物與其他材料相比，不含稀土類鋁鎳酸鹽之目標組成以外之元素。

【0029】

包含選自Al及Ga中之至少一種第13族元素之化合物

作為包含選自Al及Ga中之至少一種第13族元素之化合物，可列舉包含鋁或鎵之氧化物、氫氧化物、氮化物、氮氧化物、氟化物、氯化物。該等化合物亦可為水合物。作為包含鋁或鎵之化合物，可使用鋁金屬單體、鎵金屬單體、鋁合金或鎵合金，亦可使用金屬單體或合金代替化合物之至少一部分。

【0030】

作為包含選自Al及Ga中之至少一種第13族元素之化合物，具體而言，可列舉 Al_2O_3 、 $\text{Al}(\text{OH})_3$ 、 AlN 、 AlON 、 AlF_3 、 AlCl_3 、 Ga_2O_3 、 $\text{Ga}(\text{OH})_3$ 、 GaN 、 GaF_3 、 GaCl_3 。包含選自Al及Ga中之至少一種第13族元素之化合物可單獨使用一種，亦可將兩種以上組合使用。包含選自Al及Ga中之至少一種第13族元素之化合物較佳為氧化物。其理由在於氧化物與其他材料相比，不含稀土類鋁鎵酸鹽之目標組成以外之其他元素，容易獲得目標組成之螢光體。又，於使用包含目標組成以外之元素之化合物之情形時，有於獲得之螢光體中存在殘留雜質元素之情況，該殘留雜質元素針對發光乃成為殺手要素，而有導致發光強度明顯降低之虞。

【0031】

包含Tb之化合物

作為包含Tb之化合物，可列舉包含銩之氧化物、氟化物、氯化物等。該等化合物亦可為水合物。作為包含銩之化合物，可使用銩金屬單體或包含銩之合金，亦可使用金屬單體或合金代替化合物之至少一部分。

【0032】

作為包含Tb之化合物，具體而言，可列舉 Tb_4O_7 、 TbF_3 、 TbCl_3 。包含Tb之化合物可單獨使用一種，亦可將兩種以上組合使用。包含Tb之化

合物較佳為氧化物。理由係氧化物與其他材料相比，不含稀土類鋁鎳酸鹽之目標組成以外之其他元素，容易獲得目標組成之螢光體。又，於使用包含目標組成以外之元素之化合物之情形時，有於所獲得之螢光體中存在殘留雜質元素之情況，有該殘留雜質元素關於發光成為殺手，導致發光強度明顯降低之虞。

【0033】

包含Ce之化合物

作為包含Ce之化合物，可列舉包含銻之氧化物、氫氧化物、氮化物、氟化物、氯化物。該等化合物亦可為水合物。作為包含銻之化合物，可使用銻金屬單體或銻合金，亦可使用金屬單體或合金代替化合物之至少一部分。

【0034】

作為包含Ce之化合物，具體而言，可列舉CeO₂、Ce(OH)₂、Ce(OH)₄、CeN、CeF₃、CeCl₃。包含Ce之化合物可單獨使用一種，亦可將兩種以上組合使用。包含Ce之化合物較佳為氧化物。作為理由，係氧化物與其他材料相比，不含稀土類鋁鎳酸鹽之目標組成以外之其他元素，容易獲得目標組成之螢光體。又，於使用包含目標組成以外之元素之化合物之情形時，有於所獲得之螢光體中存在殘留雜質元素之情況，有該殘留雜質元素關於發光成為殺手，導致發光強度明顯降低之虞。

【0035】

包含Eu之化合物

作為包含Eu之化合物，可列舉包含銻之氧化物、氟化物、氯化物。該等化合物亦可為水合物。作為包含銻之化合物，可使用銻金屬單體或包

含鎔之合金，亦可使用金屬單體或合金代替化合物之至少一部分。

【0036】

作為包含Eu之化合物，具體而言，可列舉 Eu_2O_3 、 EuF_3 、 EuCl_3 。包含Eu之化合物可單獨使用一種，亦可將兩種以上組合使用。包含Eu之化合物較佳為氧化物。作為其理由，係氧化物與其他材料相比，不含稀土類鋁鎂酸鹽之目標組成以外之其他元素，容易獲得目標組成之螢光體。又，於使用包含目標組成以外之元素之化合物之情形時，有於所獲得之螢光體中存在殘留雜質元素之情況，有該殘留雜質元素關於發光成為殺手，導致發光強度明顯降低之虞。

【0037】

原料混合物視需要亦可包含鹵化物等助焊劑。藉由於原料混合物中含有助焊劑，促進原料彼此之反應，容易更均勻地進行固相反應。認為其原因在於：對原料混合物進行熱處理之溫度與用作助焊劑之鹵化物等之液相之生成溫度大致相同，或高於上述生成溫度，因此促進反應。

【0038】

作為鹵化物，可列舉稀土類金屬、鹼土金屬、鹼金屬之氟化物、氯化物等。作為助焊劑，於使用稀土類金屬之鹵化物之情形時，亦可以成為目標稀土類鋁鎂酸鹽之組成之化合物之形式添加助焊劑。作為助焊劑，具體而言，例如可列舉氟化鋇(BaF_2)、氟化鈣(CaF_2)等。較佳為氟化鋇(BaF_2)。其原因在於藉由於助焊劑使用氟化鋇，石榴石晶體結構穩定，容易變為石榴石晶體結構之組成。

【0039】

於原料混合物包含助焊劑之情形時，助焊劑之含量以原料混合物

(100質量%)為基準，較佳為20質量%以下，更佳為10質量%以下，且較佳為0.1質量%以上。其原因在於，若助焊劑含量為上述範圍，則無因助焊劑較少而粒子生長不足，因此變得不易形成石榴石晶體結構之情況，又，無助焊劑過多而變得不易形成石榴石晶體結構之情況。

【0040】

原料混合物係以成為所需之調配比之方式秤量各原料後，例如可使用球磨機、振磨機、錘磨機、輥磨機、噴射磨機等乾式粉碎機進行粉碎混合，亦可使用研鉢與杵等進行粉碎混合，例如可使用帶式混合機、亨舍爾混合機、V型攪拌器等混合機進行混合，亦可使用乾式粉碎機與混合機兩者進行粉碎混合。又，混合可為乾式混合，亦可添加溶劑等進行濕式混合。混合較佳為乾式混合。其原因在於較濕式，乾式可縮短步驟時間，帶來生產性之提高。

【0041】

原料混合物可放入石墨等碳材質、氮化硼(BN)、氧化鋁(alumina)、鎢(W)、鉬(Mo)材質之坩堝、舟皿等中進行熱處理。

【0042】

就晶體結構之穩定性之觀點而言，對原料混合物進行熱處理之溫度較佳為800℃以上且1800℃以下，更佳為900℃以上且1750℃以下，進而較佳為1000℃以上且1700℃以下，尤佳為1100℃以上且1650℃以下。

