

公告本

發明專利說明書

595012

(填寫本書件時請先行詳閱申請書後之申請須知，作※記號部分請勿填寫)

※申請案號：91120032 ※IPC分類：H01L 33/00

※申請日期：P1. P. 3

壹、發明名稱

(中文) 半導體發光元件、發光裝置及半導體發光元件之製造方法

(日文) 半導体発光デバイス、発光装置及び半導体発光デバイスの製造方法

貳、發明人(共8人)

發明人 1 (如發明人超過一人，請填說明書發明人續頁)

姓名:(中文) 前田 俊秀

(英文) TOSHIHIDE MAEDA

住居所地址:(中文) 日本國鹿兒島縣鹿兒島市花野光丘2-52-8

(英文)

國籍:(中文) 日本

(英文) JAPAN

參、申請人(共1人)

申請人 1 (如申請人超過一人，請填說明書申請人續頁)

姓名或名稱:(中文) 日商松下電器產業股份有限公司

(英文) MATSUSHITA ELECTRIC INDUSTRIAL CO., LTD.

住居所或營業所地址:(中文) 日本國大阪府門真市大字門真1006番地

(英文)

國籍:(中文) 日本

(英文) JAPAN

代表人:(中文) 中村 邦夫

(英文) KUNIO NAKAMURA

發明人 2姓名:(中文) 大鹽 祥三(英文) SHOZO OSHIO住居所地址:(中文) 日本國大阪府枚方市町楠葉1-13-20-401

(英文)

國籍:(中文) 日本(英文) JAPAN發明人 3姓名:(中文) 岩間 克昭(英文) KATSUAKI IWAMA住居所地址:(中文) 日本國大阪府吹田市千里山西4-39-E604

(英文)

國籍:(中文) 日本(英文) JAPAN發明人 4姓名:(中文) 北原 博實(英文) HIROMI KITAHARA住居所地址:(中文) 日本國鹿兒島縣日置郡伊集院町下谷口623

(英文)

國籍:(中文) 日本(英文) JAPAN發明人 5姓名:(中文) 池田 忠昭(英文) TADAAKI IKEDA住居所地址:(中文) 日本國鹿兒島縣日置郡伊集院町妙圓寺1-73-16

(英文)

國籍:(中文) 日本(英文) JAPAN

發明人 6

姓名:(中文) 龜井 英德

(英文) HIDENORI KAMEI

住居所地址:(中文)日本國福岡縣福岡市西區愛宕濱2-3-4-501

(英文)

國籍:(中文) 日本

(英文) JAPAN

發明人 7

姓名:(中文) 花田 康行

(英文) YASUYUKI HANADA

住居所地址:(中文)日本國福岡縣福岡市早良區百道濱4-31-10-903

(英文)

國籍:(中文) 日本

(英文) JAPAN

發明人 8

姓名:(中文) 坂上 惠

(英文) KEI SAKANOUÉ

住居所地址:(中文)日本國福岡縣福岡市博多區美野島4-1-62

(英文)

國籍:(中文) 日本

(英文) JAPAN

捌、聲明事項

☐ 本案係符合專利法第二十條第一項第一款但書或第二款但書規定之期間，其日期為：_____

☒ 本案已向下列國家(地區)申請專利，申請日期及案號資料如下：

[格式請依:申請國家(地區)；申請日期；申請案號 順序註記]

1.	日本	2001年09月03日	特願2001-265540
2.	日本	2001年12月14日	特願2001-381368
3.	日本	2001年12月14日	特願2001-381369
4.	日本	2001年12月14日	特願2001-381370

☒ 主張專利法第二十四條第一項優先權：

[格式請依:受理國家(地區)；日期；案號 順序註記]

1.	日本	2001年09月03日	特願2001-265540
2.	日本	2001年12月14日	特願2001-381368
3.	日本	2001年12月14日	特願2001-381369
4.	日本	2001年12月14日	特願2001-381370
5.			
6.			
7.			
8.			
9.			

☐ 主張專利法第二十五條之一第一項優先權：

[格式請依:申請日；申請案號 順序註記]

1.	
2.	
3.	

☐ 主張專利法第二十六條微生物：

☐ 國內微生物 [格式請依:寄存機構；日期；號碼 順序註記]

1.	
2.	
3.	

☐ 國外微生物 [格式請依:寄存國名；機構；日期；號碼 順序註記]

1.	
2.	
3.	

☐ 熟習該項技術者易於獲得，不須寄存。

(1)

玖、發明說明

(發明說明應敘明:發明所屬之技術領域、先前技術、內容、實施方式及圖式簡單說明)

技術領域

本發明係關於一種組合藍色發光二極體(以後,稱為藍色LED)與黃色系螢光體以釋放出白色光的半導體發光元件、使用半導體發光元件之發光裝置及半導體發光元件之製造方法。

背景技術

以往,組合藍色LED(嚴格地說是藍色LED晶片)及螢光體層而成的半導體發光元件為人所周知,其中該藍色LED係在波長400 nm以上且530 nm以下之藍色的波長領域中具有主發光峰值者,而該螢光體層,係含有無機螢光體(以下,簡稱為「螢光體」)用以吸收該藍色LED所釋放出的藍色光之後,再釋放出在從綠色至黃色之可視波長範圍內(大致從530 nm至580 nm之範圍)具有發光峰值的螢光。以下,在本說明書中,將激勵螢光體之LED的光稱為「激勵光」,將其光譜稱為「激勵光光譜」,將其強度之峰值稱為「激勵光峰值」。

作為該種的半導體發光元件,例如有如日本專利特許第2927279號公報、特開平10-163535號公報、特開2000-208822號公報、特開2000-244021號公報等中所揭示的半導體發光元件。

在日本專利特許第2927279號公報中,有揭示一種以氮化鎵系化合物半導體為發光層,且組合在400 nm以上且530 nm以下之波長範圍中具有發光峰值的藍色LED、及

(2)

發明說明書

$(\text{RE}_{1-x}\text{Sm}_x)_3(\text{Al}_y\text{Ga}_{1-y})_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$ 螢光體 (其中, $0 \leq x < 1$, $0 \leq y \leq 1$, RE 為選自 Y(鈮)、Gd(釷)中之至少一種稀土類元素)(以下, 稱為「YAG系螢光體」所構成的半導體發光元件。

上述 YAG系螢光體, 由於在藍色 LED 所釋放出的藍色光(激勵光)之下釋放出在 580 nm 附近具有峰值的高效率之發光(黃色光), 所以在上述特許公報中, 記載有依藍色 LED 所釋放出的藍色光與 YAG系螢光體所釋放出的發光之顏色相加, 俾使半導體發光元件成為釋放出白色光的白色半導體發光元件。

又, 在日本專利特開平 10-163535 號公報中, 有揭示一種組合藍色或藍紫色之 LED、與吸收該 LED 之發光後於可視域發光之一種或二種以上之螢光體的白色半導體發光元件。作為螢光體, 係揭示有以 (Zn、Cd)S 為螢光體母體的藍色、綠色、黃色、橙色、紅色螢光體及 $(\text{Y、Gd})_3(\text{Al、Ga})_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$ 、Eu 螢光體。另外, 上述 $(\text{Y、Gd})_3(\text{Al、Ga})_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$ 、Eu 螢光體, 在學術上係被看作 YAG系螢光體的螢光體。

又, 在日本專利特開平 10-163535 號公報中, 有揭示一種依藍色 LED 與 YAG系螢光體之顏色相加, 而形成發光色之 CIE 色度圖中之發光色度點 (x, y), 在 $0.21 \leq x \leq 0.48$ 、 $0.19 \leq y \leq 0.45$ 之範圍內的白色半導體發光元件。

更且, 在日本專利特開 2000-208822 號公報、特開 2000-244021 號公報中, 亦有揭示一種組合藍色 LED 與 YAG系螢

(3)

發明說明書

光體的白色半導體發光元件。在特開2000-244021號公報中，有揭示一種為了補償白色半導體發光元件所釋放出的白色光中之紅色領域的光束不足，而不僅採用YAG系螢光體，亦採用以鎔(Eu)活化之硫化鋇(SrS:Eu)紅色螢光體的半導體發光元件。

另外，在以往之YAG系螢光體中，為人所周知者，係主發光峰值波長會依其組成，尤其是依構成YAG系螢光體之Y(釔)原子對Gd(釔)原子之置換量或成為發光中心之 Ce^{3+} 的添加量、周圍溫度，在530 nm~590 nm左右之間發生變化，而釔(Gd)置換量或成為發光中心之 Ce^{3+} 的添加量之增加、或是周圍溫度之上升，均會使發光峰值波長朝長波長側移位(例如，請參照螢光體手冊：歐姆公司、或文獻(R. Mach et and G.O. Mueller: Proceedings of SPIE Vol. 3938 (2000) pp. 30-41))。其中，由於釔(Gd)原子重於釔(Y)原子，所以隨著釔(Gd)原子之置換量的增加，YAG系螢光體之真比重亦會增加。

另外，完全不含釔(Gd)原子之 $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}^{3+}$ 螢光體釔(Y)對鎔(Ce)置換量：0.1~2%的真比重在4.15~4.55較為人所周知者，而在其室溫下之發光峰值波長，在530 nm(真比重為4.15之螢光體)至557 nm(真比重為4.55之螢光體)之間的波長範圍附近(綠色至黃色系之波長領域)亦為人所周知(摘錄於Phosphor Index(日亞化學工業股份有限公司)、及飛利浦公司型錄)。

在此，當簡單說明有關半導體發光元件所釋放出的光，

(4)

發明說明書

尤其是白色系光之光色的控制時，目前主要係以如下三種方式進行光色的控制。

- ① 藉由改變藍色LED所釋放出的藍色光與YAG系螢光體所釋放出的黃色系光之輸出比例以獲得所希望之光色的方法。
- ② 藉由改變藍色LED所釋放出的藍色光之色調以獲得所希望之光色的方法。
- ③ 藉由改變螢光體之組成或 Ce^{3+} 發光中心添加量，且改變YAG系螢光體所釋放出的黃色系光之色調以獲得所希望之光色的方法。

如此，組合藍色LED與螢光體，而獲得藍色LED所釋放出的藍色光與螢光體所釋放出的發光之混色光的習知半導體發光元件，幾乎全部是採用YAG系螢光體以作為螢光體。

另外，在上述之特許公報、公開特許公報中，有記載一種於設在安裝導線腳(mount lead)上之杯體(cup)部上導通搭載藍色LED，同時於上述杯體內設置由內藏有YAG系螢光體之樹脂所構成的螢光體層之構造之半導體發光元件；或是於框體內配置藍色LED，同時於上述框體內設置由內設有YAG系螢光體之樹脂所構成的螢光體層之構造之半導體發光元件；或是在輔助安裝(sub-mount)元件上導通搭載覆晶型之藍色LED，同時依兼做內設有YAG系螢光體之螢光體層的樹脂之封裝(package)而密封覆晶型藍色LED之構造之半導體發光元件等。

