



(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 201502246 A

(43) 公開日：中華民國 104 (2015) 年 01 月 16 日

(21) 申請案號：103118405

(22) 申請日：中華民國 103 (2014) 年 05 月 27 日

(51) Int. Cl. : C09K11/80 (2006.01)

C04B35/626 (2006.01)

H01L33/50 (2010.01)

(30) 優先權：2013/05/28 日本

2013-111633

(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：隅野真央 SUMINO, MAO (JP)；酒井拓馬 SAKAI, TAKUMA (JP)；岩下和樹
IWASHITA, KAZUKI (JP)；藤永昌孝 FUJINAGA, MASATAKA (JP)；治田慎輔
JIDA, SHINSUKE (JP)

(74) 代理人：惲軼群；陳文郎

申請實體審查：無 申請專利範圍項數：6 項 圖式數：5 共 35 頁

(54) 名稱

氮氧化物螢光體粉末

(57) 摘要

本發明提供一種氮氧化物螢光體粉末，其係具有 565 至 577nm 之主波長的 α 型矽鋁氮氧化物系螢光體，且具有具實用性之高螢光強度及外部量子效率。本發明之氮氧化物螢光體粉末係由組成式： $\text{Ca}_{x1}\text{Eu}_{x2}\text{Yb}_{x3}\text{Si}_{12-(y+z)}\text{Al}_{(y+z)}\text{O}_z\text{N}_{16-z}$ (惟，式中， $0.0 < x1 \leq 2.0$ ， $0.0000 < x2 \leq 0.0100$ ， $0.0000 < x3 \leq 0.0100$ ， $0.4 \leq x2/x3 \leq 1.4$ ， $1.0 \leq y \leq 4.0$ ， $0.5 \leq z \leq 2.0$) 所示之 α 型矽鋁氮氧化物構成。

201502246

發明摘要

※ 申請案號：103118405

※ 申請日：103.5.27

※ IPC 分類：

C04B 35/46 (1.0.0)

C04B 35/46 (1.0.0)

H01L 33/08 (1.0.0)

【發明名稱】(中文/英文)

氮氧化物螢光體粉末

【中文】

本發明提供一種氮氧化物螢光體粉末，其係具有565至577nm之主波長的 α 型矽鋁氮氧化物系螢光體，且具有具實用性之高螢光強度及外部量子效率。本發明之氮氧化物螢光體粉末係由組成式： $\text{Ca}_{x1}\text{Eu}_{x2}\text{Yb}_{x3}\text{Si}_{12-(y+z)}\text{Al}_{(y+z)}\text{O}_z\text{N}_{16-z}$ (惟，式中， $0.0 < x1 \leq 2.0$ ， $0.0000 < x2 \leq 0.0100$ ， $0.0000 < x3 \leq 0.0100$ ， $0.4 \leq x2/x3 \leq 1.4$ ， $1.0 \leq y \leq 4.0$ ， $0.5 \leq z \leq 2.0$)所示之 α 型矽鋁氮氧化物構成。

【英文】

【代表圖】

【本案指定代表圖】：第（ ）圖。(無)

【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)

氮氧化物螢光體粉末

【技術領域】

技術領域

[0001]本發明係有關於一種適合由紫外至藍色光源之由藉稀土類金屬元素激發之 α 型矽鋁氮氧化物構成的氮氧化物螢光體粉末。具體而言，本發明係有關於一種螢光主波長在565至577nm之範圍內，顯示實用之螢光強度之氮氧化物螢光體粉末。

【先前技術】

背景技術

[0002]近年來，藉由實用化藍色發光二極體(LED)，活躍地進行利用該藍色LED之白色LED的開發。與現有白色光源比較，白色LED之消耗電力低、壽命長，因此進行對液晶面板用背光、室內外照明機品等之用途發展。

[0003]現在，所開發之白色LED係在藍色LED表面上塗布摻雜Ce之YAG(鈹鋁石榴石)。摻雜Ce之YAG之螢光峰波長係在560nm附近，且顯示主波長570nm附近之螢光光譜。但是，被Ce激活之YAG螢光體具有螢光強度隨著溫度上升而劣化，即溫度特性惡化之問題。

[0004]對此，研究許多氮氧化物螢光體，特別是，被

Eu激活之 α 型矽鋁氮氧化物螢光體具有優異之溫度特性，且產生大約580至590nm之螢光峰波長的(黃至橙色)螢光是已知的(參照專利文獻1)。

[0005]除了被Eu激活之 α 型矽鋁氮氧化物螢光體以外，被Ce激活之Ca- α 型矽鋁氮氧化物發射藍色至綠色之螢光是已知的(參照專利文獻2及3)，又，被Pr激活之Ca- α 型矽鋁氮氧化物具有大約450至750nm之螢光峰是已知的(參照專利文獻4)。又，已知的是被Yb激活之Ca- α 型矽鋁氮氧化物顯示螢光峰波長550nm左右之綠色光(參照專利文獻5)，被Eu與Dy共激活之Ca- α 型矽鋁氮氧化物顯示螢光峰波長580nm左右之黃色光(參照專利文獻4)。

[0006]但是，專利文獻2及3記載之Ce激活Ca- α 型矽鋁氮氧化物藉450nm之激發光激發時的效率非常差，又，專利文獻4記載之Pr激活Ca- α 型矽鋁氮氧化物在450nm附近不存在激發帶，難以使用藍色LED得到效率良好之螢光。

[0007]如以上所述，未揭示具有發射與被Ce激活之YAG螢光體同程度之黃光的 α 型矽鋁氮氧化物之具體例。

先前技術文獻

專利文獻

[0008]專利文獻1：日本特開2012-36408號公報

專利文獻2：日本特開2010-275437號公報

專利文獻3：日本特開2003-203504號公報

專利文獻4：日本特開2002-363554號公報

專利文獻5：日本特開2003-336059號公報

【發明內容】

發明概要

發明欲解決之課題

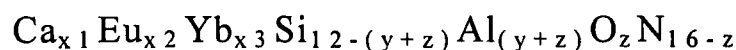
[0009]雖然需要藉由與藍色LED組合顯示疑似白色之黃色螢光體，且具有良好溫度特性之螢光體，但是，如上所述，仍不知道主波長為570nm左右，且螢光溫度特性良好之 α 型矽鋁氮氧化物系螢光體。

[0010]本發明之目的在於提供一種具有565至577nm之主波長之 α 型矽鋁氮氧化物系螢光體，且具有具實用性之高螢光強度及外部量子效率的氮氧化物螢光體粉末。

用以解決課題之手段

[0011]本發明人為解決上述問題專心檢討，結果發現得到一種氮氧化物螢光體粉末，係由下列組成式所示之 α 型矽鋁氮氧化物構成，該氮氧化物螢光體粉末藉由被450nm之波長之光激發，顯示主波長為由565nm至577nm之黃光，並且具有高螢光強度及外部量子效率，

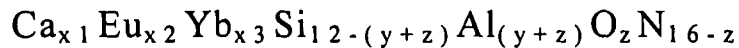
組成式：



(惟，式中， $0.0 < x_1 \leq 2.0$ ， $0.0000 < x_2 \leq 0.0100$ ， $0.0000 < x_3 \leq 0.0100$ ， $0.4 \leq x_2/x_3 \leq 1.4$ ， $1.0 \leq y \leq 4.0$ ， $0.5 \leq z \leq 2.0$)，從而完成本發明。

[0012]即，本發明係有關於一種氮氧化物螢光體粉末，其係由下列組成式所示之 α 型矽鋁氮氧化物構成，

組成式：



(惟，式中， $0.0 < x_1 \leq 2.0$ ， $0.0000 < x_2 \leq 0.0100$ ， $0.0000 < x_3 \leq 0.0100$ ， $0.4 \leq x_2/x_3 \leq 1.4$ ， $1.0 \leq y \leq 4.0$ ， $0.5 \leq z \leq 2.0$)。

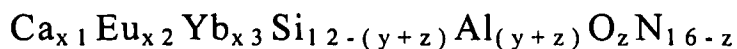
[0013]特別有關於，在前述組成式中，前述 x_1 、 x_2 、 x_3 、 y 及 z 係 $0.9 < x_1 \leq 1.5$ ， $0.0035 \leq x_2 \leq 0.0060$ ， $0.0040 \leq x_3 \leq 0.0080$ ， $0.6 \leq x_2/x_3 \leq 1.1$ ， $2.0 \leq y \leq 3.0$ ， $1.0 \leq z \leq 1.5$ 之氮氧化物螢光體粉末。