【0043】

熱處理時間根據升溫速度、熱處理氛圍等而異，達到熱處理溫度後，較佳為1小時以上，更佳為2小時以上，進而較佳為3小時以上，且較佳為20小時以下，更佳為18小時以下，進而較佳為15小時以下。

【0044】

對原料混合物進行熱處理之氛圍可於氫、氮等惰性氣氛、包含氫等之還原性氣氛、或大氣中等氧化氣氛中進行。原料混合物較佳為於具有還原性之氮氣氛圍中進行熱處理，而獲得螢光體。對原料混合物進行熱處理之氛圍更佳為包含具有還原性之氫氣之氮氣氛圍。

具有稀土類鋁鎂酸鹽之組成之螢光體於如包含氫及氮之還原性氣氛之還原力較高之氛圍中，原料混合物之反應性變好，無需加壓而可於大氣壓下進行熱處理。熱處理例如可使用電爐、煤氣爐等。

【0045】

所獲得之螢光體亦可進行濕式分散、濕式過篩、脫水、乾燥、乾式過篩等後處理步驟，藉由該等後處理步驟，獲得具有所需之平均粒徑之螢光體。例如可使熱處理後之螢光體分散於非水有機溶劑或水性溶劑中，將經分散之螢光體放置於篩上，介隔篩一面施加各種振動一面使溶劑流流動，使煅燒物通過篩網而進行濕式過篩，繼而進行脫水、乾燥，經過乾式過篩，獲得具有所需之平均粒徑之螢光體。

【0046】

藉由使熱處理後之螢光體分散於水性介質中，可去除助焊劑之煅燒殘留分等雜質或原料之未反應成分。亦可於濕式分散使用氧化鋁球或氧化鋇球等分散介質。

【0047】**發光裝置**

繼而，對將所獲得之螢光體用作波長轉換構件之構成元件之發光裝置進行說明。本發明之第二實施形態至少具備第一實施形態之螢光體、及

激發光源。

【0048】

於激發光源可使用發光元件。發光元件較佳為於250 nm以上且500 nm以下之波長範圍內具有發光峰波長者，發光元件之發光峰波長之範圍更佳為350 nm以上且490 nm以下，進而較佳為380 nm以上且485 nm以下，進而較佳為400 nm以上且480 nm以下。可提供使用此種發光元件作為激發光源，將於發光光譜中於波長591 nm附近出現陡峭之強發光峰之第一實施形態之螢光體、與激發光源組合而成之發光裝置。

【0049】

發光元件之發光光譜之半值寬例如可設為30 nm以下。

於發光元件，例如較佳為使用採用了氮化物系半導體($\text{In}_x\text{Al}_y\text{Ga}_{1-x-y}\text{N}$ ， $0 \leq x$ ， $0 \leq y$ ， $x + y \leq 1$)之半導體發光元件。藉由使用半導體發光元件作為光源，可獲得高效率且輸出相對於輸入之線性較高、對機械衝擊亦較強之穩定之發光裝置。

【0050】

發光裝置中所含之螢光體較佳為具有上述式(I)所表示之組成之螢光體。發光裝置中所含之螢光體藉由250 nm以上且500 nm以下之波長範圍之光而被激發。發光裝置係將上述第一實施形態之螢光體設為第一螢光體，除該第一螢光體以外亦可包含第二螢光體，第二螢光體亦可將複數種螢光體組合使用。

【0051】

第一實施形態之螢光體例如可含有於覆蓋激發光源之螢光構件而構成發光裝置。發光裝置利用含有第一實施形態之螢光體之螢光構件覆蓋激

發光源，自該激發光源出射之光之一部分被第一實施形態之螢光體吸收，放射出於波長591 nm附近出現陡峭之強發光峰之光。

【0052】

發光裝置較佳為包含與第一螢光體之發光峰波長不同之第二螢光體。例如，發光裝置藉由適當具備發光元件，被其激發、於波長591 nm附近具有發光强度高之陡峭發光峰之第一螢光體，及發射之波長區域不同之第二螢光體，可發射範圍廣泛之波長區域之光。

【0053】

作為第二螢光體，只要為吸收來自發光元件之光且波長轉換為不同波長之光者即可。例如較佳為選自主要利用Eu、Ce等鐳系元素活化之氮化物系螢光體、氮氧化物系螢光體、矽鋁氮氧化物系螢光體，主要藉由Eu等鐳系、Mn等過渡金屬系元素活化之鹼土類鹵素磷灰石螢光體、鹼土金屬硼酸鹵素螢光體、鹼土金屬鋁酸鹽螢光體、鹼土類矽酸鹽、鹼土類硫化物、鹼土類硫代鎳酸鹽、鹼土類氮化矽、鎳酸鹽，或主要利用Ce等鐳系元素活化之稀土類鋁酸鹽、稀土類矽酸鹽或主要利用Eu等鐳系元素活化之有機及有機錯合物等中之至少任一者以上。該等螢光體藉由單獨或者組合兩種以上與第一實施形態之螢光體一起使用，除白色以外，可實現藍色、綠色、黃色、紅色等、或作為該等之中間色之藍綠色、黃綠色、橙色等色調。

【0054】

第一實施形態之螢光體視需要可與第二螢光體及密封樹脂一起構成被覆發光元件之螢光構件。作為構成螢光構件之樹脂，可列舉包含改性聚矽氧樹脂之聚矽氧樹脂、環氧樹脂等熱硬化性樹脂。

【0055】

螢光構件除樹脂及螢光體以外，亦可進而包含填料、光擴散材等。例如藉由包含光擴散材，可使來自發光元件之指向性緩和，增大視野角。作為填料，例如可列舉二氧化矽、氧化鈦、氧化鋅、氧化鋯、氧化鋁等。

【0056】

第二實施形態之發光裝置可用於照明裝置、防盜裝置。

第一實施形態之螢光體除第二實施形態之發光裝置以外，可用於藉由雷射激發而發紅光之發光裝置。

[實施例]**【0057】**

以下藉由實施例及比較例具體地說明本發明。本發明並不限定於該等實施例。

【0058】**實施例1**

作為原料，稱量 Y_2O_3 49.60 g、 Tb_4O_7 274.95 g、 CeO_2 0.66 g、 Eu_2O_3 0.67 g、 Al_2O_3 89.66 g、 Ga_2O_3 134.78 g。於該原料中，添加 BaF_2 22.00 g作為助焊劑。