該種的半導體發光元件，係以多需作為照明裝置或顯示裝置等之發光裝置用之可獲得白色發光的半導體發光元件為人所周知。

另一方面，組合YAG系螢光體以外之無機化合物的螢光體與LED的半導體發光元件，亦為習知以來一部分為人所周知。例如，在日本專利特開2001-143869號公報中，有記載一種採用 $\text{Ba}_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$ 螢光體、 $\text{Sr}_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$ 螢光體、 $\text{Mg}_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$ 螢光體、 $(\text{BaSr})_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$ 螢光體、 $(\text{BaMg})_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$ 螢光體等之矽酸鹽螢光體的半導體發光元件。

又，在該日本專利特開2001-143869號公報中，LED之發光的波長領域較佳者為430 nm以下，尤其是較佳者在400~430 nm之範圍內。又，即使在同公報中所記載之實施例中，亦記載有一種採用釋放出343~405 nm之波長領域之發光之LED的半導體發光元件。更且，在同公報中，記載有關於任一個矽酸鹽螢光體不僅是作為綠色螢光體之應用例，而且記載從發光效率之觀點來看以採用有機LED之發光效率較佳於由無機化合物所構成的無機LED。

亦即，上述日本專利特開2001-143869號公報中所記載的發明，可說是關於一種組合釋放出近紫外光之LED、與釋放出紅色、綠色、藍色之發光之無機化合物的螢光體所構成的半導體發光元件者。

在此，就矽酸鹽螢光體加以說明時，以往較為人所周知者有以 $(\text{Sr}_{1-a3-b3-x}\text{Ba}_{a3}\text{Ca}_{b3}\text{Eu}_x)_2\text{SiO}_4$ (其中， $a3$ 、 $b3$ 、 x 係各

為滿足 $0 \leq a_3 \leq 1$, $0 \leq b_3 \leq 1$, $0 < x < 1$ 之數值) 之化學式表示的矽酸鹽螢光體。該矽酸鹽螢光體，較為人所周知者係當作螢光燈用之螢光體來檢討的螢光體；且為藉由改變鋇-鋇-鈣 (Ba-Sr-Ca) 之組成，發光之峰值波長就會在 505 nm 以上且 598 nm 以下左右之範圍內作變化的螢光體。更且，矽酸鹽螢光體，係顯示在 170~350 nm 之範圍內的光照射下有比較高效率之發光的螢光體，此亦揭示於文獻 (J. Electrochemical Soc. Vol. 115, No. 11 (1968) pp. 1181-1184)、或文獻 (Fluorescent Lamp Phosphors, Kith H. Butler, The Pennsylvania State University Press (1980) pp. 270-279) 等中。

然而，在關於上述矽酸鹽螢光體的文獻中，完全沒有與矽酸鹽螢光體在長於 350 nm 之波長領域，尤其是連超過 430 nm 且 500 nm 以下之藍色的波長領域中顯示高效率之發光的相關記載。因此，矽酸鹽螢光體在上述之藍色的波長領域，尤其是依 450~470 nm 附近之色純度佳的藍色光激勵而在 550 nm 以上且 600 nm 以下之黃綠色至橙色之波長領域，特別可當作釋放出與 YAG 系螢光體同樣之黃色發光的螢光體之功能乙事，至今仍未被知悉。

以下，係就組合藍色 LED 與 YAG 系螢光體而構成的半導體發光元件再次加以說明。在上述日本專利特許第 2927279 號公報、特開平 10-163535 號公報、特開 2000-208822 號公報、特開平 2000-244021 號公報等中，亦揭示有關於半導體發光元件之螢光體層的厚度或製造方

(7)

發明說明書

法的事項。

例如，在以日本專利特許第2927279號公報為首之同一申請人的公開特許公報中，已有記載利用將使YAG系螢光體混合分散於用作螢光體層之母材的環氧樹脂中，流入設於搭載有LED晶片之安裝導線腳上之杯體部或樹脂製框體之收納部內，再使環氧樹脂硬化的手法(注入法)，以形成在LED晶片上含有YAG系螢光體的塗敷部之技術。然後，在該等的公報中，有記載將含有YAG系螢光體之塗敷部的厚度設在100~400 μm 的主旨技術。

又，在以日本專利特開2000-208822號公報為首之同一申請人的公開特許公報中，有揭示一種將YAG系螢光體混合分散於環氧樹脂中而構成的螢光體糊劑，塗敷於LED晶片之安裝面以外的周圍上，以形成使糊劑硬化而成的螢光體層，來作為被覆LED之封裝的手法。在該等的公報中，有記載將含有YAG系螢光體之封裝，即螢光體層之厚度設在20~110 μm 的主旨技術。此時，可採用光微影法、網版印刷法、轉印法，作為將螢光體糊劑塗敷於LED晶片之安裝面以外的周圍上。

圖7係顯示依以往之注入法所形成之晶片型半導體發光元件之一例的剖視圖。如同圖所示，該習知半導體發光元件係包含有：框體8；配置於框體8內的藍色LED1；用以覆蓋框體8內之藍色LED1之周圍且由黃色系螢光體粒子與樹脂之混合物所構成的YAG系螢光體層3；以及覆蓋框體8內之YAG系螢光體層3的上部塗敷部10。

圖9係顯示圖7所示狀態之半導體發光元件塗敷部10之剖面構造的電子顯微鏡照片圖。圖10係顯示框體8附近之擴大圖的電子顯微鏡照片圖。在本發明人等之實驗範圍內，依上述之注入法而形成螢光體層的情況，就如圖7、圖9及圖10之電子顯微鏡照片所示，在形成塗敷部之期間，塗敷部，大致被分成含高密度之YAG系螢光體的螢光體層3、及幾乎不含YAG系螢光體的上部塗敷部10。其主要原因，係在於起因於YAG系螢光體與樹脂之比重差，而使YAG系螢光體粒子9依重力而沉積於塗敷部之底部。換句話說，所獲得之實質的螢光體層3，並非是YAG螢光體粒子9散佈在環氧樹脂(母材)之整體上的構造，而是YAG系螢光體粒子9彼此之間相接觸而偏位存在於母材中，並沉積存在於塗敷部之底部者。在此，所謂分散狀態，係指螢光體粒子到處均勻地分散於螢光體層中的狀態之意。螢光體層3之實質厚度，係薄於上部塗敷部10的厚度，形成10~70 μm 。

另外，有關塗敷部中之YAG系螢光體粒子的分佈，例如在日本專利再公表特許WO98/05078號中，有「發光螢光體之分佈，係藉由調整含有發光螢光體之構件、形成溫度、黏度或發光螢光體之形狀、粒度分佈等即可實現各種的分佈…」之記載，雖亦有教示形成具有YAG系螢光體粒子均勻地分散於母材中之構造的螢光體層之可能性，但是實際上採用YAG系螢光體與所揭示之樹脂類(環氧樹脂、尿素樹脂、矽)的上述注入法，在本發明人等之追加測試實驗中

是不可能實現的。為了慎重起見，雖取得由日本專利特許第2927279號公報之申請人所製品化的半導體發光元件，並評估螢光體層之剖面構造，但是螢光體層，並非是YAG系螢光體粒子均勻地分散於母材中之整體上的構造，而是如圖9所示之螢光體層，即YAG系螢光體粒子彼此之間相接觸而偏位存在於母材中，且螢光體層沉積於塗敷部之底部而形成者。又，螢光體層之實質厚度係如圖9之電子顯微鏡照片所示，約為70 μm 。

又，即使在使用前述之光微影法或轉印法來塗敷螢光體層，以形成作為封裝之螢光體層的方法中，亦會在螢光體形成中依重力而使YAG系螢光體粒子沉積於塗敷部之底部。因而，所獲得的實質之螢光體層，就非為YAG系螢光體粒子分散於母材中之整體上的狀態，而是會在封裝中之螢光體粒子之分部上發生分佈不均勻的情形。又，當使用網版印刷法來形成作為封裝之螢光體層時，YAG系螢光體粒子之沉積雖會緩和且變成接近分散於母材中之整體上的構造狀態，但是仍會被看到螢光體粒子之分佈不均勻情形。又，被形成的螢光體層會變成發光性能較低者。

如此，在習知半導體發光元件中，會傾向於在螢光體層中YAG系螢光體粒子彼此之間相接觸而偏位存在於母材中者較多，且在螢光體層中會被看到螢光體粒子之分佈不均勻情形。當歸納以上說明之習知半導體發光元件的螢光體層時，則所採用的螢光體為YAG系螢光體，而其實質厚度為10~70 μm ，較多為10~30 μm 。又，螢光體層，係使YAG

系螢光體混合分散於用作母體之樹脂中者(螢光體糊劑)硬化所形成。

其次，就上述半導體發光元件之螢光體層的構造與顏色不均勻的關係及以往之顏色不均勻抑制方法加以說明。

在組合藍色LED與螢光體而成的半導體發光元件中，發光色之顏色不均勻可視為習知以來的問題，且完成用以抑制該問題的各種配合。其大半部，係依YAG系螢光體粒子之形狀、粒子尺寸、粒度分佈之最適當化、內設螢光體之母材的選擇、螢光體糊劑之黏度的調整及乾燥條件之最適當化等的製造技術情報所決定者。

另一方面，亦可非為製造技術情報，而可進行根本改善螢光體層等構造用的具體提案。例如，在日本專利特開平11-31845號公報中，有記載一種於LED晶片上塗敷環氧樹脂作為黏著劑之後，在該黏著劑上附著YAG系螢光體粒子，且進而利用氣體噴吹將過剩附著之YAG系螢光體粒子吹走的手法，俾使YAG系螢光體層之厚度均勻化，以抑制半導體發光元件之發光顏色不均勻的方法。又，在日本專利特開2000-208822號公報中，有記載一種在藍色LED之安裝面以外的周圍，形成螢光體層(光透過性之波長轉換層)，以作為被覆藍色LED之封裝，再使從藍色LED之外側輪廓面開始之封裝的厚度在發光方向之方位上形成大致相等的方式，使螢光體層之厚度均勻化以抑制顏色不均勻的方法。又，在日本專利特開2001-177158號公報中，亦有記載一種以與主光取出面呈平行的方式研磨製作出螢

光體層之表面的方法。

解決課題

如已說明般，在習知半導體發光元件中，起因於採用YAG系螢光體作為黃色系螢光體，而在螢光體層形成中使YAG系螢光體粒子依重力而沉積於塗敷部之底部，所以塗敷層，會被分成螢光體粒子彼此之間相接觸而偏位存在於母材中的螢光體層、及幾乎不含YAG系螢光體的上部塗敷層。又，即使YAG系螢光體粒子彼此之間未有相接觸之程度，亦會形成母材中螢光體粒子之分佈不均勻較大的螢光體層。該原因雖未必很明確，但是至少螢光體與母材之比重差係成為其原因之一而產生者。

另外，雖然依螢光體之組成而有若干不同，但是就如前面所說明般，雖然完全不含Gd原子之 $Y_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}$ 螢光體(Y對Ce置換量：0.1~2%，室溫下之主發光峰值波長：530~557 nm))的真比重為4.15~4.55，但是若依據發明人等的評估，為了獲得良好的黃色系光，釔(Y)之一部分依釷(Gd)所置換之至少 $(Y_{0.7}Gd_{0.28}Ce_{0.02})_3Al_5O_{12}$ 螢光體(主發光峰值波長：565 nm)的真比重之測定結果為4.98，而 $Y_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}$ 螢光體之一部分依釷(Gd)而置換的螢光體，均為超過4.65之較重者(參照圖48)。