[0014]又，本發明係有關於藉由被450nm之波長之光激發，發射主波長在由565nm至577nm之波長區域的螢光，且外部量子效率係41%以上的氮氧化物螢光體粉末。

[0015]又，本發明係有關於一種氮氧化物螢光體粉末之製造方法，其特徵在於包含：

第一步驟，係將矽源、鋁源、鈣源、鎔源及鎳源混合成下列組成式所示之組成，且在惰性氣體環境中，在1500至2000°C之溫度範圍內燒成，藉此得到下述通式所示之氮氧化物燒成物；

組成式：



(惟，式中， $0.0 < x_1 \leq 2.0$ ， $0.0000 < x_2 \leq 0.0100$ ， $0.0000 < x_3 \leq 0.0100$ ， $0.4 \leq x_2/x_3 \leq 1.4$ ， $1.0 \leq y \leq 4.0$ ， $0.5 \leq z \leq 2.0$)，；
及

第二步驟，係在惰性氣體環境中，在1100至1600°C之溫度範圍內熱處理前述氮氧化物燒成物。

[0016]又，本發明係有關於特徵在於前述矽源係氮化

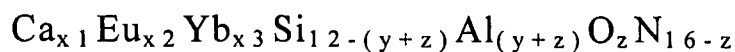
矽粉末，前述氮化矽粉末之含氧量係0.2至0.9質量%，平均粒徑為1.0至12.0 μm ，且比表面積為0.2至3.0 m^2/g 的氮氧化物螢光體粉末之製造方法。

[0017]又，本發明係有關於一種發光裝置，具有發光源及螢光體，其特徵在於發光源係由發光二極體構成，且螢光體使用至少由前述 α 型矽鋁氮氧化物構成之氮氧化物螢光體粉末。

發明效果

[0018]依據本發明，可提供一種氮氧化物螢光體，其係藉由作成氮氧化物螢光體粉末，且藉由被450nm之波長之光激發，發射主波長為由565nm至577nm之黃色螢光，且此時之螢光強度及外部量子效率高者，又，該氮氧化物螢光體粉末係由下列組成式所示之 α 型矽鋁氮氧化物系螢光體所示之 α 型矽鋁氮氧化物構成，

組成式：



其中， $0.0 < x1 \leq 2.0$ ， $0.0000 < x2 \leq 0.0100$ ， $0.0000 < x3 \leq 0.0100$ ， $0.4 \leq x2/x3 \leq 1.4$ ， $1.0 \leq y \leq 4.0$ ， $0.5 \leq z \leq 2.0$ 。

【圖式簡單說明】

圖式之簡單說明

[0019]圖1係顯示實施例1至22之氮氧化物螢光體粉末製造用氮化矽粉末之掃描式電子顯微鏡照片。

圖2係顯示實施例2及Ce激活YAG螢光體(P46Y3)之激發光譜及螢光光譜的圖。

圖3係顯示實施例2及比較例1之激發光譜及螢光光譜的圖。

圖4係顯示本發明之發光裝置之截面圖。

圖5係顯示本發明之發光裝置之變形例之截面圖。

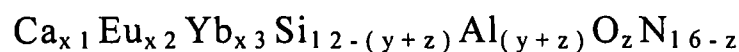
【實施方式】

用以實施發明之形態

[0020]以下，詳細說明本發明。

[0021]本發明係有關於一種氮氧化物螢光體粉末，其係由 α 型矽鋁氮氧化物構成，且該 α 型矽鋁氮氧化物係由下列組成式所示之 α 型矽鋁氮氧化物構成之氮氧化物螢光體，

組成式：



其中， $0.0 < x1 \leq 2.0$ ， $0.0000 < x2 \leq 0.0100$ ， $0.0000 < x3 \leq 0.0100$ ， $0.4 \leq x2/x3 \leq 1.4$ ， $1.0 \leq y \leq 4.0$ ， $0.5 \leq z \leq 2.0$ ，又，該氮氧化物螢光體粉末藉由被450nm之波長之光激發，發射主波長為由565nm至577nm之螢光，且此時螢光強度及外部量子效率高。

[0022] α 型矽鋁氮氧化物，特別是Ca- α 型矽鋁氮氧化物係 α 型氮化矽之Si-N鍵之一部份被Al-N鍵及Al-O鍵取代，且Ca離子侵入固溶於晶格內並保持電中性之固溶體。

[0023]本發明之氮氧化物螢光體包含之 α 型矽鋁氮氧化物螢光體係藉由除前述Ca離子外Eu離子亦侵入固溶於晶格內，激活Ca- α 型矽鋁氮氧化物，且被藍色光激發，並且成為前述通式所示之發射由黃色至橙色螢光的螢光

體。

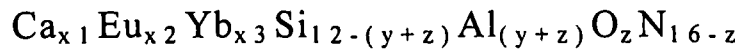
[0024]經使一般稀土元素激活之 α 型矽鋁氮氧化物螢光體係記載於專利文獻1，且以 $\text{MeSi}_{12-(m+n)}\text{Al}_{(m+n)}\text{O}_n\text{N}_{16-n}$ (Me係Ca、Mg、Y或除了La及Ce以外之稀土元素之1種或2種以上)表示，又，金屬Me係由每3個含 $(\text{Si,Al})_3(\text{N,O})_4$ 之4式量 α 型矽鋁氮氧化物之大單位胞最低1個，固溶至每1個單位胞最高1個。一般而言，當金屬元素Me為2價時，在前述通式中，固溶範圍係 $0.6 < m < 3.0$ ，且 $0 \leq n < 1.5$ ，當金屬Me為3價時， $0.9 < m < 4.5$ ，且 $0 \leq n < 1.5$ 。

[0025]檢討Li、Ca、Mg、Y等，又，檢討以由作為激活劑之稀土類元素取代前述金屬元素之一部份或全部之 α 型矽鋁氮氧化物螢光體，作為前述金屬Me。激活劑大多檢討Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Tb、Dy、Er、Tm、Yb等之稀土類元素。但是，固溶2種以上激活劑之 α 型矽鋁氮氧化物在專利文獻4中只提示共激活Eu與Dy之Ca- α 型矽鋁氮氧化物。

[0026]發明人對固溶2種以上激活劑之 α 型矽鋁氮氧化物系螢光體專心檢討，結果發現在共激活Eu與Yb之Ca- α 型矽鋁氮氧化物中，具有與Ce激活YAG螢光體同程度之發光色之主波長565nm至577nm的發光色，且此時之螢光強度及外部量子效率高。

[0027]接著，具體地說明本發明之氮氧化物螢光體粉末。

[0028]本發明之氮氧化物螢光體粉末係組成式：



(惟，式中， $0.0 < x_1 \leq 2.0$ ， $0.0000 < x_2 \leq 0.0100$ ， $0.0000 < x_3 \leq 0.0100$ ， $0.4 \leq x_2/x_3 \leq 1.4$ ， $1.0 \leq y \leq 4.0$ ， $0.5 \leq z \leq 2.0$)所示之由 α 型矽鋁氮氧化物構成之氮氧化物螢光體粉末。

[0029]前述 x_1 、 x_2 及 x_3 係表示Ca離子、Eu離子、Yb離子侵入矽鋁氮氧化物之固容量之值， x_3 大於0.01時，主波長(為表示螢光體之發光色度，不只色度座標，亦可使用主波長是已知的。主波長係指，如JIS Z 7801記載，在色度圖中，以直線連接無色及發光光譜之色度座標，且其延長線與光譜軌跡交叉之波長。如果以另一種方式表現，係在加法混合白色光與光譜單色光時，與螢光體發光之色相等時之光譜單色光的波長。在本申請案中，以下相同)小於565nm，且螢光強度變小。又， x_2 大於0.01時，主波長大於577nm。又， x_1 大於2.0時，螢光強度及外部量子效率變小。

[0030]又，在本發明中，前述 x_2 及 x_3 宜為 $0.4 \leq x_2/x_3 \leq 1.4$ 。 x_2/x_3 係該範圍之組成時，提供主波長為565nm至577nm，且螢光強度更大之高效率氮氧化物螢光體。