對該等原料，藉由球磨機進行1小時乾式混合，獲得原料混合物。

將所獲得之原料混合物填充至氧化鋁坩堝中，於 1500°C 下進行10小時熱處理。熱處理於包含具有還原性之氫氣之氮氣氛圍中進行。

使所獲得之熱處理物通過篩，獲得具有 $(\text{Y}_{0.229}\text{Tb}_{0.768}\text{Ce}_{0.001}\text{Eu}_{0.002})_3(\text{Al}_{0.55}\text{Ga}_{0.45})_5\text{O}_{12}$ 所表示之組成之螢光體。

【0059】

實施例2

作為原料，稱量 Y_2O_3 49.57 g、 Tb_4O_7 274.79 g、 CeO_2 0.66 g、 Eu_2O_3 0.67 g、 Al_2O_3 89.61 g、 Ga_2O_3 134.70 g，使用該等原料，除此以外，以與實施例1相同之方式，獲得具有 $(\text{Y}_{0.229}\text{Tb}_{0.767}\text{Ce}_{0.002}\text{Eu}_{0.002})_3(\text{Al}_{0.55}\text{Ga}_{0.45})_5\text{O}_{12}$ 所表示之組成之螢光體。

【0060】

實施例3

作為原料，稱量 La_2O_3 68.78 g、 Tb_4O_7 264.24 g、 CeO_2 0.63 g、 Eu_2O_3 0.65 g、 Al_2O_3 86.17 g、 Ga_2O_3 129.53 g，使用該等原料，除此以外，以與實施例1相同之方式，獲得具有 $(\text{La}_{0.229}\text{Tb}_{0.767}\text{Ce}_{0.002}\text{Eu}_{0.002})_3(\text{Al}_{0.55}\text{Ga}_{0.45})_5\text{O}_{12}$ 所表示之組成之螢光體。

【0061】

實施例4

作為原料，稱量 Y_2O_3 105.21 g、 Tb_4O_7 196.45 g、 CeO_2 0.69 g、 Eu_2O_3 0.70 g、 Al_2O_3 98.65 g、 Ga_2O_3 148.30 g，使用該等原料，除此以外，以與實施例1相同之方式，獲得具有 $(\text{Y}_{0.468}\text{Tb}_{0.528}\text{Ce}_{0.002}\text{Eu}_{0.002})_3(\text{Al}_{0.55}\text{Ga}_{0.45})_5\text{O}_{12}$ 所表示之組成之螢光體。

【0062】

實施例5

作為原料，稱量 Y_2O_3 52.64 g、 Tb_4O_7 291.76 g、 CeO_2 2.11 g、 Eu_2O_3 0.72 g、 Al_2O_3 138.95 g、 Ga_2O_3 63.82 g，使用該等原料，除此以外，以與實施例1相同之方式，獲得具有 $(\text{Y}_{0.228}\text{Tb}_{0.764}\text{Ce}_{0.006}\text{Eu}_{0.002})_3(\text{Al}_{0.8}\text{Ga}_{0.2})_5\text{O}_{12}$ 所表示之組成之螢光體。

【0063】

比較例1

作為原料，稱量 Y_2O_3 230.50 g、 Gd_2O_3 93.92 g、 CeO_2 5.35 g、 Al_2O_3 220.23 g。於該原料中，添加 BaF_2 22.00 g作為助焊劑。

對該等原料，藉由球磨機進行1小時乾式混合，獲得原料混合物。

將所獲得之原料混合物填充至氧化鋁坩堝中，於 1450°C 下進行10小時熱處理。熱處理於包含具有還原性之氫氣之氮氣氛圍中進行。

使所獲得之熱處理物通過篩，獲得具有 $(\text{Y}_{0.788}\text{Gd}_{0.2}\text{Ce}_{0.012})_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 所表示之組成之螢光體。

【0064】

比較例2

作為原料，稱量 Y_2O_3 293.48 g、 CeO_2 8.01 g、 Eu_2O_3 15.89 g、 Al_2O_3 232.60 g，使用該等原料，除此以外，以與實施例1相同之方式，獲得具有 $(\text{Y}_{0.95}\text{Ce}_{0.017}\text{Eu}_{0.033})_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 所表示之組成之螢光體。

【0065】

比較例3

作為原料，稱量 Tb_4O_7 349.01 g、 CeO_2 3.49 g、 Eu_2O_3 25.00 g、 Al_2O_3 172.50 g，使用該等原料，除此以外，以與實施例1相同之方式，獲得具有 $(\text{Tb}_{0.92}\text{Ce}_{0.01}\text{Eu}_{0.07})_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 所表示之組成之螢光體。

【0066】

比較例4

作為原料，稱量 Y_2O_3 227.58 g、 Tb_4O_7 52.06 g、 CeO_2 1.21 g、 Eu_2O_3 1.23 g、 Al_2O_3 119.08 g、 Ga_2O_3 145.85 g，使用該等原料，除此以

外，以與實施例1相同之方式，獲得具有 $(Y_{0.875}Tb_{0.119}Ce_{0.003}Eu_{0.003})_3(Al_{0.6}Ga_{0.4})_5O_{12}$ 所表示之組成之螢光體。

【0067】

對實施例1至5及比較例1至4之螢光體，藉由以下方法測定組成分析、相對發光強度及發光色度。

【0068】

組成分析

藉由鹼熔融法、與利用ICP發光分光分析裝置(OPTIMA，Perkin Elmer公司製造)之測定而進行。

【0069】

相對發光強度(%)

對各實施例及比較例之螢光體，照射激發波長450 nm之光，使用螢光分光測光器(大塚電子股份有限公司製造，QE-2000)，於室溫($25^{\circ}C \pm 5^{\circ}C$)下，測定相對於波長之相對發光強度(PL Intensity)(%)。對實施例及比較例之螢光體，於450 nm至650 nm之波長範圍內，將發光強度成為最大之波長設為發光峰波長(nm)，將比較例1之發光峰波長之發光強度設為100%，將各實施例及比較例之發光峰波長之發光強度以相對發光強度(%)之形式表示。將結果示於表1。圖1表示實施例1及比較例1之發光光譜。圖7表示比較例1至4之發光光譜。

【0070】

CIE1931系之色度座標中之色度(x、y)

對實施例及比較例之螢光體，使用量子效率測定裝置(大塚電子股份有限公司製造，QE-2000)，測定CIE1931系之色度座標中之色度x、y。

將結果示於表1。

【0071】

激發光譜之測定

對實施例1及比較例1至4之螢光體，使用螢光分光光度計(Hitachi High-Technologies公司製造，F-4500)，於各螢光體各自之發光峰波長、於室溫(25℃±5℃)下於250 nm以上且510 nm以下之範圍測定激發光譜。將各螢光體各自之光譜之最大強度設為100%，製成激發光譜圖案。圖2表示實施例1及比較例1之激發光譜。圖8表示比較例1至4之激發光譜。

【0072】

[表1]