另外，將上述(Zn, Cd)S當作螢光體母體的硫化物螢光體，為人所周知者係藉由含有鎘(Cd)而可釋放出在560 nm左右以上之波長領域中具有主發光峰值之黃色系光的螢光體(例如，參照螢光體手冊，螢光體同學會編，歐姆公

司第248頁)；而真比重為輕至4.13左右(參照Phosphor Index(日亞化學工業股份有限公司)。但是，由於依藍色光(激勵光)之照射不僅會使發光效率低，而且還含有害的鎘(Cd)，所以要製造、處理、保管等是極為困難的。

如此，習知半導體發光元件，由於在螢光體層中會發生螢光體粒子之分佈不均勻情形，所以有發光發生不均勻，製品良率低的不良情形。該發光不均勻的不良情形，係共同存在於使用YAG系螢光體所構成的習知半導體發光元件中，且亦存在於為了補償紅色光之不足而進一步採用紅色螢光體之半導體發光元件中、或為了提高視覺度而進一步採用綠色螢光體之半導體發光元件中。

又，在習知半導體發光元件中，亦有從其他觀點看到的不良情形。習知半導體發光元件之中，具有螢光體粒子彼此之間相接觸而偏位存在的螢光體層者，因螢光體層吸收藍色LED之藍色光而容易衰減，結果，有依LED之藍色光與YAG系螢光體之黃色系光的顏色相加而得的白色系光之光束發生不足的不良情形。

又，YAG系螢光體，係接受在藍色LED所釋放出之410 nm以上且530 nm以下之範圍內的藍色光之照射，以較高的轉換效率將藍色光轉換成550 nm以上且600 nm以下之範圍內的黃色系之光的藍色光激勵螢光體(以藍色光激勵的螢光體)。因此，在使用該種YAG系螢光體而構成的習知白色半導體發光元件中，由於以使用量較少之轉換效率高的YAG系螢光體即可完成，所以可形成螢光體層之實質厚度



為 $10\sim70\ \mu\text{m}$ ，而較多之實用的半導體發光元件薄至 $10\sim30\ \mu\text{m}$ 的螢光體層。YAG系螢光體粒子之大小(中心粒徑)大致為 $5\sim20\ \mu\text{m}$ ；而在螢光體層之實質厚度為較薄的情況，由於充其量依數個至數十個之粒子即可實質地確保螢光體層之厚度，所以因螢光體層之表面所產生的些微表面凹凸所帶來的影響很大，且發光不均勻會變大。相對於此，當將YAG系螢光體之螢光體濃度(螢光體重量/(螢光體重量+樹脂重量))降得比通常之 $5\sim10$ 重量%還低，且設在 5 重量%未滿而加厚螢光體層之實質厚度時，半導體發光元件之配光特性就會變差。

有關該種顏色不均勻之抑制，以往雖有各式各樣的想法，但是尚未發現充分的解決方策，而有半導體發光元件之製品良率低的問題，此狀態為實際情況。又，不僅是顏色不均勻之問題，而且尚有因YAG系螢光體之黃色系光的發光峰值波長，被限定在約 $550\ \text{nm}$ 以上且 $590\ \text{nm}$ 以下之範圍內，所以上述半導體發光元件，尤其是釋放出白色系光之半導體發光元件之光的顏色表現範圍會較窄，而有顏色控制上的困難性。此係因半導體發光元件所釋放出的光之顏色，依藍色LED所釋放出的藍色光、及YAG系螢光體所釋放出的黃色系光之顏色相加而決定所致。

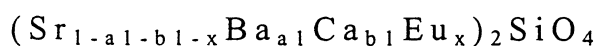
又，在使用該種習知半導體發光元件的發光裝置中，即使在發光裝置中亦有容易發生顏色不均勻的問題、或起因於此而使發光裝置之製品良率降低的問題。又，由於半導體發光元件之製品良率低，所以有發光裝置之製造成本變

高的問題。

發明之揭示

本發明之目的，在於提供一種抑制組合藍色發光元件與螢光體而成之半導體發光元件的顏色不均勻，且顏色不均勻較少的半導體發光元件或半導體發光裝置，尤其是顯示與組合習知 YAG 系螢光體與藍色發光元件之白色半導體發光元件同等以上之較高光束的白色半導體發光元件及顏色不均勻較少之高光束的發光裝置。

本發明之半導體發光元件，其係包含有：至少一個藍色發光元件，具有光取出面，俾從該光取出面釋放出藍色光；以及螢光體層，設計成用來覆蓋上述藍色發光元件之至少上述光取出部，並含黃色系螢光體，用以吸收上述藍色發光元件所釋放出的藍色光並釋放出黃色系的螢光；其中上述黃色系螢光體，係以下述化學式表示之至少一種化合物為主體所構成的矽酸鹽螢光體。



$$(0 \leq a1 \leq 0.3, 0 \leq b1 \leq 0.8, 0 < x < 1)$$

在此，上述藍色發光元件，從能獲得釋放出良好白色光之半導體發光元件的觀點來看，較佳者係用以釋放出在超過 430 nm 且 500 nm 以下，較佳為 440 nm 以上且 490 nm 以下，更佳為 450 nm 以上且 480 nm 以下之波長領域中具有主發光峰值之發光的藍色發光元件。又，上述黃色系螢光體，較佳者係用以釋放出在超過 550 nm 且 600 nm 以下，較佳為 560 nm 以上且 590 nm 以下，更佳為 565 nm 以上且 585

(15)

發明說明書

nm以下之波長領域中具有主發光峰值之螢光的黃色系螢光體。

又，上述化學式中之 a_1 、 b_1 、 x 的數值，從與螢光體之熱相對的結晶之安定性、發光特性之耐熱性、黃色系發光之發光強度、及光色之觀點來看，較佳者係分別為 $0 < a_1 \leq 0.2$ 、 $0 < b_1 \leq 0.7$ 、 $0.005 < x < 0.1$ ，更佳者分別為 $0 < a_1 \leq 0.15$ 、 $0 < b_1 \leq 0.6$ 、 $0.01 < x < 0.05$ ，最佳者分別為 $0.01 \leq a_1 \leq 0.1$ 、 $0.001 \leq b_1 \leq 0.05$ 、 $0.01 < x \leq 0.02$ 。

圖8係顯示矽酸鹽螢光體及YAG系螢光體之激勵光光譜與發光光譜的示意圖。如圖8所示，矽酸鹽螢光體，由於係在250~300 nm附近具有激勵光峰值，並吸收100~500 nm之較寬波長範圍內的光，以釋放出在550~600 nm之黃綠色~黃色~橙色之波長領域中具有發光峰值之黃色系螢光的黃色系螢光體，所以當組合上述藍色發光元件時，將成為依藍色發光元件之藍色光與黃色系螢光體之螢光的顏色相加而釋放出光的半導體發光元件。

在此，當就上述矽酸鹽螢光體之組成範圍與結晶構造及發光色之關係、釋放出黃色系發光之上述矽酸鹽螢光體的特性等更進一步詳細說明時，就如以下所述。第一、在上述矽酸鹽螢光體之化學式中之 a_1 與 b_1 的數值，均接近0的情況，則容易成為單斜晶系之矽酸鹽螢光體、或是混有斜方晶系與單斜晶系之矽酸鹽螢光體。第二、在 a_1 之數值從上述最佳範圍離開較大側，而 b_1 之數值接近0的情況， Eu^{2+} 離子之周圍的結晶場(Crystal Field)就會變弱。第三、在 a_1

之數值接近0而b1之數值從上述最佳範圍離開較大側的情況，就容易成為具有單斜晶系之結晶構造矽酸鹽螢光體。第四、在a1之數值與b1之數值均從上述最佳範圍離開較大側，而 $1-a1-b1-x$ 之數值接近0的情況，就容易成為具有六方晶系(Hexagonal)之結晶構造矽酸鹽螢光體。又，即使在上述第一至第四之任一個情況，均有變成帶綠色感之螢光體且黃色之色純度較差的發光之情況。又，在x之數值從上述最佳範圍離開較小側的情況，由於 Eu^{2+} 發光中心濃度較低所以矽酸鹽螢光體之發光強度會變弱，而在x之數值從上述最佳範圍離開較大側的情況，發光強度不僅會因 Eu^{2+} 離子之濃度消光或自我吸收而變弱，且恐有發生隨著矽酸鹽螢光體之周圍溫度上升而使發光強度降低的溫度消光之虞。

又，上述矽酸鹽螢光體，經與圖8顯示一例之YAG系螢光體的激勵光光譜可知，在超過430 nm且500 nm以下之波長範圍內的藍色光之激勵下，由於其係發光效率較低(例如在470 nm激勵時為YAG系螢光體之一半的發光強度)的螢光體，所以例如欲在依藍色發光元件之藍色光與黃色系螢光體之黃色光的顏色相加而釋放出白色光的白色半導體發光元件中獲得同一光色的情況，比使用YAG系螢光體的情況，由於螢光體之使用量係以採用矽酸鹽螢光體之情況較多，所以螢光體層之厚度會相對地變厚。結果，會成為依螢光體層表面所產生之凹凸影響較少的螢光體層，且螢光體層之厚度變動實質會變少，而成為發光顏色不均勻

較少的半導體發光元件。

上述藍色發光元件，雖係選自藍色發光二極體、雷射二極體、表面發光雷射二極體、共鳴共振器發光二極體 (Resonant cavity light emitting diode)、無機電致發光元件及有機電致發光元件中之一個元件，但是當從半導體發光元件之高輸出化或長壽命化之方面來看的話，則以發光二極體、雷射二極體、表面發光雷射二極體、共鳴共振器發光二極體等更佳。

上述黃色系螢光體之Ca(鈣)組合比b1，更佳者係在 $0 \leq b2 \leq 0.6$ 之範圍內的組成比b2。

在此，b2之數值，從與螢光體之熱相對的結晶之安定性、發光特性之耐熱性、黃色系發光之發光強度、及光色的觀點來看，則較佳為 $0 < b2 \leq 0.4$ ，更佳者為 $0 < b2 \leq 0.3$ ，最佳者為 $0.001 \leq b2 \leq 0.05$ 。

具有斜方晶系之結晶構造的上述組成範圍內之矽酸鹽螢光體，係在上述藍色光激勵下，由於會釋放出既高效率又黃色純度良好的黃色系光，所以半導體發光元件所釋放出的光，不僅成為高光束，亦成為白色純度良好的白色系光。

又，在半導體發光元件中，亦可將藍色發光元件，作為氮化鎵系化合物半導體、硒化鋅半導體、氧化鋅半導體中之任一種藍色無機發光元件。由於該種的藍色無機發光元件，尤其是具有由氮化鎵系化合物半導體構成之發光層的藍色發光元件顯示較高的發光效率，所以當組合成該種的



藍色無機發光元件，尤其是具有由氮化鎵系化合物半導體構成之發光層的藍色發光元件與上述矽酸鹽螢光體時，就可獲得釋放出高光束之光的半導體發光元件。

又，在半導體發光元件中，亦可將半導體發光元件所釋放出之發光的發光色之 CIE 色度圖中的發光色度點 (x, y)，設在 $0.21 \leq x \leq 0.48$ 、 $0.19 \leq y \leq 0.45$ 之範圍內。

