

公告本

發明專利說明書

PD1084441(5)

(本說明書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※ 申請案號： 97133533

※ 申請日期： 97.9.2

※IPC 分類： 69k 11/78 (2006.01)

H01L 33/00 (2006.01)

一、發明名稱：(中文/英文)

螢光體及其製法與使用它之發光裝置

PHOSPHOR, PRODUCTION METHOD THEREOF, AND LIGHT-EMITTING

APPARATUS USING PHOSPHOR

二、申請人：(共 2 人)

姓名或名稱：(中文/英文)(簽章) ID：

1. 昭和電工股份有限公司(昭和電工株式会社)

SHOWA DENKO K.K.

2. 獨立行政法人物質・材料研究機構(獨立行政法人物質・材料研究機構)

National Institute for Materials Science

代表人：(中文/英文)(簽章)

1. 高橋恭平/TAKAHASHI, KYOHEI

2. 岸輝雄/KISHI, TERUO

住居所或營業所地址：(中文/英文)

1. 日本國東京都港區芝大門一丁目 13 番 9 號

13-9 Shiba Daimon 1-chome, Minato-ku, Tokyo, Japan

2. 日本國茨城縣筑波市千現 1 丁目 2 番 1 號

2-1, Sengen, 1-chome, Tsukuba, Ibaraki-ken, Japan

國 籍：(中文/英文)

1. ~ 2. 日本

Japan

三、發明人：(共 3 人)

姓 名：(中文/英文) ID：

- 1.鹽井恒介(塩井恒介)/SHIOI, KOUSUKE
- 2.廣崎尙登(広崎尙登)/HIROSAKI, NAOTO
- 3.三木久幸/MIKI, HISAYUKI

國 籍：(中文/英文)

- 1.~3.日本
Japan

四、聲明事項：

☐ 主張專利法第二十二條第二項 ☐ 第一款或 ☐ 第二款規定之事實，其事實發生日期為： 年 月 日。

☒ 申請前已向下列國家(地區)申請專利：

【格式請依：受理國家(地區)、申請日、申請案號 順序註記】

☒ 有主張專利法第二十七條第一項國際優先權：

- 1.日本 2007/9/3 特願 2007-228243
- 2.日本 2008/4/30 特願 2008-118949
- 3.日本 2008/8/22 特願 2008-214366

☐ 無主張專利法第二十七條第一項國際優先權：

☐ 主張專利法第二十九條第一項國內優先權：

【格式請依：申請日、申請案號 順序註記】

☐ 主張專利法第三十條生物材料：

☐ 須寄存生物材料者：

國內生物材料 【格式請依：寄存機構、日期、號碼 順序註記】

國外生物材料 【格式請依：寄存國家、機構、日期、號碼 順序註記】

☐ 不須寄存生物材料者：

所屬技術領域中具有通常知識者易於獲得時，不須寄存。

五、中文發明摘要：

本發明係有關於一種螢光體，其特徵係具有通式 $M(0)_a M(1)_b M(2)_{x-(vm+n)} M(3)_{(vm+n)-y} O_n N_{z-n}$ 所示組成的螢光材料之螢光體，滿足以下全部， $M(0)$ 係選自 Li、Na、Be、Mg、Ca、Sr、Ba、Sc、Y、La、Gd、Lu， $M(1)$ 係選自 Mn、Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb， $M(2)$ 係選自 Si、Ge、Sn、Ti、Hf、Zr， $M(3)$ 係選自 Be、B、Al、Ga、In、Tl、Zn，O 係氧，N 係氮，且 $33 \leq x \leq 51$ ， $8 \leq y \leq 12$ ， $36 \leq z \leq 56$ ， $3 \leq a+b \leq 7$ ， $0.001 \leq b \leq 1.2$ ， $me=a+b$ ， $0.8 \cdot me \leq m \leq 1.2 \cdot me$ ， $0 \leq n \leq 7$ ， $v=\{a \cdot v(0)+b \cdot v(1)\}/(a+b)$ 。而且，本發明係有關於該螢光體的製造方法及使用該螢光體而成之發光裝置。

六、英文發明摘要：

The present invention relates to a phosphor including a phosphor material having the composition represented by general formula: $M(0)_a M(1)_b M(2)_{x-(vm+n)} M(3)_{(vm+n)-y} O_n N_{z-n}$ where $M(0)$ is selected from Li, Na, Be, Mg, Ca, Sr, Ba, Sc, Y, La, Gd and Lu; $M(1)$ is selected from Mn, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Tb, Dy, Ho, Er, Tm and Yb; $M(2)$ is selected from Si, Ge, Sn, Ti, Hf and Zr; $M(3)$ is selected from Be, B, Al, Ga, In, Tl and Zn; O is oxygen; N is nitrogen; and $33 \leq x \leq 51$, $8 \leq y \leq 12$, $36 \leq z \leq 56$, $3 \leq a+b \leq 7$, $0.001 \leq b \leq 1.2$, $me = a+b$, $0.8 \cdot me \leq m \leq 1.2 \cdot me$, $0 \leq n \leq 7$, and $v = \{a \cdot v(0) + b \cdot v(1)\} / (a+b)$. Furthermore, the present invention relates to a production method thereof, and a light-emitting apparatus using the phosphor.

七、指定代表圖：

(一)本案指定代表圖為：無。

(二)本代表圖之元件符號簡單說明：

無。

八、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：

九、發明說明：

【發明所屬之技術領域】

本發明係有關於一種以無機化合物作為主體之螢光體及其用途。更詳言之，該用途係有關於利用該螢光體所具有的性能、亦即發出 400 奈米以上之長波長螢光的特性之照明裝置及顯示裝置等的發光裝置。

【先前技術】

通常，螢光體係使用於螢光顯示管(VFD)、場致發射顯示器(FED)、電漿顯示面板(PDP)、陰極射線管(CRT)、發光二極體(LED 元件)等顯示裝置等的發光裝置。

在該等之任一者的發光裝置，為了使螢光體發光，必須對螢光體供給某些能量用以激發螢光體。例如藉由具有真空紫外線、紫外線、電子射線、藍色光等的高能量之激發源，螢光體被激發而發出可見光線。

但是，使用先前的矽酸鹽螢光體、磷鹽螢光體、鋁酸鹽螢光體、硫化物螢光體等的螢光體時，曝露於前述的激發源時，會有螢光體的亮度降低之問題。

因此，要求一種即便曝露於如前述的激發源亦不會產生亮度降低之螢光體。因而，有提案揭示一種賽隆(sialon)螢光體等的氧氮化物螢光體作為亮度降低較少的螢光體。

專利文獻 1 揭示一種含有 Ca 之賽隆螢光體。在此，該賽隆螢光體能夠藉由以下製程來製造。

首先，將氮化矽(Si_3N_4)、氮化鋁(AlN)、碳酸鈣(CaCO_3)、氧化鎔(Eu_2O_3)以規定的莫耳比混合。接著，能夠在 1 氣壓(0.1MPa)的氮中，於 1700℃ 的溫度保持 1 小時，

依照依熱壓法進行焙燒來製造。

將在該製程所得到的 Eu 離子固溶而成的 α 型賽隆螢光體，係被 450~500 奈米的藍色光激發而發出 550~600 奈米的黃色光之螢光體，藉由組合藍色 LED 元件與該螢光體，能夠製造白色 LED 元件。

又，專利文獻 2 係有關於一種另外的賽隆螢光體，揭示一種具有 β - Si_3N_4 結構之 β 型賽隆螢光體。因為該 β 型賽隆螢光體藉由被近紫外~藍色光激發而進行 500~600 奈米的綠色~橙色的發光，適合使用作為白色 LED 元件用的螢光體。

而且，在專利文獻 3 揭示一種由 JEM 相所構成的氧氮化合物螢光體。該氧氮化合物螢光體被近紫外~藍色光激發而進行在 460~510 奈米具有發光波長尖峰之發光。同螢光體的激發、發光波長區域適合作為以近紫外 LED 作為激發源之白色 LED 用藍色螢光體。

另一方面，使用作為照明裝置的發光裝置之先前技術，有組合藍色發光二極體元件與藍色吸收黃色發光螢光體而成之白色發光二極體係眾所周知，在各種照明已實用化。

例如，在專利文獻 4 揭示一種組合藍色發光二極體元件與藍色吸收黃色發光螢光體而成之白色發光二極體。又，在專利文獻 5 亦揭示同樣的構成之發光二極體。而且在專利文獻 6 亦對同樣的構成之發光二極體，揭示使用波長變換澆鑄材料而成之發光元件。

而且，在該等的發光二極體，特別是常用的螢光體係

由通式 $(Y, Gd)_3(Al, Ga)_5O_{12} : Ce_{3+}$ 所示之使用鈰活化而成之釔-鋁-石榴石系螢光體。

又，在專利文獻 7，揭示一種具備發紫外光或近紫外光之半導體發光元件及螢光體之附帶螢光體發光二極體。揭示該附帶螢光體發光二極體，其構成係半導體發光元件藉由脈衝狀的大電流來進行紫外光或近紫外光的發光，藉由該半導體發光元件的發光，成膜於元件表面之螢光體被激發。在該構成，按照成膜於元件表面之螢光體的種類，能夠使該附帶螢光體發光二極體的發光色成為藍、綠或紅色。

又，在專利文獻 8，揭示一種點矩陣型的顯示裝置，其具備由 III 族氮化物半導體所構成的發光層；及 3 種類的螢光體層，該 3 種類的螢光體層接受從該發光層所發出之發光尖峰波長為 380 奈米的紫外光而各自發出紅色、綠色及藍色的三原色的光線。

而且，在專利文獻 9，揭示一種發出白色的光線之半導體發光元件，其係使用發出 390~420 奈米波長的光線之半導體發光元件與藉由從該半導體發光元件的發光而被激發之螢光體。在此，因為半導體發光元件發出人的視覺敏感度低的光線，所以即便變動半導體發光元件的發光強度或發光波長，亦幾乎不會感覺色調有變化。又，390~420 奈米波長的光線係不容易損傷分散螢光體之樹脂等的裝置構成組件。又，因為通常紫外光對人體有各式各樣之有害的影響，因為係使用 390 奈米以上波長的光線，所洩漏的激發光不會造成有害的影響。此時，被 390~420 奈米波長

的光線激發之螢光體能夠使用各式各樣的氧化物或硫化物的螢光體。

此種照明裝置例如能夠依照專利文獻 10、專利文獻 11 等所記載之眾所周知的方法來製造。

[專利文獻 1] 特開 2002-363554 號公報

[專利文獻 2] 特開 2005-255895 號公報

[專利文獻 3] 特開 2006-232868 號公報

[專利文獻 4] 特許第 2900928 號公報

[專利文獻 5] 特許第 2927279 號公報

[專利文獻 6] 特許第 3364229 號公報

[專利文獻 7] 特開 1998-12925 號公報

[專利文獻 8] 特開 1997-153664 號公報

[專利文獻 9] 特開 2002-171000 號公報

[專利文獻 10] 特開平 5-152609 號公報

[專利文獻 11] 特開平 7-99345 號公報

【發明內容】

[發明所欲解決之課題]

但是專利文獻 1~11 所記載之螢光體，雖然其具有適合於以近紫外~藍色發光元件作為激發光源的白色 LED 用途之激發、發光光譜，但是在近年來對白色 LED 高亮度化的要求提高之背景下，期待出現具有更高度之螢光體。

又，在照明等的發光裝置，由藍色發光二極體元件與鈹-鋁-石榴石系螢光體所構成的白色發光二極體，除了因為紅色成分不足而有藍白色發光之特徵，且有能夠觀察到演色性偏差之問題以外，加上特別是因為氧化物螢光體之

共價鍵性低，由於伴隨著半導體發光元件的高亮度化之發熱量增大，而有發光亮度低落之問題。

又，已知硫化物系螢光體係顯示高發光亮度，但是因為在化學安定性有缺點，致使難以確保白色 LED 本來之耐用期限特性。

本發明係鑒於上述情形而進行，其目的係提供一種顯示比先前的螢光體更高亮度及更優良的安定性之螢光體及製法，以及使用其而成之發光裝置。

[解決課題之手段]

為了解決上述課題，本發明者等重複專心研討的結果，發現一種螢光體，其特徵係具有通式 $M(0)_a M(1)_b M(2)_{x-(vm+n)} M(3)_{(vm+n)-y} O_n N_{z-n}$ 所示組成的螢光材料之螢光體，且調整 $M(0)$ 、 $M(1)$ 、 $M(2)$ 、 $M(3)$ 、 O 、 N 的原子比來滿足以下全部， $M(0)$ 係選自 Li 、 Na 、 Be 、 Mg 、 Ca 、 Sr 、 Ba 、 Sc 、 Y 、 La 、 Gd 、 Lu 之 1 種以上的元素， $M(1)$ 係選自 Mn 、 Ce 、 Pr 、 Nd 、 Sm 、 Eu 、 Tb 、 Dy 、 Ho 、 Er 、 Tm 、 Yb 之 1 種以上的活化劑， $M(2)$ 係選自 Si 、 Ge 、 Sn 、 Ti 、 Hf 、 Zr 之 1 種以上的元素， $M(3)$ 係選自 Be 、 B 、 Al 、 Ga 、 In 、 Tl 、 Zn 之 1 種以上的元素， O 元素係氧， N 元素係氮，且 x 、 y 、 z 係 $33 \leq x \leq 51$ ， $8 \leq y \leq 12$ ， $36 \leq z \leq 56$ ， a 、 b 係 $3 \leq a+b \leq 7$ ， $0.001 \leq b \leq 1.2$ ， m 、 n 係 $me=a+b$ 時， $0.8 \cdot me \leq m \leq 1.2 \cdot me$ ， $0 \leq n \leq 7$ ， v 係 $v=\{a \cdot v(0)+b \cdot v(1)\}/(a+b)$ (其中， $v(0)$ 係 $M(0)$ 離子的價數， $v(1)$ 係 $M(1)$ 離子的價數)，能夠顯示高亮度的發光。

基於該見識進而研究之結果，而完成了以下構成之本

發明。

(1) 一種螢光體，其特徵係具有通式 $M(0)_a M(1)_b M(2)_{x-(v_m+n)} M(3)_{(v_m+n)-y} O_n N_{z-n}$ 所示組成的螢光材料之螢光體，且調整 $M(0)$ 、 $M(1)$ 、 $M(2)$ 、 $M(3)$ 、 O 、 N 的原子比來滿足以下全部， $M(0)$ 係選自 Li 、 Na 、 Be 、 Mg 、 Ca 、 Sr 、 Ba 、 Sc 、 Y 、 La 、 Gd 、 Lu 之 1 種以上的元素， $M(1)$ 係選自 Mn 、 Ce 、 Pr 、 Nd 、 Sm 、 Eu 、 Tb 、 Dy 、 Ho 、 Er 、 Tm 、 Yb 之 1 種以上的活化劑， $M(2)$ 係選自 Si 、 Ge 、 Sn 、 Ti 、 Hf 、 Zr 之 1 種以上的元素， $M(3)$ 係選自 Be 、 B 、 Al 、 Ga 、 In 、 Tl 、 Zn 之 1 種以上的元素， O 元素係氧， N 元素係氮，且 x 、 y 、 z 係 $33 \leq x \leq 51$ ， $8 \leq y \leq 12$ ， $36 \leq z \leq 56$ ， a 、 b 係 $3 \leq a+b \leq 7$ ， $0.001 \leq b \leq 1.2$ ， m 、 n 係 $m_e = a+b$ 時， $0.8 \cdot m_e \leq m \leq 1.2 \cdot m_e$ ， $0 \leq n \leq 7$ ， v 係 $v = \{a \cdot v(0) + b \cdot v(1)\} / (a+b)$ (其中， $v(0)$ 係 $M(0)$ 離子的價數， $v(1)$ 係 $M(1)$ 離子的價數)。

(2) 如 (1) 之螢光體，其中 $x=42$ ， $y=10$ ， $z=46$ 。

(3) 如 (1) 或 (2) 之螢光體，其中 $M(0)$ 係選自 Ca 、 Sr 、 Ba 之 1 種以上的元素。

(4) 如 (1) 至 (3) 項中任一項之螢光體，其中 $M(1)$ 係 Eu 。

(5) 如 (1) 至 (4) 項中任一項之螢光體，其中 $M(2)$ 係 Si ， $M(3)$ 係 Al 。

(6) 如 (1) 至 (5) 項中任一項之螢光體，其中 $n \leq m_e$ 。

(7) 如 (1) 至 (6) 項中任一項之螢光體，其中前述螢光材料的含有率為 80 體積 % 以上，殘餘部為選自 β -賽隆 (β -Sialon)、未反應的氮化矽或氮化鋁、氧氮化物玻璃、 $SrSiAl_2N_2O_3$ 、 $Sr_2Al_2Si_{10}N_{14}O_4$ 、 $SrSi_{(10-n)}Al_{(18+n)}O_nN_{(32-n)}$

($n \sim 1$)、 SrSi_6N_8 之一種以上。

(8) 如(1)至(7)項中任一項之螢光體，其係平均粒徑為 0.1 微米以上、50 微米以下之粉體。

(9) 如(1)至(8)項中任一項之螢光體，其中構成前述螢光體之一次粒子的平均縱橫比為 20 以下。

(10) 如(1)至(9)項中任一項之螢光體，其含有 5~300ppm 之氟。

(11) 如(1)至(10)項中任一項之螢光體，其含有 10~3000ppm 之硼。

(12) 如(1)至(11)項中任一項之螢光體，在其至少一部分表面形成有透明膜，使前述透明膜的折射率為 n_k 時，前述透明膜的厚度為 $(10 \sim 180)/n_k$ (單位：奈米)。

(13) 如(12)之螢光體，其中前述透明膜的折射率 n_k 為 1.2 以上、2.5 以下。

(14) 如(12)或(13)之螢光體，其中前述透明膜的折射率 n_k 為 1.5 以上、2.0 以下。

(15) 一種螢光體之製法，其特徵係具備：混煉製程，其係混煉原料來製造原料混合物；焙燒製程，其係焙燒前述原料混合物；及熱處理製程，其係熱處理前述所焙燒而成的原料混合物。

(16) 如(15)之螢光體之製法，其中在前述熱處理製程之前具備將前述焙燒後之原料混合物的成塊粉碎分級之製程，且在前述熱處理將該粉碎分級後的原料混合物的成塊熱處理，進而具備將該熱處理的成塊粉碎分級之製程。

(17) 如(15)或(16)之螢光體之製法，其中含有 M (M 係選自

由 $M(0)$ 、 $M(1)$ 所組成的元素群組中且具有 II 價的價數之元素之一種以上)之化合物，係至少以選自 MSi_2 、 $MSiN_2$ 、 $M_2Si_5N_8$ 、 $M_3Al_2N_4$ 、 MSi_6N_8 之一種以上的原料作為起始原料。

(18) 如(15)至(17)項中任一項之螢光體之製法，其中至少含有 $LiSi_2N_3$ 作為起始原料。

(19) 如(15)至(18)項中任一項之螢光體之製法，其中預先合成具有目標組成的螢光體作為螢光體粉末，並將其作為種子且添加至前述原料混合物。

(20) 如(16)至(19)項中任一項之螢光體之製法，其中使用由氧化鋁焙燒體、氧化鋯焙燒體、氮化矽焙燒體或 α -賽隆焙燒體製的粉碎介質或襯裏材所構成的粉碎裝置，來將焙燒後之前述原料混合物的成塊粉碎至平均粒徑為 50 微米以下。

(21) 如(16)至(20)項中任一項之螢光體之製法，其中使用由氧化鋁焙燒體、氧化鋯焙燒體、氮化矽焙燒體或 α -賽隆焙燒體製的粉碎介質或襯裏材所構成的粉碎裝置，來將焙燒後之前述熱處理物的成塊粉碎至平均粒徑為 20 微米以下。

(22) 如(16)至(21)項中任一項之螢光體之製法，其中將焙燒後之前述原料混合物的成塊粉碎物進行水力淘析分級。

(23) 如(16)至(22)項中任一項之螢光體之製法，其中將焙燒後之前述熱處理物的成塊粉碎物進行水力淘析分級。

(24) 如(15)至(23)項中任一項之螢光體之製法，其中更具備造粒製程，其係藉由將前述原料混合物噴霧乾燥來調整

前述原料粉末的凝集體之粒徑。

(25) 如(15)至(24)項中任一項之螢光體之製法，其中前述混煉製程係使用濕式碾磨機將前述原料粉末與溶劑一同混煉之製程。

(26) 如(15)至(25)項中任一項之螢光體之製法，其中前述焙燒製程係在 0.1MPa 以上、100MPa 以下的壓力之氮氣環境中於 1500℃ 以上、2200℃ 以下的溫度範圍進行焙燒之製程。

(27) 如(15)至(26)項中任一項之螢光體之製法，其中前述焙燒製程係在碳或含碳化合物的共存下進行焙燒之製程。

(28) 如(15)至(27)項中任一項之螢光體之製法，其中前述焙燒製程係收容於焙燒用容器而進行焙燒之製程。

(29) 如(15)至(28)項中任一項之螢光體之製法，其中前述焙燒製程係在保持在體密度為 40% 以下的填充率之狀態進行焙燒之製程。

(30) 如(15)至(29)項中任一項之螢光體之製法，其中前述焙燒製程係在保持前述原料混合物的整體體積與前述焙燒用容器的體積比率為 20 體積% 以上填充率之狀態進行焙燒之製程。

(31) 如(15)至(30)項中任一項之螢光體之製法，其中前述焙燒用容器的材質係氧化鋁、氧化鈣、氧化鎂、石墨或氮化硼之任一種。

(32) 如(15)至(31)項中任一項之螢光體之製法，其中前述熱處理製程係在選自氮、氬、氫之 1 種或 2 種以上的環境中，以 600℃ 以上、2200℃ 以下的溫度進行熱處理之製程。

(33) 如(15)至(32)項中任一項之螢光體之製法，其中具備透明膜形成製程，其係使螢光體的粉末懸浮於有機溶劑，並滴加有機金屬錯合物或金屬烷氧化物，在前述螢光體的至少一部分表面形成透明膜。

(34) 如(15)至(32)項中任一項之螢光體之製法，其中具備透明膜形成製程，其係使螢光體的粉末懸浮於水，並邊保持 pH 為一定邊滴加金屬鹽水溶液，在前述螢光體的至少一部分表面形成透明膜。

(35) 一種發光裝置，其特徵係由發光光源及螢光體所構成之發光裝置，使用如(1)至(14)項中任一項之螢光體作為前述螢光體。

(36) 如(35)之發光裝置，其係由發光光源及螢光體所構成之發光裝置，更使用 $\text{CaAlSiN}_3:\text{Eu}$ 作為前述螢光體。

(37) 如(35)或(36)之發光裝置，其中前述發光光源係發出 330~500 奈米波長的光線之 LED 晶片、無機 EL 晶片或有機 EL 晶片之任一種。

(38) 如(37)之發光裝置，其中前述 LED 晶片的發光波長的最大強度為 330~500 奈米。

(39) 如(37)或(38)之發光裝置，其中前述 LED 晶片的發光係紫外光。

(40) 如(37)或(38)之發光裝置，其中前述 LED 晶片的發光波長的最大強度為 380~410 奈米。

(41) 如(37)、(38)或(40)中任一項之發光裝置，其中前述 LED 晶片的發光係藍色。

(42) 如(37)至(41)項中任一項之發光裝置，其中藉由使用

前述 LED 晶片激發螢光體來構成白色的 LED 元件。

(43) 如(42)之發光裝置，其中通常認為前述 LED 元件的白光發光色之現色性為 70 以上。

(44) 如(42)或(43)之發光裝置，其中通常認為前述 LED 元件的發光光譜之半值寬度為 100 奈米以上。

(45) 如(38)或(39)之發光裝置，其中藉由使用產生紫外線之前述 LED 晶片激發螢光體來構成有色的 LED 元件。

(46) 如(45)之發光裝置，其中藉由使用產生紫外線之前述 LED 晶片激發螢光體來構成綠色的 LED 元件。

(47) 如(45)之發光裝置，其中藉由使用產生紫外線之前述 LED 晶片激發螢光體來構成藍綠色的 LED 元件。

(48) 如(45)之發光裝置，其中藉由使用產生紫外線之前述 LED 晶片激發螢光體來構成藍色的 LED 元件。

(49) 如(37)至(48)項中任一項之發光裝置，其中前述發光裝置係砲彈型 LED 元件或表面封裝型 LED 元件中任一種。

(50) 如(49)之發光裝置，其中前述發光裝置係在經配線之基板直接封裝前述 LED 晶片而成之晶片搭載基板。

(51) 如(37)至(50)項中任一項之發光裝置，其中在前述發光裝置的基板及/或反射器部含有樹脂。

(52) 如(51)之發光裝置，其中前述樹脂係熱固性樹脂。

(53) 如(37)至(52)項中任一項之發光裝置，其中在前述發光裝置的基板及/或反射器部含有陶瓷製構件。

(54) 如(35)至(53)項中任一項之發光裝置，其中前述螢光體係分散在包圍前述 LED 晶片而形成的密封樹脂中。

(55) 如(54)之發光裝置，其中前述密封樹脂係在至少一部

分的區域含有聚矽氧烷樹脂。

(56) 如(54)或(55)之發光裝置，其中前述密封樹脂係在至少一部分的區域含有聚甲基矽氧烷(methyl silicone)樹脂。

(57) 如(54)至(56)項中任一項之發光裝置，其中前述密封樹脂係在至少一部分的區域含有聚苯基矽氧烷(phenyl silicone)樹脂。

(58) 如(54)至(57)項中任一項之發光裝置，其中前述螢光體系在前述 LED 晶片附近以高密度的方式被分散在前述密封樹脂中。

(59) 如(54)至(58)項中任一項之發光裝置，其中以覆蓋前述密封樹脂的方式形成另外的密封樹脂。

(60) 如(37)至(59)項中任一項之發光裝置，其中前述螢光體系直接黏附在前述 LED 晶片。

(61) 如(60)之發光裝置，其中前述螢光體系以覆蓋前述 LED 晶片的至少一面之方式被直接黏附。

(62) 如(61)之發光裝置，其中前述螢光體系成為層狀。

(63) 如(62)之發光裝置，其中前述螢光體的厚度為 1 微米至 100 微米。

(64) 如(37)至(63)項中任一項之發光裝置，其中前述 LED 晶片係大於一邊 350 微米平方的面積。

(65) 如(37)至(64)項中任一項之發光裝置，其中前述發光裝置係含有複數個 LED 晶片。

(66) 如(37)至(65)項中任一項之發光裝置，其中前述發光裝置係每 1 組件投入 0.2W 以上的電力而使用。

(67) 如(37)至(66)項中任一項之發光裝置，其中前述 LED

晶片係每 1 個組件的平面面積密度投入 $1.5 \times 10^4 \text{ W/m}^2$ 以上的電力而使用。

(68) 如(37)至(66)項中任一項之發光裝置，其中前述 LED 晶片係每 1 個組件的平面面積密度投入 $5 \times 10^4 \text{ W/m}^2$ 以上的電力而使用。