表1

	螢光體組成	發光峰 波長 (nm)	相對發光 強度 (%)	色度	
				x	y
實施例1	(Y _{0.229} Tb _{0.768} Ce _{0.001} Eu _{0.002}) ₃ (Al _{0.55} Ga _{0.45}) ₅ O ₁₂	591	273	0.576	0.419
實施例2	(Y _{0.229} Tb _{0.767} Ce _{0.002} Eu _{0.002}) ₃ (Al _{0.55} Ga _{0.45}) ₅ O ₁₂	591	247	0.554	0.438
實施例3	(La _{0.229} Tb _{0.767} Ce _{0.002} Eu _{0.002}) ₃ (Al _{0.55} Ga _{0.45}) ₅ O ₁₂	591	236	0.553	0.439
實施例4	(Y _{0.468} Tb _{0.528} Ce _{0.002} Eu _{0.002}) ₃ (Al _{0.55} Ga _{0.45}) ₅ O ₁₂	591	213	0.486	0.498
實施例5	(Y _{0.228} Tb _{0.764} Ce _{0.006} Eu _{0.002}) ₃ (Al _{0.8} Ga _{0.2}) ₅ O ₁₂	591	110	0.454	0.522
比較例1	(Y _{0.788} Gd _{0.2} Ce _{0.012}) ₃ Al ₅ O ₁₂	562	100	0.463	0.522
比較例2	(Y _{0.95} Ce _{0.017} Eu _{0.033}) ₃ Al ₅ O ₁₂	538	12	0.425	0.556
比較例3	(Tb _{0.92} Ce _{0.01} Eu _{0.07}) ₃ Al ₅ O ₁₂	-	-	-	-
比較例4	(Y _{0.875} Tb _{0.119} Ce _{0.003} Eu _{0.003}) ₃ (Al _{0.6} Ga _{0.4}) ₅ O ₁₂	543	76	0.345	0.561

【0073】

如表1所示，實施例1至5之螢光體藉由包含Tb、Ce、Eu三種鐳元素，構成石榴石型之晶體結構之稀土類元素Ln之一部分與Tb、Ce及Eu三種鐳元素置換，藉由來自激發光源之光，於發光光譜中於波長591 nm附近出現強發光峰，具有較高之相對發光強度。又，實施例1至5之螢光體藉由來自激發光源之光，顯示CIE1931系之色度座標之色度x、y為0.450≤x

≤ 0.580 、 $0.410 \leq y \leq 0.530$ 之範圍之發光色。實施例1至3之螢光體顯示紅色成分較強之發光色。實施例4及實施例5之螢光體顯示黃色調稍強之橙色之發光色。

【0074】

比較例1之螢光體之CIE1931系之色度座標之 x 為0.463、 y 為0.522，顯示黃色之發光色。又，比較例2之螢光體係波長538 nm之相對發光強度非常低為12%，顯示黃色之發光色。比較例3之螢光體幾乎不發光，無法測定相對發光強度及色度。比較例4之螢光體係波長543 nm之相對發光強度較低為76%，顯示黃綠色至黃色之發光色。

【0075】

如圖1所示，實施例1之螢光體於發光光譜中於波長591 nm附近出現陡峭之強發光峰。另一方面，比較例1之螢光體於波長562 nm附近具有峰頂，出現遍及480 nm以上且750 nm以下之範圍之寬發光峰。

【0076】

如圖2所示，可確認實施例1之螢光體於400 nm以上且480 nm以下、更具體而言420 nm以上且460 nm以下之波長範圍內相對強度為80%以上，有效率地吸收發光峰波長為380 nm以上且485 nm以下之來自激發光源之光，激發而發光強度變高。又，如圖2所示，比較例1之螢光體亦於400 nm以上且480 nm以下、更具體而言430 nm以上且480 nm以下之波長範圍內相對強度為80%以上，吸收發光峰波長為380 nm以上且485 nm以下之來自激發光源之光。

【0077】

實施例6至10及比較例5

作為原料，使用 Y_2O_3 、 Tb_4O_7 、 CeO_2 、 Eu_2O_3 、 Al_2O_3 、 Ga_2O_3 ，並以變數a、變數b、變數c及變數d成為表2所示之值之方式稱量各原料，使用該等原料，除此以外，以與實施例1相同之方式，獲得具有稀土類鋁鎵酸鹽之組成之石榴石結構之螢光體。表2中之變數b與變數c之值係表2中之數值乘以 10^{-2} 而得之值。以與實施例1相同之方式測定實施例6至10及比較例5之螢光體之發光光譜及峰波長591 nm之相對發光強度(%)。將實施例2、實施例6至10及比較例5之結果示於表2。圖3係表示相對於各螢光體之組成之變數a的各螢光體之峰波長591 nm之相對發光強度(%)的圖表。

【0078】

[表2]
表2

	Tb	Ce	Eu	Ga	峰波長 591 nm
	變數a	變數b ($\times 10^{-2}$)	變數c ($\times 10^{-2}$)	變數d	相對發光強度 (%)
比較例5	0.120	0.200	0.200	0.450	48
實施例6	0.269				85
實施例7	0.418				161
實施例8	0.528				213
實施例9	0.647				247
實施例2	0.767				247
實施例10	0.996				131

【0079】

如表2及圖3所示，於螢光體之稀土類鋁鎵酸鹽之組成中，於以Al與Ga之合計莫耳比5為基準時，於稀土類元素Ln、Tb、Ce、與Eu之合計莫耳比為3，且Tb之莫耳比為3與變數a之積之情形時，若變數a為0.25以上且未達1，則波長591 nm附近之發光強度變高。如實施例2及實施例7至9所示，若變數a為0.350以上且0.995以下，則波長591 nm附近之相對發光強度變得更高為150%以上。另一方面，如比較例5所示，若變數a未達

0.25，則波長591 nm附近之相對發光強度變得非常低，未達50%。

【0080】

實施例11至18及比較例6至8

作為原料，使用 Y_2O_3 、 Tb_4O_7 、 CeO_2 、 Eu_2O_3 、 Al_2O_3 、 Ga_2O_3 ，並以變數a、變數b、變數c及變數d成為表3所示之值之方式稱量各原料，使用該等原料，除此以外，以與實施例1相同之方式，獲得具有稀土類鋁鎵酸鹽之組成之石榴石結構之螢光體。表3中之變數b與變數c之值係表3中之數值乘以 10^{-2} 而得之值。以與實施例1相同之方式測定實施例11至18及比較例6至8之螢光體之發光光譜及峰波長591 nm之相對發光強度(%)。將實施例2、實施例11至18及比較例6至8之結果示於表3。圖4係表示相對於各螢光體之組成之變數b的各螢光體之峰波長591 nm之相對發光強度(%)的圖表。

【0081】

[表3]