該色度範圍由於包含較寬的白色，所以當將上述半導體發光元件所釋放出的光色設在該色度範圍內時，就可獲得需要較多的白色半導體發光元件。

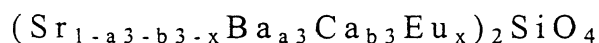
又，亦可更包含在超過波長 600 nm 且 660 nm 以下之紅色系領域中具有發光峰值的紅色系螢光體。

當如此所構成時，則由於紅色系螢光體可補償黃色螢光體中所無法補足的紅色發光成份，所以半導體發光元件所釋放出的光包含有較多的紅色發光成份。

又，更包含在波長 500 nm 以上且 550 nm 未滿之綠色系領域中具有發光峰值的綠色系螢光體。

當如此所構成時，由於綠色系螢光體可補償黃色系螢光體所無法補足之視覺度高的綠色發光成份，所以半導體發光元件所釋放出的光包含有較多的綠色發光成份，而成為半導體發光元件所釋放出的光，尤其是成為白色光之視覺度高的白色光。相對於黃色系螢光體，亦可組合紅色系螢光體及綠色系螢光體。

又，上述綠色系螢光體，較佳者係以下述化學式表示之化合物為主體所構成的矽酸鹽螢光體。



$$(0 \leq a3 \leq 1, 0 \leq b3 \leq 1, 0 < x < 1)$$

當如此所構成時，由於上述綠色系螢光體之組成或結晶構造，將變成與釋放出黃色系發光的上述矽酸鹽螢光體相似的構造，所以不僅會成為包含綠色系螢光體之半導體發光元件中之顏色不均勻較少者，而且在半導體發光元件之製程等中，亦不需要採取新的技術，而以簡略的步驟即可製造。

又，亦可將釋放出在 550 nm 以上且 600 nm 以下之波長領域中具有發光峰值的黃色系光之複數個組成互異的上述矽酸鹽螢光體，包含於螢光體層中。當如此所構成時，即可控制依與矽酸鹽螢光體所釋放出之紅色系光的顏色相加而得的白色光之光色。

其構造較佳者為，上述螢光體層，係具有透光性之樹脂作為母材；而上述黃色系螢光體，係在上述母材中以粒子狀分散存在著。

當形成該種螢光體層時，由於螢光體層實質尚未包含光吸收因子或光散射因子，所以螢光體層之光透過性變佳。因而，幾乎沒有藍色發光元件之藍色光被吸收而衰減的情形，且會透過螢光體層，或有助於螢光體之激勵。又，由於會成為藍色光可照射螢光體粒子表面之較寬部分的狀態之螢光體層，所以螢光體粒子之激勵截面積實質會增加，而發光體層中之螢光體粒子可效率佳地發光。

又，在具有分散著螢光體粒子之構造的螢光體層中，由

於增加螢光體層之實質厚度，所以對螢光體層之厚度變動的影響會變少，且因螢光體層之厚度變動而產生的發光不均勻亦會變少。另外，作為具有上述透光性之母材，可採用樹脂或類似的材料。作為樹脂，可採用環氧樹脂、丙烯酸樹脂、聚醯亞胺樹脂、尿素樹脂、矽樹脂等的樹脂，特佳者為環氧樹脂或矽樹脂。

但是，上述螢光體層，亦可形成(燒結)上述矽酸鹽螢光體所構成。

較佳者為，其構成係藉由上述藍色發光元件所釋放出的藍色光通過上述螢光體層，以使上述藍色光與上述螢光體所釋放出的螢光加上顏色而釋放出白色光。

本發明之半導體發光元件，係可採用具備如下構件的構造。

第一構造，係更包含有基板；上述藍色發光元件，係以覆晶狀態搭載於上述基板上；上述螢光體層，係當作密封上述藍色發光元件之密封樹脂的功能。

該情況，上述基板，較佳者係具有積納二極體。

第二構造，亦可更包含具有杯體部的安裝導線腳；上述藍色發光元件，係搭載於上述杯體部上；上述螢光體層，係設在上述杯體內。

第三構造，亦可更包含有用以配置藍色發光元件的框體；上述螢光體層係設在上述框體內。

由於藉由形成該種的半導體發光元件，就可獲得釋放出高光束之白色光的半導體發光元件，且可以較單純的步驟



來製造，所以亦可提高製品良率。

又，在上述半導體發光元件中，具有第一構造之半導體發光元件，由於具有本來顏色不均勻較少於具有其他第二、第三構造之半導體發光元件的特性，所以依具有第一構造之半導體發光元件，可使半導體發光元件之顏色不均勻變得更少，且更提高製品良率。

較佳者為，上述螢光體層之位於上述藍色發光元件之上述光取出面上的部分之實質厚度，係在50 μm 以上且1000 μm 以下之範圍內。

藉由將螢光體層之實質厚度設在50 μm 以上且1000 μm 以下之範圍內，更佳者為設在100 μm 以上且700 μm 以下之範圍內，由於依矽酸鹽螢光體之藍色光而產生的激勵截面積會比習知YAG螢光體之情況更為增加，所以矽酸鹽螢光體所釋放出的黃色光之發光強度會增大，而依與藍色發光元件所釋放出的藍色光之顏色相加，半導體發光元件即可釋放出色調良好的白色光。又，如前面所述，螢光體層因並未實質包含光之吸收衰減因子，故不會吸收衰減藍色發光元件之藍色光而會透過螢光體層，或有助於螢光體之激勵，而增加矽酸鹽螢光體所釋放出的黃色光之發光強度，所以藉由設定最適當的螢光體濃度(樹脂與螢光體之重量比例：螢光體重量/(螢光體重量+樹脂重量))，即可將採用YAG系螢光體之習知半導體發光元件釋放出極高光束的白色光。

更且，當比較採用YAG系螢光體之習知半導體發光元件

時，由於實質的螢光體層之厚度會大幅地變厚，所以實質的螢光體層之表面凹凸多少會變大，同時對螢光體層整體厚度的表面凹凸之影響會變少，且由於外觀上的厚度變動會變少，所以依螢光體層之厚度變動而產生的發光不均勻會變少。

由於當螢光體層之實質厚度比上述較佳厚度範圍更薄時，依矽酸鹽螢光體之藍色光而產生的激勵截面積會變小，且螢光體之實質的發光效率會變低，所以有藍色發光元件之發光成為優勢之帶藍色感較強的發光色，而無法獲得色調良好的白色光之情況。又，亦有無法獲得較高光束的情況。另一方面，當實質厚度比上述厚度範圍更厚時，雖然依矽酸鹽螢光體之藍色光而產生的激勵截面積會變大，且螢光體之實質的發光效率會變高，但是由於藍色光之大半部分會被螢光體吸收而轉換成黃色系光，所以有矽酸鹽螢光體之黃色系發光成為優勢之帶黃色感較強的發光色，而無法獲得色調良好的白色光之情況。又，由於螢光體粒子彼此之間局部產生接觸，而容易吸收衰減藍色發光元件之藍色光，所以亦有無法獲得較高光束的情況。

另外，在採用習知YAG系螢光體之半導體發光元件中，當形成如本發明之半導體發光元件之厚度的螢光體層時，在具有一般矽酸鹽螢光體之螢光體層的螢光體濃度條件(10~80重量%)之下，由於YAG系螢光體之藍色光照射下的發光效率極高，所以YAG系螢光體之發光只能獲得優勢之帶黃色感較強的發光色，且光束亦會降低。又，當欲將

螢光體濃度減少以確保所希望之光色，而形成該種較厚的螢光體層時，YAG系螢光體粒子，就容易偏位存在於螢光體層之母材(樹脂)中，且起因於此而使發光之色度或亮度的不均勻變大，又容易使配光特性變差，而只能獲得製品價值低的半導體發光元件。

另外，本說明書中，如採用圖9及圖10所示之電子顯微鏡照片，明示螢光體粒子偏位存在於該母材中的情況所示，依倍率50~1000倍之電子顯微鏡而進行半導體發光元件之截面觀察，將可明確地目視觀察到母材中之螢光體粒子存在的平均厚度，定義為「螢光體層之實質厚度」。

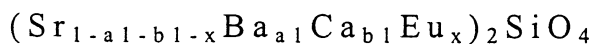
較佳者為，上述螢光體層之至少位於藍色發光元件之上述光取出面上的部分之上面，係呈平坦且大致與上述光取出面平行者。

藍色發光元件，從其製造簡便性來看，光取出面(尤其是主光取出面)大半係製作成平坦者。因而，當將螢光體之表面，與光取出面(尤其是主光取出面)形成平行時，從光取出面之外輪廓面至螢光體層之外輪廓面的距離，即螢光體之厚度，在光取出面上之螢光體層整體上形成大致一定，且螢光體層之厚度變動會變得更少，而半導體發光元件之發光不均勻就會變少。

上述至少藍色發光元件亦可設有複數個；上述螢光體層，係設計成用來覆蓋上述複數個藍色發光元件之各光取出面。

本發明之發光裝置，其係包含有：釋放出藍色光之至少

一個藍色發光元件；至少一個螢光體層，含黃色系螢光體，用以吸收上述藍色發光元件所釋放出的藍色光並釋放出黃色系的螢光；以及支撐構件，用以支撐上述藍色發光元件及螢光體層；其中上述黃色系螢光體，係以下述化學式表示之至少一種化合物為主體所構成的矽酸鹽螢光體。



$$(0 \leq a1 \leq 0.3, 0 \leq b1 \leq 0.8, 0 < x < 1)$$

包含本發明之藍色發光元件與螢光體層的半導體發光元件因顏色不均勻變少，結果可提高製品良率及使價格便宜。因而，藉由採用該等的半導體發光元件以構成發光裝置，則不僅使半導體發光裝置之顏色不均勻變少，還成為製造成本低的半導體發光裝置。又，該種的半導體發光元件，由於將採用習知 YAG 系螢光體的半導體發光元件釋放出極高光束，所以發光裝置之光束亦會提高。

上述至少一個藍色發光元件亦可設有複數個；上述螢光體層，係設計成用來覆蓋上述複數個藍色發光元件之各光取出面。

另外，本說明書中，係將半導體發光裝置之各種顯示裝置（例如 LED 資訊顯示終端、LED 交通信號燈、汽車之 LED 煞車燈或 LED 方向指示燈等）或各種照明裝置（LED 屋內外照明燈、車內 LED 燈、LED 緊急照明燈、LED 表面發光源等）廣義定義為發光裝置。