[發明之效果]

依照上述的構成，能夠提供一種顯示比先前的螢光體更高亮度及更優良的安定性之螢光體及製法，以及使用其而成之發光裝置。

因為本發明的螢光體其特徵係具有通式 $M(0)_a M(1)_b M(2)_{x-(v_m+n)} M(3)_{(v_m+n)-y} O_n N_{z-n}$ 所示組成的螢光材料之螢光體，且其構成採取調整 $M(0)$ 、 $M(1)$ 、 $M(2)$ 、 $M(3)$ 、 O 、 N 的原子比而成的組成比，來滿足以下全部， $M(0)$ 係選自 Li 、 Na 、 Be 、 Mg 、 Ca 、 Sr 、 Ba 、 Sc 、 Y 、 La 、 Gd 、 Lu 之 1 種以上的元素， $M(1)$ 係選自 Mn 、 Ce 、 Pr 、 Nd 、 Sm 、 Eu 、 Tb 、 Dy 、 Ho 、 Er 、 Tm 、 Yb 之 1 種以上的活化劑， $M(2)$ 係選自 Si 、 Ge 、 Sn 、 Ti 、 Hf 、 Zr 之 1 種以上的元素， $M(3)$ 係選自 Be 、 B 、 Al 、 Ga 、 In 、 Tl 、 Zn 之 1 種以上的元素， O 元素係氧， N 元素係氮，且 x 、 y 、 z 係 $33 \leq x \leq 51$ ， $8 \leq y \leq 12$ ， $36 \leq z \leq 56$ ， a 、 b 係 $3 \leq a+b \leq 7$ ， $0.001 \leq b \leq 1.2$ ， m 、 n 係 $m_e = a+b$ 時， $0.8 \cdot m_e \leq m \leq 1.2 \cdot m_e$ ， $0 \leq n \leq 7$ ， v 係 $v = \{a \cdot v(0) + b \cdot v(1)\} / (a+b)$ (其中， $v(0)$ 係 $M(0)$ 離子的價數， $v(1)$ 係 $M(1)$ 離子的價數)，能夠顯示高亮度的發光。

因為本發明的螢光體係由前面所記載的螢光體與另外的材料所構成之螢光體，其構成係前面所記載的螢光體之

含有率為 80 體積 % 以上，殘餘部為選自 β -賽隆 (β -Sialon)、未反應的氮化矽或氮化鋁、氧氮化物玻璃、 $\text{SrSiAl}_2\text{N}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Sr}_2\text{Al}_2\text{Si}_{10}\text{N}_{14}\text{O}_4$ 、 $\text{SrSi}_{(10-n)}\text{Al}_{(18+n)}\text{O}_n\text{N}_{(32-n)}$ ($n \sim 1$)、 SrSi_6N_8 之一種以上，能夠得到充分高的發光強度。

因為本發明的螢光體，其構成係平均粒徑為 0.1 微米以上、50 微米以下的粉體，所以表面缺陷沒有影響且激發光的吸收充分，能夠得到高發光強度。

因為本發明的螢光體，其構成係構成螢光體的一次粒子的平均縱橫比為 20 以下，所以不只是螢光體在樹脂中的分散性提升，而且能夠有效率地吸收激發光，能夠得到充分高的發光強度。

因為本發明的螢光體，其構成係含有微量的氟或硼作為不純物，能夠更改善發光強度。

因為本發明的螢光體之製法，係含有 M (M 係選自由 M(0)、M(1) 所組成的元素群組中且具有 II 價的價數之元素之一種以上) 之化合物，且其構成係至少以選自 MSi_2 、 MSiN_2 、 $\text{M}_2\text{Si}_5\text{N}_8$ 、 $\text{M}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 、 MSi_6N_8 之一種以上的原料作為起始原料，在焙燒製程之反應性提升，能夠得到更高亮度之螢光體。

又，本發明的螢光體之製法，因為含有 Li 之化合物係至少含有以 LiSi_2N_3 作為起始原料之構成，在焙燒製程之反應性提升，能夠得到更高亮度之螢光體。

本發明的螢光體之製法，因為係在原料混合物添加預先合成之具有目標組成的螢光粉末作為種子而成之構成，能夠促進合成反應，且能夠在低溫合成，能夠得到更高結

晶度之螢光體且能夠提升螢光體的發光強度。

在此，亦可按照必要在該原料化合物添加助熔劑並混合。助熔劑能夠使用鹼金屬的鹵化物或鹼土類金屬的鹵化物等，例如相對於 100 質量份螢光體原料，在 0.01~20 質量份的範圍添加。

前述原料粉體混合物的凝集體能夠藉由混煉製程及造粒製程來得到，該混煉製程係使用濕式碾磨機將原料粉末與溶劑一同混煉；而該造粒製程係使用噴霧乾燥器將前述混合製程所得到的混煉物噴霧乾燥，來調整前述原料粉末的凝集體之粒徑。

本發明的螢光體之製法，因為其構成係在 0.1MPa 以上、100MPa 以下的壓力之氮氣環境中於 1500℃ 以上、2200℃ 以下的溫度範圍進行焙燒製程，藉由充分的環境壓力，原料化合物不會揮發或組成偏移，並藉由充分的溫度，時間效率良好，又，原料亦不會熔融而且能夠得到高發光強度的螢光體。

本發明的螢光體之製法，因為其構成係在碳或含碳化合物的共存下進行焙燒製程，由於原料混合物係與還原性環境接觸，特別是使用氧含量多的原料化合物時，能夠得到高亮度的螢光體。

本發明的螢光體之製法，因為其構成係在保持體密度為 40% 以下的填充率狀態下進行焙燒製程，能夠使滿足經濟性、品質之任一者的要求。

又，將原料粉末混合物的凝集體保持體密度為 40% 以下的填充率狀態之方法，能夠採用將在前述造粒製程造粒

而成的凝集體粉末收容在焙燒用容器而進行焙燒之方法。

本發明的螢光體之製法，因為其構成係在原料混合物的整體體積與焙燒用容器的體積之比率保持在 20 體積 % 以上的填充率下進行焙燒製程，能夠得到高亮度的螢光體。

本發明的螢光體之製法，因為其構成係將焙燒後的原料混合物之成塊，使用由氧化鋁焙燒體、氧化鋇焙燒體、氮化矽焙燒體或 α -賽隆焙燒體製的粉碎介質或襯裏材所構成的粉碎裝置，來將焙燒後之前述原料混合物的成塊粉碎至平均粒徑為 20 微米以下，能夠抑制在粉碎製程混入不純物。

又，本發明的螢光體之製法，因為其構成係熱處理製程在選自氮、氬、氫之 1 種或 2 種以上的環境中、600℃ 以上、2200℃ 以下的溫度進行熱處理，能夠降低在粉碎製程導入之缺陷等，能夠使發光強度回復。

本發明的螢光體之製法，因為其特徵係具有通式 $M(0)_a M(1)_b M(2)_{x-(v_m+n)} M(3)_{(v_m+n)-y} O_n N_{z-n}$ 所示組成的螢光材料之螢光體，且其構成採取調整 $M(0)$ 、 $M(1)$ 、 $M(2)$ 、 $M(3)$ 、 O 、 N 的原子比而成的組成比，來滿足以下全部， $M(0)$ 係選自 Li 、 Na 、 Be 、 Mg 、 Ca 、 Sr 、 Ba 、 Sc 、 Y 、 La 、 Gd 、 Lu 之 1 種以上的元素， $M(1)$ 係選自 Mn 、 Ce 、 Pr 、 Nd 、 Sm 、 Eu 、 Tb 、 Dy 、 Ho 、 Er 、 Tm 、 Yb 之 1 種以上的活化劑， $M(2)$ 係選自 Si 、 Ge 、 Sn 、 Ti 、 Hf 、 Zr 之 1 種以上的元素， $M(3)$ 係選自 Be 、 B 、 Al 、 Ga 、 In 、 Tl 、 Zn 之 1 種以上的元素， O 元素係氧， N 元素係氮，且 x 、 y 、 z 係 $33 \leq x \leq 51$ ， $8 \leq y \leq 12$ ， $36 \leq z \leq 56$ ， a 、 b 係 $3 \leq a+b \leq 7$ ， $0.001 \leq b \leq 1.2$ ，

m 、 n 係 $m_e = a + b$ 時， $0.8 \cdot m_e \leq m \leq 1.2 \cdot m_e$ ， $0 \leq n \leq 7$ ， v 係 $v = \{a \cdot v(0) + b \cdot v(1)\} / (a + b)$ (其中， $v(0)$ 係 $M(0)$ 離子的價數， $v(1)$ 係 $M(1)$ 離子的價數)，但是在本發明的螢光體的粉末所含有的氧比基於前述通式而計算的氧量多之螢光體亦可。該差分的氧量為 0.4 質量%以下。在此，前述差分的氧係構形成於本發明螢光體的粉末粒子的至少一部分表面之透明膜。

如前述記載，因為本發明的螢光體係在構成螢光體之粒子的至少一部分表面具有厚度 $(10 \sim 180) / n_k$ (單位：奈米) 的透明膜，在此 n_k 係透明膜的折射率且為 $1.2 \sim 2.5$ 之構成，在提升前述粒子的耐氧化性之同時，能夠降低與密封樹脂的折射率差異，來降低在螢光體與密封樹脂的界面之光線的損失。又，前述透明膜的折射率 n_k 以 1.5 以上、2.0 以下為佳。

在本發明的螢光體的粉末粒子的至少一部分表面形成透明膜之方法，可舉出使本發明的螢光體懸浮在有機溶劑並滴加有機金屬錯合物或金屬醇鹽之方法；或使本發明的螢光體懸浮在水中並保持 pH 為一定邊滴加金屬鹽水溶液之方法等。

本發明的發光裝置係由發光光源與螢光體所構成之發光裝置，因為使用本發明的螢光體作為前述螢光體，能夠作為具有充分高亮度及演色性之發光裝置。

本發明的發光裝置之前述發光光源，因為其構成係發出 $330 \sim 500$ 奈米波長的光線之 LED 晶片、無機 EL 晶片或有機 EL 晶片之任一者，本發明的螢光體能夠效率良好地被

激發，能夠作為具有更高亮度及演色性之發光裝置。

本發明的發光裝置係由發光光源與螢光體所構成之發光裝置，因為前述螢光體係使用本發明的螢光體及 $\text{CaAlSiN}_3:\text{Eu}$ 之構成，能夠得到顯示帶紅色成分強之溫白色至橙色的發光之發光裝置。

【實施方式】

以下，說明用以實施本發明之形態。

<實施形態 1：螢光體>

本發明的實施形態 1 之螢光體，其特徵係具有通式 $\text{M}(0)_a\text{M}(1)_b\text{M}(2)_{x-(vm+n)}\text{M}(3)_{(vm+n)-y}\text{O}_n\text{N}_{z-n}$ 所示組成的螢光材料之螢光體。其特徵係調整 $\text{M}(0)$ 、 $\text{M}(1)$ 、 $\text{M}(2)$ 、 $\text{M}(3)$ 、 O 、 N 的原子比，來滿足以下全部，其中， $\text{M}(0)$ 係選自 Li 、 Na 、 Be 、 Mg 、 Ca 、 Sr 、 Ba 、 Sc 、 Y 、 La 、 Gd 、 Lu 之 1 種以上的元素， $\text{M}(1)$ 係選自 Mn 、 Ce 、 Pr 、 Nd 、 Sm 、 Eu 、 Tb 、 Dy 、 Ho 、 Er 、 Tm 、 Yb 之 1 種以上的活化劑， $\text{M}(2)$ 係選自 Si 、 Ge 、 Sn 、 Ti 、 Hf 、 Zr 之 1 種以上的元素， $\text{M}(3)$ 係選自 Be 、 B 、 Al 、 Ga 、 In 、 Tl 、 Zn 之 1 種以上的元素， O 元素係氧， N 元素係氮，且 x 、 y 、 z 係 $33 \leq x \leq 51$ ， $8 \leq y \leq 12$ ， $36 \leq z \leq 56$ ， a 、 b 係 $3 \leq a+b \leq 7$ ， $0.001 \leq b \leq 1.2$ ， m 、 n 係 $m \leq a+b$ 時， $0.8 \cdot m \leq m \leq 1.2 \cdot m$ ， $0 \leq n \leq 7$ ， v 係 $v = \{a \cdot v(0) + b \cdot v(1)\} / (a+b)$ (其中， $v(0)$ 係 $\text{M}(0)$ 離子的價數， $v(1)$ 係 $\text{M}(1)$ 離子的價數)。

藉此，能夠得到充分高的發光強度。又，因為 a 、 b 、 x 、 y 、 z 、 m 、 n 值從上述記載範圍脫離時發光強度降低，乃是不佳。

又，本發明的實施形態之螢光體，可以是前述螢光材料的含有率為 80 體積 % 以上，殘餘部為選自 β -賽隆 (β -Sialon)、未反應的氮化矽或氮化鋁、氧氮化物玻璃、 $\text{SrSiAl}_2\text{N}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Sr}_2\text{Al}_2\text{Si}_{10}\text{N}_{14}\text{O}_4$ 、 $\text{SrSi}_{(10-n)}\text{Al}_{(18+n)}\text{O}_n\text{N}_{(32-n)}$ ($n \sim 1$)、 SrSi_6N_8 之一種以上之螢光體。藉此，能夠得到充分高的發光強度。而且，殘餘部可以是結晶相或非晶相之任一者。又，前述螢光材料的含量若比 80 體積 % 小時，無法得到充分高的發光強度。

在本發明的實施形態之螢光體， n 的值為 $0 \leq n \leq 7$ ，但是使 $M(0)$ 元素的價數為 $v(0)$ ， $M(1)$ 元素的價數為 $v(1)$ ，且 $0 \leq n \leq \{a \cdot v(0) + b \cdot v(1)\} / 2$ 的範圍為佳。

n 的值小於 $\{a \cdot v(0) + b \cdot v(1)\} / 2$ 時，溫度特性提升且同時縱橫比變小，對樹脂的分散性提高之緣故。又， n 的值小於 $\{a \cdot v(0) + b \cdot v(1)\} / 2$ 時，能夠使發光波長位移至長波長側。

另一方面， n 的值大於 $\{a \cdot v(0) + b \cdot v(1)\} / 2$ 時，選自 β -賽隆 (β -Sialon)、未反應的氮化矽或氮化鋁、氧氮化物玻璃、 $\text{SrSiAl}_2\text{N}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Sr}_2\text{Al}_2\text{Si}_{10}\text{N}_{14}\text{O}_4$ 、 $\text{SrSi}_{(10-n)}\text{Al}_{(18+n)}\text{O}_n\text{N}_{(32-n)}$ ($n \sim 1$)、 SrSi_6N_8 之一種以上等另外的結晶相或非晶相的含量增加，可觀察到發光強度有降低之傾向。

$a+b$ 的較佳範圍係 $3 \leq a+b \leq 7$ 。

$a+b$ 的值小於 3 時，因為選自 β -賽隆 (β -Sialon)、未反應的氮化矽或氮化鋁、氧氮化物玻璃、 $\text{SrSiAl}_2\text{N}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Sr}_2\text{Al}_2\text{Si}_{10}\text{N}_{14}\text{O}_4$ 、 $\text{SrSi}_{(10-n)}\text{Al}_{(18+n)}\text{O}_n\text{N}_{(32-n)}$ ($n \sim 1$)、 SrSi_6N_8 之一種以上等另外的結晶相或非晶相的含量增加，致使發

光強度降乃是不佳。

又， $a+b$ 的值大比 7 大時，選自 β -賽隆 (β -Sialon)、未反應的氮化矽或氮化鋁、氧氮化物玻璃、 $\text{SrSiAl}_2\text{N}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Sr}_2\text{Al}_2\text{Si}_{10}\text{N}_{14}\text{O}_4$ 、 $\text{SrSi}_{(10-n)}\text{Al}_{(18+n)}\text{O}_n\text{N}_{(32-n)}$ ($n \sim 1$)、 SrSi_6N_8 之一種以上等另外的結晶相或非晶相的含量增加，發光強度降低且同時溫度特性亦降低，乃是不佳。

b 的值之較佳範圍為 $0.001 \leq b \leq 1.2$ 。 b 的值比 0.001 小時，因為發光原子數太小，無法得到充分的發光強度，又，大於 1.2 時，由於濃度消光致使發光強度降低，任一者都不佳。 b 的值之更佳範圍為 $0.01 \leq b \leq 0.9$ 。在該範圍時，能夠得到充分高的發光強度。又，藉由改變 b 的值，能夠使該螢光體的發光光譜在 490 至 530 奈米之間變化。

$M(0)$ 元素能使用選自 Li、Na、Be、Mg、Ca、Sr、Ba、Sc、Y、La、Gd、Lu 之 1 種以上的元素。特別是構成 $M(0)$ 之元素，因為能夠得到充分高的發光強度，以選自 Ca、Sr、Ba 之一種以上為佳。以 Sr 為更佳。又，使用 Ca 取代 Sr 的一部分時，發光色位移至長波長側，使用 Ba 取代時，發光色位移至短波長側。

$M(1)$ 元素能使用選自 Mn、Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb 之 1 種以上的元素。該等係活化劑。特別是 $M(1)$ 元素以選自 Ce、Eu、Yb 之 1 種以上的元素為佳。又，在本實施形態的螢光體， $M(1)$ 為 Ce 時係顯示白藍色發光，Eu 時係顯示藍綠色發光，Yb 時係顯示綠色發光，
<平均粒徑>

本發明的實施形態之螢光體以平均粒徑為 0.1 微米以

上、50 微米以下的範圍之粉體(粉末)爲佳。

因爲平均粒徑小於 0.1 微米時，表面缺陷的影響變爲顯著，發光強度降低，平均粒徑大於 50 微米時，激發光的吸收變爲不充分，發光強度降低，任一者都不佳。而且，螢光體的粒度能夠使用雷射繞射、散射法來測定。

<平均縱橫比>

本發明的實施形態之螢光體，構成螢光體粉末之一次粒子的平均縱橫比以 20 以下爲佳，藉此，不只是在樹脂中的分散性提升，而且有效率地吸收激發光，能夠得到充分高的發光強度。

平均縱橫比大於 20 時，難以混煉至樹脂，且樹脂與螢光體粒子之界面容易產生空隙。又，平均縱橫比大於 20 時，因爲粒子互相纏繞，或是與激發光平行地配列而成的螢光體粒子對激發光的吸收變爲不充分，致使無法得到充分高的發光強度，乃是不佳。

而且，構成螢光體粉末之一次粒子的形狀爲板狀時，係從剖面形狀來求取縱橫比。

<微量添加元素>

在本發明的實施形態之螢光體，調查微量添加元素與發光特性之關係時，發現含有 5~300ppm 之氟或 10~3000ppm 之硼時，能夠得到更良好的發光特性。

該現象係氟爲 5ppm 以上、硼爲 10ppm 以上時變爲顯著，但是前者大於 300ppm，後者大於 3000ppm 時，無法得到其以上的效果。

<氧量>

在本發明的實施形態之螢光體所含有的氧量，比基於前述通式所計算的值多 0.4 質量%以下時，發光特性更加提升。

在此，多 0.4 質量%以下的氧係構成形成於前述螢光體的粉末粒子的至少一部分表面之透明膜。藉由該透明膜，前述螢光體的粉末粒子的耐氧化性提高，同時與密封樹脂的折射率差異降低。藉此，能夠降低在前述螢光體與密封樹脂的界面之光線的損失。而且，就能夠降低前述螢光體的粒子表面的不成對電子或缺陷而言，對提升發光強度亦是有效的。

<透明膜>

在本發明的實施形態之螢光體的粉末粒子的至少一部分表面，亦可形成透明膜。前述透明膜的厚度為 $(10 \sim 180)/n_k$ (單位奈米)，在此， n_k 係透明膜的折射率且為 1.2 ~ 2.5，以 1.5 以上、2.0 以下為佳。

前述透明膜的厚度該範圍厚時，因為前述透明膜本身吸收光線，致使發光強度降低，乃是不佳。又，前述透明膜的厚度比該範圍薄時，難以形成均勻的透明膜，或是在螢光體與密封樹脂之界面的光線損失的降低效果不充分，乃是不佳。

又，通常前述透明膜的適當厚度係依照前述透明膜的折射率 n_k 來規定，折射率高的透明膜時，即便厚度薄亦能夠達成降低光線損失的目的，折射率低時為了達成前述目的，必須將該厚度增厚。

前述透明膜之較佳材質可例示二氧化矽、氧化鋁、二

氧化鈦、氧化鎂、氟化鎂等的無機物質，聚苯乙烯、聚碳酸酯、聚甲基苯乙烯等的樹脂。

<分散性>

亦可將本發明的實施形態之粉末粒子的表面進行偶合處理。藉此，使前述螢光體分散於樹脂時，能夠提高其分散性，且同時能夠提升樹脂與螢光體的黏附性。

偶合劑能夠使用矽烷偶合劑、鈦酸鹽系偶合劑、鋁酸鹽系偶合劑等。偶合處理亦可按照必要在形成透明膜後進行。

<具有導電性之無機物質>

本發明的實施形態之螢光體係使用於藉由電子射線來激發之用途時，藉由與具有導電性之無機物質混合，能夠賦予前述螢光體導電性。

前述具有導電性無機物質可舉出含有選自 Zn、Al、Ga、In、Sn 之 1 種或 2 種以上的元素之氧化物、氧氮化物或氮化物、或該等的混合物。

<無機螢光體或螢光染料>

本發明的實施形態之螢光體，亦可按照必要混合發出與本發明的實施形態之螢光體所示的螢光材料的發光色不同的顏色之無機螢光體或螢光染料。

如上述進行所得本發明的實施形態之螢光體，與通常的氧化物螢光體比較，具有電子射線或 X 線、及從紫外線至可見光為止之廣闊幅度的激發範圍，特別是使用 Eu 作為活化劑時，其特徵係呈現 480 奈米至 540 奈米的綠藍色～綠色。

藉由以上的發光特性，係適合於照明器具、顯示器具、畫像顯示裝置、顏料、紫外線吸收劑等的發光器具。而且加上即便曝露於高溫亦不會劣化的緣故，耐熱性優良且在氧化環境及水分環境下長期間的安定性亦優良。

本發明的實施形態之螢光體係未規定其製法，能夠依照下述的方法來製造高亮度的螢光體。

<螢光體的製法>

本發明的實施形態之螢光體的製法，具備以下製程：
● 混煉製程，其係混煉原料來製造原料混合物；焙燒製程，其係焙燒前述原料混合物；第 1 粉碎分級製程，其係將焙燒後之原料混合物的成塊粉碎分級之製程；熱處理製程，其係熱處理前述所焙燒而成的原料混合物之製程；及第 2 粉碎分級製程，其係將該熱處理的成塊粉碎分級之製程。

而且，亦可省略第 1 及第 2 粉碎分級製程。

<混煉製程>

● M(1)的金屬能夠使用矽化物、氧化物、碳酸鹽、氮化物、氧氮化物、氯化物、氟化物、氧氟化物、氫氧化物、草酸鹽、硫酸鹽、硝酸鹽、有機金屬化合物或藉由加熱形成氧化物、氮化物、氧氮化物之化合物或複合物等作為原料。

又，M(0)的金屬能夠使用矽化物、氧化物、碳酸鹽、氮化物、氧氮化物、氯化物、氟化物、氧氟化物、氫氧化物、草酸鹽、硫酸鹽、硝酸鹽、有機金屬化合物或藉由加熱形成氧化物、氮化物、氧氮化物之化合物或複合物等。

而且，M(2)或 M(3)的金屬能夠使用矽化物、氧化物、

碳酸鹽、氮化物、氧氮化物、氯化物、氟化物、氧氟化物、氫氧化物、草酸鹽、硫酸鹽、硝酸鹽、有機金屬化合物或藉由加熱形成氧化物、氮化物、氧氮化物之化合物或複合物等。

該等之中，作為 M(1)的原料以氧化物、氮化物為佳，作為 M(0)的原料以氧化物、碳酸鹽、氮化物、矽化物為佳，作為 M(2)或 M(3)的原料以氧化物、氮化物、矽化物為佳，