[0031]前述 y 係金屬元素固溶於矽鋁氮氧化物時為了保持電中性所決定之值，在前述氮氧化物螢光體粉末中，以 $y=2x_1+3x_2+3x_3$ 表示。式中之 x_1 之係數2係由固溶於Ca- α 型矽鋁氮氧化物螢光體之Ca離子之價數給予的數值，式中 x_2 之係數3係由固溶於Ca- α 型矽鋁氮氧化物螢光體之Eu離

子之價數給予的數值，且式中 x_3 之係數3係由固溶於Ca- α 型矽鋁氮氧化物螢光體之Yb離子之價數給予的數值。

[0032]在本發明中，前述 y 及 z 之範圍係 $1.0 \leq y \leq 4.0$ ， $0.5 \leq z \leq 2.0$ 。 y 及 z 係該範圍之組成時，提供主波長為565至577nm，且螢光強度高之氮氧化物螢光體。

[0033]前述 y 大於4.0時，主波長比577nm大且螢光強度及外部量子效率變小。又，前述 y 小於1.0時，螢光強度及外部量子效率變小。此外，前述 z 係有關氧相對於 α 型矽鋁氮氧化物之取代固溶量之值。 z 大於2.0時，主波長小於565nm且螢光強度及外部量子效率變小。又，在 $y < 1.0$ ， $z < 0.5$ 之範圍內生成 β 型矽鋁氮氧化物，且螢光強度顯著變小。

[0034]前述 x_1 、 x_2 、 x_3 、 y 、 z 係 $0.0 < x_1 \leq 2.0$ ， $0.0000 < x_2 \leq 0.0100$ ， $0.0000 < x_3 \leq 0.0100$ ， $0.4 \leq x_2/x_3 \leq 1.4$ ， $1.0 \leq y \leq 4.0$ ， $0.5 \leq z \leq 2.0$ 時，提供主波長係565nm至577nm，且螢光強度大，外部量子效率達41%以上之高效率氮氧化物螢光體。

[0035]又，前述 x_1 、 x_2 、 x_3 、 y 、 z 宜係 $0.9 < x_1 \leq 1.5$ ， $0.0035 \leq x_2 \leq 0.0060$ ， $0.0040 \leq x_3 \leq 0.0080$ ， $0.6 \leq x_2/x_3 \leq 1.1$ ， $2.0 \leq y \leq 3.0$ ， $1.0 \leq z \leq 1.5$ 。 x_1 、 x_2 、 x_3 、 y 、 z 係該範圍之組成時，提供主波長為565nm至575nm，且螢光強度大，外部量子效率達47%以上之高效率氮氧化物螢光體。

[0036]又，前述 x_1 、 x_2 、 x_3 、 y 、 z 更佳係 $1.2 < x_1 \leq 1.5$ ， $0.0035 \leq x_2 \leq 0.0060$ ， $0.0050 \leq x_3 \leq 0.0080$ ， $0.7 \leq x_2/x_3 \leq 1.1$ ，

$2.0 \leq y \leq 3.0$ ， $1.2 \leq z \leq 1.3$ 。x1、x2、x3、y、z係該範圍之組成時，提供主波長為565nm至575nm，且螢光強度更大，外部量子效率達48%以上之高效率氮氧化物螢光體。

[0037]本發明之氮氧化物螢光體粉末係在藉由使用CuK α 線之X光繞射(XRD)裝置辨識結晶相時，由分類為三方晶之 α 型矽鋁氮氧化物結晶相構成。又，有時亦包含分類為六方晶之氮化鋁結晶相，但是氮化鋁結晶相過多時，螢光強度降低，故不理想。包含氮化鋁之量宜為10質量%以下，且更佳為5質量%以下。又，最好不包含氮化鋁，只由 α 型矽鋁氮氧化物構成。

[0038]XRD測量之結晶相的辨識可使用X光圖像分析軟體進行。分析軟體可舉Rigaku公司製PDXL等為例。又，使用Rigaku公司製X光繞射裝置(Ultima IV Protectus)及分析軟體(PDXL)進行 α 型矽鋁氮氧化物系螢光體粉末之XRD測量。

[0039]為理想地使用本發明之氮氧化物螢光體粉末作為白色LED用螢光體，粒徑分布曲線中50%徑(體積基準之中間值)之D₅₀宜為10.0至20.0 μm 。這是因為D₅₀小於10.0 μm ，且比表面積大於0.6m²/g時，發光強度降低，又，D₅₀大於20.0 μm ，且比表面積小於0.2m²/g時，難以均一分散於密封螢光體之樹脂中，且白色LED之色調產生不均。本發明之氮氧化物螢光體粉末具有可在燒成後，原樣地，或不粉碎只藉壓碎，依需要分級，得到D₅₀在上述範圍(10.0至20.0 μm)之粒子的優點。粉碎時結晶構造之應變等使產生亮度等發

光特性降低。

[0040]控制本發明之氮氧化物螢光體粉末之粒徑及比表面積之方法可控制作為原料之氮化矽粉末之粒徑。使用平均粒徑為1.0至12.0 μm 之氮化矽粉末時，氮氧化物螢光體粉末之 D_{50} 係10至20 μm ，且，比表面積為0.2至0.6 m^2/g ，又，外部量子效率更大，故是理想的。

[0041]氮氧化物螢光體粉末之 D_{50} 係藉雷射繞射/散射式粒徑分布測量裝置測量之粒徑分布曲線中之50%徑。又，氮化矽粉末之比表面積可藉由島津公司製，FlowSorb2300型比表面積測量裝置(利用氮氣吸附法之BET法)測量。

[0042]本發明之氮氧化物螢光體粉末可藉由被450nm之波長區域之光激發，發射主波長在由565nm至577nm之波長區域之螢光，且此時之螢光強度良好。因此，本發明之氮氧化物螢光體粉末可藉由藍色激發光有效率地得到長波之黃色螢光，且藉由與作為激發光使用之藍色光組合，可有效率地得到演色性良好之白色光。

[0043]螢光峰波長可藉由在日本分光公司製螢光光譜光度計(FP6500)測量。使用副標準光源可進行螢光光譜修正，但是螢光峰波長有時會因使用之測量機器及修正條件產生若干誤差。又，外部量子效率可藉由在日本分光公司製FP6500中組合積分球之固體量子效率測量裝置，測量吸收率及內部量子效率，且由該等吸收率及內部量子效率之積算出。又，螢光主波長及色度座標(C_x 、 C_y)可使用在螢光光譜光度計中具備之色分析軟體測量，在此，吸收率係

顯示在照射之激發光中，試料只吸收哪一個之值，且內部量子效率係將轉換成以吸收之光作為螢光發光之光時之轉換效率(作為螢光發光之光子數/由試料吸收之光子數)稱為內部量子效率。

[0044]在本發明中，由得到之螢光光譜導出螢光峰波長及其波長之螢光強度。又，作為亮度指標之相對螢光強度係以市售YAG:Ce系螢光體(Kasei Optonix公司製P46Y3)之同激發波長之發光光譜的最高強度值為100%時之螢光峰波長的發光強度相對值。

[0045]本發明之氮氧化物螢光體粉末可與習知之發光二極體等之發光源組合，在各種照明裝置中作為發光裝置使用。

[0046]激發光峰波長在330至500nm之範圍內之發光源特別適用於本發明之氮氧化物螢光體粉末。在紫外線區域中，氮氧化物螢光體粉末之發光效率高，可構成良好性能之發光元件。又，藍色光源發光效率亦高，且藉本發明之氮氧化物螢光體粉末之黃色至橙色之螢光及藍色之激發光之組合，可構成良好晝白色至日光色之發光元件。

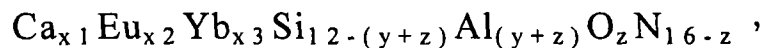
[0047]又，由於本發明之氮氧化物螢光體粉末之物體色顯示黃色至橙色，故可作為氧化鐵等，含有鐵、銅、錳及鉻等之重金屬之顏料的代替材料，使用於塗料及墨水等。此外，亦可作為紫外線、可見光吸收材料，使用於廣大用途。

[0048]接著，具體地說明本發明之氮氧化物螢光體粉

末之製造方法。

[0049]本發明之氮氧化物螢光體粉末係藉由將矽源、鋁源、鈣源、銻源及鎵源混合成下列組成式所示之組成，且在惰性氣體環境中，在1500至2000°C之溫度範圍內燒成而製得者，