表3

	Tb	Ce	Eu	Ga	峰波長 591 nm
	變數a	變數b ($\times 10^{-2}$)	變數c ($\times 10^{-2}$)	變數d	相對發光強度 (%)
比較例6	0.767	0.003	0.200	0.450	32
比較例7		0.007			100
實施例11		0.010			130
實施例12		0.050			240
實施例13		0.100			273
實施例14		0.150			256
實施例2		0.200			247
實施例15		0.400			195
實施例16		0.600			151
實施例17		0.900			118
實施例18		1.200			100
比較例8		2.400			90

【0082】

如表3及圖4所示，於螢光體之稀土類鋁鎳酸鹽之組成中，於以Al與Ga之合計莫耳比5為基準時，於稀土類元素Ln、Tb、Ce、與Eu之合計莫耳比為3，且Ce之莫耳比為3與變數b之積之情形時，若變數b為 0.008×10^{-2} 以上且 1.5×10^{-2} 以下，較佳為 0.01×10^{-2} 以上且 0.95×10^{-2} 以下，更佳為 0.015×10^{-2} 以上且 0.7×10^{-2} 以下，則波長591 nm附近之發光強度變高。另一方面，若如比較例6至7所示，變數b未達 0.008×10^{-2} ，或如比較例8所示，變數b超過 1.5×10^{-2} ，則波長591 nm附近之相對發光強度變低，為100%以下。

【0083】

實施例19至25及比較例9至10

作為原料，使用 Y_2O_3 、 Tb_4O_7 、 CeO_2 、 Eu_2O_3 、 Al_2O_3 、 Ga_2O_3 ，以變數a、變數b、變數c及變數d成為表4所示之值之方式稱量各原料，使用該等原料，除此以外，以與實施例1相同之方式，獲得具有稀土類鋁鎳酸鹽之組成之石榴石結構之螢光體。表4中之變數b與變數c之值係表4中之數值乘以 10^{-2} 而得之值。以與實施例1相同之方式測定實施例19至25及比較例9至10之螢光體之發光光譜及峰波長591 nm之相對發光強度(%)。將實施例2、實施例19至25及比較例9至10之結果示於表4。圖5係表示相對於各螢光體之組成之變數c的各螢光體之峰波長591 nm之相對發光強度(%)的圖表。

【0084】

[表4]
表4

	Tb	Ce	Eu	Ga	峰波長 591 nm
	變數a	變數b ($\times 10^{-2}$)	變數c ($\times 10^{-2}$)	變數d	相對發光強 度 (%)
比較例9	0.767	0.200	0.010	0.450	50
實施例19			0.015		100
實施例20			0.025		156
實施例21			0.050		216
實施例22			0.100		245
實施例2			0.200		247
實施例23			0.300		246
實施例24			0.800		185
實施例25			1.600		109
比較例10			3.000		36

【0085】

如表4及圖5所示，於螢光體之稀土類鋁鎳酸鹽之組成中，於以Al與Ga之合計莫耳比5為基準時，於稀土類元素Ln、Tb、Ce、與Eu之合計莫耳比為3，且Eu之莫耳比為3與變數c之積之情形時，若變數c為 0.012×10^{-2} 以上且 2×10^{-2} 以下，較佳為 0.014×10^{-2} 以上且 1.6×10^{-2} 以下，更佳為 0.02×10^{-2} 以上且 1.2×10^{-2} 以下，則波長591 nm附近之發光強度變高。另一方面，若如比較例9所示，變數c未達 0.012×10^{-2} ，或如比較例10所示，變數b超過 2×10^{-2} ，則波長591 nm附近之相對發光強度變得非常低，為50%以下。

【0086】

實施例26至32及比較例11

作為原料，使用Y₂O₃、Tb₄O₇、CeO₂、Eu₂O₃、Al₂O₃、Ga₂O₃，以變數a、變數b、變數c及變數d成為表5所示之值之方式稱量各原料，使用該等原料，除此以外，以與實施例1相同之方式，獲得具有稀土類鋁鎳酸

鹽之組成之石榴石結構之螢光體。表5中之變數b與變數c之值係表5中之數值乘以 10^{-2} 而得之值。以與實施例1相同之方式測定實施例26至32及比較例11之螢光體之發光光譜及峰波長591 nm之相對發光強度(%)。將實施例5、實施例26至32及比較例11之結果示於表5。圖6係表示相對於各螢光體之組成之變數d的各螢光體之峰波長591 nm之相對發光強度(%)的圖表。

【0087】

[表5]
表5

	Tb	Ce	Eu	Ga	峰波長 591 nm
	變數a	變數b ($\times 10^{-2}$)	變數c ($\times 10^{-2}$)	變數d	相對發光強度 (%)
實施例26	0.764	0.600	0.200	0.000	102
實施例27				0.150	104
實施例5				0.200	110
實施例28				0.350	134
實施例29				0.400	140
實施例30				0.450	151
實施例31				0.600	140
實施例32				0.800	100
比較例11				1.000	40

【0088】

如表5及圖6所示，於螢光體之稀土類鋁鎳酸鹽之組成中，於以Al與Ga之合計莫耳比5為基準時，稀土類元素Ln、Tb、Ce、與Eu之合計莫耳比為3，於Ga之莫耳比為5與變數d之積之情形時，若變數d為0以上且0.85以下，較佳為0.1以上且0.8以下，更佳為0.15以上且0.75以下，則波長591 nm附近之發光強度變高。另一方面，若如比較例11所示，變數d超過0.85，則波長591 nm附近之相對發光強度變得非常低，為50%以下。

【0089】

如圖7所示，比較例2之螢光體係波長538 nm之相對發光強度非常低為12%，發光峰亦為波長500 nm以上且650 nm以下之廣範圍之寬峰。又，比較例3之螢光體係於波長591 nm附近出現非常低之峰，但相對發光強度未達5%，幾乎不發光。比較例4之螢光體係於螢光體之稀土類鋁鎵酸鹽之組成中，於以Al與Ga之合計莫耳比5為基準時，於稀土類元素Ln、Tb、Ce、與Eu之合計莫耳比為3，且Tb之莫耳比為3與變數a之積之情形時，變數a未達0.25，於450 nm至650 nm之波長範圍內，發光強度成為最大之峰波長為543 nm，峰波長543 nm之相對發光強度為76%，與實施例1至5之螢光體相比，發光強度變低。

【0090】

如圖8所示，比較例1至4之螢光體均於400 nm以上且480 nm以下之波長範圍內具有相對強度為80%以上之波長範圍，有效率地吸收發光峰波長為380 nm以上且485 nm以下之來自激發光源之光，但如圖7所示，相對發光強度較低。

[產業上之可利用性]