本發明之半導體發光元件之螢光體層之製造方法，其係具備：藍色發光元件，用以釋放出在超過 430 nm 且 500 nm



以下之波長領域中具有主發光峰值的發光；以及螢光體層，含黃色系螢光體，用以吸收上述藍色發光元件所釋放出的藍色光之後在釋放出在550 nm以上且600 nm以下之波長領域中具有主發光峰值的螢光；其包含有：步驟(a)，真比重在3.0以上且4.65以下之範圍內，且利用螢光體糊劑來覆蓋至少上述藍色發光元件之光取出面，而該螢光體糊劑，係包含室溫下發光之主發光峰值波長在560 nm以上600 nm以下之範圍內的上述黃色系螢光體、及真比重在0.8以上且上述黃色系螢光體之真比重以下之範圍內的樹脂；以及步驟(b)，使上述螢光體糊劑硬化，藉以形成上述螢光體層；其中，上述步驟(a)中之上述黃色系螢光體，係採用以化合物為母體的螢光體，而該化合物包含有：選自Mg(鎂)、Ca(鈣)、Sr(銦)、Ba(鋇)、Sc(釷)、Y(鈮)、釷系元素、Ti(鈦)、Zr(鋯)、Hf(鈹)、V(釩)、Nb(鈮)、Ta(鉭)、Mo(鉬)、W(鎢)、Zn(鋅)、B(硼)、Al(鋁)、Ga(鎵)、In(銦)、Si(矽)、Ge(鍺)、Sn(錫)、P(磷)之中的至少一個元素；及選自O(氧)、S(硫)、Se(硒)、F(氟)、Cl(氯)、Br(溴)之中的至少一個元素。該等的化合物，並未包含Cd(鎘)等比重較大的元素。

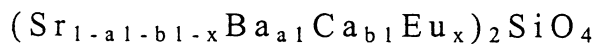
如此，在使包含黃色系螢光體與樹脂之螢光體糊劑硬化以形成螢光體層的螢光體層之製造方法中，當採用真比重小於YAG系螢光體的黃色系螢光體時，由於樹脂(當特殊情況除外時，通常係只具有小於螢光體的真比重)與螢光體之比重差會變小，所以在螢光體糊劑之硬化前或是螢光體

糊劑之硬化中，在螢光體糊劑中螢光體會因重力而不易下沉，而所形成的螢光體層之構造，則成為具有螢光體粒子大致均勻地分散於樹脂中之整體上的構造，或是接近的構造。又，由於採用不含有害之鎘(Cd)的螢光體，較佳為氧化物之螢光體，所以容易進行製造、處理、保管及管理。

在上述步驟(a)中，亦可係採用中心粒徑在0.5 μm以上且30 μm以下之範圍內的黃色系螢光體。

當如此所構成時，就可獲得發光強度較強，且具分散有螢光體粒子之構造的螢光體層。

上述步驟(a)中之上述黃色系螢光體，係可採用以下述化學式表示之至少一種化合物為主體所構成的矽酸鹽螢光體。



$$(0 \leq a1 \leq 0.3, 0 \leq b1 \leq 0.8, 0 < x < 1)$$

其中，a1、b1、x，較佳者分別為滿足 $0 < a1 \leq 0.2$ ， $0 \leq b1 \leq 0.7$ ， $0.05 < x < 0.1$ 的數值。具有位於上述較佳範圍內之組成，且釋放出在560 nm以上且600 nm以下之波長領域中具有主發光峰值之螢光的矽酸鹽螢光體，由於係真比重通常小於YAG系螢光體，在3.0以上且4.65以下之範圍內，並在藍色光激勵下，釋放出黃色系發光的黃色系螢光體，所以當同時使用真比重在0.8以上且黃色系螢光體之真比重以下之範圍內的樹脂(例如，環氧樹脂)以形成螢光體層時，在實際步驟中，就可實現發光強度較強，且具分散有螢光體粒子之構造的螢光體層。另外，在a1之數值大於上

述較佳範圍的情況，亦有該數值若越大，則矽酸鹽螢光體之真比重就會越大，且在螢光體糊劑中會使螢光體粒子容易下沉，而無法獲得分散有螢光體粒子之構造的螢光體層之情況。該作用，係起因於當與鋇(Sr)原子相比較時鋇(Ba)原子較重之故。

在此，當簡單就YAG系螢光體之組成、真比重及主發光峰值波長的關係加以說明時，YAG系螢光體之真比重，雖會依組成、尤其是對釔(Y)之釔(Gd)置換量而大幅變動，但是在室溫下於560 nm以上且600 nm以下之波長領域中具有主發光峰值的YAG系螢光體，係釔(Gd)置換量通常會較多，且起因於此，其真比重會超過4.55，而在4.60、4.65甚至超過4.7的範圍內，而為較重者。

又，於上述螢光體糊劑中，更可包含有一次粒子之平均直徑在1 nm以上且100 nm以下之範圍內的超微粒子，並使該螢光體糊劑硬化而形成。上述超微粒子之樹脂中的下沉速度由於極為慢幾乎為0，所以當如此所構成時，浮游於樹脂中的超微粒子，就會以阻礙黃色系螢光體之下沉的方式活動，結果，黃色系螢光體之下沉速度會變慢，而很容易獲得分散有螢光體粒子構造的螢光體層。

又，只要藉由藍色發光二極體所釋放出之藍色光通過上述螢光體層，使藍色光與螢光體所釋放出的螢光之顏色相加而釋放出白色光即可。藉此，就可使藍色光與螢光體所釋放出的螢光(黃色系、紅色系、綠色系)確實地進行顏色相加而獲得白色光。

更且，在螢光體糊劑之硬化中等方面，作為抑制螢光體粒子之下沉用的方法，有以下的方法。

第一、一種半導體發光元件之製造方法，其包含有：步驟(a)，利用包含樹脂與螢光體粒子之螢光體糊劑來覆蓋藍色發光元件之光取出面；以及步驟(b)，一邊對上述螢光體糊劑提供振動而一邊使之硬化。

第二、一種半導體發光元件之製造方法，其包含有：步驟(a)，利用包含樹脂與螢光體粒子之螢光體糊劑來覆蓋藍色發光元件之光取出面；以及步驟(b)，一邊使上述螢光體糊劑翻轉而一邊使之硬化。

第三、一種半導體發光元件之製造方法，其係反覆進行複數次以下之步驟者，該步驟包含有：步驟(a)，利用包含樹脂與螢光體粒子之螢光體糊劑來覆蓋藍色發光元件之光取出面；以及步驟(b)，使上述螢光體糊劑硬化。

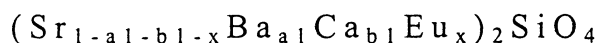
第四、一種半導體發光元件之製造方法，其係反覆進行複數次以下之步驟者，該步驟包含有：步驟(a)，利用螢光體糊劑來覆蓋藍色發光元件之光取出面，而該螢光體糊劑，係包含樹脂與螢光體粒子，且其黏度在1 Pa·S以上且100 Pa·S以下之範圍內；以及步驟(b)，使上述螢光體糊劑硬化。

第五、一種半導體發光元件之製造方法，其包含有：步驟(a)，利用包含樹脂與螢光體粒子之螢光體糊劑來覆蓋藍色發光元件之光取出面；以及步驟(b)，利用紫外線照射使上述螢光體糊劑硬化。

第六、一種半導體發光元件之製造方法，其包含有：步驟(a)，利用包含樹脂與螢光體粒子之螢光體糊劑來覆蓋藍色發光元件之光取出面；以及步驟(b)，一邊攪拌上述螢光體糊劑而一邊使之硬化。

又，作為獲得具有儘量使較多的螢光體粒子接近藍色發光元件之構造之半導體發光元件用之方法，有以下的方法。

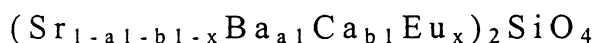
第一、一種半導體發光元件之製造方法，其包含有：步驟(a)，利用第一螢光體糊劑來覆蓋用以釋放出在超過430 nm且500 nm以下之波長領域中具有主發光峰值之光的藍色發光元件之至少光取出面，而該第一螢光體糊劑，係具有由具透光性之樹脂所構成之母材及含黃色系螢光體的螢光體粒子；步驟(b)，在上述步驟(a)之後，利用第二螢光體糊劑來覆蓋上述第一螢光體糊劑，而該第二螢光體糊劑，係具有至少具透光性之樹脂且上述黃色系螢光體之濃度較薄於上述第一螢光體糊劑；以及步驟(c)，使上述第一及第二螢光體糊劑硬化；其中，上述步驟(a)中之上述黃色系螢光體，係用以吸收上述藍色發光元件所釋放出的光之後，再釋放出在550 nm以上且600 nm以下之波長領域中具有主發光峰值之光的黃色系螢光體，其係以下述化學式表示之至少一種化合物為主體所構成的矽酸鹽螢光體。



$$(0 \leq a1 \leq 0.3, 0 \leq b1 \leq 0.8, 0 < x < 1)$$

第二、一種半導體發光元件之製造方法，其包含有：步

驟(a)，使含黃色系螢光體之螢光體粒子，附著於用以釋放出在超過430 nm且500 nm以下之波長領域中具有主發光峰值之光的藍色發光元件之至少光取出面上；步驟(c)，在上述步驟(a)之後，利用具透光性之樹脂來覆蓋上述藍色發光元件之至少光取出面；以及步驟(d)，使上述樹脂硬化；其中，上述步驟(b)中之上述黃色系螢光體，係用以吸收上述藍色發光元件所釋放出的光之後，再釋放出在550 nm以上且600 nm以下之波長領域中具有主發光峰值之光的黃色系螢光體，其係以下述化學式表示之至少一種化合物為主體所構成的矽酸鹽螢光體。

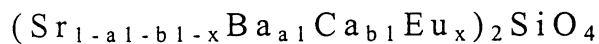


$$(0 \leq a1 \leq 0.3, 0 \leq b1 \leq 0.8, 0 < x < 1)$$

該情況，亦有在上述步驟(a)中，將上述黃色系螢光體粒子撒在上述藍色發光元件上的方法，或在上述步驟(a)中，將藍色發光元件，浸漬在包含含黃色系螢光體之螢光體粒子與揮發性溶媒的懸浮液中之後，再使上述溶媒揮發的方法。

第三、一種半導體發光元件之製造方法，其包含有：步驟(a)，利用螢光體糊劑來覆蓋用以釋放出在超過430 nm且500 nm以下之波長領域中具有主發光峰值之光的藍色發光元件之至少光取出面，而該螢光體糊劑，係具有含黃色系螢光體且帶正電之物質附著於表面的螢光體粒子、及透光性樹脂；以及步驟(c)，在上述步驟(a)之後，使上述螢光體糊劑硬化；其中，上述步驟(b)中之上述黃色系螢光