又，合成以三價的銻原料作為起始原料且以 Eu 作為活化劑之螢光體時，前述三價的銻原料能夠以氮化銻或氧化銻作為原料混合物的起始原料。

氧化銻係在焙燒過程被還原成為 2 價。又，通常，在氮化物原料含有不純物的氧，該氧或氧化銻所含有的氧係成為螢光體的不純物或另外的結晶相的構成元素。

而且，在碳或含碳化合物的共存下焙燒原料混合物時，能夠強烈地將氧化銻還原，能夠降低氧量。

銻在正二價時係顯示良好的發光。因此，使用含有三價的銻之化合物時，藉由焙燒過程來還原係必要的。

在本發明的實施形態之螢光體所含有的總銻，二價及三價佔有的比率係二價越多越佳，二價佔有總銻的比率以 50%以上為佳，以 80%以上為更佳。

三價的銻殘留時，因為會顯示與二價的銻不同波長的發光，會導致發光色的變化，乃是不佳。

而且，銻之二價與三價的比率能夠依照 X 線吸收微細結構 (XAFS: X-ray absorption fine structure) 解析法來分析。

又，按照必要亦可預先合成本發明的實施形態之螢光體的粉末，並以其作為種子而添加在原料混合物並一同混合。因為進行添加上述種子時能夠促進合成反應，能夠在低溫合成、或能夠得到結晶度高的螢光體，會有能提高發光強度之情況。

相對於 100 質量份螢光體原料，前述種子的添加量以 1～50 質量份的範圍為佳。

而且，含有 M(M 係選自由 M(0)、M(1)所組成的元素群組中且具有 II 價的價數之元素之一種以上)之化合物，可以至少以選自 MSiN_2 、 $\text{M}_2\text{Si}_5\text{N}_8$ 、 $\text{M}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 、 MSi_6N_8 之一種以上的原料作為起始原料。又，前述起始原料亦可含有 LiSi_2N_3 作為含 Li 之化合物。

含有 M 或 Li 時，合成 n 的值係比 $\{a \cdot v(0) + b \cdot v(1)\} / 2$ 小的組成之螢光體時，必須使用 M 或 Li 的氮化物等作為原料，但是因為該等氮化物在空氣中容易被氧化，所以稱量、混合等的製程必須在將空氣隔離的工具袋(glove box)中處理。而且，通常在焙燒爐填充原料混合物，直至除去爐內的空氣為止，因為原料混合物係曝露在空氣，即便在工具袋中進行秤稱、混合等的製程，亦無法避免原料混合物之一定的氧化。

另一方面， MSiN_2 、 $\text{M}_2\text{Si}_5\text{N}_8$ 、 $\text{M}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 、 MSi_6N_8 、 LiSi_2N_3 等的化合物，因為在空氣中安定，在稱量、混合等製程或在焙燒爐填充原料混合物，至除去爐內的空氣為止之間沒有氧化的顧慮。

上述原料的粉末即便藉由未使用溶劑之乾式研磨機亦

能夠混合，但是通常係藉由濕式研磨機並與溶劑一同混合。採用使用溶劑之濕式研磨機能夠在短時間得到微觀性均勻的混合粉末。

研磨機的種類能夠使用球磨機、振動磨機、磨碎機等，從設備費用的觀點，以球磨機為適合。

混合所使用的溶劑能夠使用乙醇、甲醇、異丙醇、己烷、丙酮及水等，考慮安定性等及防止原料粉末的氧化時，以乙醇、己烷之任一者為佳。

原料粉末與混合溶劑的比率決定混合漿體的黏度。較佳的混合漿體黏度為 50～500cps 左右。混合溶劑的黏度小於 50cps 時，因為混合漿體的乾燥所需要的能量增大，乃是不佳。另一方面，混合溶劑的黏度大於 500cps 時，因為需要長時間來得到均勻的混合粉末，乃是不佳。

<造粒製程>

亦可具備造粒製程用以藉由將原料混合物噴霧乾燥來調整原料粉末的凝集體之粒徑。藉此，流動性優良，能夠得到流動性優良且容易處理的原料粉末之凝集體。

使用濕式研磨機將原料粉末與溶劑混合來製造混合漿體後，將其乾燥得到混合粉末。所得到的混合漿體亦可靜置於乾燥機等來使溶劑蒸發，但是使用噴霧乾燥機時不必顧慮原料粉末的再分離，能夠在短時間得到除去溶劑而成的混合粉末。又，因為使用噴霧乾燥機所得到的混合粉末係呈現數十至數百微米的顆粒狀，所以流動性優良且容易處理。

混合粉末可按照必要使用加工成型來製成具有 40%以

下的體密度之成形體。藉由將原料粉末製成成形體，能夠防止在焙燒製程等因真空脫氣而飛散。

<焙燒製程>

焙燒係將原料混合物放入焙燒用容器，在 0.1MPa 以上、100MPa 以下的壓力之氮氣環境下進行。

氮氣環境壓力小於 0.1MPa 時，原料混合物的揮發變為顯著且產生組成偏移，致使發光強度降低。另一方面，因為氮氣環境壓力即便大於 100MPa，抑制原料混合物的揮發之效果亦未改變，係不經濟的，任一者都不佳。

焙燒溫度係在 1500℃ 以上、2200℃ 以下的範圍進行。焙燒溫度比 1500℃ 低時，需要長時間來得到本發明的實施形態之螢光體，高於 2200℃ 時原料開始熔融，任一者均是不佳。

因為焙燒溫度係高溫且焙燒環境為含有氮之惰性環境，前述焙燒所使用的爐以金屬電阻加熱方式或石墨電阻加熱方式的爐為佳，從後述之理由，爐的高溫部之材料以使用碳之電爐為佳。因為係在將體密度保持較低的狀態進行焙燒，焙燒的方法以常壓燒結法或氣壓燒結法等未自外部施加機械性加壓之燒結方法為佳。

在碳或含碳化合物的共存下焙燒時，因為原料混合物與還原性環境接觸，特別是使用含氧量多的原料化合物時，因為能夠得到高亮度的螢光體，乃是較佳。

在此所使用的碳或含碳化合物若是無定形碳、石墨、碳化矽等即可，沒有特別限定，以無定形碳、石墨為佳。可例示碳黑、石墨粉末、活性碳、碳化矽粉末等及該等的

成型加工品、燒結體等，任一者均能夠得到同樣的效果。

共存的態樣有使粉末狀碳含有在原料混合物中之情況；使用由碳或含碳化合物所構成的焙燒用容器之情況；在由碳或含碳化合物所構成的焙燒用容器的內部或外部配置碳或含碳化合物之情況；及使用由碳或含碳化合物所構成的發熱體或絕熱體之情況等。採用任一者的配置方法都能夠得到同樣的效果。

上述的原料混合物的混合粉末係在保持體密度為 40% 以下的填充率之狀態進行焙燒時即可。

保持體密度為 40% 以下的填充率而進行焙燒，係因為在原料粉末的周圍係自由的空間之狀態焙燒時，反應生成物係在自由的空間，所以結晶成長所引起的結晶之間的接觸少，能夠合成表面缺陷少的結晶之緣故。

又，體密度係指粉末的體積填充率，係將填充於焙燒用容器時之質量與體積的比除以金屬化合物的理論密度而得到的值。

又，前述焙燒用容器的材質，能夠使用氧化鋁、氧化鈣、氧化鎂、石墨或氮化硼，從與金屬化合物的反應性低而言，以氮化硼燒結體為佳。

原料混合物的填充量係在保持體密度為 40% 以下的填充率之狀態，原料混合物的整體體積與焙燒用容器的體積之比率以 20 體積% 以上為佳。

藉由使原料混合物的填充量為焙燒用容器的 20 體積% 以上而焙燒，能夠抑制在原料混合物所含有的揮發性成分的揮發，且能夠抑制在焙燒過程組成的偏移。又，在焙燒

用容器中原料混合物的填充量增大，亦是經濟的。

<第 1 粉碎分級製程>

焙燒所得到原料混合物的成塊，亦即含有本發明的實施形態之螢光體之焙燒塊，能夠藉由氧化鋁燒結體、氧化鋯燒結體、氮化矽燒結體或 α 賽隆燒結體製的粉碎介質或襯裏材所構成之球磨機、噴射碾磨機等在工廠通常使用的粉碎機(粉碎裝置)來粉碎。

粉碎係施行至前述成塊的平均粒徑為 50 微米以下。平均粒徑大於 50 微米時粉體的流動性及在樹脂中的分散性變差，且與發光元件組合形成發光裝置時因部位而發光強度不均勻。以粉碎至平均粒徑為 20 微米以下為更佳。

平均粒徑的下限沒有特別限定，通常為了粉碎至 0.5 微米以下時需要長時間，而且，因為螢光體粉末表面的缺陷變多，會有導致發光強度降低之情形。

使前述粉碎介質或襯裏材為氧化鋁燒結體、氧化鋯燒結體、氮化矽燒結體或 α 賽隆燒結體製，係因為在粉碎過程能夠抑制不純物混入，而且，混入的不純物亦不會使發光強度大幅度地降低之緣故。

又，使用由含有鐵或鐵屬元素的粉碎介質或襯裏材所構成的粉碎機進行粉碎時，因為螢光體會著色成為黑色，而且在後述之熱處理製程，鐵或鐵屬元素被收容至螢光體中，致使發光強度顯著地降低，乃是不佳。

藉由前述粉碎所得到螢光體的粉末係按照必要而進行分級，來成為需要的粒度分布。

分級的方法能夠使用篩選、風力分級、在液體中的沈

降法及淘汰管分級等方法。以將原料混合物的成塊粉碎物進行水力淘析分級為佳。

又，該分級製程在表面處理製程後進行亦無妨。

<熱處理製程>

焙燒後的螢光體粉末、或粉碎處理後的螢光體粉末、或是藉由分級調整粒度後的螢光體粉末，係提供至按照必要在選自氮、氬、氫之 1 種或 2 種以上的環境中、 600°C 以上、 2200°C 以下的溫度進行熱處理之製程。藉此，例如能夠降低在粉碎製程導入之缺陷等，能夠使發光強度回復。

前述熱處理溫度比 600°C 低時，除去螢光體的缺陷之效果減少，需要長時間來使發光強度回復，乃是不佳。

另一方面，熱處理溫度比 2200°C 高時，因螢光體粉末的一部分熔融，或粒子之間再次黏結，乃是不佳。

前述熱處理以在選自氮、氬、氫之 1 種或 2 種以上的環境中進行為佳。在該等環境中進行熱處理時，螢光體粉末不會被氧化，能夠除去缺陷。

又，環境壓力係與焙燒同樣，以在 0.1MPa 以上、 100MPa 以下的壓力進行為佳，環境壓力小於 0.1MPa 時，依照熱處理溫度，螢光體構成元素的一部分會揮發，致使發光強度降低。另一方面，氮環境壓力即便大於 100MPa ，抑制原料混合物的揮發之效果沒有變化，係不經濟的，任一者均不佳。

而且，焙燒後藉由將生成物使用由水或酸水溶液所構成的溶劑洗淨，能夠降低在生成物所含有之玻璃相、第二相或不純物相的含量，亮度提升。此時，酸能夠選自硫酸、

鹽酸、硝酸、氫氟酸、有機酸的單體或該等的混合物，其中使用氫氟酸及硫酸的混合物時，除去不純物的效果大。

<第 2 粉碎分級製程>

進而按照必要，與第 1 粉碎分級製程同樣地進行，使用由氧化鋁燒結體、氧化鋯燒結體、氮化矽燒結體或 α 賽隆燒結體製的粉碎介質或襯裏材所構成粉碎裝置來粉碎至平均粒徑為 20 微米以下。

<透明膜形成製程>

按照必要，在前述螢光體的至少一部分表面進行用以形成透明膜之透明膜形成製程。

在本發明的實施形態之螢光體的表面形成透明膜之方法，例如使用攪拌機或超音波分散裝置，使前述螢光體粉末懸浮在醇等的有機溶劑中，並在該懸浮液滴加有機金屬錯合物或金屬醇鹽與氨水溶液等鹼性的水溶液，在前述螢光體的粒子表面形成金屬氧化物或金屬氫氧化物的皮膜，隨後，按照必要在空氣中或氮等的非氧化性環境中焙燒之方法。前述透明膜的厚度能夠藉由改變滴加條件或攪拌、懸浮條件來控制。

又，使用攪拌機或超音波分散裝置來使前述螢光體粉末懸浮於水（調整 pH 後的酸、鹼或緩衝液），並邊將 pH 邊保持一定邊滴加金屬鹽水溶液，在前述螢光體的粒子表面形成該金屬的氧化物或氫氧化物的皮膜後，過濾、洗淨、乾燥，且按照必要在空氣中或氮等的非氧化性環境中進行焙燒。而且，在該方法亦能夠藉由改變金屬鹽水溶液的滴加條件或攪拌、懸浮條件，來控制前述透明膜的厚度。

<不純物>

爲了得到發光亮度高的螢光體，不純物的含量以非常少爲佳。特別是因爲大量含有 Fe、Co、Ni 不純物元素時會阻礙發光，以該等元素的合計爲 500ppm 以下的方式，來進行控制原料粉末的選定及合成製程爲佳。

本發明的實施形態之螢光體的製法，其構成係將能夠構成本發明的實施形態之螢光體之原料混合物，在 0.1MPa 以上、100MPa 以下的壓力的氮氣環境中，於 1500℃ 以上、2200℃ 以下的溫度範圍進行焙燒，能夠得到發光強度高的螢光體。

<發光裝置>

本發明的實施形態之發光裝置，係至少使用發光光源及本發明的實施形態之螢光體而構成。利用前述發光裝置而成的照明裝置，有 LED 照明裝置、EL 照明裝置及螢光燈等。

例如，LED 照明裝置係使用本發明的實施形態之螢光體，並依照如特開平 5-152609 號公報及特開平 7-99345 號公報等所記載之眾所周知的方法來製造。

「第一實施形態」

作爲本發明的發光裝置之第一實施形態，係說明砲彈型白色發光二極體燈(LED 照明裝置：LED 元件)。

第 1 圖係本發明的第一實施形態之發光裝置之砲彈型白色發光二極體燈 1 的剖面圖。

如第 1 圖所示，砲彈型白色發光二極體燈 1 具備第一導線 2 及第二導線 3，且第一導線 2 具有凹部 2a，在該凹

部 2a 藏置有發光二極體元件(LED 晶片)4。發光二極體元件 4 之下部電極 4a 係藉由導電性糊與凹部 2a 的底面電連接，上部電極 4b 係藉由黏晶線(金細線)5 與第二導線 3 電連接。

第一樹脂(密封樹脂)6 係分散有螢光體 7 之透明樹脂，並被覆發光二極體元件 4 的整體。包含凹部 2a(分散有螢光體 7 之第一樹脂 6)之第一導線 2 的前端部 2b、發光二極體元件 4、分散有螢光體 7 之第一樹脂 6 係被透明的第二樹脂(另外的密封樹脂)8 密封。

因為第二樹脂 8 之整體係呈大略圓柱形狀，且其前端部係透鏡狀的曲面，通常稱為砲彈型。第一樹脂 6 與第二樹脂 8 的材料係以聚矽氧烷樹脂為佳，但是聚碳酸酯、環氧樹脂等另外的樹脂或玻璃等的透明材料亦可。以儘可能選定因紫外線光線而劣化少的材料為佳。

第一樹脂 6 及第二樹脂 8 可以使用相同的樹脂，亦可使用不同的樹脂，就製造的容易度或黏著性良好而言，以使用相同的樹脂為佳。

螢光體 7 係使用在一部分表面形成有透明膜者時，分散有螢光體 7 之第一樹脂 6 的折射率以接近前述透明膜的折射率者為佳。藉此，能夠抑制在前述透明膜與第一樹脂 6 的界面之反射。

又，此時，在分散螢光體 7 而成之第一樹脂的外側，若配置有折射率比第一樹脂 6 低的樹脂(第 2 樹脂)時，能夠成為具有更高亮度之發光裝置。

藉由發光二極體元件(LED 晶片)4 的發光，因為分散於

第一樹脂 6 之螢光體 7 係被激發之構成，能夠提升發光強度。又，能夠呈現各式各樣的發光色。而且，白色發光時能夠提高演色性。

「第二實施形態」

作為本發明的發光裝置之第二實施形態，係說明基板封裝用晶片型白色發光二極體燈(LED 照明裝置：LED 元件)。

第 2 圖係本發明的發光裝置之第二實施形態之基板封裝用晶片型白色發光二極體燈 11 的剖面圖。

如第 2 圖所示，基板封裝用晶片型白色發光二極體燈 11 係在可見光反射率高之使用白色氧化鋁陶瓷而成的陶瓷基板 19 上固定有第一導線 12 及第二導線 13，該等的端部 12a、端部 13a 係位於基板 19 的大致中央部，相反側的端部 12b、端部 13b 係各自伸出外部，且封裝時係被焊接於電基板而成為電極。第一導線 12 的端部 12a 係以成為基板中央部的方式藏置固定有發光二極體元件(LED 晶片)4。發光二極體元件 4 之下部電極 4a 與第一導線 12 係藉由導電性糊電連接，且上部電極 4b 與第二導線 13 係藉由黏晶線(金細線)15 電連接。

第一樹脂(密封樹脂)16 係分散有螢光體 17 之透明樹脂，其被覆發光二極體元件 4 的整體。又，在陶瓷基板 19 上固定有壁面構件 20，且在壁面構件 20 的中央部形成有碗狀的孔穴 20a。

孔穴 20a 係收存發光二極體元件 4 及分散有螢光體 17 之第一樹脂 16 者，面向中央之部分係成為斜面 20b。該斜

面 20b 爲使光於前方取出用之反射面，該斜面 20b 的曲面形狀係考慮光線的反射方向來決定。又，至少構成反射面之斜面 20b 係具有白色或金屬光澤之可見光反射率高的面。

壁面構件 20 係例如以白色的聚矽氧烷樹脂等形成即可，中央部的孔穴 20a 係形成凹部作爲晶片型發光二極體燈的最後形狀，在此係填充透明的第二樹脂(另外的密封樹脂)18，來密封發光二極體元件 4 及分散有螢光體 17 之第一樹脂 16 的全部。

第一樹脂 16 與第二樹脂 18 的材料係以聚矽氧烷樹脂爲佳，但是聚碳酸酯、環氧樹脂等另外的樹脂或玻璃等的透明材料亦可。以儘可能選定因紫外線光線而劣化少的材料爲佳。

第一樹脂 16 及第二樹脂 18 可以使用相同的樹脂，亦可使用不同的樹脂，就製造的容易度或黏著性良好而言，以使用相同的樹脂爲佳。

藉由發光二極體元件(LED 晶片)4 的發光，因爲分散於第一樹脂 16 之螢光體 17 係被激發之構成，能夠提升發光強度。又，能夠呈現各式各樣的發光色。而且，白色發光時能夠提高演色性。

「第三實施形態」

作爲本發明的發光裝置之第三實施形態，係說明基板封裝用晶片型白色發光二極體燈(LED 照明裝置：LED 元件)。

第 3 圖係本發明的發光裝置之第三實施形態之基板封

裝用晶片型白色發光二極體燈 111 的剖面圖。

如第 3 圖所示，基板封裝用晶片型白色發光二極體燈 111 係在可見光反射率高之使用白色氧化鋁陶瓷而成的陶瓷基板 19 上固定有第一導線 12 及第二導線 13，該等的端部 12a、端部 13a 係位於基板 19 的大致中央部，相反側的端部 12b、端部 13b 係各自伸出外部，且封裝時係被焊接於電基板而成爲電極。第一導線 12 的端部 12a 係以成爲基板中央部的方式藏置固定有發光二極體元件(LED 晶片)24。

而且，發光二極體元件 24 係使用 350 微米平方大小藍色 LED 晶片，並使用樹脂糊晶黏於第一導線(導線框架)12 上。又，導線(導線框架)12、13 能夠使用施加鍍銀而成的銅製導線框架，基板 19 能夠使用以耐綸樹脂成型而成之陶瓷基板。

發光二極體元件 24 能夠使用在一面側形成有 2 個電極 24a、24b 之發光元件，一個電極 24a 與第一導線(導線框架)12 係藉由黏晶線(金細線)15 電連接，另外電極 24b 與第二導線(導線框架)13 係藉由黏晶線(金細線)15 電連接。

與第二實施形態同樣地，具備有壁面構件 20。將含有螢光體而成之第一樹脂 16 以覆蓋發光二極體元件 24 且填埋壁面構件 20 的孔穴 20a 的方式適量地滴加，使其硬化而作爲基板封裝用晶片型白色發光二極體燈(LED 照明裝置)(發光裝置)。

而且，發光二極體元件 24 亦可製造封裝複數個 350 微

米平方大小的藍色 LED 晶片而成之發光裝置組件，並且從將其裁剪成作為個片而成的發光裝置組件，依照色調、發光強度來揀選作為製品。

藉由發光二極體元件(LED 晶片)24 的發光，因為分散在第 1 樹脂 16 之螢光體 17 被激發之構成，能夠提升發光強度。又，能夠呈現各式各樣的發光色。而且，白色發光時能夠提高演色性。

「第四實施形態」

作為本發明的發光裝置之第四實施形態，係說明基板封裝用晶片型白色發光二極體燈(LED 照明裝置：LED 元件)。

第 4 圖係本發明的發光裝置之第四實施形態之基板封裝用晶片型白色發光二極體燈 112 的剖面圖。

如第 4 圖所示，基板封裝用晶片型白色發光二極體燈 112 除了設置有未分散有螢光體之第二樹脂 18 以外，係與第三實施形態的發光裝置 111 相同構成。在基板中央藏置固定有發光二極體元件(LED 晶片)24。又，對同一構件係附加同一符號。

藉由發光二極體元件(LED 晶片)24 的發光，因為分散在第 1 樹脂 16 之螢光體 17 被激發之構成，能夠提升發光強度。又，能夠呈現各式各樣的發光色。而且，白色發光時能夠提高演色性。

「第五實施形態」

作為本發明的發光裝置之第五實施形態，係說明基板封裝用晶片型白色發光二極體燈(LED 照明裝置：LED 元

件)。

第 5 圖係本發明的發光裝置之第五實施形態之基板封裝用晶片型白色發光二極體燈 113 的剖面圖。

如第 5 圖所示，除了基板封裝用晶片型白色發光二極體燈 113 之螢光體 23 係以覆蓋發光二極體元件(LED 晶片)24 的一面之方式直接黏附，且未分散有螢光體之第二樹脂(另外的密封樹脂)18 係以覆蓋發光二極體元件 24 且填埋壁面構件 20 的孔穴 20a 之方式形成以外，係與第三實施形態的發光裝置 111 相同構成。在基板中央藏置固定有發光二極體元件(LED 晶片)24。又，對同一構件係附加同一符號。

藉由發光二極體元件(LED 晶片)24 的發光，因為形成於發光二極體 24 的一面之螢光體 23 被激發之構成，能夠提升發光強度。又，能夠呈現各式各樣的發光色。而且，白色發光時能夠提高演色性。

以下，說明在第一實施形態至第五實施形態的發光裝置之共通構成及效果。

<發光光源>

發光光源(發光二極體元件 4、24)以發出 330~470 奈米波長的光線為佳，其中以 330~420 奈米的紫外(或紫)發光元件或 420~470 奈米的藍色發光元件為佳。

<LED 晶片>

本發明的實施形態之發光裝置 1、11、111、112、113，因為發光光源係使用 LED 晶片之構成，除了能夠減小裝置尺寸，能夠抑制消耗電力以外，能夠價廉地大量處理。

又，因為含有本發明的實施形態之螢光體之構成，以 LED 所發出的藍色光作為激發光源，能夠提高通常發光強度低的波長區域之發光強度，能夠提升白色發光的現色性。特別是能夠作為現色性 70 以上之 LED 發光裝置。

使用 LED 晶片作為前述發光光源時，就發光效率而言，以使用氮化鎵系化合物半導體為佳。

LED 晶片能夠依照 MOCVD 法或 HVPE 法在基板上形成氮化物系化合物半導體，較佳是形成 $\text{In}_\alpha \text{Al}_\beta \text{Ga}_{1-\alpha-\beta} \text{N}$ (其中， $0 \leq \alpha$ 、 $0 \leq \beta$ 、 $\alpha + \beta \leq 1$) 作為發光層。半導體的結構可舉出 MIS 接合、PIN 接合或 pn 接合等之同質結構、異質結構或雙異質結構者。能夠依照其半導體層的材料或其混晶度來選擇各種發光波長。又，亦可以是使用產生量子效果的薄膜形成半導體活性層而成之單一量子井結構或多重量子井結構。

作為 LED 晶片所使用的氮化鎵系化合物半導體具有 2.4 ~ 2.5 左右之非常高的折射率。

因此，使用氮化鎵系化合物半導體時，要求具有高折射率之樹脂。從此觀點而言，含有螢光體之第 1 樹脂亦以具有高折射率之樹脂為佳。另一方面，為了提高從發光元件取出光線的效率，配置在第 1 樹脂的外側之第 2 樹脂以使用折射率比第 1 樹脂低之樹脂為佳。

<EL 元件>

使用 EL 元件作為前述發光光源時，若發光光譜能夠在 330 奈米 ~ 470 奈米發光者，能夠使用而沒有限制，因此，無機、有機任一者的 EL 元件都可使用。

前述 EL 元件為無機 EL 時，薄膜型、分散型進而直流驅動型、交流驅動型之任一者均無妨。又，有助於 EL 發光之螢光體亦沒有特別限定，以使用硫化物系為佳。

前述 EL 元件為有機 EL 時，積層型、摻雜型進而低分子系、高分子系之任一者均無妨。

在本發明的實施形態之發光裝置 1、11、111、112、113，除了單獨使用本發明的實施形態之螢光體之方法以外，藉由並用具有其他發光特性之螢光體，能夠構成需要顏色的發光裝置。