組成式：



其中 $0.0 < x1 \leq 2.0$ ， $0.0000 < x2 \leq 0.0100$ ， $0.0000 < x3 \leq 0.0100$ ， $0.4 \leq x2/x3 \leq 1.4$ ， $1.0 \leq y \leq 4.0$ ， $0.5 \leq z \leq 2.0$ 。又，宜在惰性氣體環境中，在1100至1600°C之溫度範圍熱處理製得之燒成物。

[0050]原料之矽源係選自於矽之氮化物、氮氧化物、氧化物或藉熱分解成爲氧化物之前驅物物質。特佳的是結晶性氮化矽，且藉由使用結晶性氮化矽，可得到亮度高之氮氧化物螢光體。

[0051]原料之鋁源可舉氧化鋁、金屬鋁、氮化鋁爲例。可分別單獨地使用，亦可併用該等之粉末。

[0052]原料之鈣源係選自於鈣之氮化物、氮氧化物、氧化物或藉熱分解成爲氧化物之前驅物物質。

[0053]原料之銻源係選自於銻之氮化物、氮氧化物、氧化物或藉熱分解成爲氧化物之前驅物物質。

[0054]原料之鎵源係選自於鎵之氮化物、氮氧化物、氧化物或藉熱分解成爲氧化物之前驅物物質。

[0055]又，作爲本發明之氮氧化物螢光體粉末之製造

原料之氮化矽粉末的平均粒徑宜為 $1.0\mu\text{m}$ 以上且 $12.0\mu\text{m}$ 以下。更佳的是 $3.0\mu\text{m}$ 以上且 $12.0\mu\text{m}$ 以下。平均粒徑小於 $1.0\mu\text{m}$ 時有含氧量增加之傾向，且外部量子效率容易變小。平均粒徑超過 $12.0\mu\text{m}$ 時，製造困難且不實用。又，氮化矽粉末之平均粒徑係由該氮化矽粉末之掃描式電子顯微鏡照片測量。具體而言，在掃描式電子顯微鏡照片內畫圓，且就與該圓連接之各個粒子，決定內接於粒子之最大圓，且以該圓之直徑為該粒子之直徑，藉由獲得該等粒子直徑之平均算出粉末之平均粒徑。作為對象之測量粒子數可為大約50至150個。

[0056]又，氮化矽粉末之比表面積宜為 0.2 至 $3.0\text{m}^2/\text{g}$ 。更佳的是 $0.2\text{m}^2/\text{g}$ 以上且 $1.0\text{m}^2/\text{g}$ 以下。晶質氮化矽粉末之比表面積小於 $0.2\text{m}^2/\text{g}$ 時，製造上困難且不實用，且在元件化方面產生缺點。表面積超過 $3\text{m}^2/\text{g}$ 時，外部量子效率容易變小，故宜為 0.2 至 $3.0\text{m}^2/\text{g}$ 。又，比表面積係藉由島津公司製FlowSorb2300型比表面積測量裝置(利用氮氣吸附法之BET法)測量。

[0057]用於製造本發明之氮氧化物螢光體粉末之氮化矽粉末，如上所述，可較佳地使用晶質氮化矽粉末，且宜為 α 型氮化矽粉末。

[0058]本發明在一方面，用於製造本發明之氮氧化物螢光體粉末之氮化矽粉末，可特別使用含氧量少之晶質氮化矽粉末，且較佳地使用 α 型氮化矽粉末。作為習知螢光體原料之氮化矽粉末之含氧量係 1.0 至 2.0 質量%，且藉由

將含氧量少至0.2至0.9質量%之氮化矽粉末用於螢光體原料，作為本發明之較佳態樣，可得到比習知 α 型矽鋁氮氧化物螢光體之螢光強度顯著更高之氮氧化物螢光體粉末。氮化矽中之氧含量宜為0.2至0.8質量%，更佳的係0.2至0.4質量%。氧量小於0.2質量%時，製造上困難，且氧量超過0.9質量%時，與使用習知氮化矽粉末之情形比較，本發明之氮氧化物螢光體粉末之螢光特性難以得到顯著之提高。又，含氧之測量係藉由LECO公司製氧氮同時分析裝置測量。

[0059]可較佳地用於本發明之氮氧化物螢光體粉末製造用的氮化矽粉末可熱分解含氮矽烷化合物及/或非晶質(非晶形)氮化矽粉末而得到。含氮矽烷化合物可舉矽二醯亞胺($\text{Si}(\text{NH})_2$)、矽四醯胺、矽氮醯亞胺、矽氮醯亞胺等為例。該等係藉由習知之方法，例如，使四氯化矽、四溴化矽、四碘化矽等之鹵化矽與氨以氣相反應之方法，使液狀前述鹵化矽與液體氨反應之方法等製造。

[0060]又，非晶質氮化矽粉末係使用藉由習知方法，例如，在氮或氨氣環境下在 1200°C 至 1460°C 範圍內之溫度加熱分解前述含氮矽烷化合物之方法，使四氯化矽、四溴化矽、四碘化矽等之鹵化矽與氨在高溫下反應之方法等製造。非晶質氮化矽粉末及含氮矽烷化合物之平均粒徑通常係 0.003 至 $0.05\mu\text{m}$ 。

[0061]前述含氮矽烷化合物、非晶質氮化矽粉末容易加水分解，且容易氧化，因此該等原料粉末之秤量係在惰

性氣體環境中進行。又，可控制流通於用以加熱分解前述含氮矽烷化合物之加熱爐之氮氣中的氧濃度在0至2.0vol%之範圍內。將前述加熱分解含氮矽烷化合物時之環境中之氧濃度規定為，例如，100ppm以下，且最好10ppm以下等，得到低含氧量之非晶質氮化矽粉末。非晶質氮化矽粉末之含氧量越低，得到之晶質氮化矽粉末之含氧量亦越低。又，藉由改良反應容器材質及粉末處理機器中粉末與金屬互相磨擦之狀態的習知方法，可減少混入非晶質氮化矽粉末之金屬不純物至10ppm以下。

[0062]接著，在1300至1700°C之範圍內，在氮或氨氣環境下燒成含氮矽烷化合物及/或非晶質氮化矽粉末得到晶質氮化矽粉末。藉由控制燒成之條件(溫度及升溫速度)，控制粒徑。在本發明之情形下，為得到低氧之晶質氮化矽粉末，必須控制在由含氮矽烷化合物燒成非晶質氮化矽粉末時之氮氣環境燒成同時含有之氧。為得到大粒徑之晶質氮化矽粉末，必須在由非晶質氮化矽粉末燒成晶質氮化矽粉末時，以40°C/h以下之方式緩慢地升溫。如此得到之晶質氮化矽粉末係，如圖1所示，呈大一次粒子大致單分散之狀態，且幾乎沒有凝集粒子、融合粒子。製得之晶質氮化矽粉末係金屬不純物量100ppm以下之高純度粉末。藉由酸洗淨該晶質氮化矽粉末等之化學處理，可得到低氧之晶質氮化矽粉末。如此，可得到本發明之氧量為0.2至0.9質量%之氮氧化物螢光體粉末製造用氮化矽粉末。

[0063]又，如此製得之氮化矽粉末係與藉由金屬矽之

直接氮化法製造之氮化矽不同，不需要強力之粉碎，因此，具有不純物量為極少至100ppm以下之特徵。得到本發明之晶質氮化矽粉末包含之不純物(Al·Ca·Fe)係100ppm以下，最好是20ppm以下，且外部量子效率大之氮氧化物螢光體粉末，故是理想的。