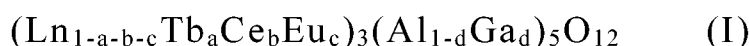
【0091】

根據本發明之一態樣，可提供一種發光強度較高之具有稀土類鋁鎵酸鹽之組成之螢光體及使用其之發光裝置，該發光裝置可用於照明裝置、防盜裝置中之感測系統。

【發明申請專利範圍】

【第1項】

一種具有下述式(I)所表示之組成之螢光體，



式(I)中，Ln為選自由Y、Gd、La、Lu、Sc及Sm所組成之群中之至少一種稀土類元素，變數a、b、c及d分別為滿足 $0.3 \leq a < 1$ 、 $0.01 \times 10^{-2} \leq b \leq 0.95 \times 10^{-2}$ 、 $0.014 \times 10^{-2} \leq c \leq 1.6 \times 10^{-2}$ 、 $0.1 \leq d \leq 0.8$ 之數。

【第2項】

如請求項1之螢光體，其中上述變數a為0.35以上且未達1，上述變數b為 0.015×10^{-2} 以上且 0.7×10^{-2} 以下，上述變數c為 0.02×10^{-2} 以上且 1.2×10^{-2} 以下，上述變數d為0.15以上且0.75以下。

【第3項】

如請求項1或2之螢光體，其中上述稀土類元素Ln為選自由Y、Gd、La、Lu及Sc所組成之群中之至少一種。

【第4項】

如請求項1或2之螢光體，其中上述螢光體之發光色之色度為於CIE1931系之色度座標中，處於 $0.420 \leq x \leq 0.600$ 、 $0.300 \leq y \leq 0.530$ 之範圍。

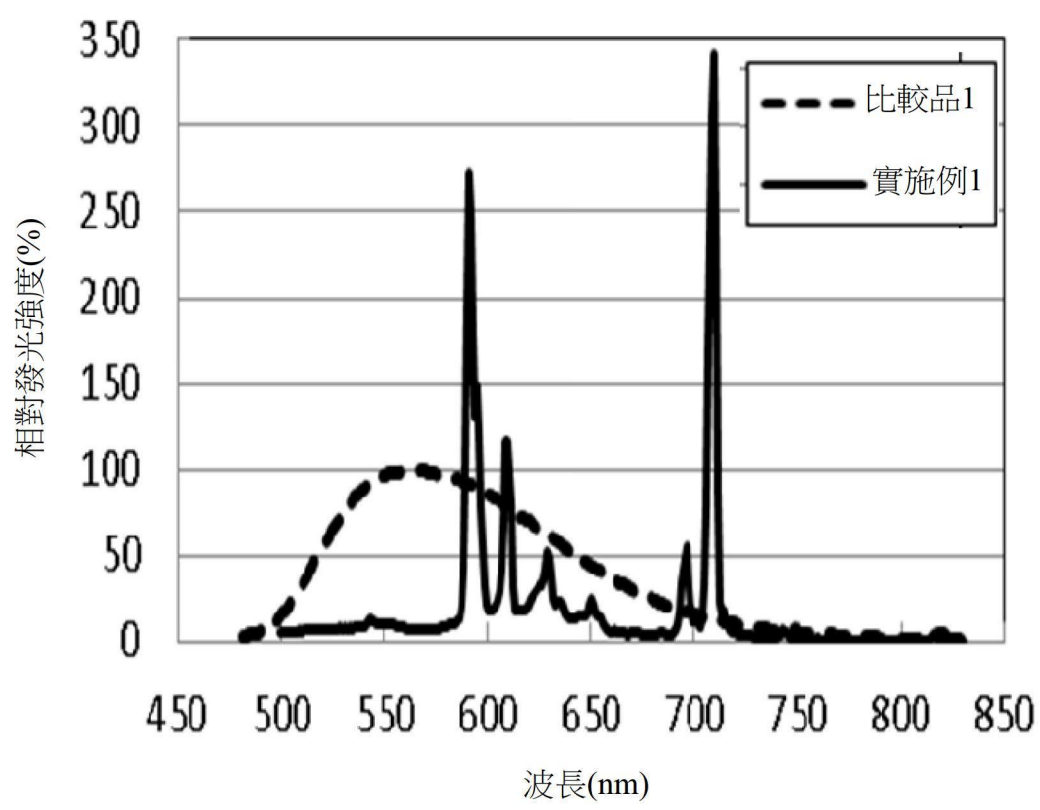
【第5項】

如請求項3之螢光體，其中上述螢光體之發光色之色度為於CIE1931系之色度座標中，處於 $0.420 \leq x \leq 0.600$ 、 $0.300 \leq y \leq 0.530$ 之範圍。