其一個例子有組合 330～420 奈米的紫外線 LED 發光元件；被該波長激發且在 420 奈米以上、480 奈米以下的波長具有發光尖峰之藍色螢光體；將發光色調整為綠色之本發明的實施形態之螢光體；及紅色螢光體。前述藍色螢光體可舉出 $\text{BaMgAl}_{10}\text{O}_{17}:\text{Eu}$ 等，前述紅色螢光體可舉出 $\text{CaAlSiN}_3:\text{Eu}$ 等。該構成時，LED 發出的紫外線照射各螢光體時，同時發出藍、綠、紅之 3 色的光線，該等光線被混合而成為白色的發光裝置。

又，在本發明的實施形態之發光裝置 1、11、111、112、113，藉由組合 330～420 奈米的紫外線 LED 發光元件； $\text{BaMgAl}_{10}\text{O}_{17}:\text{Eu}$ 等的藍色螢光體；將發光色調整為綠色之本發明的實施形態之螢光體或 β -賽隆螢光體等的綠色螢光體； α -賽隆等的黃色螢光體及 $\text{CaAlSiN}_3:\text{Eu}$ 等的紅色螢光體，能夠作為演色性非常高的發光裝置。

又，本發明的實施形態之發光裝置 1、11、111、112、113 係由 420～470 奈米的藍色 LED 發光元件及螢光體所構

成的發光裝置，藉由組合將發光色調整為綠色而成之本發明的實施形態的螢光體及 $\text{CaAlSiN}_3:\text{Eu}$ 等的紅色螢光體，成為白色的發光裝置。

又，本發明的實施形態之發光裝置 1、11、111、112、113 係在由 420~470 奈米的藍色 LED 發光元件，藉由組合將發光色調整為藍綠色而成之本發明的實施形態的螢光體、將發光色調整為綠色而成之本發明的實施形態的螢光體或 β -賽隆螢光體或 $\text{Ca}_3\text{Sc}_2\text{Si}_3\text{O}_{12}:\text{Ce}$ 等綠色螢光體、 α -賽隆、YAG:Ce 等的黃色螢光體及 $\text{CaAlSiN}_3:\text{Eu}$ 等的紅色螢光體，能夠作為演色性非常高的發光裝置。

而且，因為本發明的實施形態之發光裝置 1、11、111、112、113，因為其構成係具備以能夠藉由紫外線激發之螢光體；及作為其激發光源且發光波長的最大強為 380~410 奈米之 LED 作為構成要素，能夠構成只感覺螢光體所發出光的顏色之有色 LED 元件。

例如，能夠製造藍色、藍綠色的 LED。又，本發明的實施形態之螢光體，其發光特性不容易受到溫度的影響，使用由此種螢光體發光之有色 LED，因為未觀察到特別是在綠色的 LED 會成為問題之因電流值引起的波長位移，乃是優良的。

<發光裝置的形態>

本發明的實施形態之發光裝置 1、11、111、112、113 係使用 LED 晶片作為光源時，發光裝置的形態通常係砲彈型 LED 元件或表面封裝型 LED 元件之任一者。因為該等形態的元件之規格確立且被廣泛使用，產業上的使用係容易

的。

而且，發光裝置的形態亦可以是在已配線的基板上直接封裝 LED 晶片而成的晶片搭載基板(chip-on board)。此時能夠按照用途採用依客戶需求製造之形態，能夠使用於將溫度特性優良之本發明的螢光體特性活用化之用途。

<樹脂構件>

本發明的實施形態之發光裝置 1、11、111、112、113，其構成 LED 元件之樹脂構件之中，以至少在基板及/或反射部含有樹脂製或陶瓷製的構件為佳。

因為樹脂製的構件價廉且能夠容易地製造，乃是較佳。樹脂的種類以耐熱性高且反射率亦高者為佳，以耐綸等為佳。因為熱固性樹脂之耐熱性高，同時能夠比較價廉地製造，乃是較佳。又，因為陶瓷製的構件之耐熱性亦非常優良，乃是較佳。

<密封樹脂>

本發明的實施形態之發光裝置 1、11、111、112、113，能夠是在以包圍 LED 晶片的方式之密封樹脂中，使螢光體分散之構成。藉由如此的構成能夠容易地製造發光裝置。

又，該 LED 晶片的密封樹脂以在至少一部分區域含有聚矽氧烷樹脂為佳。因為該聚矽氧烷樹脂對短波長的光線具有耐性，能夠適合密封短波長的 LED 晶片。而且，藉由樹脂係具有柔軟性之甲基聚矽氧烷樹脂，能夠避免焊接線斷裂。另一方面，具有剛性之苯基聚矽氧烷樹脂亦佳。此時，能夠防止濕氣等貫穿晶片，在高濕等嚴格的環境使用時係適合的。

<螢光體分散方法>

在本發明的實施形態之發光裝置 1、11、111、112、113，LED 晶片的附近係以高密度的方式分散螢光體為佳。藉由在 LED 晶片的附近配置螢光體，能夠有效率地使激發光導入螢光體。

又，本發明的實施形態之螢光體，因為與其他螢光體比較，因溫度引起的特性變化較少，藉由在 LED 晶片的附近配置螢光體，即便受到來自 LED 晶片產生的熱致使螢光體的溫度上升，特性的變化亦可以較小。

在 LED 晶片的附近配置螢光體之方法，能夠採取使用含有螢光體之第一樹脂(密封樹脂)密封 LED 晶片的附近，且使用第二樹脂(另外的密封樹脂)密封其外周之方法。該方法以能夠價廉地實施為佳。第一樹脂以含有耐熱性高的聚矽氧烷樹脂為佳。

同樣地，在 LED 晶片的附近配置螢光體之方法，亦能夠採用直接將螢光體黏附於 LED 晶片之方法。例如，能夠覆蓋 LED 晶片的至少一面而直接使螢光體黏附。能夠使用旋轉塗布或蒸鍍、濺鍍法等，在晶圓的階段至 LED 晶片的至少一面層狀地堆積螢光體。使用該方法時，因為能夠控制螢光體層而均勻地形成，乃是較佳。此時，因為藉由使螢光體層的厚度為 1 微米至 100 微米，能夠透射螢光體層而從 LED 晶片取出光線，適合於混色來製成白色光。

在本發明的實施形態之發光裝置 1、11、111、112、113，因為所使用螢光體的溫度特性良好，以使用在產生大量的熱之使用方法為佳。例如，LED 元件每 1 組件每 1 組件投

入 0.2 W 以上的電力而使用時為佳。而且，所含有的 LED 晶片係每 1 個組件的平面面積密度投入 $1.5 \times 10^4 \text{ W/m}^2$ 以上的電力而使用時為佳。而且，所含有的 LED 晶片係每 1 個組件的平面面積密度投入 $5 \times 10^4 \text{ W/m}^2$ 以上的電力而使用為更佳。

又，通常投入大電力而使用時係設想 LED 元件所含有的 LED 晶片係大於一邊 350 微米平方的面積時，含有複數個 LED 晶片時及 LED 晶片係覆晶時等。

在本發明的實施形態之發光裝置 1、11、111、112、113，因為藉由紫外線亦能夠激發之構成，藉由將數種類來自螢光體的發光混色，能夠作為白色 LED。此時，藉由本發明的實施形態之螢光體，能夠進行藍、綠的任一者或其雙方的發色，但是該等以外必須含有呈紅色的螢光體。藉由將如此的 3 色混色所形成的白色，能夠具有良好的演色性。

又，只有將綠色作為本發明的實施形態之螢光體，與激發光亦能夠從 LED 發出藍色發色的光線。

而且，因為其構成可以是包含 2 種類以上之不同組成的本發明實施形態之螢光體，能夠使發光光譜成為演色性優良且連續光譜的發光。

而且，藉由含有使組成階段性地變化而成的螢光體群，亦能夠形成希望的連續光譜。而且，藉由所合成的發光光譜之半值寬度為 100 奈米以上，能夠得到良好的演色性。

以下，基於實施例具體地說明本發明，但是本發明未只有限定於此等實施例。

[實施例]

<實施例 1 ~ 10>

首先，說明實施例 1 ~ 10 的螢光體之製法。

原料粉末係使用平均粒徑 0.5 微米、氧含量為 0.93 質量 %、 α 型含有率為 92% 的氮化矽粉末 (Si_3N_4)、氮化鋁粉末 (AlN)、氮化鋇粉末 (Sr_3N_2)、氧化鋇粉末 (SrO)、氧化鎔粉末 (Eu_2O_3)。

在通式 $\text{M}(0)_a\text{M}(1)_b\text{M}(2)_{x-(vm+n)}\text{M}(3)_{(vm+n)-y}\text{O}_n\text{N}_{z-n}$ ，以成為表 1 所示之 a 、 b 、 m 、 x 、 y 、 z 、 n 的值之方式，依照表 2 所示配合(質量比，在以下另外的實施例亦同樣)稱量上述原料粉末，並使用瑪瑙研杵及研鉢進行混合 30 分鐘。又， $\text{M}(1)$ 係 Eu 。

[表 1]

	a	b	m	x	y	z	n
實施例 1	5.820	0.180	6.000	42.000	10.000	46.000	6.000
實施例 2	4.820	0.180	5.000	42.000	10.000	46.000	5.000
實施例 3	3.820	0.180	4.000	42.000	10.000	46.000	4.000
實施例 4	6.820	0.180	7.000	42.000	10.000	46.000	7.000
實施例 5	5.820	0.180	6.000	42.000	10.000	46.000	5.000
實施例 6	5.820	0.180	6.000	42.000	10.000	46.000	4.600
實施例 7	5.820	0.180	6.000	42.000	10.000	46.000	4.300
實施例 8	5.820	0.180	6.000	42.000	10.000	46.000	2.000
實施例 9	5.820	0.180	6.000	42.000	10.000	46.000	1.000
實施例 10	5.820	0.180	6.000	42.000	10.000	46.000	0.180

[表 2]

	SrO(g)	Sr ₃ N ₂ (g)	Si ₃ N ₄ (g)	AlN(g)	Eu ₂ O ₃ (g)	發光強度 (計量)	發光波長 (奈米)
實施例 1	2.893	0	5.383	1.573	0.152	100	504
實施例 2	2.499	0	6.317	1.026	0.158	97	504
實施例 3	2.070	0	7.336	0.429	0.166	93	503
實施例 4	3.255	0	4.523	2.077	0.146	90	502
實施例 5	2.397	0.465	5.609	1.377	0.152	96	504
實施例 6	2.198	0.651	5.7	1.298	0.152	101	504
實施例 7	2.049	0.791	5.768	1.240	0.152	103	505
實施例 8	0.906	1.864	6.29	0.788	0.152	102	505
實施例 9	0.408	2.33	6.518	0.591	0.152	98	506
實施例 10	0	2.713	6.705	0.430	0.152	96	507

將所得到的混合粉末放入鋁製的模具並製造體密度為約 25% 的成形體，且填充至氮化硼 (hBN) 製坩堝。前述成形體的體積與坩堝體積的比率為 80%。又，粉末的稱量、混合、成形之各製程全部係在能夠保持水分 1ppm 以下、氧 1ppm 以下的氮氣環境之工具袋 (glove box) 中操作。

將填充有該混合粉末之前述氮化硼製的坩堝，安裝於以碳纖維成形體作為絕熱材而成之石墨電阻加熱方式的電爐。

焙燒係首先使用擴散泵使焙燒環境成為真空，並以每小時 500℃ 的速度從室溫加熱至 1000℃，且在 1000℃ 導入純度為 99.999 體積 % 之氮氣而使壓力為 0.9MPa，並且以每小時 600℃ 的速度升溫至 1900℃，且在 1900℃ 保持 2 小時

來進行。

焙燒後，將該所得到的焙燒體(焙燒塊)粗粉碎後，使用氮化矽焙燒體製的研鉢而以手粉碎，且使用30微米網眼的篩而成爲平均粒徑爲11微米的螢光體粉末(實施例1~10)。

接著，使用螢光分光光度計測定該螢光體粉末(實施例1~10)的發光光譜及激發光譜。

第6圖係實施例1的螢光體的發光光譜及激發光譜的測定結果。如第6圖所示，實施例1的螢光體的激發光譜的尖峰波長爲370奈米，使用450奈米的藍色光激發之發光光譜的尖峰波長爲504奈米。又，尖峰波長的發光強度爲100計量。

第7圖係實施例7的螢光體的發光光譜及激發光譜的測定結果。如第7圖所示，實施例7的螢光體的激發光譜之尖峰波長爲370奈米，使用450奈米的藍色光激發之發光光譜的尖峰波長爲504奈米。又，尖峰波長的發光強度爲103計量。

該等螢光體粉末(實施例1~10)的發光尖峰的發光強度及發光波長係如表2所示。又，發光強度的計量值係任意單位且係依照測定裝置或條件而變化(以下、相同)。

第10圖係實施例1的螢光體的粉末X線繞射圖形的測定結果。如第10圖所示，能夠得到由主要繞射尖峰所構成之粉末X線繞射圖形。

第11圖係實施例7的螢光體的粉末X線繞射圖形的測定結果。如第11圖所示，能夠得到由主要繞射尖峰所構成

之粉末 X 線繞射圖形。

在實施例 2～6、實施例 8～10 的螢光體，亦與實施例 1、7 同樣地，能夠得到由主要繞射尖峰所構成之粉末 X 線繞射圖形。

將該等螢光體粉末(實施例 1～10)以濕度 80%、溫度 80℃ 的條件使其曝露 100 小時，幾乎未觀察到亮度的降低。

接著，對該等螢光體粉末(實施例 1～10)，按照必要邊照射 365 奈米的紫外線邊進行光學顯微鏡觀察。

從試料的體色、粒子形狀及照射紫外線時的發光色，確認由選自 β -賽隆、未反應的氮化矽或氮化鋁、氧氮化物玻璃、 $\text{SrSiAl}_2\text{N}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Sr}_2\text{Al}_2\text{Si}_{10}\text{N}_{14}\text{O}_4$ 、 $\text{SrSi}_{(10-n)}\text{Al}_{(18+n)}\text{O}_n\text{N}_{(32-n)}(n \sim 1)$ 、 SrSi_6N_8 之一種以上所構成的非發光相或顯示與 504 奈米附近的藍綠不同的發光之結晶相的比率係體積比為 20%以下。

又，對實施例 1 的螢光體培育單結晶，並解析結晶結構時，得知具有表 3 及表 4 所示之結晶結構。又，在表 4， $M(0, 1)$ 係 $M(0)$ 元素與 $M(1)$ 元素無秩序地進入之位置， $M(2, 3)$ 係 $M(2)$ 元素與 $M(3)$ 元素無秩序地放入之位置， $M(O, N)$ 係 O 元素與 N 元素無秩序地放入之位置，

[表 3]

結晶系	單斜晶系
空間群	P1 21 1
晶格常數(a)	14.6970(9)
晶格常數(b)	9.036(2)
晶格常數(c)	7.4677(7)

[表 4]

位置	佔有率	x	y	z
M(0, 1)1	1	0.08405(5)	0.517265	-0.74677(6)
M(0, 1)2	1	0.58104(4)	-0.01664(4)	0.73684(6)
M(0, 1)3	1	0.74895(4)	0.49871(11)	-0.75193(6)
M(2, 3)1	1	0.08979(18)	0.1903(2)	-0.4430(3)
M(2, 3)2	1	0.59158(18)	0.3117(2)	0.4431(3)
M(2, 3)3	1	0.40896(16)	0.1656(2)	-0.5106(3)
M(2, 3)4	1	0.90852(18)	0.3403(2)	0.5148(2)
M(2, 3)5a	0.5	0.7776(3)	0.1668(4)	-0.5103(5)
M(2, 3)5b	0.5	0.7223(4)	0.1841(5)	0.5570(7)
M(2, 3)6a	0.5	0.2770(3)	0.3383(5)	0.5136(5)
M(2, 3)6b	0.5	0.2215(3)	0.3178(4)	0.4420(6)
M(2, 3)7	1	0.10065(17)	0.6428(2)	-0.1522(3)
M(2, 3)8	1	0.60206(18)	-0.1604(2)	0.1383(3)
M(2, 3)9	1	0.30049(19)	0.6408(2)	-0.1370(3)
M(2, 3)10	1	0.80168(14)	-0.1554(2)	0.1266(3)
M(2, 3)11	1	0.50024(15)	0.6374(2)	-0.1348(3)
M(2, 3)12	1	0.99998(17)	-0.1517(3)	0.1244(3)
M(2, 3)13	1	0.69884(16)	0.6390(2)	-0.1447(3)
M(2, 3)14	1	1.19840(18)	-0.1546(3)	0.1310(3)
M(2, 3)15	1	0.89924(18)	0.6473(2)	-0.1430(2)
M(2, 3)16	1	1.39950(17)	-0.1617(2)	0.1320(2)
M(O, N)1	1	0.4149(7)	-0.0051(9)	-0.4099(6)
M(O, N)2	1	0.9157(6)	0.5041(5)	0.4086(7)
M(O, N)3	1	0.7504(7)	0.0033(10)	-0.4079(7)
M(O, N)4	1	0.4979(6)	0.2285(7)	-0.6514(10)
M(O, N)5	1	0.9992(4)	0.2896(6)	0.6541(3)
M(O, N)6	1	0.6897(4)	0.2283(7)	-0.6545(9)
M(O, N)7	1	1.1914(5)	0.2625(7)	0.6551(10)
M(O, N)8	1	0.3109(4)	0.2058(6)	-0.6424(B)
M(O, N)9	1	0.8099(5)	0.2957(10)	0.6427(11)
M(O, N)10a	0.5	0.0949(11)	0.2415(14)	0.3396(16)
M(O, N)10a	0.5	0.1159(8)	0.2543(11)	0.3489(14)
M(O, N)11a	0.5	0.5942(12)	0.2572(17)	0.658(2)
M(O, N)11b	0.5	0.6148(9)	0.2608(13)	0.6613(17)
M(O, N)12a	0.5	0.8802(10)	0.2100(15)	-0.6333(18)
M(O, N)12b	0.5	0.9034(13)	0.2001(17)	-0.6352(19)
M(O, N)13a	0.5	0.3796(8)	0.3153(11)	0.6378(14)
M(O, N)13b	0.5	0.3996(14)	0.300(2)	0.645(2)
M(O, N)14	1	1.1006(4)	0.2897(5)	-0.0154(6)
M(O, N)15	1	0.9996(5)	0.0389(6)	-0.8842(9)
M(O, N)16	1	0.7039(5)	0.2817(6)	-0.0224(8)
M(O, N)17	1	0.4979(5)	0.2704(6)	-0.0287(8)
M(O, N)18	1	0.4015(5)	0.0324(5)	-0.8798(6)
M(O, N)19	1	0.7982(4)	0.0367(5)	-0.8784(8)
M(O, N)20	1	0.2990(5)	0.2707(6)	-0.0304(9)
M(O, N)21	1	1.1996(4)	0.0389(6)	-0.8933(7)
M(O, N)22	1	0.6001(5)	0.0329(4)	-0.9024(6)
M(O, N)23	1	0.6990(4)	0.2760(5)	-0.0207(7)

<實施例 11 ~ 28>

說明實施例 11 ~ 28 的螢光體之製法。

原料粉末係使用平均粒徑 0.5 微米、氧含量為 0.93 重量 %、 α 型含有率為 92% 的氮化矽粉末、氮化鋁粉末、氮化鋇粉末、氧化鋇粉末、氧化鎔粉末。

在通式 $M(0)_aM(1)_bM(2)_{x-(v+m+n)}M(3)_{(v+m+n)-y}O_nN_{z-n}$ ，以成為表 5 所示之 a 、 b 、 m 、 x 、 y 、 z 、 n 的值之方式，依照表 6 所示調配稱量上述原料粉末，並使用瑪瑙研杵及研鉢進行混合 30 分鐘。又， $M(1)$ 係 Eu。

[表 5]

	a	b	m	x	y	z	n
實施例 11	5.820	0.180	6.000	33.000	8.000	36.000	6.000
實施例 12	5.820	0.180	6.000	35.250	8.500	38.500	6.000
實施例 13	5.820	0.180	6.000	37.500	9.000	41.000	6.000
實施例 14	5.820	0.180	6.000	39.750	9.500	43.500	6.000
實施例 15	5.820	0.180	6.000	44.250	10.500	48.500	6.000
實施例 16	5.820	0.180	6.000	46.500	11.000	51.000	6.000
實施例 17	5.820	0.180	6.000	48.750	11.500	53.500	6.000
實施例 18	5.820	0.180	6.000	51.000	12.000	56.000	6.000
實施例 19	5.820	0.180	6.000	33.000	8.000	36.000	4.300
實施例 20	5.820	0.180	6.000	35.250	8.500	38.500	4.300
實施例 21	5.820	0.180	6.000	37.500	9.000	41.000	4.300
實施例 22	5.820	0.180	6.000	39.750	9.500	43.500	4.300
實施例 23	5.820	0.180	6.000	44.250	10.500	48.500	4.300
實施例 24	5.820	0.180	6.000	46.500	11.000	51.000	4.300
實施例 25	5.820	0.180	6.000	48.750	11.500	53.500	4.300
實施例 26	5.820	0.180	6.000	51.000	12.000	56.000	4.300
實施例 27	5.820	0.180	6.000	45.000	12.000	48.000	6.000
實施例 28	2.820	0.180	3.000	33.000	8.000	36.000	3.000

[表 6]

	SrO(g)	Sr ₃ N ₂ (g)	Si ₃ N ₄ (g)	AlN(g)	Eu ₂ O ₃ (g)	發光強度 (計量)	發光波長 (奈米)
實施例 11	3.454	0	4.017	2.348	0.181	95	503
實施例 12	3.294	0	4.406	2.127	0.173	96	504
實施例 13	3.149	0	4.76	1.926	0.165	98	504
實施例 14	3.015	0	5.085	1.742	0.158	98	503
實施例 15	2.78	0	5.657	1.417	0.146	99	504
實施例 16	2.675	0	5.911	1.273	0.141	97	504
實施例 17	2.578	0	6.147	1.139	0.135	97	503
實施例 18	2.488	0	6.366	1.015	0.131	96	504
實施例 19	2.447	0.945	4.476	1.950	0.182	96	504
實施例 20	2.334	0.901	4.844	1.748	0.173	97	505
實施例 21	2.231	0.861	5.179	1.563	0.166	101	505
實施例 22	2.136	0.825	5.486	1.395	0.158	101	504
實施例 23	1.969	0.76	6.028	1.097	0.146	100	505
實施例 24	1.895	0.732	6.268	0.964	0.141	99	505
實施例 25	1.826	0.705	6.491	0.842	0.135	97	506
實施例 26	1.763	0.681	6.699	0.728	0.131	95	504
實施例 27	2.814	0	5.891	1.148	0.148	101	504
實施例 28	1.965	0	7.546	0.276	0.213	92	503

將所得到的混合粉末放入鋁製的模具並製造體密度為約 26% 的成形體，且填充至氮化硼製坩堝。前述成形體的體積與坩堝體積的比率為 80%。又，粉末的稱量、混合、成形之各製程全部係在能夠保持水分 1ppm 以下、氧 1ppm 以下的氮氣環境之工具袋(glove box)中操作。

將填充有該混合粉末之前述氮化硼製的坩堝，安裝於以碳纖維成形體作為絕熱材而成之石墨電阻加熱方式的電爐。

焙燒係首先使用擴散泵使焙燒環境成為真空，並以每小時 500°C 的速度從室溫加熱至 1000°C ，且在 1000°C 導入純度為 99.999 體積 % 之氮氣而使壓力為 0.9MPa ，並且以每小時 600°C 的速度升溫至 1900°C ，且在 1900°C 保持 2 小時來進行。

焙燒後，將該所得到的焙燒體粗粉碎後，使用氮化矽焙燒體製的研鉢而以手粉碎，且使用 30 微米網眼的篩而成為平均粒徑為 12 微米的螢光體粉末(實施例 11~28)。

首先，使用螢光分光光度計測定該螢光體粉末(實施例 11~28)的發光光譜及激發光譜。

第 8 圖係實施例 24 的螢光體的發光光譜及激發光譜的測定結果。如第 8 圖所示，實施例 24 的螢光體的激發光譜的尖峰波長為 370 奈米，使用 450 奈米的藍色光激發之發光光譜的尖峰波長為 505 奈米。又，尖峰波長的發光強度為 99 計量。

第 9 圖係實施例 27 的螢光體的發光光譜及激發光譜的測定結果。如第 9 圖所示，實施例 27 的螢光體的激發光譜的尖峰波長為 370 奈米，使用 450 奈米的藍色光激發之發光光譜的尖峰波長為 504 奈米。又，尖峰波長的發光強度為 101 計量。