體，係用以吸收上述藍色發光元件所釋放出的光之後，再釋放出在 550 nm 以上且 600 nm 以下之波長領域中具有主發光峰值之光的黃色系螢光體，其係以下述化學式表示之至少一種化合物為主體所構成的矽酸鹽螢光體。



$$(0 \leq a1 \leq 0.3, 0 \leq b1 \leq 0.8, 0 < x < 1)$$

圖式之簡單說明

圖 1 係顯示本發明第一實施形態第一例之半導體發光元件的縱剖視圖。

圖 2 係顯示本發明第一實施形態第二例之半導體發光元件的縱剖視圖。

圖 3 係顯示本發明第一實施形態第三例之半導體發光元件的縱剖視圖。

圖 4 係概略顯示本發明第二實施形態第一例之作為發光裝置之站立式照明裝置構造的立體圖。

圖 5 係概略顯示本發明第二實施形態第二例之作為發光裝置之影像顯示裝置構造的立體圖。

圖 6 係概略顯示本發明第二實施形態第三例之作為發光裝置之圖案顯示裝置構造的立體圖。

圖 7 係顯示利用習知注入法而形成之晶片型半導體發光元件之一例的剖視圖。

圖 8 係顯示矽酸鹽螢光體及 YAG 系螢光體之激勵光光譜與發光光譜的示意圖。

圖 9 係顯示圖 7 所示狀態之半導體發光元件之塗敷部剖

面構造的電子顯微鏡照片圖。

圖 10 係顯示框體附近之擴大圖的電子顯微鏡照片圖。

圖 11 係顯示矽酸鹽螢光體於一次燒成後之發光強度(主發光峰值強度)及二次燒成後之發光強度(主發光峰值強度)作為一次燒成溫度之函數的示意圖。

圖 12(a)~(d)係顯示第一具體例之半導體發光元件之製程的剖視圖。

圖 13(a)、(b)係分別依序依第一具體例之製程所形成之半導體發光元件的上視圖及剖視圖。

圖 14(a)~(c)係顯示第二具體例之半導體發光元件之製程中之前半部分的剖視圖。

圖 15(a)、(b)係顯示第二具體例之半導體發光元件之製程中之後半部分的剖視圖。

圖 16(a)~(c)係顯示第三具體例之半導體發光元件之製程中之前半部分的剖視圖。

圖 17(a)、(b)係分別顯示加上半導體發光元件之製造方法的第一具體例中之超音波振動之二個方法的平面圖。

圖 18(a)、(b)係分別顯示加上半導體發光元件之製造方法的第一具體例中之超音波振動之二個方法的平面圖。

圖 19(a)、(b)係顯示使半導體發光元件之製造方法的第一具體例(轉移工法)中之模子上下翻轉之方法的平面圖。

圖 20(a)、(b)係顯示以半導體發光元件之第二具體例之製程中之圖 15(a)所示的步驟，使模子上下翻轉時的狀態。

圖 21(a)~(d)係用以比較下沉有習知螢光體之白色發光

(33)



元件、即螢光體均勻地分散於樹脂中之白色發光元件用的剖視圖。

圖 22 係顯示螢光體糊劑吐出裝置之較佳具體例的剖視圖。

圖 23 係顯示對矽酸鹽螢光體進行的 X 射線繞射解析之結果，且顯示繞射角與 X 射線繞射強度之關係的 X 射線繞射圖案示意圖。

圖 24 係顯示依粒度分佈測定器所測定之矽酸鹽螢光體之粒度分佈的示意圖。

圖 25 係顯示有關矽酸鹽螢光體之發光而使用積分球予以積分評估之結果的示意圖。

圖 26(a)、(b) 係分別依序顯示完全不含 Ca 與 Ba 之 $(\text{Sr}_{0.98}\text{Eu}_{0.02})_2\text{SiO}_4$ 螢光體及公知之單斜晶系 Sr_2SiO_4 化合物的各 X 射線解析圖案示意圖。

圖 27(a)、(b) 係分別依序顯示完全不含 Ca 而包含 5 原子 % 之 Ba 作為置換量之 $(\text{Sr}_{0.93}\text{Ba}_{0.05}\text{Eu}_{0.02})_2\text{SiO}_4$ 螢光體及公知之斜方晶系 Sr_2SiO_4 化合物的各 X 射線解析圖案示意圖。

圖 28(a)、(b) 係分別依序顯示完全不含 Ca 與 Sr 之 $(\text{Ba}_{0.98}\text{Eu}_{0.02})_2\text{SiO}_4$ 螢光體及公知之斜方晶系 Ba_2SiO_4 化合物的各 X 射線解析圖案示意圖。

圖 29(a)、(b) 係分別依序顯示各包含 38 原子 %、60 原子 % 之 Ca 與 Ba 之 $(\text{Ca}_{0.38}\text{Ba}_{0.60}\text{Eu}_{0.02})_2\text{SiO}_4$ 螢光體及公知之六方晶系 $\text{Ba}_{0.3}\text{Ca}_{0.7}\text{SiO}_4$ 化合物的各 X 射線解析圖案示意圖。

圖 30(a)、(b) 係分別依序顯示完全不含 Sr 與 Ba 之

(34)



($\text{Ca}_{0.98}\text{Eu}_{0.02}$) $_2\text{SiO}_4$ 螢光體及公知之單斜晶系 Ca_2SiO_4 化合物的各 X 射線解析圖案示意圖。

圖 31(a)、(b) 係分別依序顯示 Si 之一部分以 Ge 置換的 ($\text{Sr}_{0.84}\text{Ba}_{0.14}\text{Eu}_{0.02}$) $_2(\text{Si}_{0.8}\text{Ge}_{0.2})\text{O}_4$ 螢光體及公知之斜方晶系 Sr_2SiO_4 化合物的各 X 射線解析圖案示意圖。

圖 32 係顯示鋇 (Ba) 置換量 (a3) 不同的 ($\text{Sr}_{0.98-a3}\text{Ba}_{a3}\text{Eu}_{0.02}$) $_2\text{SiO}_4$ 螢光體的發光光譜圖。

圖 33 係顯示包含 5 原子 % 作為置換量且鈣 (Ca) 置換量 (b3) 不同的 ($\text{Ca}_{b3}\text{Sr}_{0.93-b3}\text{Ba}_{0.05}\text{Eu}_{0.02}$) $_2\text{SiO}_4$ 螢光體的發光光譜圖。

圖 34 係顯示鈣 (Ca) 置換量 (b3) 不同的 ($\text{Ca}_{b3}\text{Ba}_{0.98-b3}\text{Eu}_{0.02}$) $_2\text{SiO}_4$ 螢光體的發光光譜圖。

圖 35 係顯示鈣 (Ca) 置換量 (b3) 為 19 原子 %，鋇 (Ba) 置換量 (a3) 為 24 原子 % 的 ($\text{Ca}_{0.19}\text{Sr}_{0.55}\text{Ba}_{0.24}\text{Eu}_{0.02}$) $_2\text{SiO}_4$ 螢光體的發光光譜圖。

圖 36 係顯示 ($\text{Sr}_{0.98-a3}\text{Ba}_{a3}\text{Eu}_{0.02}$) $_2\text{SiO}_4$ 螢光體 (矽酸鹽螢光體) 中之主發光峰值波長之鋇 (Ba) 置換量 (a3) 依存性的示意圖。

圖 37 係顯示 ($\text{Ca}_{b3}\text{Sr}_{0.93-b3}\text{Ba}_{0.05}\text{Eu}_{0.02}$) $_2\text{SiO}_4$ 螢光體 (矽酸鹽螢光體) 中之主發光峰值波長之鈣 (Ca) 置換量 (b3) 依存性的示意圖。

圖 38 係顯示 ($\text{Ca}_{b3}\text{Ba}_{0.98-b3}\text{Eu}_{0.02}$) $_2\text{SiO}_4$ 螢光體 (矽酸鹽螢光體) 中之主發光峰值波長之鈣 (Ca) 置換量 (b3) 依存性的示意圖。

圖 39 係為了參考起見而顯示 Si 之一部分以 Ge 置換的 $(\text{Sr}_{0.84}\text{Ba}_{0.14}\text{Eu}_{0.02})_2(\text{Si}_{0.8}\text{Ge}_{0.2})\text{O}_4$ 螢光體之發光光譜的示意圖。

圖 40 係為了參考起見而顯示鎔 (Eu) 濃度 (x) 為各種不同之 $(\text{Sr}_{1-x}\text{Eu}_x)_2\text{SiO}_4$ 螢光體之發光光譜的示意圖。

圖 41 係為了參考起見而顯示 $(\text{Sr}_{0.95-x}\text{Ba}_{0.05}\text{Eu}_x)_2\text{SiO}_4$ 螢光體之發光光譜的示意圖。

圖 42 係顯示 $(\text{Sr}_{1-x}\text{Eu}_x)_2\text{SiO}_4$ 螢光體、與 $(\text{Sr}_{0.95-x}\text{Ba}_{0.05}\text{Eu}_x)_2\text{SiO}_4$ 螢光體之主發光峰值波長與鎔 (Eu) 濃度依存性的示意圖。

圖 43 係顯示螢光體之發光特性與發光中心濃度之關係例的示意圖。

圖 44 係顯示螢光體重量 % 與亮度之關係的示意圖。

圖 45 係顯示螢光體濃度與全光束之關係的示意圖。

圖 46 係顯示螢光體濃度與全放射束之關係的示意圖。

圖 47 係顯示螢光體濃度與色度 (x 值) 之關係的示意圖。

圖 48 係顯示 YAG 系螢光體與矽酸鹽螢光體之真比重與主發光峰值波長之關係的示意圖。

圖 49 係顯示將藍色 LED 連接各自的碲納二極體上時，具有複數個碲納二極體之晶圓狀態的平面圖。

圖 50(a)~(c) 係顯示第三實施形態之製造方法之第一例中之製程的剖視圖。

圖 51(a)~(c) 係顯示第三實施形態之製造方法之第二例中之製程的剖視圖。

圖 52(a)~(d)係顯示第三實施形態之製造方法之第三例中之製程的剖視圖。

圖 53係為了參考起見而將矽酸鹽螢光體之代表組成與特性作成表來顯示的示意圖。

圖 54係將採用 YAG 螢光體之半導體發光元件、及採用矽酸鹽螢光體之半導體發光元件之亮度特性而進行的實驗數據作成表來顯示的示意圖。

圖 55係將超微粉末矽石等的超微粉末之二氧化矽當作搖變性(thixotropy)賦予劑而插入半導體發光元件之矽酸鹽螢光體中的樣品之各種特性作成表來顯示的示意圖。

圖 56係顯示具備複數個藍色 LED 之半導體發光元件構造的剖視圖。

圖 57係顯示具備多數個藍色 LED 與單一螢光體層之發光裝置構造的剖視圖。

最佳實施形態

- 第一實施形態 -

以下，係就關於本發明半導體發光元件及半導體發光元件之顏色不均勻控制方法的第一實施形態，邊參照圖式而邊加以說明。

圖 1係作為本實施形態之較代表例之第一例之半導體發光元件的縱剖視圖。如同圖所示，第一例之半導體發光元件，係一種包含有基板 4(輔助安裝元件)、覆晶型藍色 LED 1 及螢光體層 3 的覆晶型半導體發光元件；其中基板 4，係具有稽納二極體之功能，覆晶型藍色 LED 1，係以與基板內之



稽納二極體電性導通之狀態搭載於基板4上，而螢光體層3，係用以密封藍色LED1之周圍，由黃色系螢光體粒子2及母材13(透光性樹脂)之混合體所構成。藍色LED1之主光取出面，係以同圖所示之狀態朝向上方，而螢光體層3係設於由主光取出面發出的藍色光所通過的位置上。