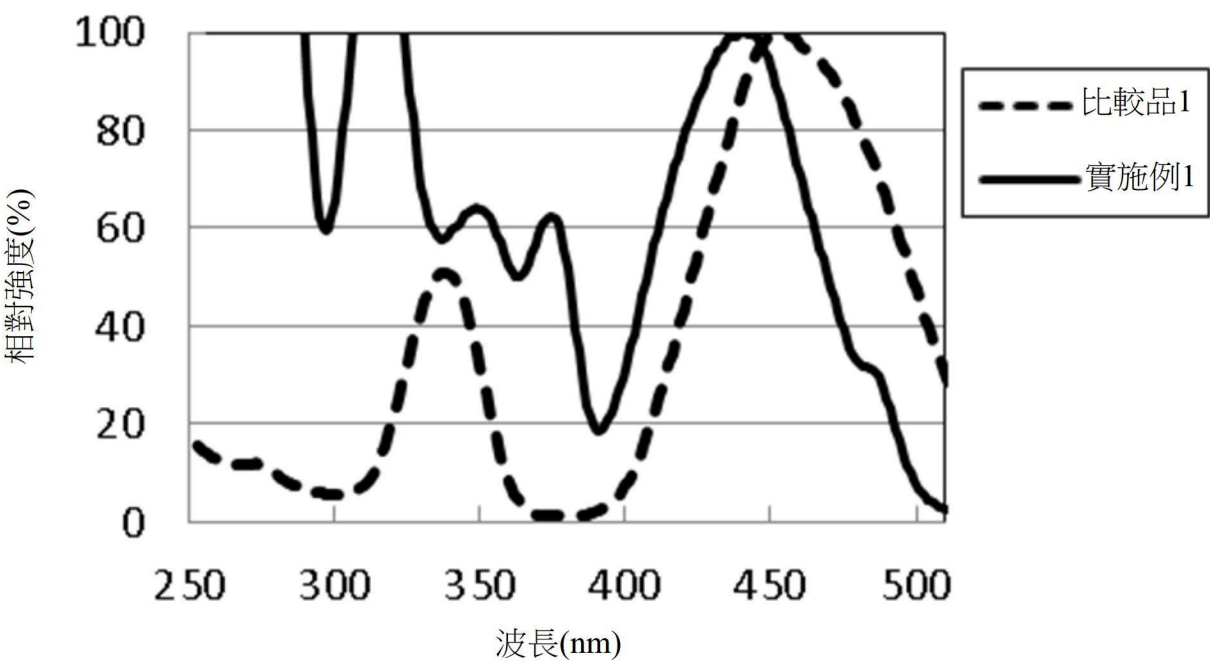
【第6項】

一種發光裝置，其包含上述如請求項1至5中任一項之螢光體；及於380 nm以上且485 nm以下之範圍內具有發光峰波長之激發光源。

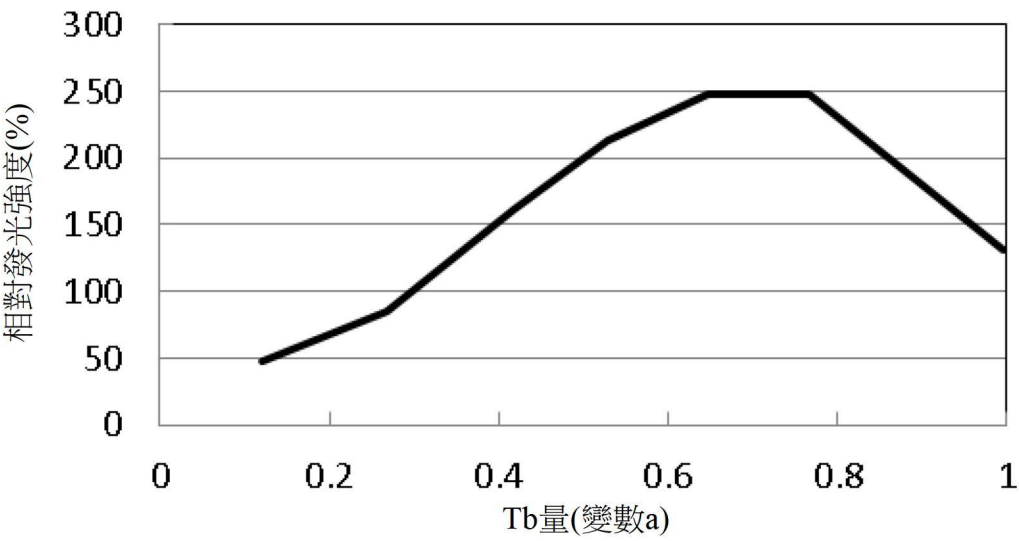
【發明圖式】



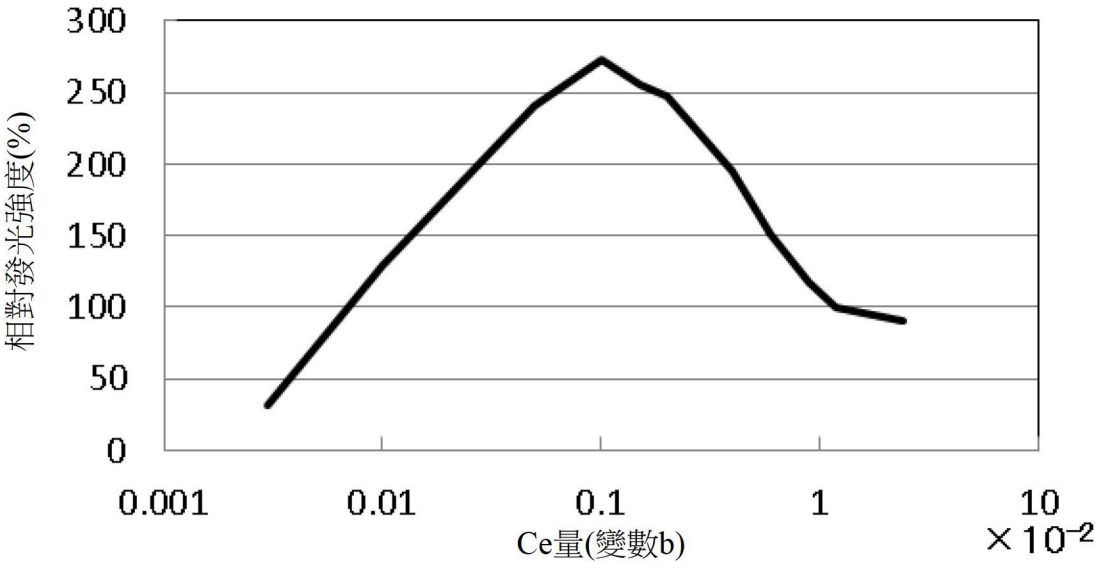
【圖1】