各螢光體的激發光譜之尖峰波長為 370 奈米，使用 450 奈米的藍色光激發，顯示藍綠色的發光。螢光體粉末(實施

例 11~18)的發光尖峰的發光強度及發光波長係如表 6 所示。又，發光強度的計量值係任意單位。

第 11 圖係實施例 24 的螢光體的粉末 X 線繞射圖形的測定結果。如第 11 圖所示，能夠得到由主要繞射尖峰所構成之粉末 X 線繞射圖形。

第 12 圖係實施例 27 的螢光體的粉末 X 線繞射圖形的測定結果。如第 12 圖所示，能夠得到由主要繞射尖峰所構成之粉末 X 線繞射圖形。

又，在螢光體粉末(實施例 11~23、23~26、28)，亦與實施例 1 同樣地，能夠得到由主要繞射尖峰所構成之粉末 X 線繞射圖形。

將該等螢光體粉末(實施例 11~28)以濕度 80%、溫度 80℃ 的條件使其曝露 100 小時，幾乎未觀察到亮度的降低。

接著，對該等螢光體粉末(實施例 11~28)，按照必要邊照射 365 奈米的紫外線邊進行光學顯微鏡觀察。

從試料的體色、粒子形狀及照射紫外線時的發光色，確認由選自 β -賽隆、未反應的氮化矽或氮化鋁、氧氮化物玻璃、 $\text{SrSiAl}_2\text{N}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Sr}_2\text{Al}_2\text{Si}_{10}\text{N}_{14}\text{O}_4$ 、 $\text{SrSi}_{(10-n)}\text{Al}_{(18+n)}\text{O}_n\text{N}_{(32-n)}(n\sim 1)$ 、 SrSi_6N_8 之一種以上所構成的非發光相或顯示與 504 奈米附近的藍綠不同的發光之結晶相的比率係體積比為 20%以下。

<實施例 29~44>

說明實施例 29~44 的螢光體之製法。

原料粉末係使用平均粒徑 0.5 微米、氧含量為 0.93 質量%、 α 型含有率為 92%的氮化矽粉末、氮化鋁粉末、氮化

銥粉末、氧化銥粉末、氧化鎔粉末。

在通式 $M(0)_a M(1)_b M(2)_{x-(vm+n)} M(3)_{(vm+n)-y} O_n N_{z-n}$ ，以
成爲表 7 所示之 a、b、m、x、y、z、n 的值之方式，依照
表 8 所示調配稱量上述原料粉末，並使用瑪瑙研杵及研鉢
進行混合 30 分鐘。又，M(1)係 Eu。

[表 7]

	a	b	m	x	y	z	n
實施例 29	5.940	0.060	6.000	42.000	10.000	46.000	6.000
實施例 30	5.880	0.120	6.000	42.000	10.000	46.000	6.000
實施例 31	5.760	0.240	6.000	42.000	10.000	46.000	6.000
實施例 32	5.700	0.300	6.000	42.000	10.000	46.000	6.000
實施例 33	5.550	0.450	6.000	42.000	10.000	46.000	6.000
實施例 34	5.400	0.600	6.000	42.000	10.000	46.000	6.000
實施例 35	5.100	0.900	6.000	42.000	10.000	46.000	6.000
實施例 36	4.800	1.200	6.000	42.000	10.000	46.000	6.000
實施例 37	5.940	0.060	6.000	42.000	10.000	46.000	4.300
實施例 38	5.880	0.120	6.000	42.000	10.000	46.000	4.300
實施例 39	5.760	0.240	6.000	42.000	10.000	46.000	4.300
實施例 40	5.700	0.300	6.000	42.000	10.000	46.000	4.300
實施例 41	5.550	0.450	6.000	42.000	10.000	46.000	4.300
實施例 42	5.400	0.600	6.000	42.000	10.000	46.000	4.300
實施例 43	5.100	0.900	6.000	42.000	10.000	46.000	4.300
實施例 44	4.800	1.200	6.000	42.000	10.000	46.000	4.300

[表 8]

	SrO(g)	Sr ₃ N ₂ (g)	Si ₃ N ₄ (g)	AlN(g)	Eu ₂ O ₃ (g)	發光強度 (計量)	發光波長 (奈米)
實施例 29	2.965	0	5.405	1.579	0.051	91	493
實施例 30	2.929	0	5.394	1.576	0.101	97	500
實施例 31	2.857	0	5.371	1.570	0.202	98	508
實施例 32	2.821	0	5.36	1.566	0.252	95	510
實施例 33	2.733	0	5.333	1.558	0.376	94	513
實施例 34	2.645	0	5.305	1.550	0.499	91	519
實施例 35	2.473	0	5.251	1.535	0.741	87	523
實施例 36	2.304	0	5.199	1.519	0.978	84	526
實施例 37	2.118	0.795	5.792	1.245	0.051	93	494
實施例 38	2.083	0.793	5.78	1.242	0.102	100	502
實施例 39	2.015	0.79	5.756	1.237	0.202	102	508
實施例 40	1.981	0.788	5.744	1.234	0.252	100	512
實施例 41	1.897	0.784	5.714	1.228	0.377	97	516
實施例 42	1.814	0.78	5.685	1.222	0.5	93	521
實施例 43	1.650	0.772	5.627	1.209	0.742	92	524
實施例 44	1.489	0.764	5.571	1.197	0.979	89	528

將所得到的混合粉末放入鋁製的模具並製造體密度為約 24% 的成形體，且填充至氮化硼製坩堝。前述成形體的體積與坩堝體積的比率為 80%。又，粉末的稱量、混合、成形之各製程全部係在能夠保持水分 1ppm 以下、氧 1ppm 以下的氮氣環境之工具袋(glove box)中操作。

將填充有該混合粉末之前述氮化硼製的坩堝，安裝於

以碳纖維成形體作為絕熱材而成之石墨電阻加熱方式的電爐。

焙燒係首先使用擴散泵使焙燒環境成為真空，並以每小時 500°C 的速度從室溫加熱至 1000°C ，且在 1000°C 導入純度為 99.999 體積 % 之氮氣而使壓力為 0.9MPa ，並且以每小時 600°C 的速度升溫至 1900°C ，且在 1900°C 保持 2 小時來進行。

焙燒後，將該所得到的焙燒體粗粉碎後，使用氮化矽焙燒體製的研鉢而以手粉碎，且使用 30 微米網眼的篩而成為平均粒徑為 12 微米的螢光體粉末(實施例 29~44)。

首先，使用螢光分光光度計測定該螢光體粉末(實施例 29~44)的發光光譜及激發光譜。

各螢光體的激發光譜之尖峰波長為 370 奈米，使用 450 奈米的藍色光激發，顯示藍綠色至綠色的發光。螢光體粉末(實施例 29~44)的發光尖峰的發光強度及發光波長係如表 8 所示。又，發光強度的計量值係任意單位。

又，在螢光體粉末(實施例 29~44)，亦與實施例 1 同樣地，能夠得到由主要繞射尖峰所構成之粉末 X 線繞射圖形。

將該等螢光體粉末(實施例 29~44)以濕度 80%、溫度 80°C 的條件使其曝露 100 小時，幾乎未觀察到亮度的降低。

接著，對該等螢光體粉末(實施例 29~44)，按照必要邊照射 365 奈米的紫外線邊進行光學顯微鏡觀察。

從試料的體色、粒子形狀及照射紫外線時的發光色，確認由選自 β -賽隆、未反應的氮化矽或氮化鋁、氧氮化物

玻璃、 $\text{SrSiAl}_2\text{N}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Sr}_2\text{Al}_2\text{Si}_{10}\text{N}_{14}\text{O}_4$ 、 $\text{SrSi}_{(10-n)}\text{Al}_{(18+n)}\text{O}_n\text{N}_{(32-n)}$ ($n \sim 1$)、 SrSi_6N_8 之一種以上所構成的非發光相或顯示與 504 奈米附近的藍綠不同的發光之結晶相的比率係體積比為 20% 以下。

<實施例 45 ~ 56>

說明實施例 45 ~ 56 的螢光體之製法。

原料粉末係使用平均粒徑 0.5 微米、氧含量為 0.93 質量%、 α 型含有率為 92% 的氮化矽粉末、氮化鋁粉末、氮化鋇粉末、氧化鋇粉末、氧化鈣粉末、氧化鎔粉末。

在通式 $\text{M}(0)_a\text{M}(1)_b\text{M}(2)_{x-(vm+n)}\text{M}(3)_{(vm+n)-y}\text{O}_n\text{N}_{z-n}$ ，以成為表 9 所示之 a 、 b 、 m 、 x 、 y 、 z 、 n 的值之方式，依照表 10 所示調配稱量上述原料粉末，並使用瑪瑙研杵及研鉢進行混合 30 分鐘。又， $\text{M}(1)$ 係 Eu。

[表 9]

	a		b	m	x	y	z	n
	Sr	Ca						
實施例 45	0.000	5.820	0.180	6.000	42.000	10.000	46.000	6.000
實施例 46	0.820	5.000	0.180	6.000	42.000	10.000	46.000	6.000
實施例 47	1.820	4.000	0.180	6.000	42.000	10.000	46.000	6.000
實施例 48	2.820	3.000	0.180	6.000	42.000	10.000	46.000	6.000
實施例 49	3.820	2.000	0.180	6.000	42.000	10.000	46.000	6.000
實施例 50	4.820	1.000	0.180	6.000	42.000	10.000	46.000	6.000
實施例 51	5.320	0.500	0.180	6.000	42.000	10.000	46.000	6.000
實施例 52	1.820	4.000	0.180	6.000	42.000	10.000	46.000	4.300
實施例 53	2.820	3.000	0.180	6.000	42.000	10.000	46.000	4.300
實施例 54	3.820	2.000	0.180	6.000	42.000	10.000	46.000	4.300
實施例 55	4.820	1.000	0.180	6.000	42.000	10.000	46.000	4.300
實施例 56	5.320	0.500	0.180	6.000	42.000	10.000	46.000	4.300

[表 10]

	SrO(g)	CaO(g)	Sr ₃ N ₂ (g)	Si ₃ N ₄ (g)	AlN(g)	Eu ₂ O ₃ (g)	發光強度 (計量)	發光波長 (奈米)
實施例 45	0	1.805	0	6.206	1.814	0.175	88	570
實施例 46	0.46	1.518	0	6.075	1.775	0.171	91	563
實施例 47	0.995	1.184	0	5.923	1.731	0.167	94	548
實施例 48	1.505	0.866	0	5.778	1.688	0.163	96	532
實施例 49	1.989	0.564	0	5.64	1.648	0.159	97	523
實施例 50	2.452	0.275	0	5.508	1.61	0.155	99	511
實施例 51	2.675	0.136	0	5.445	1.591	0.154	99	507
實施例 52	0.066	1.185	0.871	6.347	1.364	0.167	92	551
實施例 53	0.598	0.867	0.849	6.192	1.331	0.163	96	533
實施例 54	1.105	0.564	0.829	6.044	1.299	0.159	97	526
實施例 55	1.588	0.276	0.81	5.903	1.269	0.156	99	512
實施例 56	1.821	0.136	0.8	5.835	1.254	0.154	100	508

將所得到的混合粉末放入鋁製的模具並製造體密度為約 25% 的成形體，且填充至氮化硼製坩堝。前述成形體的體積與坩堝體積的比率為 80%。又，粉末的稱量、混合、成形之各製程全部係在大氣中操作。

將填充有該混合粉末之前述氮化硼製的坩堝，安裝於以碳纖維成形體作為絕熱材而成之石墨電阻加熱方式的電爐。

焙燒係首先使用擴散泵使焙燒環境成為真空，並以每小時 500℃ 的速度從室溫加熱至 1000℃，且在 1000℃ 導入純度為 99.999 體積 % 之氮氣而使壓力為 0.9 MPa，並且以每小時 600℃ 的速度升溫至 1900℃，且在 1900℃ 保持 2 小時來進行。

焙燒後，將該所得到的焙燒體粗粉碎後，使用氮化矽焙燒體製的研鉢而以手粉碎，且使用 30 微米網眼的篩而成為平均粒徑為 12 微米的螢光體粉末(實施例 45～56)。

首先，使用螢光分光光度計測定該螢光體粉末(實施例 45～56)的發光光譜及激發光譜。

各螢光體的激發光譜之尖峰波長為 370 奈米，使用 450 奈米的藍色光激發，顯示藍綠色至黃色的發光。螢光體粉末(實施例 45～56)的發光尖峰的發光強度及發光波長係如表 10 所示。又，發光強度的計量值係任意單位。

又，在螢光體粉末(實施例 45～56)，與實施例 1 同樣地，能夠得到由主要繞射尖峰所構成之粉末 X 線繞射圖形。

將該等螢光體粉末(實施例 45～56)以濕度 80%、溫度 80℃ 的條件使其曝露 100 小時，幾乎未觀察到亮度的降低。

接著，對該等螢光體粉末(實施例 45～56)，按照必要邊照射 365 奈米的紫外線邊進行光學顯微鏡觀察。

從試料的體色、粒子形狀及照射紫外線時的發光色，確認由選自 β -賽隆、未反應的氮化矽或氮化鋁、氧氮化物玻璃、 $\text{SrSiAl}_2\text{N}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Sr}_2\text{Al}_2\text{Si}_{10}\text{N}_{14}\text{O}_4$ 、 $\text{SrSi}_{(10-n)}\text{Al}_{(18+n)}\text{O}_n\text{N}_{(32-n)}$ ($n \sim 1$)、 SrSi_6N_8 之一種以上所構成的非發光相或顯示與 504 奈米附近的藍綠不同的發光之結晶相的比率係體積比為 20% 以下。

● <實施例 57～68>

說明實施例 57～68 的螢光體之製法。

原料粉末係使用平均粒徑 0.5 微米、氧含量為 0.93 重量%、 α 型含有率為 92% 的氮化矽粉末、氮化鋁粉末、氮化鋇粉末、氧化鋇粉末、氧化鋁粉末、氧化鎔粉末。

在通式 $\text{M}(0)_a\text{M}(1)_b\text{M}(2)_{x-(v+m+n)}\text{M}(3)_{(v+m+n)-y}\text{O}_n\text{N}_{z-n}$ ，以成為表 11 所示之 a 、 b 、 m 、 x 、 y 、 z 、 n 的值之方式，依照表 12 所示調配稱量上述原料粉末，並使用瑪瑙研杵及研鉢進行混合 30 分鐘。又， $\text{M}(1)$ 係 Eu。

[表 11]

	a		b	m	x	y	z	n
	Sr	Ba						
實施例 57	0.000	5.820	0.180	6.000	42.000	10.000	46.000	6.000
實施例 58	0.820	5.000	0.180	6.000	42.000	10.000	46.000	6.000
實施例 59	1.820	4.000	0.180	6.000	42.000	10.000	46.000	6.000
實施例 60	2.820	3.000	0.180	6.000	42.000	10.000	46.000	6.000
實施例 61	3.820	2.000	0.180	6.000	42.000	10.000	46.000	6.000
實施例 62	4.820	1.000	0.180	6.000	42.000	10.000	46.000	6.000
實施例 63	5.320	0.500	0.180	6.000	42.000	10.000	46.000	6.000
實施例 64	1.820	4.000	0.180	6.000	42.000	10.000	46.000	4.300
實施例 65	2.820	3.000	0.180	6.000	42.000	10.000	46.000	4.300
實施例 66	3.820	2.000	0.180	6.000	42.000	10.000	46.000	4.300
實施例 67	4.820	1.000	0.180	6.000	42.000	10.000	46.000	4.300
實施例 68	5.320	0.500	0.180	6.000	42.000	10.000	46.000	4.300

[表 12]

	SrO(g)	BaO(g)	Sr ₃ N ₂ (g)	Si ₃ N ₄ (g)	AlN(g)	Eu ₂ O ₃ (g)	發光強度 (計量)	發光波長 (奈米)
實施例 57	0	3.758	0	4.727	1.381	0.133	113	446
實施例 58	0.364	3.285	0	4.809	1.405	0.136	110	453
實施例 59	0.826	2.685	0	4.914	1.436	0.139	107	463
實施例 60	1.308	2.059	0	5.023	1.468	0.142	106	475
實施例 61	1.812	1.404	0	5.138	1.501	0.145	103	486
實施例 62	2.34	0.718	0	5.257	1.536	0.148	101	498
實施例 63	2.613	0.363	0	5.319	1.554	0.15	100	503
實施例 64	0.054	2.687	0.722	5.266	1.132	0.139	109	465
實施例 65	0.52	2.060	0.738	5.383	1.157	0.142	107	475
實施例 66	1.006	1.405	0.755	5.505	1.183	0.145	104	489
實施例 67	1.516	0.719	0.773	5.634	1.211	0.148	102	501
實施例 68	1.779	0.364	0.782	5.7	1.225	0.15	101	503

將所得到的混合粉末放入鋁製的模具並製造體密度為約 23% 的成形體，且填充至氮化硼製坩堝。前述成形體的體積與坩堝體積的比率為 80%。又，粉末的稱量、混合、成形之各製程全部係在大氣中操作。

將填充有該混合粉末之前述氮化硼製的坩堝，安裝於以碳纖維成形體作為絕熱材而成之石墨電阻加熱方式的電爐。

焙燒係首先使用擴散泵使焙燒環境成為真空，並以每小時 500℃ 的速度從室溫加熱至 1000℃，且在 1000℃ 導入純度為 99.999 體積 % 之氮氣而使壓力為 0.9 MPa，並且以每小時 600℃ 的速度升溫至 1900℃，且在 1900℃ 保持 2 小時來進行。

焙燒後，將該所得到的焙燒體粗粉碎後，使用氮化矽焙燒體製的研鉢而以手粉碎，且使用 30 微米網眼的篩而成為平均粒徑為 11 微米的螢光體粉末(實施例 57~68)。

首先，使用螢光分光光度計測定該螢光體粉末(實施例 57~68)的發光光譜及激發光譜。

各螢光體的激發光譜之尖峰波長為 370 奈米，使用 400 奈米的藍紫色光激發，顯示藍色至藍綠色的發光。螢光體粉末(實施例 57~68)的發光尖峰的發光強度及發光波長係如表 12 所示。又，發光強度的計量值係任意單位。

又，在螢光體粉末(實施例 57~68)，與實施例 1 同樣地，能夠得到由主要繞射尖峰所構成之粉末 X 線繞射圖形。

將該等螢光體粉末(實施例 57~68)以濕度 80%、溫度 80℃ 的條件使其曝露 100 小時，幾乎未觀察到亮度的降低。

接著，對該等螢光體粉末(實施例 57～68)，按照必要邊照射 365 奈米的紫外線邊進行光學顯微鏡觀察。

從試料的體色、粒子形狀及照射紫外線時的發光色，確認由選自 β -賽隆、未反應的氮化矽或氮化鋁、氧氮化物玻璃、 $\text{SrSiAl}_2\text{N}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Sr}_2\text{Al}_2\text{Si}_{10}\text{N}_{14}\text{O}_4$ 、 $\text{SrSi}_{(10-n)}\text{Al}_{(18+n)}\text{O}_n\text{N}_{(32-n)}(n \sim 1)$ 、 SrSi_6N_8 之一種以上所構成的非發光相或顯示與 504 奈米附近的藍綠不同的發光之結晶相的比率係體積比為 20%以下。

● <實施例 69～73>

說明實施例 69～73 的螢光體之製法。

原料粉末係使用平均粒徑 0.5 微米、氧含量為 0.93 重量%、 α 型含有率為 92%的氮化矽粉末、氮化鋁粉末、氧化鋇粉末、碳酸鋇粉末、 SrSi_2 粉末、 $\text{Sr}_2\text{Si}_5\text{N}_8$ 粉末、 SrSi_6N_8 粉末、 SrSi_2N_2 粉末、氧化銻粉末。

在通式 $\text{M}(0)_a\text{M}(1)_b\text{M}(2)_{x-(vm+n)}\text{M}(3)_{(vm+n)-y}\text{O}_n\text{N}_{z-n}$ ，以成為表 13 所示之 a 、 b 、 m 、 x 、 y 、 z 、 n 的值之方式，依照表 14 所示調配稱量上述原料粉末，並使用瑪瑙研杵及研鉢進行混合 30 分鐘。又， $\text{M}(1)$ 係 Eu。

[表 13]

	a	b	m	x	y	z	n
實施例 69	5.820	0.180	6.000	42.000	10.000	46.000	4.300
實施例 70	5.820	0.180	6.000	42.000	10	46.000	6.000
實施例 71	5.820	0.180	6.000	42.000	10.000	46.000	4.300
實施例 72	5.820	0.180	6.000	42.000	10.000	46.000	4.300
實施例 73	5.820	0.180	6.000	42.000	10.000	46.000	4.300

[表 14]

	SrO(g)	SrCO ₃ (g)	SrSi ₄ (g)	Sr ₂ Si ₃ N ₈ (g)	SrSi ₆ N ₈ (g)	SrSiN ₂ (g)	Si ₃ N ₄ (g)	AlN(g)	Eu ₂ O ₃ (g)	發光強度 (計量)	發光波長 (奈米)
實施例 69	2.130	-	1.220	-	-	-	5.203	1.289	0.158	104.000	505.000
實施例 70	-	3.67	-	-	-	-	4.794	1.401	0.135	101	504
實施例 71	2.049	-	-	1.745	-	-	4.814	1.240	0.152	107.000	505.000
實施例 72	2.065	-	-	-	3.027	-	3.505	1.249	0.153	105.000	505.000
實施例 73	2.049	-	-	-	-	1.173	5.386	1.240	0.152	104.000	505.000

將所得到的混合粉末放入鋁製的模具並製造體密度為約 24% 的成形體，且填充至氮化硼製坩堝。前述成形體的體積與坩堝體積的比率為 80%。又，粉末的稱量、混合、成形之各製程全部係在大氣中操作。

將填充有該混合粉末之前述氮化硼製的坩堝，安裝於以碳纖維成形體作為絕熱材而成之石墨電阻加熱方式的電爐。

焙燒係首先使用擴散泵使焙燒環境成為真空，並以每小時 500℃ 的速度從室溫加熱至 1000℃，且在 1000℃ 導入純度為 99.999 體積 % 之氮氣而使壓力為 0.9 MPa，並且以每小時 600℃ 的速度升溫至 1900℃，且在 1900℃ 保持 2 小時來進行。

焙燒後，將該所得到的焙燒體粗粉碎後，使用氮化矽焙燒體製的研鉢而以手粉碎，且使用 30 微米網眼的篩而成為平均粒徑為 12 微米的螢光體粉末(實施例 69~73)。

首先，使用螢光分光光度計測定該螢光體粉末(實施例 69~73)的發光光譜及激發光譜。

各螢光體的激發光譜之尖峰波長為 370 奈米，使用 450 奈米的藍色光激發，顯示藍綠色的發光。螢光體粉末(實施例 69~73)的發光尖峰的發光強度及發光波長係如表 14 所示。又，發光強度的計量值係任意單位。

又，在螢光體粉末(實施例 69~73)，與實施例 1 同樣地，能夠得到由主要繞射尖峰所構成之粉末 X 線繞射圖形。

將該等螢光體粉末(實施例 69~73)以濕度 80%、溫度 80℃ 的條件使其曝露 100 小時，幾乎未觀察到亮度的降低。

接著，對該等螢光體粉末(實施例 69~73)，按照必要邊照射 365 奈米的紫外線邊進行光學顯微鏡觀察。

從試料的體色、粒子形狀及照射紫外線時的發光色，確認由選自 β -賽隆、未反應的氮化矽或氮化鋁、氧氮化物玻璃、 $\text{SrSiAl}_2\text{N}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Sr}_2\text{Al}_2\text{Si}_{10}\text{N}_{14}\text{O}_4$ 、 $\text{SrSi}_{(10-n)}\text{Al}_{(18+n)}\text{O}_n\text{N}_{(32-n)}(n \sim 1)$ 、 SrSi_6N_8 之一種以上所構成的非發光相或顯示與 504 奈米附近的藍綠不同的發光之結晶相的比率係體積比為 20% 以下。

● <實施例 74~83>

說明實施例 74~83 的螢光體之製法。

原料粉末係使用平均粒徑 0.5 微米、氧含量為 0.93 重量%、 α 型含有率為 92% 的氮化矽粉末、氮化鋁粉末、氧化鋇粉末、氧化釧粉末、碳酸鋰粉末、 SrSi_2 粉末、 Li_3N 粉末、 LiSi_2N_3 粉末、氧化鎔粉末。

在通式 $\text{M}(0)_a\text{M}(1)_b\text{M}(2)_{x-(v_m+n)}\text{M}(3)_{(v_m+n)-y}\text{O}_n\text{N}_{z-n}$ ，以成為表 15 所示之 a 、 b 、 m 、 x 、 y 、 z 、 n 的值之方式，依照表 16 所示調配稱量上述原料粉末，並使用瑪瑙研杵及研鉢進行混合 30 分鐘。又， $\text{M}(1)$ 係 Eu。

[表 15]

	a			b	m	x	y	z	n
	Sr	La	Li						
實施例 74	4.820	1.000	-	0.180	6.000	42.000	10	46.000	6.500
實施例 75	3.820	2.000	-	0.180	6.000	42.000	10	46.000	7.000
實施例 76	2.820	3.000	-	0.180	6.000	42.000	10	46.000	7.500
實施例 77	4.820	1.000	-	0.180	6.000	42.000	10	46.000	4.800
實施例 78	4.820	-	1.000	0.180	6.000	42.000	10	46.000	5.500
實施例 79	3.820	-	2.000	0.180	6.000	42.000	10	46.000	5.000
實施例 80	2.820	-	3.000	0.180	6.000	42.000	10	46.000	4.500
實施例 81	4.820	-	1.000	0.180	6.000	42.000	10	46.000	4.000
實施例 82	4.820	-	1.000	0.180	6.000	42.000	10	46.000	4.000
實施例 83	4.820	-	1.000	0.180	6.000	42.000	10	46.000	4.000

[表 16]