圖2係本實施形態中之第二例之半導體發光元件的縱剖視圖。如同圖所示，第二例之半導體發光元件，係一種包含有導線架5、杯體6、藍色LED1、螢光體3及密封樹脂7的砲彈型半導體發光元件；其中杯體6係設於導線架5之安裝導線腳上，藍色LED1係利用搭接線(bonding wire)以與導線架5電性導通之狀態搭載於杯體6之凹部內，螢光體層3係形成於杯體6內，為黃色系螢光體粒子2及母材13(樹脂)之混合體，密封樹脂7係用以密封導線架5、螢光體層3及搭接線者。另外，杯體6之凹部側壁，係具有作為將光反射之反射板的功能。藍色LED1之主光取出面，係以同圖所示之狀態朝向上方，而螢光體層3係設於從主光取出面發出之藍色光所通過的位置上。

圖3係顯示本實施形態中之第三例之半導體發光元件的縱剖視圖。如同圖所示，第三例之半導體發光元件，係一種包含有樹脂製框體8、藍色LED1、外部連接端子51、52、搭接線及螢光體層3的晶片型半導體發光元件；其中框體8係具有凹部且一體成形者，藍色LED1係配置於框體8之凹部內，外部連接端子51、52係從凹部之底面上方貫穿框體8之側部再朝向外部取出者，搭接線係互相連接外部連接

端子 51、52 及藍色 LED1 之襯墊電極者，螢光體層 3 係形成於框體 8 內，由黃色系螢光體粒子 2 及樹脂之混合體所構成。另外，框體 8 之凹部側壁，係具有作為將光反射之反射板的功能。藍色 LED1 之主光取出面，係以同圖所示之狀態朝向上方，而螢光體層 3 係設於從主光取出面發出之藍色光所通過的位置上。

在圖 1 至圖 3 分別所示之第一例至第三例的半導體發光元件中，藍色 LED1，係一種用以釋放出在超過 430 nm 且 500 nm 以下之波長領域中具有主發光峰值之發光的 LED；黃色系螢光體粒子 2，係一種用以吸收藍色 LED1 所釋放出的藍色光，並釋放出在 550 nm 以上且 600 nm 以下之波長領域中具有主發光峰值之螢光的螢光體；而螢光體層 3 係一種包含黃色系螢光粒子 2 的螢光體層。

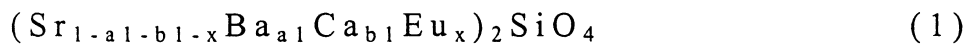
本發明中之藍色發光元件，雖除了本實施形態中之藍色 LED(藍色發光二極體)，其餘均為選自雷射二極體、表面發光雷射二極體、無機電致發光元件及有機電致發光元件中之一個元件，但是若從半導體發光元件之高輸出化及長壽命化之方面來看的話，則以發光二極體、雷射二極體、表面發光雷射二極體等較優。

本發明中之半導體發光元件，係一種組合藍色 LED1 及螢光體層 3 而成的半導體發光元件，其中螢光體層 3，係包含有吸收該藍色 LED1 所釋放出的藍色光並釋放出在 550 nm 以上且 600 nm 以下之波長領域中具有主發光峰值之螢光的黃色系螢光體粒子 2；其可將螢光及藍色 LED 光混色後發



出白色系光者，其中螢光，係在將由藍色LED1所發出之光的一部分包含於螢光體層3內的黃色系螢光體粒子2予以激勵之後，使之產生與藍色LED光不同波長的螢光，藉以產生黃色系螢光體者，而藍色LED光則係無助於黃色系螢光體之激勵而輸出者。

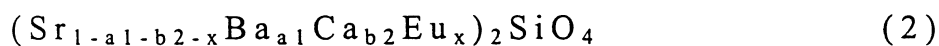
在此，黃色系螢光體粒子2，係以下述化學式(1)表示之化合物為主體所構成的矽酸鹽螢光體。



其中，化學式(1)中， $a1$ 、 $b1$ 、 x ，係分別在 $0 \leq a1 \leq 0.3$ 、 $0 \leq b1 \leq 0.8$ 、 $0 < x < 1$ 之範圍內的數值。

該矽酸鹽螢光體，如後面使用實驗數據而詳細說明般，雖取得斜方晶系、單斜晶系及六方晶系以作為結晶構造，但是只要其為吸收藍色LED1所釋放出的藍色光並釋放出在550 nm以上且600 nm以下之波長領域中具有主發光峰值之螢光的黃色系螢光體即可，而矽酸鹽螢光體之結晶構造，亦可為斜方晶系、單斜晶系及六方晶系中之任一種。

另外，只要在發明人等之實驗範圍內，作為該種的黃色系螢光體，係被限定為以具有斜方晶系之結晶構造的下述化學式(2)表示之化合物為主體所構成的矽酸鹽螢光體。



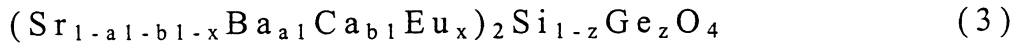
其中， $a1$ 、 $b2$ 、 x ，係分別滿足 $0 \leq a1 \leq 0.3$ 、 $0 \leq b2 \leq 0.6$ 、 $0 < x < 1$ 的數值。 $a1$ 、 $b2$ 、 x ，較佳者係分別滿足 $0 < a1 \leq 0.2$ 、 $0 < b2 \leq 0.4$ 、 $0.005 < x < 0.1$ 的數值。 $a1$ 、 $b2$ 、 x ，更

佳者係分別滿足 $0 < a1 \leq 0.15$ 、 $0 < b2 \leq 0.3$ 、 $0.01 < x < 0.05$ 的數值。 $a1$ 、 $b2$ 、 x ，最佳者係分別滿足 $0.01 \leq a1 \leq 0.1$ 、 $0.001 \leq b2 \leq 0.05$ 、 $0.01 < x \leq 0.02$ 的數值。

如上所述，在化學式(2)中之 $a1$ 、 $b2$ 小於上述範圍內之數值的組成時，矽酸鹽螢光體之結晶構造就變成不安定，不容易含有單斜晶系之結晶構造，發光特性會依動作溫度而變化。另一方面，在大於範圍內之數值的組成時，即使結晶構造為斜方晶系，發光就會帶有綠色感，由於無法成為良好的黃色系螢光體，而會成為綠色系螢光體，所以即使與藍色LED組合，亦無法成為光色良好的白色半導體發光元件。又，在鎔(Eu)添加量 x 小於上述範圍內之數值的組成時，發光強度會變弱，而在大數值的組成時，不僅發光強度會依 Eu^{2+} 離子之濃度消光或自我吸收而較弱，而且會顯著發生隨著周圍溫度之上升而使發光強度降低之溫度消光的問題。本發明中所用的黃色系螢光體，係如上所述，因矽酸鹽螢光體所釋放出的黃色系光之色純度優秀，可提供釋放出光色佳之白色光的半導體發光元件之理由，故以具有斜方晶系之結晶構造的矽酸鹽螢光體較佳。又，為了使矽酸鹽螢光體之結晶構造安定化，或提高發光強度之目的，亦可以鎂(Mg)或鋅(Zn)來置換鋇(Sr)、鋇(Ba)、鈣(Ca)之一部分。

更且，為了控制矽酸鹽螢光體之發光色之目的，亦可以鍺(Ge)來置換矽(Si)之一部分。亦即，本發明之半導體發光元件，亦可為被採用之黃色系螢光體，係以下述化學式

(3)表示之化合物為主體所構成的矽酸鹽螢光體之半導體發光元件。



其中， $a1$ 、 $b1$ 、 x 、 z ，係分別為滿足 $0 \leq a1 \leq 0.3$ 、 $0 \leq b1 \leq 0.8$ 、 $0 < x < 1$ 、 $0 \leq z < 1$ (較佳者為 $0 \leq z \leq 0.2$) 的數值。當以鍺(Ge)置換矽(Si)之一部分時，雖可知發光強度有大幅降低的傾向，但是至少在鍺(Ge)置換量為20原子%以上時，主發光峰值會移位至短波長側，而可獲得帶有綠色感的發光。但是，從發光強度保持之觀點來看，較佳者係鍺(Ge)置換量 z 越少越佳，而 z 之數值較佳者係固定在不超過0.2之範圍內。

又，為了補償半導體發光元件之發光的紅色成份之目的，亦可進一步採用吸收例如藍色LED之藍色光或矽酸鹽螢光體所釋放出的黃色系光之後，再釋放出在超過600 nm且660 nm以下之紅色領域中具有主發光峰值的紅色螢光體，而為了提高光束之目的，亦可進一步採用吸收例如藍色LED之藍色光之後，再釋放出在500 nm以上且550 nm未滿之視覺度高之綠色領域中具有主發光峰值的綠色螢光體。

即使有關該種紅色螢光體或綠色螢光體之材料，亦非被特別限定於本實施形態中所採用的材料，亦可為由無機化合物所構成的螢光體，或可為由有機化合物所構成的螢光體。

又，有關該種紅色螢光體或綠色螢光體之使用方法，並

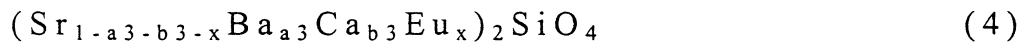


非被特別限定於本實施形態中所採用的材料，只要成為進一步具有該等螢光體(螢光物質)的半導體發光元件即可。該等螢光體，亦可含於螢光體層中，或與螢光體層另外配置。只要吸收上述藍色光並釋放出紅色或綠色之發光即可，且只要藍色光至少通過螢光體層即可。

另外，作為上述紅色螢光體，例如以陰極發光材料或電致發光材料為人所周知，其中有 CaS:Eu^{2+} 螢光體或 SrS:Eu^{2+} 螢光體等、或例如在日本專利特開平 11-246510 號公報或特開 2000-63682 號公報中所揭示之稀土類錯合體或含有該稀土類錯合體之樹脂構成物等、或例如在日本專利特開 2001-267632 號公報中所揭示之 LiEuW_2O_8 螢光體等。

當使用該種的紅色螢光體時，就會增強上述半導體發光元件，尤其是釋放出白色系光之半導體發光元件的紅色發光成份強度，結果，在照明之領域中以代表紅色之忠實性的特殊彩色重現評估數較為人所周知，可提供一種提高如 JIS Z 8726-1990 中所記載的 R9、或以上述 JIS Z 8726-1990 為參考而記載的色域面積比鎵(Ga)，而釋放出該等指數較大之光色的半導體發光元件。

又，作為上述綠色螢光體，例如有以陰極發光材料或是電致發光材料為人所周知的 $\text{SrGa}_2\text{S}_4:\text{Eu}^{2+}$ 螢光體、或釋放出在 500 以上且 600 nm 以下之波長領域中具有發光峰值的螢光之以下述化學式(4)表示之化合物為主體所構成的矽酸鹽螢光體。



其中， a_3 、 b_3 、 x ，係分別為滿足 $0 \leq a_3 \leq 1$ 、 $0 \leq b_3 \leq 1$ 、 $0 < x < 1$ 的數值。

另外，上述 $(\text{Sr}_{1-a_3-b_3-x}\text{Ba}_{a_3}\text{Ca}_{b_3}\text{Eu}_x)_2\text{SiO}_4$ 矽酸鹽螢光體，係在釋放出黃色系發光之上述矽酸鹽螢光體中，只有組成或結晶構造不同的螢光體。因此，具有與黃色系發光之矽酸鹽螢光體的各種物性相類似的物性。因而，將該綠色發光矽酸鹽螢光體與上述黃色發光矽酸鹽螢光體相組合而使用者，不僅在半導體發光元件之特性方面佳，即使在製造等方面亦更佳。