[0064] 上述低氧含量之氮化矽粉末原料一般可較佳地用於製造本發明之氮氧化物螢光體粉末。特別地，即使製造在前述組成式中，前述 x_1 、 x_2 、 x_3 、 y 、 z 係 $0.0 < x_1 \leq 2.0$ ， $0.0000 < x_2 \leq 0.0100$ ， $0.0000 < x_3 \leq 0.0100$ ， $0.4 \leq x_2/x_3 \leq 1.4$ ， $1.0 \leq y \leq 4.0$ ， $0.5 \leq z \leq 2.0$ 之氮氧化物螢光體粉末亦是有用的。在該組成中，氮化矽粉末原料具有上述低含氧量，並且其平均粒徑宜在前述之 $1.0\mu\text{m}$ 至 $12.0\mu\text{m}$ ，更佳地是在 $3.0\mu\text{m}$ 至 $12.0\mu\text{m}$ 之範圍，且其比表面積宜在 0.2 至 $3.0\text{m}^2/\text{g}$ ，更佳的是在 $0.2\text{m}^2/\text{g}$ 至 $1.0\text{m}^2/\text{g}$ 之範圍。氮化矽粉末原料之氧含量、平均粒徑及比表面積在該範圍時，製得之氮氧化物螢光體粉末以 450nm 之波長之光激發而發光之螢光的主波長發射在 565nm 至 577nm 之螢光，且此時之外部量子效率為41%以上，故是理想的。

[0065] 又，上述低含氧量氮化矽粉末原料亦在製造前述組成式中，前述 x_1 、 x_2 、 x_3 、 y 、 z 係 $0.9 < x_1 \leq 1.5$ ， $0.0035 \leq x_2 \leq 0.0060$ ， $0.0040 \leq x_3 \leq 0.0080$ ， $0.6 \leq x_2/x_3 \leq 1.1$ ， $2.0 \leq y \leq 3.0$ ， $1.0 \leq z \leq 1.5$ 之氮氧化物螢光體粉末時特別有用。在該組成中，氮化矽粉末原料具有上述低含氧量，並且其平均粒徑宜在前述之 $1.0\mu\text{m}$ 至 $12.0\mu\text{m}$ ，更佳地是在 $3.0\mu\text{m}$

至 $12.0\mu\text{m}$ 之範圍，且其比表面積宜在 0.2 至 $3.0\text{m}^2/\text{g}$ ，更佳的是在 $0.2\text{m}^2/\text{g}$ 至 $1.0\text{m}^2/\text{g}$ 之範圍。氮化矽粉末原料之氧含量、平均粒徑及比表面積在該範圍時，製得之氮氧化物螢光體粉末以 450nm 之波長之光激發而發光之螢光的峰波長發射在 565nm 至 575nm 之波長區域之螢光，且此時之外部量子效率為 47% 以上，故是理想的。

[0066]就燒成而言，為達成促進燒結，且在更低溫生成 α 型矽鋁氮氧化物結晶相之目的，宜添加作為燒結助劑之含Li化合物。使用之含Li化合物可舉氧化鋰、碳酸鋰、金屬鋰、氮化鋰為例，且可分別地單獨使用，亦可併用該等之粉末。又，含Li化合物之添加量係相對於氮氧化物燒成物 1mol ，Li元素為 0.01 至 0.5mol 是適當的。

[0067]混合矽源、鋁源、鈣源、鎔源及鎢源之方法沒有特別限制，可採用本身習知之方法，例如，乾式混合之方法、在與原料各成分實質不反應之惰性溶劑中濕式混合後去除溶劑之方法等。混合裝置可合適地使用V型混合機、搖動混合器、球磨機、振動磨機、媒體攪拌磨機等。

[0068]藉由在惰性氣體環境中，在 1500 至 2000°C 之溫度範圍內燒成矽源、鋁源、鈣源、鎔源及鎢源之混合物，可得到前述組成式所示之氮氧化物燒成物。低於 1500°C 時，需要長時間加熱來生成 α 型矽鋁氮氧化物，並不實用。高於 2000°C 時，氮化矽及 α 型矽鋁氮氧化物昇華分解且生成游離之矽，因此無法得到高外部量子效率之氮氧化物螢光體粉末。藉由在惰性氣體之加壓狀態燒成，可抑制昇華分

解，是理想的。如果可在惰性氣體環境中，在1500至2000℃之範圍內燒成，燒成使用之加熱爐沒有特別限制。例如，可使用高頻感應加熱方式或電阻加熱方式之批式電爐、旋窯、流動化燒成爐、推式電爐等。填充混合物之坩堝可使用BN製之坩堝、氮化矽製之坩堝、石墨製之坩堝、碳化矽製之坩堝。藉燒成製得之氮氧化物燒成物係凝集少，且分散性良好之粉體。

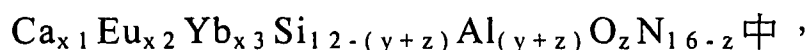
[0069]藉由上述燒成製得之氮氧化物燒成物亦可進一步熱處理。在惰性氣體環境中，或還原性氣體環境中，在1100至1600℃之範圍內熱處理製得之氮氧化物燒成物，藉此可得到藉以450nm之波長之光激發，發射在峰波長由565nm至577nm之螢光時之外部量子效率特別高之氮氧化物螢光體粉末。為得到外部量子效率更高之氮氧化物螢光體粉末，宜令熱處理溫度在1500至1600℃之範圍內。熱處理溫度不足1100℃時，或超過1600℃時，製得之氮氧化物螢光體粉末之外部量子效率小。在進行熱處理時之最高溫度之保持時間，為得到高外部量子效率，特佳的是0.5小時以上。即使進行熱處理超過4小時，隨著時間延長外部量子效率之提高大略停止，或幾乎不變，因此在進行熱處理時之最高溫度之保持時間宜在0.5至4小時之範圍內。

[0070]如果可在惰性氣體環境中，或還原性氣體環境中，在1100至1600℃之溫度範圍內熱處理，熱處理使用之加熱爐沒有特別限制。例如，可使用高頻感應加熱方式或電阻加熱方式之批式電爐、旋窯、流動化燒成爐、推式電爐等。

填充混合物之坩堝可使用BN製之坩堝、氮化矽製之坩堝、石墨製之坩堝、碳化矽製之坩堝、氧化鋁製之坩堝。

[0071]本發明之氮氧化物螢光體粉末之一較佳態樣係藉由前述之製造方法得到之螢光體粉末，更詳而言之，係藉由混合矽源、鋁源、鈣源、鎔源及鎢源，且在惰性氣體環境中，在1500至2000°C之範圍內燒成，接著，在惰性氣體環境中，在1100至1600°C之範圍內熱處理而得到之下列組成式所示之氮氧化物螢光體粉末，

組成式：



$$0.0 < x_1 \leq 2.0, 0.0000 < x_2 \leq 0.0100, 0.0000 < x_3 \leq 0.0100,$$

$$0.4 \leq x_2/x_3 \leq 1.4, 1.0 \leq y \leq 4.0, 0.5 \leq z \leq 2.0)。$$

[0072]以下，說明利用上述氮氧化物螢光體作為波長轉換構件之發光裝置。發光裝置可舉螢光燈等之照明器具，顯示器等顯示裝置為例。波長轉換構件之激發光源使用半導體發光元件(發光二極體)。在此，不只發射可見光之發光二極體，發光元件亦可使用發射近紫外光或深紫外光之發光二極體。

[0073]圖4顯示表面安裝型發光裝置1，作為本發明之一實施形態。圖4顯示發光裝置之截面圖。發光元件1可使用發藍光之氮化物發光二極體或發近紫外光之氮化物發光二極體。在此，以發藍光之發光二極體為例說明。發光元件1使用具有發光峰波長大約460nm之InGaN半導體作為發光層之氮化物半導體發光元件。形成在發光元件1上

之電極(未圖示)及設於封裝體2上之導線電極3係藉由Au等構成之接合線4連接。

[0074] 螢光體層11可藉由使本發明之氮氧化物螢光體12，例如，以5重量%至50重量%之比例分散在由矽氧樹脂構成之樹脂層中形成。除了矽氧樹脂以外，使用之樹脂亦可使用環氧樹脂或氟系樹脂。又，螢光體層11之形成方法可使用灌注或網版印刷等之方法，在發光二極體上薄且均一地形成。螢光體層11過厚時，螢光體粒子重疊，導致由目標之色度偏移或發光效率降低，故不理想。除了本發明之氮氧化物螢光體以外，為改善演色性或色再現性，螢光體層11上亦可增加藉由藍色激發光發射紅色，或綠色之螢光體。

[0075] 圖5係顯示與圖4不同之另一實施形態之截面圖。在圖5中，不同的是由發光二極體1分離地設置螢光體片13取代螢光體層。螢光體片13可藉由使本發明之氮氧化物螢光體12，例如，以5重量%至50重量%之比例分散在由矽氧樹脂構成之樹脂層中形成。除了矽氧樹脂以外，使用之樹脂亦可使用環氧樹脂或氟系樹脂。由於是由發光二極體1分離地設置螢光體片13之構造，故可減低因發光場所造成之不均且是理想的。