	SrO(g)	SrSi ₂ (g)	La ₂ O ₃ (g)	Li ₂ CO ₃ (g)	Li ₃ N(g)	LiSi ₂ N ₃ (g)	Si ₃ N ₄ (g)	AlN(g)	Eu ₂ O ₃ (g)	發光強度 (計量)	發光波長 (奈米)
實施例 74	2.338872	0.000	0.763	-	-	-	4.926456	1.823481	0.148321	101	505
實施例 75	1.810695	0.000	1.490	-	-	-	4.491525	2.062495	0.144886	102	507
實施例 76	1.306431	0.000	2.185	-	-	-	4.076286	2.290686	0.141606	104	508
實施例 77	1.573553	1.190	0.793	-	-	-	4.733503	1.556107	0.154159	105	508
實施例 78	2.464262	0.000	-	0.182	-	-	5.882644	1.314533	0.156273	102	503
實施例 79	2.010563	0.000	-	0.375	-	-	6.412254	1.040981	0.160878	103	500
實施例 80	1.52931	0.000	-	0.580	-	-	6.97403	0.750814	0.165764	105	498
實施例 81	1.759318	1.103	-	0.189	-	-	5.738653	1.04808	0.161976	105	503
實施例 82	2.022895	0.735	-	-	0.059	-	5.973688	1.047365	0.161865	106	503
實施例 83	2.022884	0.735	-	-	-	0.537281	5.495762	1.047359	0.161864	108	503

將所得到的混合粉末放入鋁製的模具並製造體密度為約 23% 的成形體，且填充至氮化硼製坩堝。前述成形體的體積與坩堝體積的比率為 80%。又，粉末的稱量、混合、成形之各製程全部係在能夠保持水分 1ppm 以下、氧 1ppm 以下的氮氣環境之工具袋(glove box)中操作。

將填充有該混合粉末之前述氮化硼製的坩堝，安裝於以碳纖維成形體作為絕熱材而成之石墨電阻加熱方式的電爐。

焙燒係首先使用擴散泵使焙燒環境成為真空，並以每小時 500℃ 的速度從室溫加熱至 1000℃，且在 1000℃ 導入純度為 99.999 體積 % 之氮氣而使壓力為 0.9MPa，並且以每小時 600℃ 的速度升溫至 1900℃，且在 1900℃ 保持 2 小時來進行。

焙燒後，將該所得到的焙燒體粗粉碎後，使用氮化矽焙燒體製的研鉢而以手粉碎，且使用 30 微米網眼的篩而成為平均粒徑為 11 微米的螢光體粉末(實施例 74~83)。

首先，使用螢光分光光度計測定該螢光體粉末(實施例 74~83)的發光光譜及激發光譜。

各螢光體的激發光譜之尖峰波長為 370 奈米，使用 450 奈米的藍色光激發，顯示藍綠色的發光。螢光體粉末(實施例 74~83)的發光尖峰的發光強度及發光波長係如表 16 所示。又，發光強度的計量值係任意單位。

又，在螢光體粉末(實施例 74~83)，與實施例 1 同樣地，能夠得到由主要繞射尖峰所構成之粉末 X 線繞射圖形。

將該等螢光體粉末(實施例 74~83)以濕度 80%、溫度

80℃ 的條件使其曝露 100 小時，幾乎未觀察到亮度的降低。

接著，對該等螢光體粉末(實施例 74～83)，按照必要邊照射 365 奈米的紫外線邊進行光學顯微鏡觀察。

從試料的體色、粒子形狀及照射紫外線時的發光色，確認由選自 β -賽隆、未反應的氮化矽或氮化鋁、氧氮化物玻璃、 $\text{SrSiAl}_2\text{N}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Sr}_2\text{Al}_2\text{Si}_{10}\text{N}_{14}\text{O}_4$ 、 $\text{SrSi}_{(10-n)}\text{Al}_{(18+n)}\text{O}_n\text{N}_{(32-n)}$ ($n \sim 1$)、 SrSi_6N_8 之一種以上所構成的非發光相或顯示與 504 奈米附近的藍綠不同的發光之結晶相的比率係體積比為 20%以下。

<實施例 84～94>

將與實施例 1 同樣地進行所得到的焙燒成塊瑪瑙研杵及研鉢粉碎，並進行篩選分級或水力淘析分，如表 17 示，來製造具有需要的平均粒徑與平均縱橫比之螢光體粉末(實施例 84～94)。

將所得到的螢光體粉末(實施例 84～94)，使用捏合器以 10 質量%分散於聚矽氧烷樹脂，並使用該樹脂的剖面來評價發光強度及對在樹脂中的分散性。而且，發光強度係將最大值作為 100 而規格化。又，在樹脂中的分散性係以在樹脂與粉末粒子之界面能觀察到空隙之粉末粒子的比率來評價。能夠觀察到空隙之粒子比率越少時，表示分散性越良好。

[表 17]

	平均粒徑 (微米)	平均 縱橫比	發光強度 (計量)	空隙比率 (%)
實施例 84	0.200	1.200	77.000	5.200
實施例 85	1.000	3.200	87.000	3.300
實施例 86	3.000	4.100	95.000	2.300
實施例 87	6.000	4.900	98.000	2.100
實施例 88	11.000	5.300	100.000	1.200
實施例 89	11.100	5.800	102.000	1.300
實施例 90	12.600	6.000	98.000	1.800
實施例 91	14.300	7.100	98.000	2.400
實施例 92	21.000	13.600	94.000	3.200
實施例 93	33.000	16.900	87.000	3.800
實施例 94	48.000	18.700	81.000	4.600

< 實施例 95 ~ 96 >

對在實施例 1 的組成，除了以外加比率添加 0.5 質量 % 的氟化鋰粉末以外，與實施例 1 同樣地進行所製造的螢光體粉末(實施例 95)及使用石墨製坩堝所製造的螢光體粉末(實施例 96)，調查發光強度及氟量、硼量。又，發光強度係將實施例 1 的發光強度作為 100 而規格化。又，因為使用石墨製坩堝而成之試料表面係碳化矽化，所以除去表面的碳化矽層後進行評價。

[表 18]

	坩堝 材質	氟量 (ppm)	硼量 (ppm)	發光強度 (計量)
實施例 95	hBN	121.000	480.000	107.000
實施例 96	石墨	109.000	0.000	88.000

<實施例 97>

將與實施例 70 同樣地進行所得到的螢光體粉末進行水力淘析分級，得到平均粒徑為 1.3 微米的螢光體粉末。將該粉末作為種子且相對於實施例的組成以外加比率 2 質量%添加，與實施例 1 同樣地進行來合成螢光體粉末(實施例 97)。

對該螢光體粉末(實施例 97)，使用紫外線燈照射波長為 365 奈米的光線，結果確認發出藍綠色的光線。

使用螢光分光光度計測定該螢光體粉末(實施例 97)，結果，激發光譜的尖峰波長為 370 奈米，使用 450 奈米的藍色光激發之發光光譜的尖峰波長為 504 奈米(藍綠色)。又，將實施例 1 的發光強度作為 100 而規格化時，發光尖峰波長的發光強度為 108 計量。

接著使用瑪瑙的研鉢粉碎，並進行使用 Cu 的 K α 線之粉末 X 線折射測定之結果，能夠得到由與實施例 1 同樣的主要繞射尖峰所構成之粉末 X 線繞射圖形。

<實施例 98>

以與實施例 70 同樣組成比的方式，合計稱取 100 克原料粉末，並以乙醇作為混合溶劑且使用濕式球磨機進行混合 2 小時，來得到具有 300cps 左右的黏度之漿體。又，混

合溶劑使用己烷等亦無妨。

接著，使用對應有機溶劑之噴霧乾燥器對所得到的漿體進行噴霧乾燥，而成爲顆粒狀的混合粉末。

將所得到的混合粉末放入鋁製的模具並製造體密度爲約 24% 的成形體，且填充至氮化硼製坩堝。前述成形體的體積與坩堝體積的比率爲 80%。又，粉末的稱量、混合、成形之各製程全部係在大氣中操作。

將填充有該混合粉末之前述氮化硼製的坩堝，安裝於以碳纖維成形體作爲絕熱材而成之石墨電阻加熱方式的電爐。

焙燒係首先使用擴散泵使焙燒環境成爲真空，並以每小時 500℃ 的速度從室溫加熱至 1000℃，且在 1000℃ 導入純度爲 99.999 體積 % 之氮氣而使壓力爲 0.9 MPa，並且以每小時 600℃ 的速度升溫至 1900℃，且在 1900℃ 保持 2 小時來進行。

焙燒後，將該所得到的焙燒體粗粉碎後，使用氮化矽焙燒體製的研鉢而以手粉碎，且使用 30 微米網眼的篩而成爲平均粒徑爲 11 微米的螢光體粉末(實施例 98)。

對該螢光體粉末(實施例 98)，使用紫外線燈照射波長爲 365 奈米的光線，結果確認發出藍綠色的光線。

使用螢光分光光度計測定該螢光體粉末(實施例 98)，結果，激發光譜的尖峰波長爲 370 奈米，使用 450 奈米的藍色光激發之發光光譜的尖峰波長爲 504 奈米(藍綠色)。又，將實施例 70 的發光強度作爲 100 而規格化時，發光尖峰波長的發光強度爲 107 計量。

接著使用瑪瑙的研鉢粉碎，並進行使用 Cu 的 $K\alpha$ 線之粉末 X 線折射測定之結果，能夠得到由與實施例 1 同樣的主要繞射尖峰所構成之粉末 X 線繞射圖形。

<實施例 99>

將實施例 70 所使用的原料粉末放入鋁製的模具並製造體密度為約 25% 的成形體，且填充至氮化硼製坩堝。前述成形體的體積與坩堝體積的比率為 80%。又，粉末的稱量、混合、成形之各製程全部係在大氣中操作。

將填充有該混合粉末之前述氮化硼製的坩堝，安裝於以氧化鋁纖維成形體作為絕熱材而成之鑼鉻鐵礦電阻加熱方式的電爐。而且，在本實施例所使用的電爐處理室內，完全未使用含碳之材料。

焙燒係首先使用擴散泵使焙燒環境成為真空，並以每小時 500°C 的速度從室溫加熱至 1000°C ，且在 1000°C 導入純度為 99.999 體積 % 之氮氣而使壓力為 0.9MPa ，並且以每小時 600°C 的速度升溫至 1900°C ，且在 1900°C 保持 2 小時來進行。

焙燒後，將該所得到的焙燒體粗粉碎後，使用氮化矽焙燒體製的研鉢而以手粉碎，且使用 30 微米網眼的篩而成為平均粒徑為 12 微米的螢光體粉末(實施例 99)。

對該螢光體粉末(實施例 99)，使用紫外線燈照射波長為 365 奈米的光線，結果確認發出藍綠色的光線。

使用螢光分光光度計測定該螢光體粉末(實施例 99)，結果，激發光譜的尖峰波長為 370 奈米，使用 450 奈米的藍色光激發之發光光譜的尖峰波長為 504 奈米(藍綠色)。

又，將實施例 98 的發光強度作為 100 而規格化時，發光尖峰波長的發光強度為 82 計量。

接著使用瑪瑙的研鉢粉碎，並進行使用 Cu 的 $K\alpha$ 線之粉末 X 線折射測定之結果，能夠得到由與實施例 1 同樣的主要繞射尖峰所構成之粉末 X 線繞射圖形。

<實施例 100～109>

將具有與實施例 70 相同組成之混合粉末以成為表 19 所示體密度及填充率的方式填充至氮化硼製坩堝。又，粉末的稱量、混合、成形之各製程全部係在大氣中操作。

將填充有該混合粉末之前述氮化硼製的坩堝，安裝於以碳纖維成形體作為絕熱材而成之石墨電阻加熱方式的電爐。

焙燒係首先使用擴散泵使焙燒環境成為真空，並以每小時 600°C 的速度從室溫加熱至 1000°C ，且在 1000°C 導入純度為 99.999 體積 % 之氮氣而使壓力為 0.9MPa ，並且以每小時 600°C 的速度升溫至 1900°C ，且在 1900°C 保持 2 小時來進行。

焙燒後，將該所得到的焙燒體粗粉碎後，使用氮化矽焙燒體製的研鉢而以手粉碎，且使用 30 微米網眼的篩而成為平均粒徑為 12 微米的螢光體粉末(實施例 100～109)。

對該螢光體粉末(實施例 100～109)，使用紫外線燈照射波長為 365 奈米的光線，結果確認發出藍綠色的光線。

使用螢光分光光度計測定該螢光體粉末(實施例 100～109)的發光光譜及激發光譜。結果，激發光譜的尖峰波長為 370 奈米，使用 450 奈米的藍色光激發之發光光譜的尖

峰波長為 504 奈米 (藍綠色)。該等的螢光體粉末 (實施例 100 ~ 109) 的發光強度，係將實施例 70 的發光強度作為 100 而規格化。

[表 19]

	體密度 (%)	填充率 (%)	發光強度 (計量)
實施例 100	7	79	104
實施例 101	16	80	102
實施例 102	25	79	103
實施例 103	24	13	75
實施例 104	25	24	81
實施例 105	24	50	90
實施例 106	24	73	98
實施例 107	31	80	97
實施例 108	40	80	94
實施例 109	48	80	83

< 實施例 110 ~ 111 >

將實施例 70 所得到的螢光體粉末，使用由表 20 所示材質所構成的球磨機，以平均粒徑為 5 微米以下的方式，進行以乙醇作為溶劑之粉碎。將得到的漿體蒸發乾涸後，實施例 111 的試料係施行鹽酸洗淨並進蒸發乾涸，並填充至氮化硼製的坩堝。

將填充有試料之氮化硼製的坩堝，安裝於以碳纖維成形體作為絕熱材而成之石墨電阻加熱方式的電爐。

焙燒係首先使用擴散泵使焙燒環境成為真空，並以每小時 600℃ 的速度從室溫加熱至 1000℃，且在 1000℃ 導

入純度為 99.999 體積 %之氮氣而使壓力為 0.9MPa，並且以每小時 600℃ 的速度升溫至 1900℃，且在 1900℃ 保持 2 小時來進行。

焙燒後，將該所得到的焙燒體粗粉碎後，使用氮化矽焙燒體製的研鉢而以手粉碎，且使用 30 微米網眼的篩而成為平均粒徑為 12 微米的螢光體粉末(實施例 110～111)。

對該螢光體粉末(實施例 110～111)，使用紫外線燈照射波長為 365 奈米的光線，結果確認發出藍綠色的光線。

使用螢光分光光度計測定該螢光體粉末(實施例 110～111)的發光光譜及激發光譜。結果，激發光譜的尖峰波長為 370 奈米，使用 450 奈米的藍色光激發之發光光譜的尖峰波長為 504 奈米。該等的螢光體粉末(實施例 110～111)的發光強度，係將實施例 70 的發光強度作為 100 而規格化。

[表 20]

	粉碎球、 襯裏材	發光強度 (計量)
實施例 110	氮化矽燒結體	115.000
實施例 111	鐵	75.000

<實施例 112～113>

將實施例 70 所得到的螢光體粉末，填充至氮化硼製的坩堝。將填充有試料之氮化硼製的坩堝，安裝於以碳纖維成形體作為絕熱材而成之石墨電阻加熱方式的熱靜水壓加壓裝置。

隨後，在環境壓力：30MPa、焙燒溫度：2000℃ 的條件(實施例 112)或環境壓力：50MPa、焙燒溫度：2100℃ 的

條件(實施例 113)進行加熱。又，焙燒環境係氮氣環境。

焙燒後，將該所得到的焙燒體粗粉碎後，使用氮化矽焙燒體製的研鉢而以手粉碎，且使用 30 微米網眼的篩而成為平均粒徑為 11 微米的螢光體粉末(實施例 112~113)。

對該螢光體粉末(實施例 112~113)，使用紫外線燈照射波長為 365 奈米的光線，結果確認發出藍綠色的光線。

使用螢光分光光度計測定該螢光體粉末(實施例 112~113)的發光光譜及激發光譜。結果，激發光譜的尖峰波長為 370 奈米，使用 450 奈米的藍色光激發之發光光譜的尖峰波長為 504 奈米(藍綠色)。該等的螢光體粉末(實施例 112~113)的發光強度，係將實施例 70 的發光強度作為 100 而規格化。

[表 21]

	環境壓力 (MPa)	焙燒溫度 (℃)	發光強度 (計量)
實施例 112	30	2000	112
實施例 113	50	2100	117

<實施例 114>

將 5.0 克實施例 70 所得到的螢光體粉末，使其充分地分散於溶解 1.0 克四氫呋喃而成之 50 毫升異丙醇與 20 毫升蒸餾水的混合液。邊充分地攪拌分散液邊滴加 50 毫升 15%氨水溶液，隨後，邊攪拌邊進行加熱回流 2 小時。將所得到的漿體過濾、洗淨、乾燥，並在氮氣環境中於 600℃煅燒，來得到附帶非晶二氧化矽被膜之螢光體(實施例 114)。

使用透射型電子顯微鏡觀察所得到的附帶非晶二氧化矽被膜之螢光體時，二氧化矽膜的厚度為大約 70 奈米。該螢光體(實施例 114)的發光強度以實施例 70 的發光強度作為 100 而規格化時為 114。又，測定與上述同樣地進行所得到的二氧化矽膜之折射率時，為 1.48。附帶非晶二氧化矽被膜之螢光體(實施例 114)的氧量，比從實施例 70 理論上所求得的氧量多 0.2 質量%。

<實施例 115>

在 50 毫升 0.1M 硼酸 0.1M 氯化鉀水溶液，添加 32 毫升 0.1M 氫氧化鈉水溶液，並使用蒸餾水稀釋成 100 毫升。在該水溶液投入 5.0 克在實施例 70 所得到的螢光體粉末，並使其充分地分散成為漿體。

將前述漿體的 pH 使用氫氧化鈉水溶液邊維持在 9.0~10.5 的範圍，邊滴加 10 毫升 0.1M 硫酸鋁水溶液，來得到在漿體中的粒子表面黏附鋁氫氧化物微粒子而成之螢光體粒子。將該螢光體粒子洗淨、乾燥，並在空氣中於 600℃ 煅燒 2 小時，來得到表面形成有氧化鋁層之螢光體粉末(實施例 115)。

使用透射型電子顯微鏡觀察螢光體粉末(實施例 115)時，氧化鋁層的厚度為大約 50 奈米。該螢光體(實施例 115)的發光強度以實施例 70 的發光強度作為 100 而規格化時為 110。又，測定與上述同樣地進行所得到的氧化鋁膜之折射率時，為 1.70。附帶氧化鋁被膜之螢光體粉末(實施例 115)的氧量，比從實施例 70 理論上所求得的氧量多 0.3 質量%。

<實施例 116>

將與實施例 70 同樣地進行所得到的螢光體之焙燒塊，使用氮化矽燒結體製的坩堝輕輕地粉碎。將該焙燒塊使用濃度 48% 的氟化氫與當量濃度 36N 的硫酸及蒸餾水以容積比為 5 : 5 : 390 的方式混合而成的混酸水溶液，邊充分地攪拌邊進行酸處理 30 分鐘。隨後，將該螢光體粉末分離、洗淨、乾燥、處理，來得到螢光體粉末(實施例 116)。

使用掃描型電子顯微鏡觀察所得到的螢光體粉末(實施例 116)時，無法觀察到晶界相或玻璃質的第二相，得知係由具有自形面之單結晶粒子所構成。

對該螢光體粉末(實施例 116)，使用紫外線燈照射波長為 365 奈米的光線，結果確認發出藍綠色的光線。

使用螢光分光光度計測定該螢光體粉末(實施例 116)的發光光譜及激發光譜。結果，激發光譜的尖峰波長為 370 奈米，使用 450 奈米的藍色光激發之發光光譜的尖峰波長為 504 奈米(藍綠色)。該等的螢光體粉末(實施例 116)的發光強度，係將實施例 70 的發光強度作為 100 而規格化時，為 116。

接著說明使用本發明的螢光體而成之發光裝置。

<實施例 117>

使用本發明的螢光體，來製造如第 1 圖所示之砲彈型白色發光二極體燈(發光裝置)。

首先，使用導電性糊將藍色發光二極體元件焊接於第一導線之元件藏置用的凹部，並將第一導線與藍色發光二極體元件的下部電極電連接，同時將藍色發光二極體元件固定。接著，將藍色發光二極體元件的上部電極與第二導

線使用焊接線進行線焊接，來電連接。

然後，將預先製成之分散螢光體而成之樹脂，以被覆藍色發光二極體元件的方式使用分配器適量地塗布在凹部後，使其硬化來形成第一樹脂。

最後，使用鑄塑法將包含凹部之第一導線的前端部、藍色發光二極體元件、分散螢光體而成之第一樹脂的全體，使用第二樹脂密封。

第一樹脂係使用折射率為 1.6 的環氧樹脂，第二樹脂係使用折射率為 1.36 的環氧樹脂。

在本實施例，係將 15 質量%作為藍綠色螢光體之實施例 1 的螢光體及將 26 質量%作為紅色螢光體之 $\text{CaAlSiN}_3:\text{Eu}$ 螢光體以上述濃度混合於環氧樹脂，並藉由分配器將其適量滴加，來形成分散螢光體而成之第一樹脂。

使電流流動於導電性端子時，LED 元件發出發光尖峰波長為 450 奈米的藍色光，且被其激發之實施例 1 的螢光體及紅色螢光體係各自發出藍綠色光及紅色光，且該等的光線被混合而發出白色光。

<實施例 118>

在本實施例，除了改變所使用的螢光體以外，與實施例 117 同樣地進行，來製造如第 1 圖所示之砲彈型白色發光二極體燈(發光裝置)。

在本實施例，係將 15 質量%作為藍綠色螢光體之實施例 1 的螢光體、12 質量%作為綠色螢光體之 β -賽隆螢光體及將 26 質量%作為紅色螢光體之 $\text{CaAlSiN}_3:\text{Eu}$ 螢光體以上述濃度混合於環氧樹脂，並藉由分配器將其適量滴加，

來形成分散螢光體而成之第一樹脂。

使電流流動於導電性端子時，LED 元件發出發光尖峰波長為 450 奈米的藍色光，且被其激發之實施例 1 的螢光體、綠色螢光體及紅色螢光體係各自發出藍綠色光、綠色及紅色光，且該等的光線被混合而發出白色光。

<實施例 119>

在本實施例，除了改變所使用的螢光體以外，與實施例 117 同樣地進行，來製造如第 1 圖所示之砲彈型白色發光二極體燈（發光裝置）。

在本實施例，係將 15 質量%作為藍綠色螢光體之實施例 1 的螢光體、13 質量%作為綠色螢光體之 $\text{Ca}_3\text{Sc}_2\text{Si}_3\text{O}_{12}:\text{Ce}$ 螢光體及 26 質量%作為紅色螢光體之 $\text{CaAlSiN}_3:\text{Eu}$ 螢光體以上述濃度混合於環氧樹脂，並藉由分配器將其適量滴加，來形成分散螢光體而成之第一樹脂。

使電流流動於導電性端子時，LED 元件發出發光尖峰波長為 450 奈米的藍色光，且被其激發之實施例 1 的螢光體、綠色螢光體及紅色螢光體係各自發出藍綠色光、綠色及紅色光，且該等的光線被混合而發出白色光。

<實施例 120>

在本實施例，除了改變所使用的螢光體以外，與實施例 117 同樣地進行，來製造如第 1 圖所示之砲彈型白色發光二極體燈（發光裝置）。

在本實施例，係將 15 質量%作為藍綠色螢光體之實施例 1 的螢光體、13 質量%作為綠色螢光體之 β -賽隆螢光體、18 質量%作為黃色螢光體之 YAG:Ce 螢光體及 26 質

量 % 作為紅色螢光體之 $\text{CaAlSiN}_3 : \text{Eu}$ 螢光體以上述濃度混合於環氧樹脂，並藉由分配器將其適量滴加，來形成分散螢光體而成之第一樹脂。

使電流流動於導電性端子時，LED 元件發出發光尖峰波長為 450 奈米的藍色光，且被其激發之實施例 1 的螢光體、綠色螢光體、黃色螢光體及紅色螢光體係各自發出藍綠色光、綠色光、黃色光及紅色光，且該等的光線被混合而發出接近自然光的白色光。

<實施例 121>

除了改變所使用的發光元件(LED)及螢光體以外，與實施例 117 同樣地進行，來製造如第 1 圖所示之砲彈型白色發光二極體燈(發光裝置)。

發光元件(LED)係使用發光尖峰波長為 380 奈米的紫外 LED 元件，係將實施例 1 的螢光體、實施例 44 的螢光體、 $\text{BaMgAl}_{10}\text{O}_{17} : \text{Eu}$ 螢光體及作為紅色螢光體之 $\text{CaAlSiN}_3 : \text{Eu}$ 螢光體分散於由聚矽氧烷樹脂所構成的樹脂層並覆蓋在紫外 LED 元件而成之結構。

使電流流動於導電性端子時，LED 元件發出發光尖峰波長為 380 奈米的紫外光，且被其激發之實施例 1 的螢光體、實施例 44 的螢光體、 $\text{BaMgAl}_{10}\text{O}_{17} : \text{Eu}$ 螢光體及紅色螢光體係各自發出藍綠色光、綠色光、黃色光及紅色光，且該等的光線被混合而發出的白色光。

<實施例 122>

除了第一樹脂係使用折射率 1.51 的聚矽氧烷樹脂，第二樹脂係使用 1.41 的聚矽氧烷樹脂，並改變所使用的螢光

體以外，與實施例 117 同樣地進行，來製造如第 1 圖所示之砲彈型白色發光二極體燈(發光裝置)。

在本實施例，係將 15 質量%作為藍綠色螢光體之實施例 1 的螢光體及將 26 質量%作為紅色螢光體之 $\text{CaAlSiN}_3:\text{Eu}$ 螢光體以上述濃度混合於環氧樹脂，並藉由分配器將其適量滴加，來形成分散螢光體而成之第一樹脂。

使電流流動於導電性端子時，LED 元件發出發光尖峰波長為 450 奈米的藍色光，且被其激發之實施例 1 的螢光體及紅色螢光體係各自發出藍綠色光及紅色光，且該等的光線被混合而發出白色光。