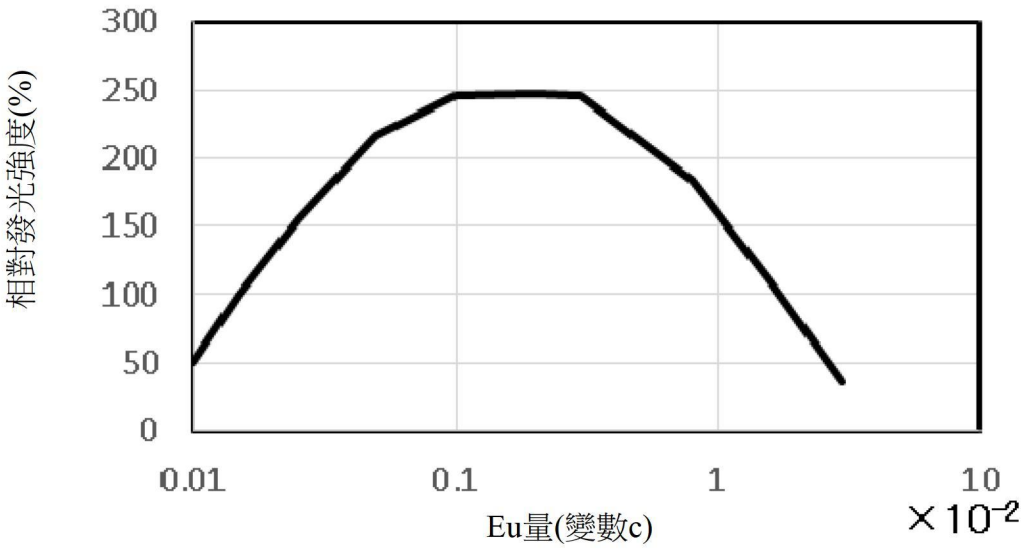
【圖2】



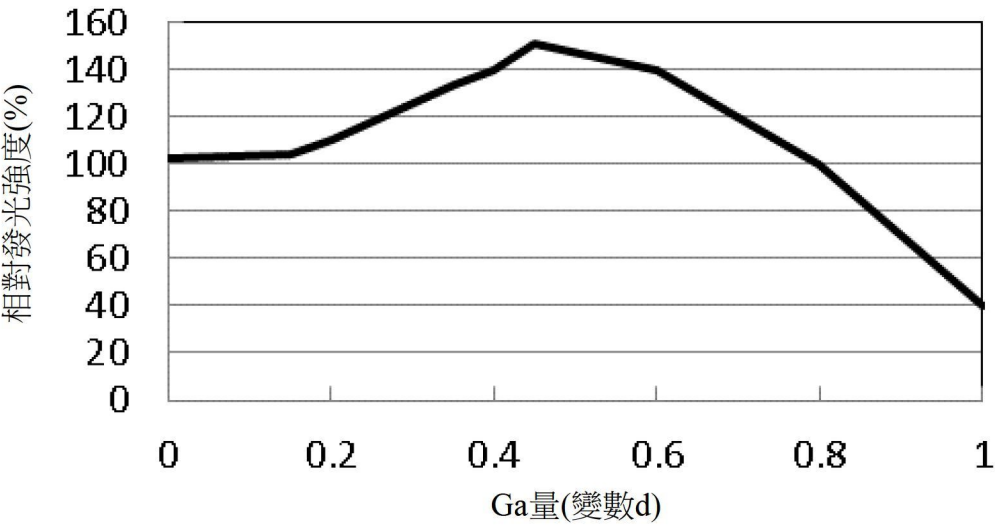
【圖3】



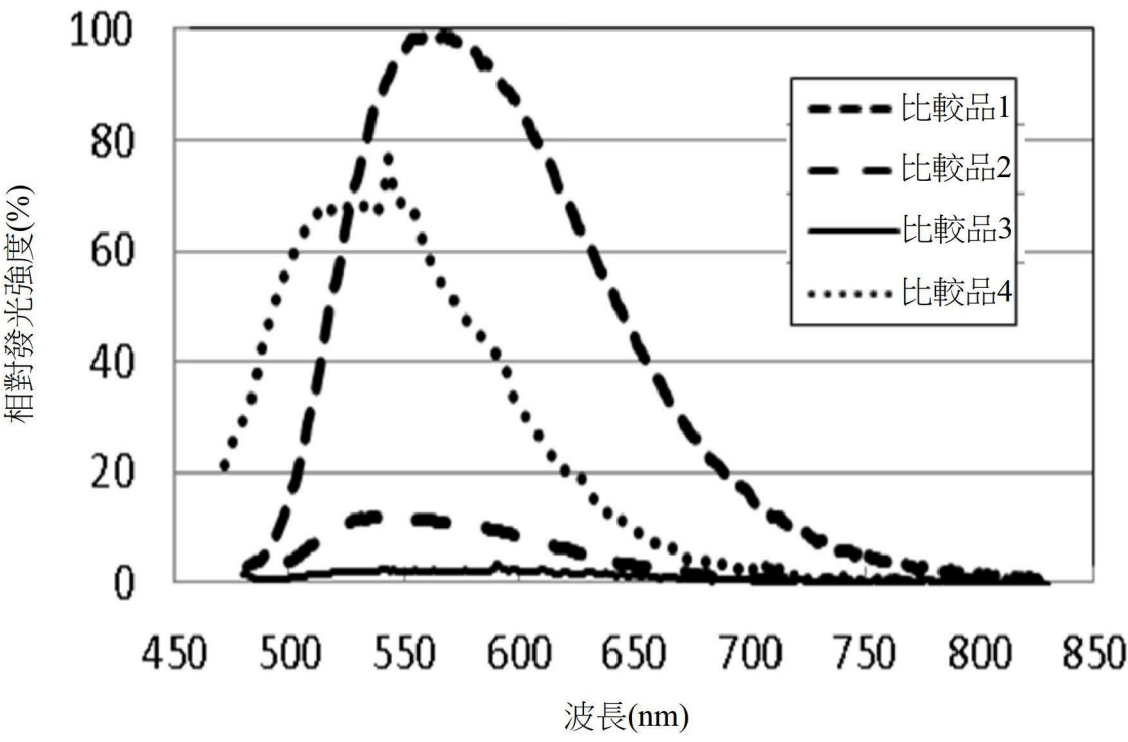
【圖4】



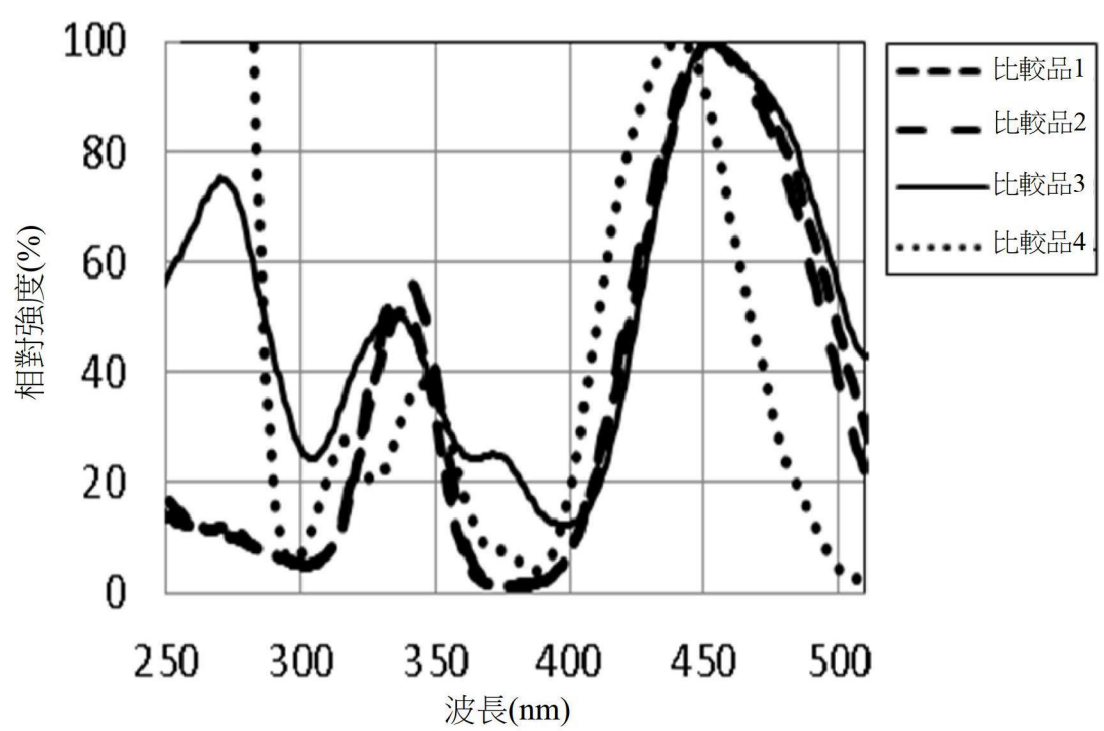
【圖5】



【圖6】



【圖7】



【圖8】