實施例

[0076] 以下，列舉具體例，更詳細說明本發明。

[0077] (實施例1)

將氮化矽、氧化銻、氧化鎳、氮化鋁及碳酸鈣，以成

為表1之氮氧化物之設計組成之方式在經氮沖洗之套手工
具箱內秤量，且使用乾式振動磨機混合，得到混合粉末。
氮化矽粉末之比表面積及平均粒徑分別係 $0.3\text{m}^2/\text{g}$ 、 $8.0\mu\text{m}$ 。
將製得之混合粉末放入BN製之坩堝中，且置入石墨電阻加
熱式之環境氣體式加壓燒成爐，且在將氮導入燒成爐內，
保持 0.8MPa 之壓力的狀態下，升溫至 1800°C 後，在 1800°C
保持2小時，得到氮氧化物燒成物。

[0078]壓碎製得之氮氧化物燒成物且藉分級得到粒徑5
至 $20\mu\text{m}$ 之粉末後，將製得之粉末放入氧化鋁坩堝中，且置
入石墨電阻加熱式電爐，在一面使氮於電爐內流通，一面
保持常壓之狀態下，升溫至 1600°C 後，在 1600°C 保持1小時，
得到本發明之氮氧化物螢光體粉末。

[0079]為評價製得之氮氧化物螢光體粉末之螢光特性，
使用在日本分光公司製FP-6500中組合積分球之固體量子
效率測量裝置，測量激發波長 450nm 之螢光光譜，同時測
量吸收率及內部量子效率。由得到之螢光光譜導出螢光峰
波長及其波長之發光強度，且由吸收率及內部量子效率算
出外部量子效率。又，使用在測量裝置中具備之色分析軟
體，求得色度座標(C_x 、 C_y)及主波長。又，作為亮度指標
之相對螢光強度係以市售YAG：Ce系螢光體(Kasei
Optonix公司製P46Y3)之同激發波長之發光光譜的最高強
度值為100%時之螢光峰波長的螢光強度相對值。實施例1
之氮氧化物螢光體粉末之螢光特性之評價結果、比表面積
及 D_{50} 係顯示於表2。

[0080](實施例2至22)

除了以氮氧化物螢光體粉末成爲表1之設計組成之方式，秤量混合實施例2至22之原料粉末以外，藉與實施例1同樣之方法製得氮氧化物螢光體粉末。藉與實施例1同樣之方法測量製得之氮氧化物螢光體粉末之螢光特性。其結果記載於表2。又，實施例2及市售YAG：Ce系螢光體(Kasei Optonix公司製P46Y3)之激發及螢光光譜顯示於圖2中。如由圖2可知，共同包含Yb與Eu作爲激活劑之Ca- α 型矽鋁氮氧化物系氮氧化物螢光體顯示習知得不到之主波長爲570nm左右，且相對螢光強度大之螢光光譜。

[0081]由表2可知，如實施例2至5、11、12、16至20所示，在前述通式中， $0.9 < x_1 \leq 1.5$ ， $0.0035 \leq x_2 \leq 0.0060$ ， $0.0040 \leq x_3 \leq 0.0080$ ， $0.6 \leq x_2/x_3 \leq 1.1$ ， $2.0 \leq y \leq 3.0$ ， $1.0 \leq z \leq 1.5$ 之範圍之氮氧化物螢光體粉末顯示主波長爲565nm至575nm，且外部量子效率達47%以上之特大值。

[0082](比較例1至13)

除了以氮氧化物螢光體粉末成爲表1之設計組成之方式，秤量混合比較例1至13之原料粉末以外，藉與實施例1同樣之方法製得氮氧化物螢光體粉末。藉與實施例1同樣之方法測量製得之氮氧化物螢光體粉末之螢光特性。其結果記載於表2。又，比較例1及實施例2之激發光譜及螢光光譜顯示於圖3中。如由圖3可知，藉由共同包含Yb與Eu作爲激活劑，得到發光波長向低波長側位移，且顯示主波長爲569.7nm左右之螢光光譜之氮氧化物螢光體。另一方面，

只包含Eu作為激活劑時，顯示主波長為585.9nm，大幅位移至長波長側之螢光光譜。

[0083](實施例31)

除了令原料之氮化矽粉末之氧濃度為0.75質量%以外，藉與實施例3同樣之方法製得氮氧化物螢光體粉末。藉與實施例1同樣之方法測量製得之氮氧化物螢光體粉末之螢光特性。其結果記載於表3。可了解的是相對於氮化矽粉末之氧量係0.29質量%之實施例3之熱處理後之外部量子效率47.8%，氧量係0.75質量%之實施例31之外部量子效率變小至47.2%。

[0084](實施例32至37)

除了使用記載於表3之原料之氮化矽粉末之比表面積、平均粒徑、氧量之氮化矽粉末以外，藉與實施例3同樣之方法製得氮氧化物螢光體粉末。藉與實施例3同樣之方法測量製得之氮氧化物螢光體粉末之螢光特性。其結果記載於表3。由表3可知，氮化矽粉末之含氧量係0.2至0.9質量%，平均粒徑係1.0至12.0 μm ，且比表面積係0.2至3.0 m^2/g 時，外部量子效率特別大。

[0085][表1]

	x1	x2	x3	y	z	x2/x3
實施例1	1.20	0.00305	0.00748	2.43	1.21	0.408
實施例2	1.20	0.00406	0.00647	2.43	1.21	0.628
實施例3	1.20	0.00466	0.00587	2.43	1.21	0.794
實施例4	1.20	0.00527	0.00527	2.43	1.21	1.000
實施例5	1.20	0.00551	0.00503	2.43	1.21	1.096
實施例6	1.20	0.00574	0.00479	2.43	1.21	1.198
實施例7	1.20	0.00595	0.00458	2.43	1.21	1.299
實施例8	1.20	0.00614	0.00439	2.43	1.21	1.399
實施例9	0.49	0.00192	0.00242	1.00	1.21	0.794
實施例10	0.74	0.00288	0.00362	1.50	1.21	0.794
實施例11	0.99	0.00384	0.00483	2.00	1.21	0.794
實施例12	1.18	0.00575	0.00725	3.00	1.21	0.794
實施例13	1.73	0.00671	0.00845	3.50	1.21	0.794
實施例14	1.98	0.00767	0.00966	4.00	1.21	0.794
實施例15	1.20	0.00466	0.00587	2.43	0.50	0.794
實施例16	1.20	0.00466	0.00587	2.43	1.00	0.794
實施例17	1.20	0.00466	0.00587	2.43	1.15	0.794
實施例18	1.20	0.00466	0.00587	2.43	1.30	0.794
實施例19	1.20	0.00466	0.00587	2.43	1.41	0.794
實施例20	1.20	0.00466	0.00587	2.43	1.50	0.794
實施例21	1.20	0.00466	0.00587	2.43	1.75	0.794
實施例22	1.20	0.00466	0.00587	2.43	2.00	0.794
比較例1	1.20	0.01053	0.00000	2.43	1.21	-
比較例2	1.20	0.00273	0.00780	2.43	1.21	0.350
比較例3	1.20	0.00232	0.00821	2.43	1.21	0.283
比較例4	1.20	0.00624	0.00429	2.43	1.21	1.455
比較例5	1.20	0.00655	0.00398	2.43	1.21	1.646
比較例6	0.45	0.00175	0.00220	0.91	1.21	0.794
比較例7	0.25	0.00096	0.00121	0.50	1.21	0.794
比較例8	2.08	0.00807	0.01017	4.21	1.21	0.794
比較例9	2.27	0.00882	0.01111	4.60	1.21	0.794
比較例10	1.20	0.00466	0.00587	2.43	0.40	0.794
比較例11	1.20	0.00466	0.00587	2.43	0.00	0.794
比較例12	1.20	0.00466	0.00587	2.43	2.11	0.794
比較例13	1.20	0.00466	0.00587	2.43	2.50	0.794

[0086][表2]