<實施例 123>

除了第一樹脂係使用折射率 1.51 的聚矽氧烷樹脂，第二樹脂係使用 1.41 的聚矽氧烷樹脂，並改變所使用的螢光體以外，與實施例 117 同樣地進行，來製造如第 1 圖所示之砲彈型白色發光二極體燈(發光裝置)。

在本實施例，係將 15 質量%作為藍綠色螢光體之實施例 1 的螢光體、12 質量%作為綠色螢光體之 β -賽隆螢光體、及 26 質量%作為紅色螢光體之 $\text{CaAlSiN}_3:\text{Eu}$ 螢光體以上述濃度混合於環氧樹脂，並藉由分配器將其適量滴加，來形成分散螢光體而成之第一樹脂。

使電流流動於導電性端子時，LED 元件發出發光尖峰波長為 450 奈米的藍色光，且被其激發之實施例 1 的螢光體、綠色螢光體及紅色螢光體係各自發出藍綠色光、綠色光及紅色光，且該等的光線被混合而發出白色光。

<實施例 124>

除了第一樹脂係使用折射率 1.51 的聚矽氧烷樹脂，第二樹脂係使用 1.41 的聚矽氧烷樹脂，並改變所使用的螢光體以外，與實施例 117 同樣地進行，來製造如第 1 圖所示之砲彈型白色發光二極體燈(發光裝置)。

在本實施例，係將 15 質量%作為藍綠色螢光體之實施例 1 的螢光體、13 質量%作為綠色螢光體之 $\text{Ca}_3\text{Sc}_2\text{Si}_3\text{O}_{12}:\text{Ce}$ 螢光體、及 26 質量%作為紅色螢光體之 $\text{CaAlSiN}_3:\text{Eu}$ 螢光體以上述濃度混合於環氧樹脂，並藉由分配器將其適量滴加，來形成分散螢光體而成之第一樹脂。

使電流流動於導電性端子時，LED 元件發出發光尖峰波長為 450 奈米的藍色光，且被其激發之實施例 1 的螢光體、綠色螢光體及紅色螢光體係各自發出藍綠色光、綠色光及紅色光，且該等的光線被混合而發出白色光。

<實施例 125>

除了第一樹脂係使用折射率 1.51 的聚矽氧烷樹脂，第二樹脂係使用 1.41 的聚矽氧烷樹脂，並改變所使用的螢光體以外，與實施例 117 同樣地進行，來製造如第 1 圖所示之砲彈型白色發光二極體燈(發光裝置)。

在本實施例，係將 15 質量%作為藍綠色螢光體之實施例 1 的螢光體、13 質量%作為綠色螢光體之 β -賽隆螢光體、18 質量%作為黃色螢光體之 α -賽隆螢光體、及 26 質量%作為紅色螢光體之 $\text{CaAlSiN}_3:\text{Eu}$ 螢光體以上述濃度混合於環氧樹脂，並藉由分配器將其適量滴加，來形成分散螢光體而成之第一樹脂。

使電流流動於導電性端子時，LED 元件發出發光尖峰

波長為 450 奈米的藍色光，且被其激發之實施例 1 的螢光體、綠色螢光體、黃色螢光體、及紅色螢光體係各自發出藍綠色光、綠色光、黃色光及紅色光，且該等的光線被混合而發出接近自然光之白色光。

<實施例 126>

除了第一樹脂係使用折射率 1.51 的聚矽氧烷樹脂，第二樹脂係使用 1.41 的聚矽氧烷樹脂，並改變所使用的螢光體以外，與實施例 117 同樣地進行，來製造如第 1 圖所示之砲彈型白色發光二極體燈(發光裝置)。

在本實施例，係將 15 質量%作為藍綠色螢光體之實施例 1 的螢光體、13 質量%作為綠色螢光體之 β -賽隆螢光體、18 質量%作為黃色螢光體之 YAG:Ce 螢光體、及 26 質量%作為紅色螢光體之 CaAlSiN_3 :Eu 螢光體以上述濃度混合於環氧樹脂，並藉由分配器將其適量滴加，來形成分散螢光體而成之第一樹脂。

使電流流動於導電性端子時，LED 元件發出發光尖峰波長為 450 奈米的藍色光，且被其激發之實施例 1 的螢光體、綠色螢光體、黃色螢光體、及紅色螢光體係各自發出藍綠色光、綠色光、黃色光及紅色光，且該等的光線被混合而發出接近自然光之白色光。

<實施例 127>

使用本發明的螢光體，來製造如第 2 圖所示之砲彈型白色發光二極體燈(發光裝置)。

首先，在連接第一導線及第二導線而成之氧化鋁陶瓷基板的大致中央部配置藍色發光二極體，並將該藍色發光

二極體與第一導線連接，並該藍色發光二極體元件的下部電極與第二導線使用焊接線進行線焊接，來電連接。又，在氧化鋁陶瓷基板的發光元件側的面配置具有孔穴的壁面構件，且以在前述孔穴收容發光元件的方式固定述壁面構件。接著，以覆蓋前述藍色發光二極體的方式形成第一樹脂(密封樹脂)後，覆蓋第一樹脂，並以填埋前述孔穴的方式形成未含有螢光體之第二樹脂(另外的密封樹脂)。

除了製造順序係在氧化鋁陶瓷基板固定第二導線及壁面構件之製造順序以外，與實施例 10 係大致相同。

在本發明，壁面構件係使用白色的聚矽氧烷樹脂構成，第一樹脂與第二樹脂係同一環氧樹脂。

螢光體係使用實施例 1 的螢光體、作為綠色螢光體之實施例 44 的螢光體、及作為紅色螢光體之 $\text{CaAlSiN}_3:\text{Eu}$ 螢光體。藉此，使電流流動於導電性端子時，確認是發出白色光。

<實施例 128>

製造如第 3 圖所示之基板封裝型白色發光二極體燈(發光裝置)。

首先，在含有施加鍍銀而成之銅製的導線框架且由耐綸樹脂成的基板及反射器所構成之表面封裝用的 LED 組件用的盒體之導線框架上，使用樹脂糊晶黏在 450 奈米具有發光尖峰之藍色發光二極體(藍色 LED 晶片)。又，藍色發光二極體係使用 350 微米平方大小者，合計封裝 3 個。

接著，將前述藍色發光二極體的上部側之 2 個電極各自以 2 根焊接線(金細線)連接，將一方的焊接線連接至導

線框架，且將另一方焊接線連接至另外的導線框架。

接著，將含有螢光體之甲基聚矽氧烷樹脂，以覆蓋發光二極體元件且填埋壁面構件的孔穴的方式適量地滴加並使其硬化後，從整體化後的構件裁剪發光裝置組件，並且從作為個片而成的發光裝置組件，依照色調、發光強度來揀選作為基板封裝型白色發光二極體燈。

在本實施例，螢光體系使用實施例 1 的螢光體及賽隆螢光體。確認發光裝置的發光效率為 100lm/W ，且發出色溫度為 5500K 左右的白色光。

發光裝置的演色性係 R_a 為 90 左右。投入的電力為係每組件為 0.18W ，電力的密度為每一個組件的平面面積密度為 $2 \times 10^4\text{W/m}^2$ 。

<實施例 129>

除了使用紫外 LED 晶片作為發光二極體元件，並在使用陶瓷成型而成的基板使用 Cu 以印刷配線形成圖案，且黏著有陶瓷製的反射器而成之表面封裝用的 LED 組件用的盒體，而且改變螢光體以外，與實施例 128 同樣地進行，來製造如第 3 圖所示之基板封裝晶片型白色發光二極體燈（發光裝置）。

在本實施例，螢光體系使用實施例 1 的螢光體、賽隆螢光體及 CaAlSiN 系的螢光體。確認發光裝置的發光效率為 120lm/W ，且發出色溫度為 5600K 左右的白色光。

發光裝置的演色性係 R_a 為 98 左右。投入的電力為係每組件為 0.18W ，電力的密度為每一個組件的平面面積密度為 $2 \times 10^4\text{W/m}^2$ 。

<實施例 130>

除了發光二極體元件係使用在 440 奈米具有發光波長之藍色發光二極體(藍色 LED 晶片)，且封裝 1 個 1 毫米平方大小的大型晶片以外，與實施例 128 同樣地進行，來製造如第 3 圖所示之基板封裝晶片型白色發光二極體燈(發光裝置)。

在本實施例，螢光體系使用實施例 1 的螢光體及賽隆螢光體。確認發光裝置的發光效率為 90lm/W，且發出色溫度為 5000K 左右的白色光。

發光裝置的演色性係 Ra 為 87 左右。投入的電力為係每組件為 1W，電力的密度為每一個組件的平面面積密度為 $1 \times 10^3 \text{ W/m}^2$ 。

<實施例 131>

除了發光二極體元件係使用在 470 奈米具有發光波長之藍色發光二極體(藍色 LED 晶片)，且形成未分散有螢光體之第二樹脂以外，與實施例 128 同樣地進行，來製造如第 4 圖所示之基板封裝晶片型白色發光二極體燈(發光裝置)。

又，第二樹脂係使用未含有螢光體之苯基聚矽氧烷樹脂。

在本實施例，螢光體系使用實施例 1 的螢光體及賽隆螢光體。確認發光裝置的發光效率為 110lm/W，且發出色溫度為 5200K 左右的白色光。

發光裝置的演色性係 Ra 為 93 左右。投入的電力為係每組件為 0.18W，電力的密度為每一個組件的平面面積密

度為 $2 \times 10^4 \text{ W/m}^2$ 。

<實施例 132>

除了未形成第一樹脂，並在藍色發光二極體(藍色 LED 晶片)的 p 側的透明電極上，依照濺鍍法將本發明的螢光體的層成膜 10 微米，且形成未分散有螢光體之第二樹脂以外，與實施例 128 同樣地進行，來製造如第 5 圖所示之基板封裝晶片型白色發光二極體燈(發光裝置)。

在本實施例，螢光體係使用實施例 1 的螢光體及賽隆螢光體。確認發光裝置的發光效率為 140 lm/W ，且發出色溫度為 4500 K 左右的白色光。

發光裝置的演色性係 R_a 為 85 左右。投入的電力為係每組件為 0.18 W ，電力的密度為每一個組件的平面面積密度為 $2 \times 10^4 \text{ W/m}^2$ 。

<實施例 133>

在印刷配線而成之添加玻璃的環氧樹脂基板上，直接封裝藍色發光二極體(藍色 LED 晶片)，並將其樹脂密封來製造稱為晶片搭載基板(COB; Chip-On Board)形式之白色發光二極體(發光裝置)。

藍色發光二極體(藍色 LED 晶片)係封裝於鋁製的基板上，並在其上面重疊印刷配線而成之添加玻璃環氧樹脂基板並黏著。

在封裝有藍色發光二極體(藍色 LED 晶片)之部分，在基板有孔穴敞開而藍色發光二極體(藍色 LED 晶片)係顯現在表面。藍色發光二極體(藍色 LED 晶片)與配線之間係使用金製的線連接。從其上面，適量滴加含有螢光體而成之

甲基聚矽氧烷樹脂並使其硬化。

在本實施例，螢光體系使用實施例 1 的螢光體及賽隆螢光體。確認發光裝置的發光效率為 100lm/W ，且發出色溫度為 5500K 左右的白色光。

<實施例 134>

除了發光二極體元件係使用在 390nm 具有發光波峰紫色發光二極體(紫色 LED 晶片)，且在使用陶瓷成型而成的基板上使用 Cu 以印刷配線形成圖案，且黏著有陶瓷製的反射器而成之表面封裝用的 LED 組件用的盒體，而且改變螢光體以外，與實施例 128 同樣地進行，來製造如第 3 圖所示之基板封裝晶片型白色發光二極體燈(發光裝置)。

在本實施例，螢光體系只有使用實施例 49 的螢光體。確認發光裝置的發光輸出功率為 18m/W 。雖然使電流從 $100\mu\text{A}$ 至 50mA 變化，但是相對於電流量，幾乎未觀察到發光波長有變化。

<實施例 135>

除了發光二極體元件係使用在 390nm 具有發光波峰之紫色發光二極體(紫色 LED 晶片)，且在使用陶瓷成型而成的基板上使用 Cu 以印刷配線形成圖案，且黏著有陶瓷製的反射器而成之表面封裝用的 LED 組件用的盒體，而且改變螢光體以外，與實施例 128 同樣地進行，來製造如第 3 圖所示之基板封裝晶片型白色發光二極體燈(發光裝置)。

在本實施例，螢光體系只有使用實施例 57 的螢光體。確認發光裝置的發光輸出功率為 40m/W 。雖然使電流從 $100\mu\text{A}$ 至 50mA 變化，但是相對於電流量，幾乎未觀察到發

光波長有變化。

<實施例 136>

除了發光二極體元件係使用在 390 奈米具有發光波峰之紫色發光二極體(紫色 LED 晶片)，且在使用陶瓷成型而成的基板上使用 Cu 以印刷配線形成圖案，且黏著有陶瓷製的反射器而成之表面封裝用的 LED 組件用的盒體，而且改變螢光體以外，與實施例 128 同樣地進行，來製造如第 3 圖所示之基板封裝晶片型白色發光二極體燈(發光裝置)。

在本實施例，螢光體係只有使用實施例 1 的螢光體。確認發光裝置的發光輸出功率為 35m/W。雖然使電流從 100 μ A 至 50mA 變化，但是相對於電流量，幾乎未觀察到發光波長有變化。

<實施例 137>

除了改變螢光體以外，與實施例 128 同樣地進行，來製造如第 3 圖所示之基板封裝晶片型白色發光二極體燈(發光裝置)。

在本實施例，螢光體係使用實施例 1 的螢光體、賽隆螢光體及 CaAlSiN 螢光體。確認發光裝置的發光效率為 120lm/W，發出色溫度為 5300K 左右的白色光。

發光裝置的演色性係 Ra 為 96 左右。投入的電力為係每組件為 0.18W，電力的密度為每一個組件的平面面積密度為 2×10^4 W/m²。

<實施例 138>

除了改變螢光體以外，與實施例 128 同樣地進行，來製造如第 3 圖所示之基板封裝晶片型白色發光二極體燈(發

光裝置)。

在本實施例，螢光體係使用混合實施例 29 至實施例 68 的螢光體而成者及 CaAlSiN 螢光體。確認發光裝置的發光效率為 100lm/W ，發出色溫度為 5500K 左右的白色光。發光裝置的演色性係 R_a 為 99 左右。投入的電力為係每組件為 0.18W ，電力的密度為每一個組件的平面面積密度為 $2 \times 10^4 \text{ W/m}^2$ 。

[產業上之利用可能性]

因為本發明的螢光體具有比先前的賽隆或氮化物高的發光強度，係一種優良的螢光體，而且因為即便曝露於前述的激發源時，亦螢光體的亮度降低少，係適合使用於白色 LED、無機 EL、有機 EL 等之氮化物螢光體。今後，可期待大量地活用於各種照明裝置或顯示裝置等的發光裝置之材料設計上，而對產業的發展有重大的貢獻。

【圖式簡單說明】

第 1 圖係本發明的第一實施形態之發光裝置(LED 照明器具)的剖面圖。

第 2 圖係本發明的第二實施形態之發光裝置(LED 照明器具)的剖面圖。

第 3 圖係本發明的第三實施形態之發光裝置(LED 照明器具)的剖面圖。

第 4 圖係本發明的第四實施形態之發光裝置(LED 照明器具)的剖面圖。

第 5 圖係本發明的第五實施形態之發光裝置(LED 照明器具)的剖面圖。

第 6 圖係本發明的實施例 1 的螢光體的發光及激發光譜之圖。

第 7 圖係本發明的實施例 7 的螢光體的發光及激發光譜之圖。

第 8 圖係本發明的實施例 24 的螢光體的發光及激發光譜之圖。

第 9 圖係本發明的實施例 27 的螢光體的發光及激發光譜之圖。

第 10 圖係本發明的實施例 1 的螢光體的粉末 X 線繞射圖表之圖。

第 11 圖係本發明的實施例 7 的螢光體的粉末 X 線繞射圖表之圖。

第 12 圖係本發明的實施例 24 的螢光體的粉末 X 線繞射圖表之圖。

第 13 圖係本發明的實施例 27 的螢光體的粉末 X 線繞射圖表之圖。

【 主要元件符號說明 】

- | | |
|-----------|----------------------------|
| 1 | 砲彈型發光二極體燈(發光裝置：
LED 元件) |
| 2 | 第一導線(導線框架) |
| 2 a | 凹部 |
| 2 b | 第一導線的前端部 |
| 3 | 第二導線(導線框架) |
| 4 | 發光二極體元件(LED 晶片) |
| 4 a 、 4 b | 電極 |

5	黏晶線(金細線)
6	第一樹脂(密封樹脂)
7	螢光體
8	第二樹脂(密封樹脂)
11	基板封裝用晶片型發光二極體燈 (發光裝置：LED元件)
12	第一導線(導線框架)
12a、12b	第一導線的端部
13	第二導線(導線框架)
13a、13b	第二導線的端部
15	黏晶線(金細線)
16	第一樹脂(密封樹脂)
17	螢光體
18	第二樹脂(密封樹脂)
19	基板(氧化鋁陶瓷製或樹脂成型)
20	側面構件(壁面構件)
20a	孔穴
20b	斜面(反射面)
23	螢光體
24	發光二極體元件(LED晶片)
24a、24b	電極
111、112、113	基板封裝用晶片型發光二極體燈 (發光裝置：LED元件)

第 097133533 號「螢光體及其製法與使用它之發光裝置」
專利案

(2012 年 7 月 20 日修正)

十、申請專利範圍：

1. 一種螢光體，其特徵係具有通式 $M(0)_a M(1)_b M(2)_{x-(v_m+n)} M(3)_{(v_m+n)-y} O_n N_{z-n}$ 所示組成的螢光材料之螢光體，其中調整 $M(0)$ 、 $M(1)$ 、 $M(2)$ 、 $M(3)$ 、 O 、 N 的原子比來滿足以下全部，且螢光體之發光波長為 480 奈米～540 奈米；
 $M(0)$ 係選自 Li 、 Na 、 Be 、 Mg 、 Ca 、 Sr 、 Ba 、 Sc 、 Y 、 La 、 Gd 、 Lu 之 1 種以上的元素， $M(1)$ 係 Eu ， $M(2)$ 係選自 Si 、 Ge 、 Sn 、 Ti 、 Hf 、 Zr 之 1 種以上的元素， $M(3)$ 係選自 Be 、 B 、 Al 、 Ga 、 In 、 Tl 、 Zn 之 1 種以上的元素， O 元素係氧， N 元素係氮，且 x 、 y 、 z 係 $33 \leq x \leq 51$ ， $8 \leq y \leq 12$ ， $36 \leq z \leq 56$ ， a 、 b 係 $3 \leq a+b \leq 7$ ， $0.001 \leq b \leq 1.2$ ， m 、 n 係 $m_e = a+b$ 時， $0.8 \cdot m_e \leq m \leq 1.2 \cdot m_e$ ， $0 < n \leq 7$ ， v 係 $v = \{a \cdot v(0) + b \cdot v(1)\} / (a+b)$ (其中， $v(0)$ 係 $M(0)$ 離子的價數， $v(1)$ 係 $M(1)$ 離子的價數)。
2. 如申請專利範圍第 1 項之螢光體，其中 $x=42$ ， $y=10$ ， $z=46$ 。
3. 如申請專利範圍第 1 項之螢光體，其中 $M(0)$ 係選自 Ca 、 Sr 、 Ba 之 1 種以上的元素。
4. 如申請專利範圍第 1 項之螢光體，其中 $M(2)$ 係 Si ， $M(3)$ 係 Al 。
5. 如申請專利範圍第 1 項之螢光體，其中 $n \leq m_e$ 。
6. 如申請專利範圍第 1 項之螢光體，其中該螢光材料的含有率為 80 體積%以上，殘餘部係選自 β -賽隆 (β

-Sialon)、未反應的氮化矽或氮化鋁、氧氮化物玻璃、
 $\text{SrSiAl}_2\text{N}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Sr}_2\text{Al}_2\text{Si}_{10}\text{N}_{14}\text{O}_4$ 、 $\text{SrSi}_{(10-n)}\text{Al}_{(18+n)}\text{O}_n\text{N}_{(32-n)}$
($n \sim 1$)、 SrSi_6N_8 之一種以上。

7.如申請專利範圍第 1 項之螢光體，其係平均粒徑為 0.1 微米以上 50 微米以下之粉體。

8.如申請專利範圍第 1 項之螢光體，其平均縱橫比為 20 以下。

9.如申請專利範圍第 1 項之螢光體，其含有 5~300ppm 之氟。

10.如申請專利範圍第 1 項之螢光體，其含有 10~3000ppm 之硼。

11.如申請專利範圍第 1 項之螢光體，在其至少一部分表面形成有透明膜，使該透明膜的折射率為 n_k 時，該透明膜的厚度為 $(10 \sim 180)/n_k$ (單位：奈米)。

12.如申請專利範圍第 11 項之螢光體，其中該透明膜的折射率 n_k 為 1.2 以上 2.5 以下。

13.如申請專利範圍第 11 項之螢光體，其中該透明膜的折射率 n_k 為 1.5 以上 2.0 以下。

14.一種如申請專利範圍第 1 項之螢光體之製法，其特徵係具備混煉原料來製造原料混合物之混煉步驟，焙燒該原料混合物之焙燒步驟，以及熱處理該焙燒後的原料混合物之熱處理步驟。

15.如申請專利範圍第 14 項之螢光體之製法，其中在該熱處理步驟之前具備將該焙燒後之原料混合物的成塊粉碎分級之步驟，且在該熱處理將該粉碎分級後的原料混合物

的成塊熱處理，進而具備將該熱處理的成塊粉碎分級之步驟。

16.如申請專利範圍第14項之螢光體之製法，其中含有M(M係選自由M(0)、M(1)所組成的元素群組中且具有II價的價數之元素之一種以上)之化合物，係至少以選自 MSi_2 、 MSiN_2 、 $\text{M}_2\text{Si}_5\text{N}_8$ 、 $\text{M}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 、 MSi_6N_8 之一種以上的原料作為起始原料。

17.如申請專利範圍第14項之螢光體之製法，其中至少含有 LiSi_2N_3 作為起始原料。

18.如申請專利範圍第14項之螢光體之製法，其中預先合成具有目標組成的螢光體作為螢光體粉末，並將其作為種子且添加至該原料混合物。

19.如申請專利範圍第15項之螢光體之製法，其中使用由氧化鋁焙燒體、氧化鋯焙燒體、氮化矽焙燒體或 α -賽隆焙燒體製的粉碎介質或襯裏材所構成的粉碎裝置，來將焙燒後之該原料混合物的成塊粉碎至平均粒徑為50微米以下。

20.如申請專利範圍第15項之螢光體之製法，其中使用由氧化鋁焙燒體、氧化鋯焙燒體、氮化矽焙燒體或 α -賽隆焙燒體製的粉碎介質或襯裏材所構成的粉碎裝置，來將焙燒後之該熱處理物的成塊粉碎至平均粒徑為20微米以下。

21.如申請專利範圍第15項之螢光體之製法，其中將焙燒後之該原料混合物的成塊粉碎物進行水力淘析分級。

22.如申請專利範圍第15項之螢光體之製法，其中將焙燒後

之該熱處理物的成塊粉碎物進行水力淘析分級。

23.如申請專利範圍第14項之螢光體之製法，其中更具備造粒步驟，其係藉由將該原料混合物噴霧乾燥來調整該原料粉末的凝集體之粒徑。

24.如申請專利範圍第14項之螢光體之製法，其中該混煉步驟係使用濕式碾磨機將該原料粉末與溶劑一同混煉之步驟。

25.如申請專利範圍第14項之螢光體之製法，其中該焙燒步驟係在0.1MPa以上100MPa以下的壓力之氮氣環境中於1500℃以上2200℃以下的溫度範圍進行焙燒之步驟。

26.如申請專利範圍第14項之螢光體之製法，其中該焙燒步驟係在碳或含碳化合物的共存下進行焙燒之步驟。

27.如申請專利範圍第14項之螢光體之製法，其中該焙燒步驟係收容於焙燒用容器而進行焙燒之步驟。

28.如申請專利範圍第27項之螢光體之製法，其中該焙燒步驟係在保持在體密度為40%以下的填充率之狀態進行焙燒之步驟。

29.如申請專利範圍第27項之螢光體之製法，其中該焙燒步驟係在保持該原料混合物的整體體積與該焙燒用容器的體積比率為20體積%以上填充率之狀態進行焙燒之步驟。

30.如申請專利範圍第27項之螢光體之製法，其中該焙燒用容器的材質係氧化鋁、氧化鈣、氧化鎂、石墨或氮化硼之任一種。

31.如申請專利範圍第14項之螢光體之製法，其中該熱處理

步驟係在選自氮、氦、氬之 1 種或 2 種以上的環境中，以 600℃ 以上 2200℃ 以下的溫度進行熱處理之步驟。

32. 如申請專利範圍第 14 項之螢光體之製法，其中具備透明膜形成步驟，其係使螢光體的粉末懸浮於有機溶劑，並滴加有機金屬錯合物或金屬烷氧化物，在該螢光體的至少一部分表面形成透明膜。

33. 如申請專利範圍第 14 項之螢光體之製法，其中具備透明膜形成步驟，其係使螢光體的粉末懸浮於水，並邊保持 pH 為一定邊滴加金屬鹽水溶液，在該螢光體的至少一部分表面形成透明膜。

34. 一種發光裝置，其特徵係由發光光源及螢光體所構成之發光裝置，使用如申請專利範圍第 1 項之螢光體作為該螢光體。

35. 如申請專利範圍第 34 項之發光裝置，其係由發光光源及螢光體所構成之發光裝置，除了如申請專利範圍第 1 項之螢光體以外，更使用 $\text{CaAlSiN}_3:\text{Eu}$ 作為該螢光體。

36. 如申請專利範圍第 34 項之發光裝置，其中該發光光源係發出 330～500 奈米波長的光線之 LED 晶片、無機 EL 晶片或有機 EL 晶片之任一種。

37. 如申請專利範圍第 36 項之發光裝置，其中該 LED 晶片的發光波長的最大強度為 330～500 奈米。

38. 如申請專利範圍第 36 項之發光裝置，其中該 LED 晶片的發光係紫外光。

39. 如申請專利範圍第 36 項之發光裝置，其中該 LED 晶片的發光波長的最大強度為 380～410 奈米。

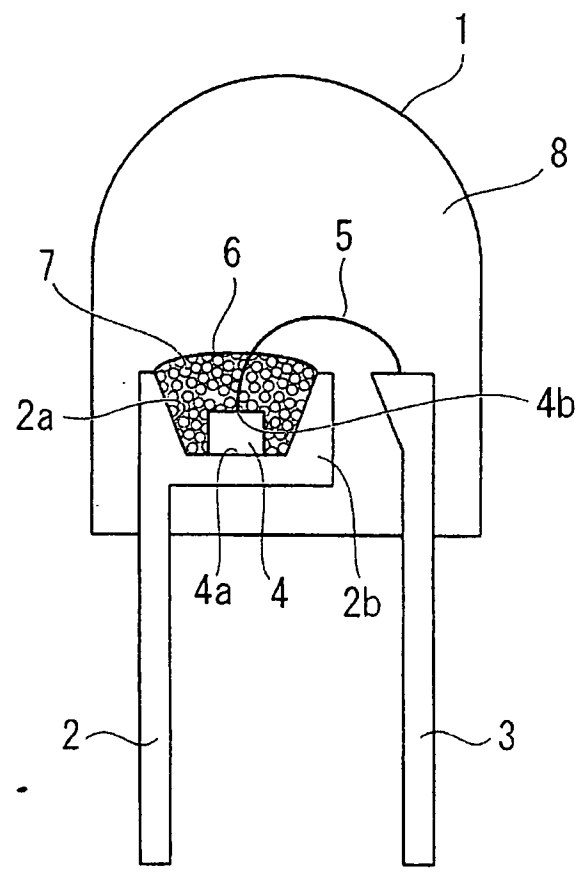
- 40.如申請專利範圍第 36 項之發光裝置，其中該 LED 晶片的發光係藍色。
- 41.如申請專利範圍第 36 項之發光裝置，其中藉由使用前述 LED 晶片激發螢光體來構成白色的 LED 元件。
- 42.如申請專利範圍第 41 項之發光裝置，其中該 LED 元件的白光發光色之現色性係設為 70 以上。
- 43.如申請專利範圍第 41 項之發光裝置，其中該 LED 元件的發光光譜之半高寬係設為 100 奈米以上。
- 44.如申請專利範圍第 37 項之發光裝置，其中藉由使用產生紫外線之該 LED 晶片激發螢光體來構成有色的 LED 元件。
- 45.如申請專利範圍第 44 項之發光裝置，其中藉由使用產生紫外線之該 LED 晶片激發螢光體來構成綠色的 LED 元件。
- 46.如申請專利範圍第 44 項之發光裝置，其中藉由使用產生紫外線之該 LED 晶片激發螢光體來構成藍綠色的 LED 元件。
- 47.如申請專利範圍第 44 項之發光裝置，其中藉由使用產生紫外線之該 LED 晶片激發螢光體，來構成藍色的 LED 元件。
- 48.如申請專利範圍第 36 項之發光裝置，其中該發光裝置係砲彈型 LED 元件或表面封裝型 LED 元件中任一種。
- 49.如申請專利範圍第 48 項之發光裝置，其中該發光裝置係在經配線之基板直接封裝該 LED 晶片而成之晶片搭載基板。

- 50.如申請專利範圍第36項之發光裝置，其中在該發光裝置的基板及/或反射器部含有樹脂。
- 51.如申請專利範圍第50項之發光裝置，其中該樹脂係熱固性樹脂。
- 52.如申請專利範圍第36項之發光裝置，其中在該發光裝置的基板及/或反射器部含有陶瓷製構件。
- 53.如申請專利範圍第34項之發光裝置，其中該螢光體係分散在包圍該LED晶片而形成的密封樹脂中。
- 54.如申請專利範圍第53項之發光裝置，其中該密封樹脂係在至少一部分的區域含有聚矽氧烷樹脂。
- 55.如申請專利範圍第53項之發光裝置，其中該密封樹脂係在至少一部分的區域含有聚甲基矽氧烷(methyl silicone)樹脂。
- 56.如申請專利範圍第53項之發光裝置，其中該密封樹脂係在至少一部分的區域含有聚苯基矽氧烷(phenyl silicone)樹脂。
- 57.如申請專利範圍第53項之發光裝置，其中該螢光體係在該LED晶片附近以高密度的方式被分散在該密封樹脂中。
- 58.如申請專利範圍第53項之發光裝置，其中以覆蓋該密封樹脂的方式形成另外的密封樹脂。
- 59.如申請專利範圍第36項之發光裝置，其中該螢光體係直接黏附在該LED晶片。
- 60.如申請專利範圍第59項之發光裝置，其中該螢光體係以覆蓋該LED晶片的至少一面之方式被直接黏附。

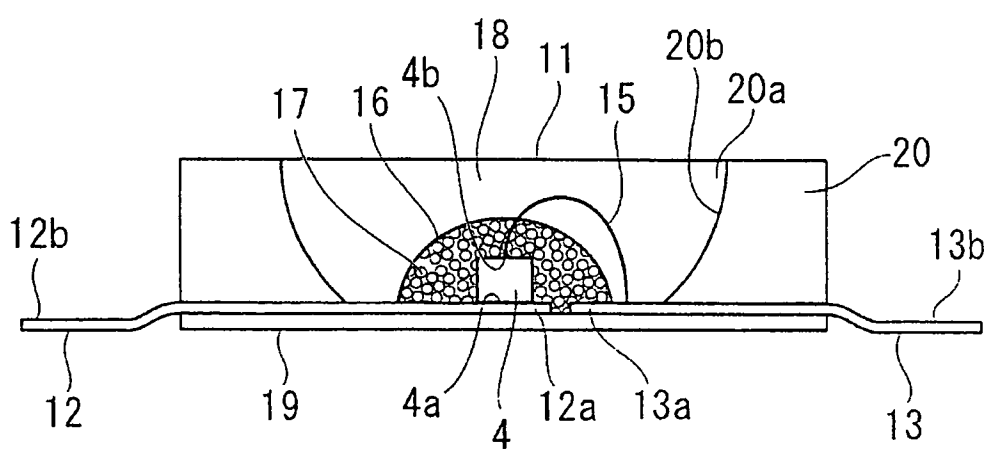
61. 如申請專利範圍第 60 項之發光裝置，其中該螢光體係成爲層狀。
62. 如申請專利範圍第 61 項之發光裝置，其中該螢光體的厚度爲 1 微米至 100 微米。
63. 如申請專利範圍第 36 項之發光裝置，其中該 LED 晶片係大於一邊 350 微米平方的面積。
64. 如申請專利範圍第 36 項之發光裝置，其中該發光裝置係含有複數個 LED 晶片。
65. 如申請專利範圍第 36 項之發光裝置，其中該發光裝置係每 1 組件投入 0.2W 以上的電力而使用。
66. 如申請專利範圍第 36 項之發光裝置，其中該 LED 晶片係每 1 個組件的平面面積密度投入 $1.5 \times 10^4 \text{ W/m}^2$ 以上的電力而使用。
67. 如申請專利範圍第 36 項之發光裝置，其中該 LED 晶片係每 1 個組件的平面面積密度投入 $5 \times 10^4 \text{ W/m}^2$ 以上的電力而使用。
68. 如申請專利範圍第 1 項之螢光體，其中在粉末 X 射線繞射測定中，繞射圖形之繞射線內，依照自最強線的強度強弱順序所選出之 5 條繞射線的任 1 條，具有 $25^\circ \sim 27^\circ$ 的繞射角 ($2-\theta$)。

十一、圖式：

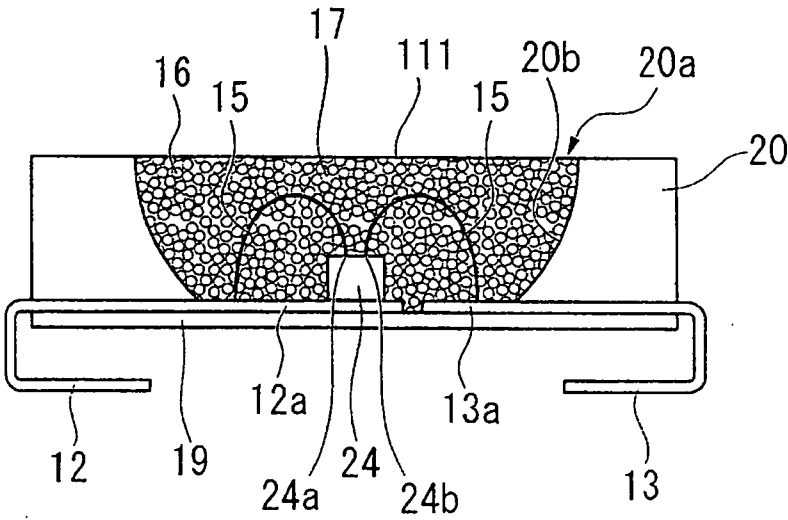
第 1 圖



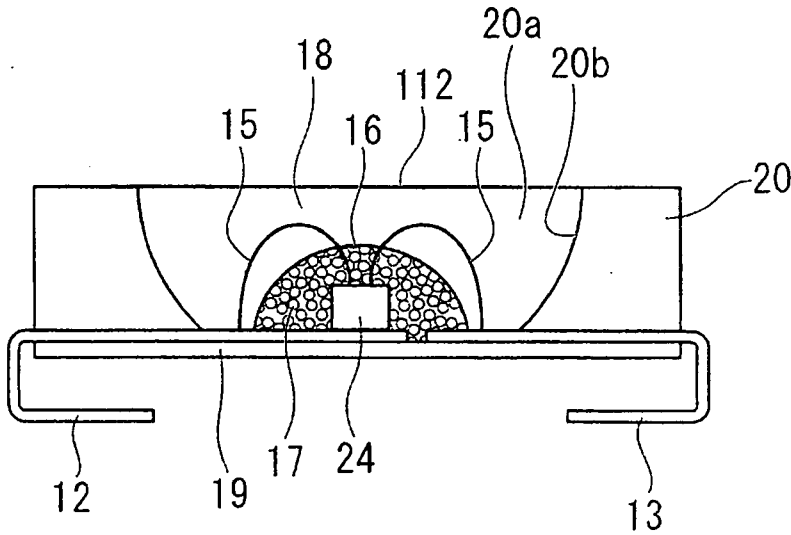
第 2 圖

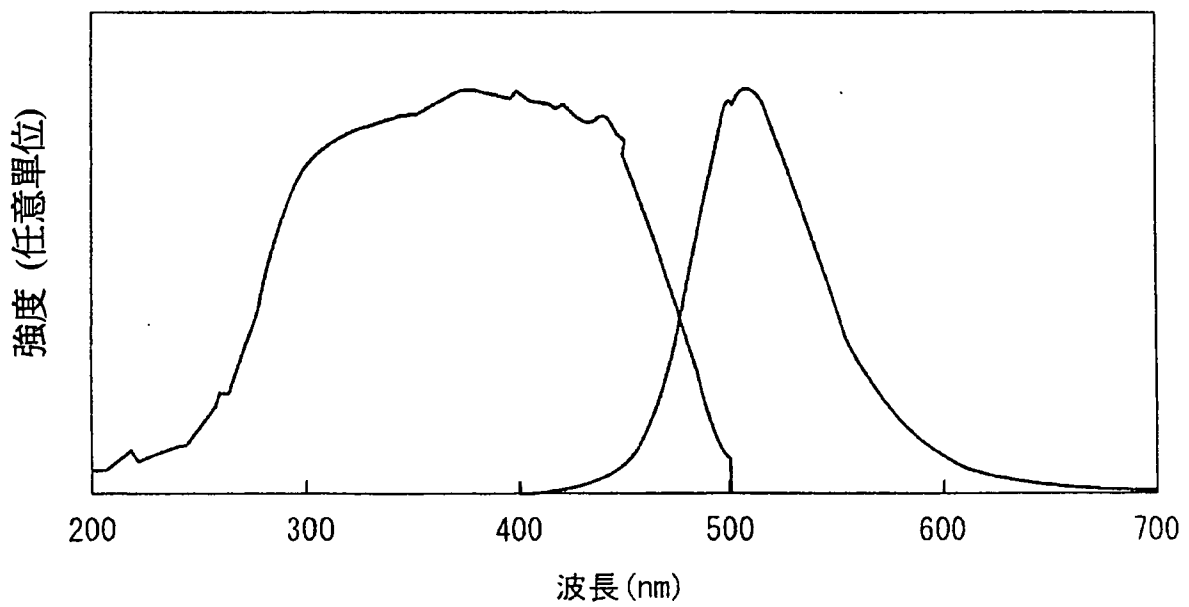


第 3 圖

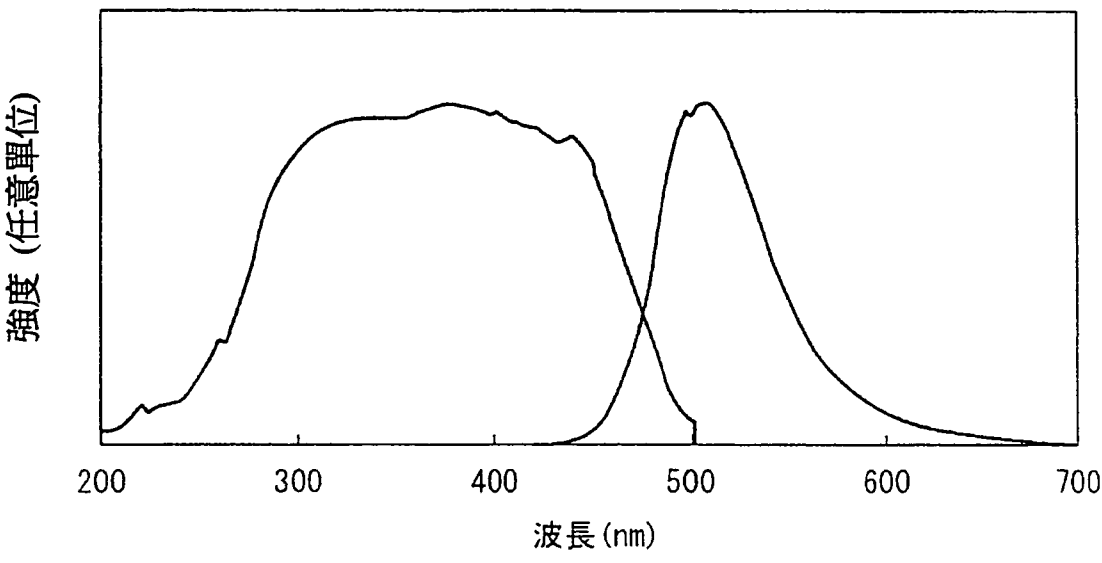


第 4 圖

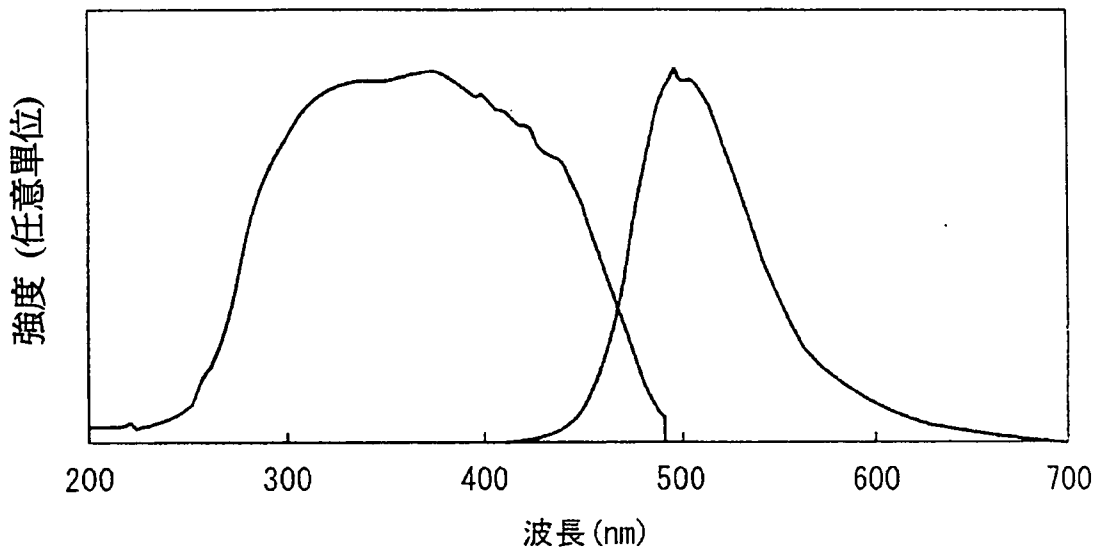




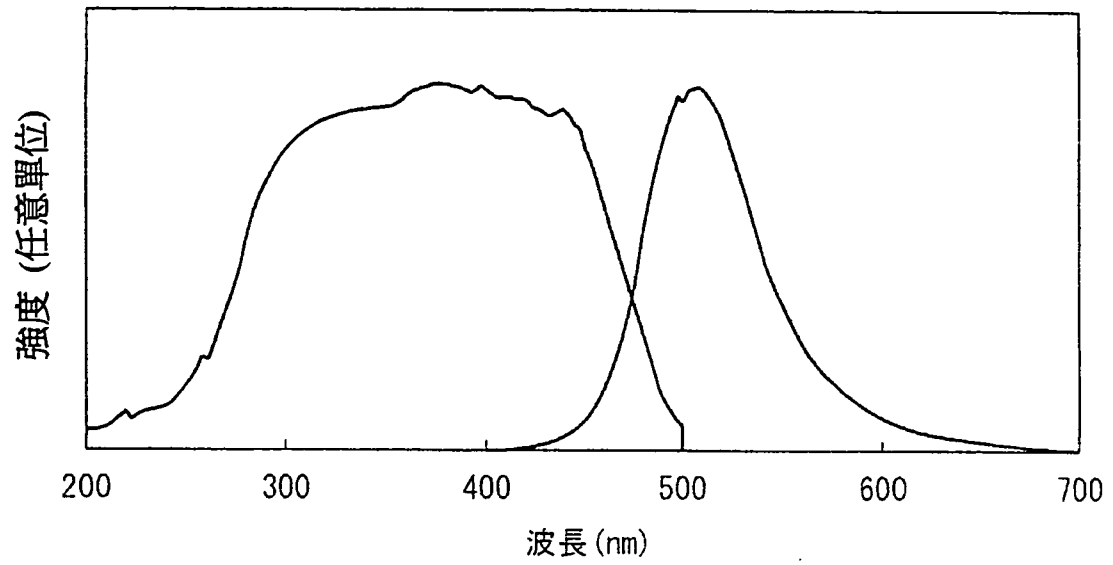
第 7 圖



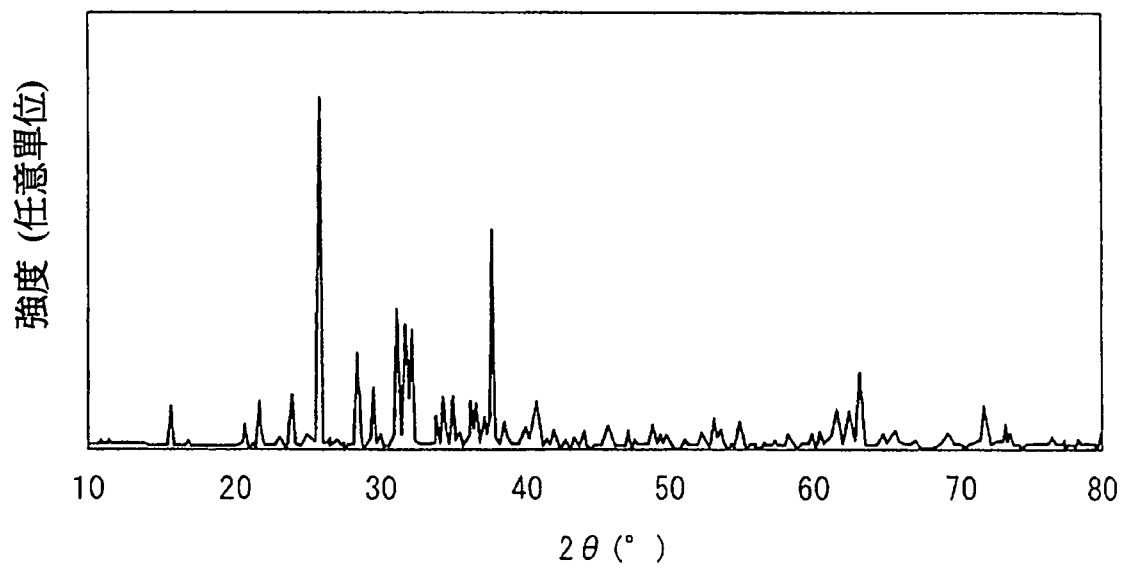
第 8 圖



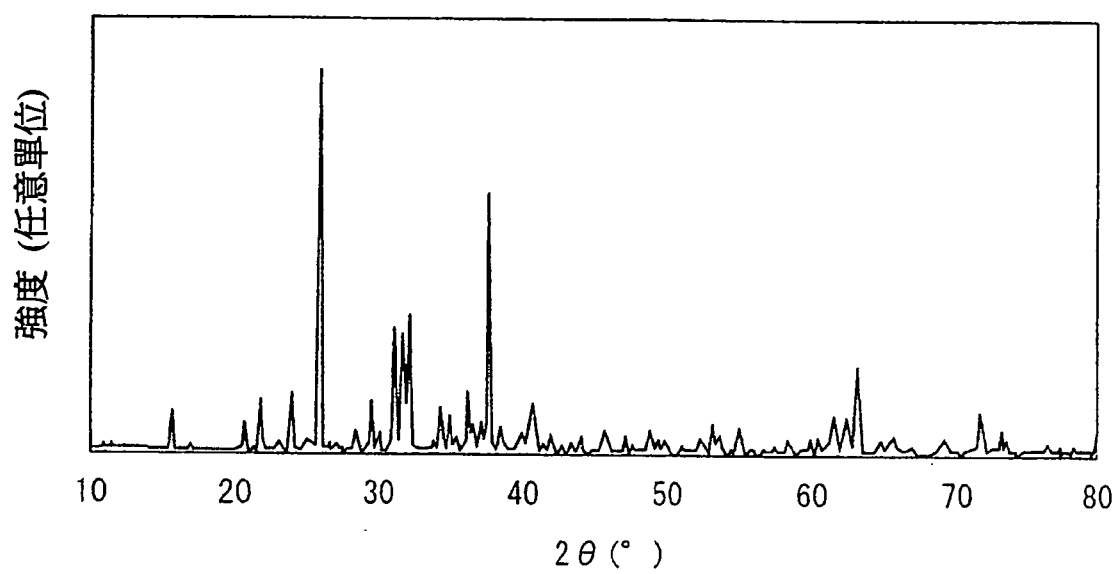
第 9 圖



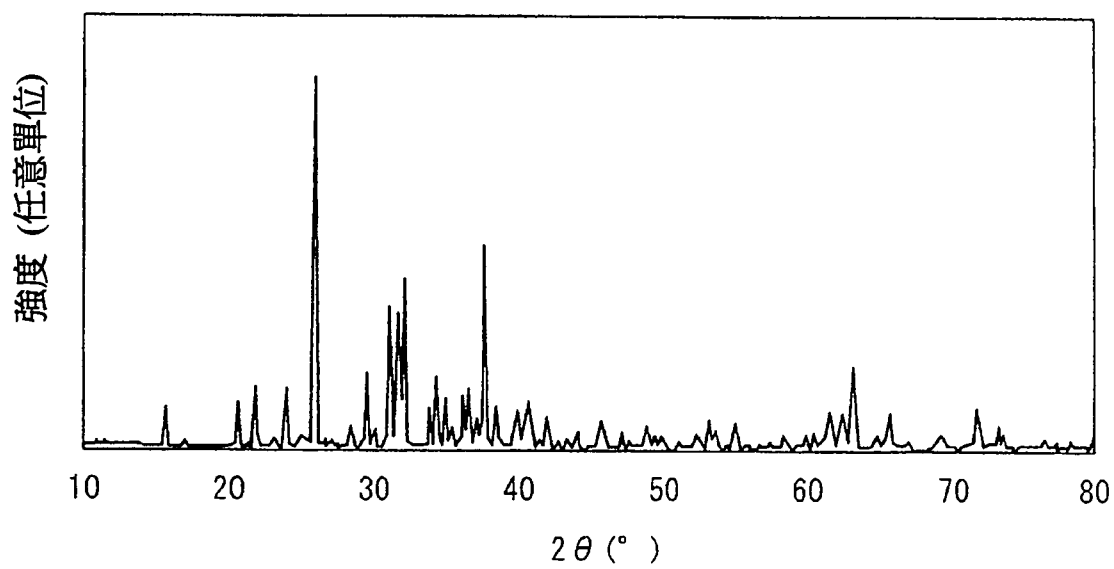
第 10 圖



第 11 圖



第 12 圖



第 13 圖