	峰波長 [nm]	相對螢 光強度 [%]	吸收率 [%]	外部量 子效率 [%]	內部量 子效率 [%]	主波長 [μm]	色度座標	
							Cx	Cy
實施例1	561.0	131	77.2	44.5	57.7	569.0	0.431	0.556
實施例2	561.5	140	79.2	47.8	60.4	569.7	0.436	0.552
實施例3	568.0	146	78.2	47.8	61.1	572.5	0.455	0.532
實施例4	570.0	149	79.3	49.4	62.3	573.4	0.462	0.526
實施例5	571.5	155	77.8	48.8	62.7	574.1	0.467	0.521
實施例6	573.5	157	78.9	49.9	63.3	575.2	0.474	0.513
實施例7	576.0	161	79.4	50.4	63.5	576.4	0.483	0.505
實施例8	577.0	165	80.2	51.5	64.2	576.9	0.486	0.501
實施例9	564.5	139	75.5	45.9	60.8	570.7	0.443	0.545
實施例10	566.0	137	76.8	45.5	59.2	571.4	0.448	0.540
實施例11	567.0	143	77.2	47.6	61.6	571.9	0.451	0.536
實施例12	569.5	142	79.2	49.3	62.2	573.2	0.460	0.527
實施例13	572.0	131	80.0	46.3	57.9	574.5	0.469	0.518
實施例14	573.5	129	80.1	45.7	57.0	575.3	0.475	0.513
實施例15	573.5	128	78.4	45.3	57.8	575.2	0.474	0.513
實施例16	569.5	142	78.6	47.7	60.7	573.2	0.460	0.527
實施例17	568.5	146	78.3	47.8	61.1	572.7	0.457	0.531
實施例18	567.5	150	78.1	48.2	61.7	572.2	0.453	0.534
實施例19	565.0	141	77.1	47.8	61.5	571.0	0.445	0.543
實施例20	564.0	135	78.3	47.7	60.9	570.4	0.441	0.547
實施例21	562.5	123	78.6	43.1	54.8	569.8	0.436	0.551
實施例22	558.0	119	76.8	41.1	53.5	567.6	0.421	0.566
比較例1	597.5	161	81.6	53.5	65.6	585.9	0.549	0.439
比較例2	560.0	95	71.2	34.0	47.8	568.5	0.427	0.560
比較例3	559.0	88	70.9	32.1	45.3	567.9	0.423	0.564
比較例4	579.2	154	77.3	45.8	59.3	577.9	0.493	0.494
比較例5	581.4	157	77.4	45.6	58.9	579.0	0.501	0.487
比較例6	562.0	110	72.7	34.5	47.5	569.5	0.434	0.553
比較例7	561.0	106	70.9	34.7	48.9	568.9	0.430	0.557
比較例8	578.1	98	77.2	34.4	44.6	577.4	0.490	0.498
比較例9	579.3	84	77.6	33.7	43.4	578.0	0.494	0.494
比較例10	573.5	101	74.4	34.9	46.9	574.9	0.472	0.516
比較例11	578.0	88	73.8	31.1	42.1	577.2	0.488	0.499
比較例12	555.0	110	69.5	33.1	47.6	566.1	0.410	0.577
比較例13	551.0	78	68.2	29.3	42.9	564.2	0.397	0.590

[0087][表3]

	氮化矽粉末(原料)			螢光特性(熱處理前)							螢光特性(熱處理後)								
	SSA [m ² /g]	平均粒徑 [μm]	氧濃度[質量%]	峰波長 [nm]	相對螢光強度 [%]	吸收率 [%]	外部量子效率 [%]	內部量子效率 [%]	主波長 [nm]	色度座標 Cx	色度座標 Cy	峰波長 [nm]	相對螢光強度 [%]	吸收率 [%]	外部量子效率 [%]	內部量子效率 [%]	主波長 [nm]	色度座標 Cx	色度座標 Cy
實施例3	0.3	8.0	0.29	568.0	99	78.0	30.7	39.3	572.4	0.455	0.533	568.0	146	78.2	47.8	61.1	572.5	0.455	0.532
實施例31	0.3	8.0	0.75	568.0	97	78.5	30.9	39.3	572.5	0.455	0.532	567.5	141	78.4	47.2	60.2	572.4	0.455	0.533
實施例32	1.0	3.0	0.34	567.0	97	77.4	30.3	39.2	572.1	0.453	0.535	567.5	144	77.6	47.3	61.0	572.9	0.458	0.529
實施例33	1.0	3.0	0.72	567.5	95	77.9	29.8	38.2	572.2	0.453	0.534	567.0	139	77.7	46.3	59.6	572.0	0.452	0.536
實施例34	2.5	1.5	0.53	567.5	95	77.2	29.3	37.9	572.1	0.453	0.535	567.5	140	76.8	47.1	61.3	572.2	0.453	0.534
實施例35	2.5	1.5	0.73	567.0	92	77.4	30.0	38.7	571.9	0.451	0.536	567.0	135	76.5	46.6	60.9	571.9	0.451	0.536
實施例36	10	0.2	0.89	567.5	92	75.9	28.5	37.6	572.2	0.453	0.534	567.0	136	75.8	44.3	58.5	572.0	0.452	0.536
實施例37	10	0.2	1.12	566.5	89	76.3	28.0	36.7	571.8	0.450	0.537	566.5	131	75.2	43.0	57.2	571.7	0.450	0.538

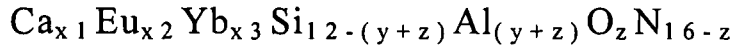
【符號說明】

[0088] 1...發光元件，發光二 極體，表面安裝型發光裝置	11...螢光體層
2...封裝體	12...氮氧化物螢光體
3...導線電極	13...螢光體片
4...接合線	

申請專利範圍

1. 一種氮氧化物螢光體粉末，係由下列組成式所示之 α 型矽鋁氮氧化物構成，

組成式：

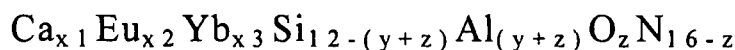


(惟，式中， $0.0 < x_1 \leq 2.0$ ， $0.0000 < x_2 \leq 0.0100$ ， $0.0000 < x_3 \leq 0.0100$ ， $0.4 \leq x_2/x_3 \leq 1.4$ ， $1.0 \leq y \leq 4.0$ ， $0.5 \leq z \leq 2.0$)。

2. 如請求項1之氮氧化物螢光體粉末，其中前述 x_1 、 x_2 、 x_3 、 y 、 z 係 $0.9 < x_1 \leq 1.5$ ， $0.0035 \leq x_2 \leq 0.0060$ ， $0.0040 \leq x_3 \leq 0.0080$ ， $0.6 \leq x_2/x_3 \leq 1.1$ ， $2.0 \leq y \leq 3.0$ ， $1.0 \leq z \leq 1.5$ 。
3. 如請求項1或2之氮氧化物螢光體粉末，其係藉由被450nm之波長的光激發，發射主波長為565nm至577nm之螢光，且外部量子效率係41%以上。
4. 一種如請求項1至3中任一項之氮氧化物螢光體粉末之製造方法，其特徵在於包含：

第一步驟，係將矽源、鋁源、鈣源、鎔源及鐿源混合成下列組成式所示之組成，且在惰性氣體環境中，在1500至2000°C之溫度範圍內燒成，藉此得到下述通式所示之氮氧化物燒成物，

組成式：



(惟，式中， $0.0 < x_1 \leq 2.0$ ， $0.0000 < x_2 \leq 0.0100$ ， $0.0000 < x_3 \leq 0.0100$ ， $0.4 \leq x_2/x_3 \leq 1.4$ ， $1.0 \leq y \leq 4.0$ ， $0.5 \leq z \leq 2.0$)；及

第二步驟，係在惰性氣體環境中，在1100至1600°C之溫度範圍內熱處理前述氮氧化物燒成物。

5. 如請求項4之氮氧化物螢光體粉末之製造方法，其中前述矽源係氮化矽粉末，前述氮化矽粉末之含氧量係0.2至0.9質量%，平均粒徑為1.0至12.0 μm ，且比表面積為0.2至3.0 m^2/g 。
6. 一種發光裝置，具有發光源及螢光體，其特徵在於發光源係由發光二極體構成，且螢光體使用至少如請求項1至3中任一項之氮氧化物螢光體粉末。

圖式

1/3

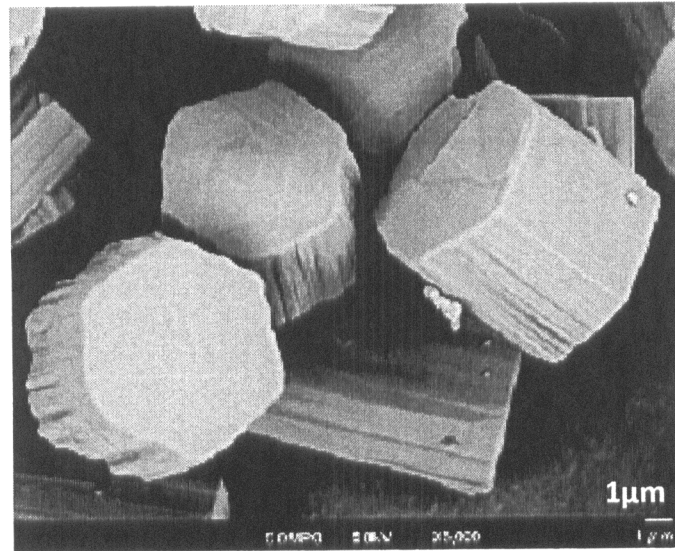


圖1

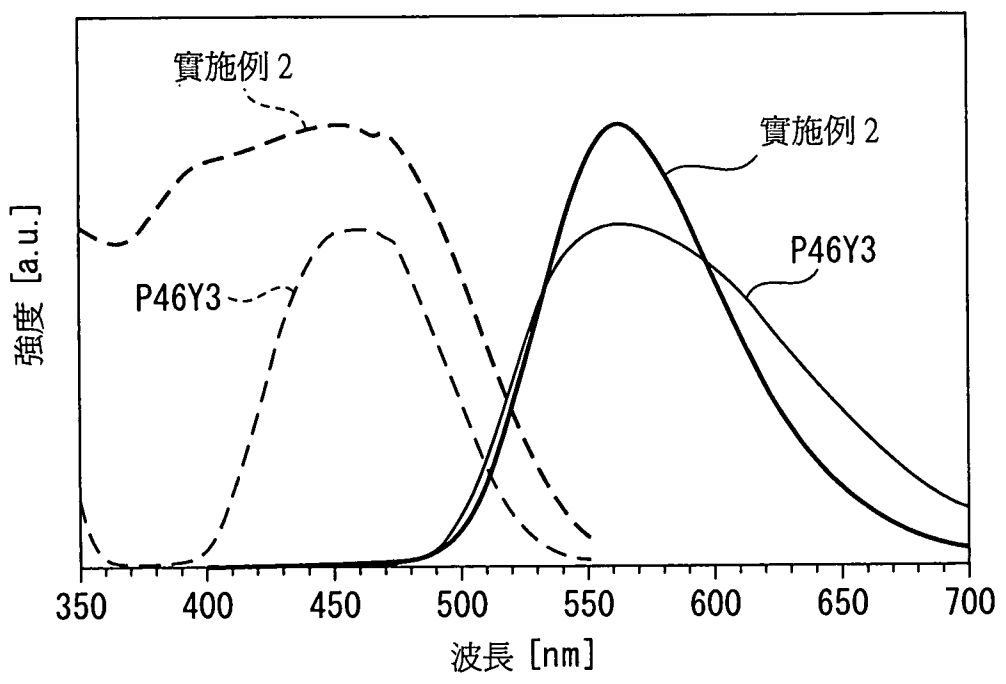


圖2

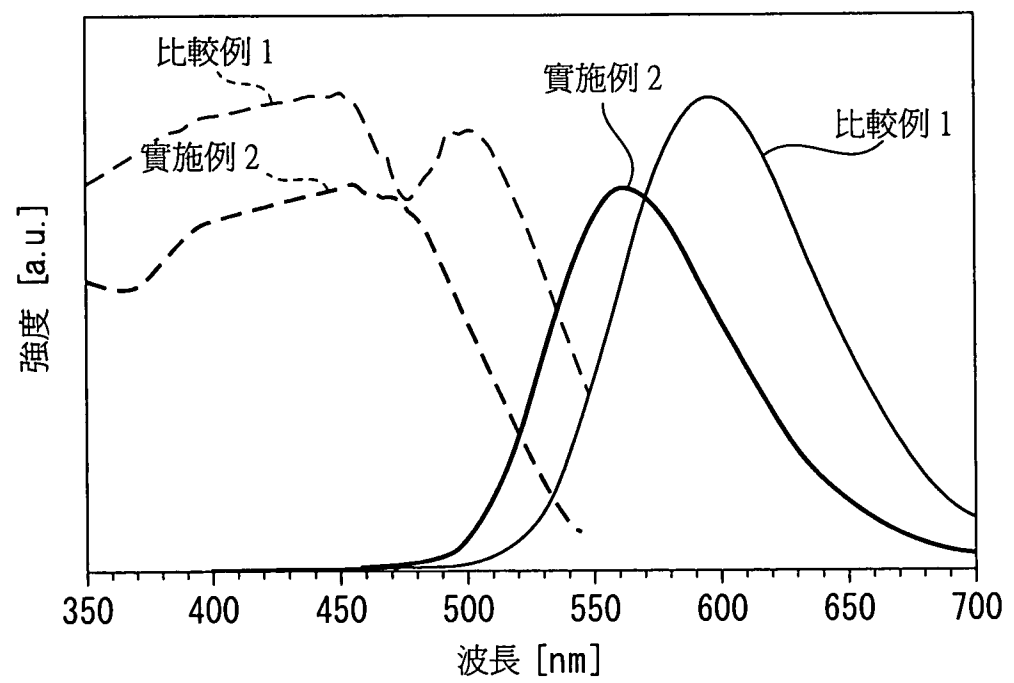


圖3

3/3

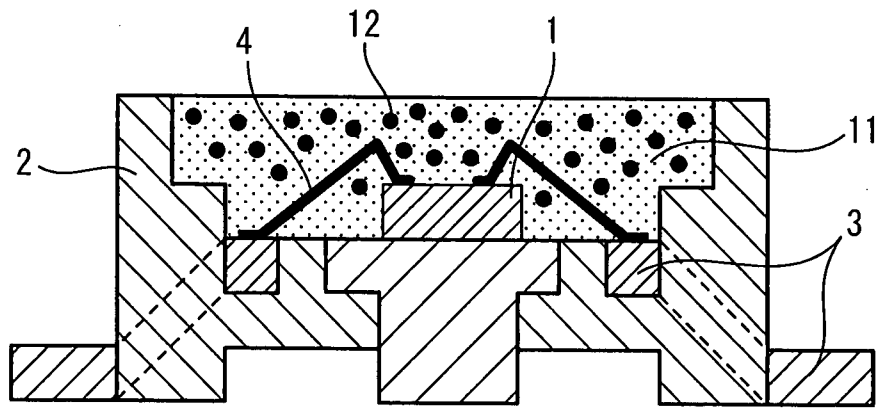


圖4

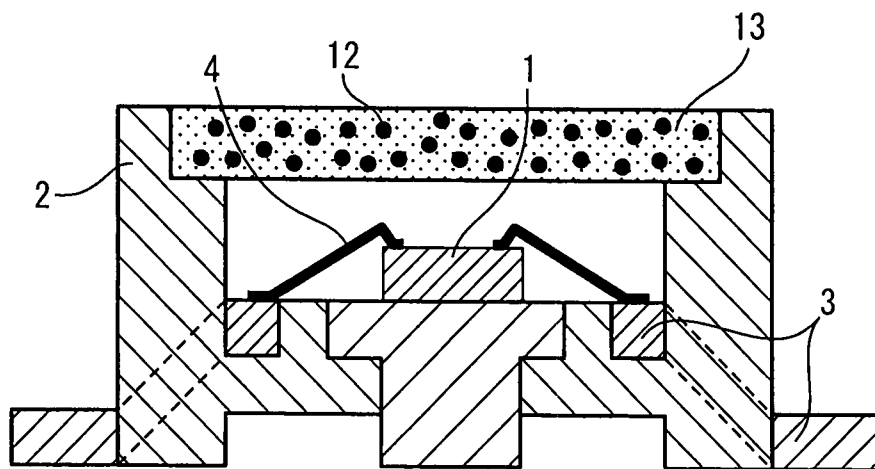


圖5