又，為了提供一種釋放出所希望之光色的半導體發光元件，亦可將釋放出在 550 nm 以上且 600 nm 以下之波長領域中具有主發光峰值之黃色系光，且組成互異的複數個上述矽酸鹽螢光體，包含於螢光體層中。該矽酸鹽螢光體，由於係一種藉由改變組成而可釋放出覆蓋上述黃色系較寬之波長領域之發光的螢光體，所以藉由組合複數種類的該矽酸鹽螢光體來使用，即可加寬藍色 LED 所釋放出的藍色光，以及依該矽酸鹽螢光體所釋放出之黃色系光之顏色相加而決定的上述半導體發光元件，尤其是釋放出白色系光之半導體發光元件的光之顏色表現範圍。

又，所謂半導體發光元件所釋放出之光的光色，尤其是白色系光之光色控制的觀點上，有效者係將以上述化學式 (4) 表示之化合物為主體，且組成方面與黃色系螢光體不同之至少一種類的矽酸鹽螢光體，進一步包含於螢光體層

中。該矽酸鹽螢光體，係在上述 a_3 及 b_3 之所有的數值範圍之組成方面，係一種在藍色光激勵下發出光的螢光體；而且，藉由改變螢光體之組成，即可改變在 505~598 nm 左右之較寬波長範圍內的發光峰值波長之螢光體。當將該種螢光體進一步包含於螢光體層中時，半導體發光元件所釋放出的光之光色，由於係藍色 LED 所釋放出的藍色光、釋放出黃色系發光之矽酸鹽螢光體的黃色系光、及 $(Sr_{1-a_3-b_3-x}Ba_{a_3}Ca_{b_3}Eu_x)_2SiO_4$ 矽酸鹽螢光體所釋放出的藍綠色、綠色、黃色、橙色中之至少一種光之顏色相加，即至少相加三種顏色而成的光色，所以可加寬半導體發光元件所釋放出的光之光色之控制範圍。

又，為了補償半導體發光元件之發光的紅色成份，而亦可在圖 1 至圖 3 任一圖所記載之半導體發光元件中，組合含有(鉻)Cr之基板與藍色 LED。可利用藍色 LED 所發出的藍色光，使之從能轉換成波長更長之含鉻(Cr)基板中發出紅色光。藉此，依來自藍色 LED 之藍色光、來自矽酸鹽螢光體之黃色光及來自含鉻(Cr)基板之紅色光的混色光，即可使之發出彩色重現性高的白色光。換句話說，本發明，當然亦可適用於覆晶型、砲彈型或晶片型之任何型式的半導體發光元件中。

矽酸鹽螢光體，以雷射繞射/散射式粒度分佈測定器(例如 LMS-30：星辰(SEISIN)企業股份有限公司)進行粒度分佈評估，雖然只要中心粒徑為 0.1 μm 以上且 100 μm 以下即足夠，但是，基於螢光體合成之容易度、取得之容易度、

螢光體層形成之容易等的理由，較佳為 $0.5\ \mu\text{m}$ 以上且 $30\ \mu\text{m}$ 以下，特佳為 $1\ \mu\text{m}$ 以上且 $20\ \mu\text{m}$ 以下，更佳為 $2\ \mu\text{m}$ 以上且 $10\ \mu\text{m}$ 以下。有關粒度分佈，雖只要包含 $0.01\ \mu\text{m}$ 未滿及超過 $1000\ \mu\text{m}$ 之粒子即可，但是與中心粒徑相同的理由，較佳為 $1\ \mu\text{m}$ 以上且 $50\ \mu\text{m}$ 以下之範圍內具有近似正式分佈之分佈的矽酸鹽螢光體。

該種矽酸鹽螢光體，例如可依前述文獻(J. Electrochemical Soc. Vol. 115, No. 11 (1968) pp. 1181-1184)中所記載的合成方法來製造。有關本實施形態之半導體發光元件中的矽酸鹽螢光體之製造方法將於後述，以下係更進一步詳細說明矽酸鹽螢光體之特性。

圖8係顯示本實施形態中所用之斜方晶矽酸鹽螢光體之激勵光光譜(稱為矽酸鹽螢光體所激勵之光的光譜)及發光光譜之一例的示意圖。圖8為了比較亦歸納顯示YAG系螢光體之激勵光光譜及發光光譜的一例。

從圖8可知，YAG系螢光體，係一種在 $100\ \text{nm}\sim 300\ \text{nm}$ 附近、 $300\ \text{nm}\sim 370\ \text{nm}$ 附近、 $370\ \text{nm}\sim 550\ \text{nm}$ 附近之三個部位具有激勵光峰值，用以釋放出吸收該等各自狹窄波長範圍內之光後，在 $550\sim 580\ \text{nm}$ 之黃綠色~黃色之波長領域中具有發光峰值的黃色系之螢光的螢光體；相對於此，矽酸鹽螢光體，係一種在 $250\sim 300\ \text{nm}$ 附近具有激勵光峰值，其可吸收 $100\sim 500\ \text{nm}$ 之波長範圍的光，並用以釋放出在 $550\sim 600\ \text{nm}$ (圖8中係記載一例)之黃綠色~黃色~橙色之波長領域中具有發光峰值的黃色系之螢光的黃色系螢光體。又，在超

過 430 nm 且 500 nm 以下之藍色光(激勵光)照射下的矽酸鹽螢光體之發光強度通常很低，為 YAG 系螢光體之 100~30%；當記載其具體的數值時，亦可知在激勵光之波長 470 nm 中其為 YAG 系螢光體之發光強度的一半(50%)。

另外，若為具有前述之化學式(1)或(2)中之 a1、b1、b2、x 在指定數值範圍內的組成之矽酸鹽螢光體的話，則激勵光光譜及發光光譜，係類似於圖 8 所示的光譜。

其次，說明使用矽酸鹽螢光體之螢光體層的特徵。

如圖 8 顯示其激勵光光譜及發光光譜之一例所示，矽酸鹽螢光體，由於係一種在 250~300 nm 附近具有激勵光峰值，可吸收 100-500nm 之波長範圍的光，並釋放出在 550~600 nm 之黃綠色~黃色~橙色之波長領域中具有發光峰值的黃色系之螢光的黃色系螢光體，所以當與藍色 LED 相組合時，就可完成依藍色 LED 之藍色光與黃色系螢光體之螢光的顏色相加而釋放出光的半導體發光元件。

又，如比較圖 8 顯示作為其一例之矽酸鹽螢光體與 YAG 系螢光體之激勵光光譜可知，矽酸鹽螢光體，係一種在超過 430 nm 且 500 nm 以下之波長範圍內之藍色光(激勵光)的照射下，內部量子效率雖比較高但是由於藍色激勵光之反射率較高所以外部量子效率較低，即所謂發光效率(外部量子效率)較低的螢光體。例如只依激勵光 470 nm 而釋放出 YAG 系螢光體之一半強度的螢光。因而，例如，欲在依藍色 LED 之藍色光與黃色系螢光體之黃色光的顏色相加而釋放出白色光的白色半導體發光元件中獲得相同的光色

時，則在螢光體之使用量方面，由於採用矽酸鹽螢光體，比採用 YAG 系螢光體更多，所以螢光體層之厚度，會相對地變厚。結果，成為受到螢光體層表面所產生之凹凸影響少的螢光體層，且由於螢光體層之厚度變動實質上會變少，所以可獲得發光之顏色不均勻較少的半導體發光元件。

更且，在使用上述矽酸鹽螢光體與樹脂以形成螢光體層的情況，比起使用習知 YAG 系螢光體之螢光體層的情況，螢光體層中之螢光體粒子的分佈不均勻會變得更少。另外，在使用 YAG 系螢光體以構成半導體發光元件時，會成為螢光體粒子彼此之間相接觸的螢光體層，且如前面說明般，結果會發生成為白色系光之強度較低的不良情形。因該種原因而使強度變低的不良情形，並非只限於使用 YAG 系螢光體之情況所產生的不良情形，亦為具有螢光體粒子彼此之間相接觸之螢光體層的半導體發光元件中所共同認知的不良情形。

相對於此，如本實施形態之半導體發光元件所示當選擇螢光體層之形成條件時，由於形成有比較均勻性地分散有螢光體粒子之螢光體層，所以可獲得發光之顏色不均勻較少的半導體發光元件。另外，有關在使用本實施形態之矽酸鹽螢光體時，螢光體層中之螢光體粒子分佈不均勻會變少的理由，雖然現在正在詳細調查中，但是卻無法完全解釋明白。惟其中可明確有一層關係的是，至少螢光體與樹脂之比重差較小於 YAG 系螢光體與樹脂之比重差。

以下，有關本實施形態之半導體發光元件中的螢光體層，具有螢光體粒子比較均勻地分散於母材中之整體上的構造(分散構造)方面，係邊參照圖1至圖3而邊加以說明。

在圖1至圖3所示之螢光體層3中，黃色系螢光體粒子2，如已說明般，係一種在550~600 nm之波長領域中具有主發光峰值的螢光體，且為矽酸鹽螢光體。又，母材13，係具有透光性之樹脂，例如，環氧樹脂、丙烯酸樹脂、聚醯亞胺樹脂、尿素樹脂、矽樹脂等的樹脂。

另外，本發明之半導體發光元件，亦可在螢光體層3中，進一步包含黃色系螢光體以外的螢光體，或包含螢光體以外之物質。又，亦可包含複數種的上述黃色系螢光體。

在本實施形態之半導體發光元件中，若螢光體層3成為如圖1至圖3所示之黃色系螢光體粒子2分散於母材13中的構造，則有關螢光體層3中之黃色系螢光體粒子2的大小或形狀，就非為被特別限定者。在使用矽酸鹽螢光體粒子作為螢光體層中之螢光體粒子的情況，當使用中心粒徑為0.5 μm 以上且30 μm 以下的螢光體粒子時，可證實螢光體層會成為如圖1至圖3所示之螢光體粒子的構造。

另外，黃色系螢光體粒子2之尺寸越小，則越容易成為分散有螢光體層3的構造。但是，較小的螢光體粒子由於其比表面積較大，所以相對於螢光體粒子之體積，存在較多晶格缺陷之粒子表面所佔的比例會變多，故而螢光體層3之發光強度會降低。另一方面，在螢光體粒子之尺寸較大時，於螢光體層3之形成中黃色系螢光體粒子2容易依重

力而下沉，而螢光體層容易成為分散有螢光體粒子的構造。從該種觀點來看，黃色系螢光體之中心粒徑在上述範圍(中心粒徑為 $0.5\text{ }\mu\text{m}$ 以上且 $30\text{ }\mu\text{m}$ 以下之範圍)內較宜，較佳為 $1\text{ }\mu\text{m}$ 以上且 $25\text{ }\mu\text{m}$ 以下之範圍，更佳為 $3\text{ }\mu\text{m}$ 以上且 $20\text{ }\mu\text{m}$ 以下之範圍。

又，有關母材13之材料，若螢光體層成為分散有如圖1至圖3所示之螢光體粒子的構造，則亦非被限定於本實施形態中所說明的材料，若為具有透光性之材料亦可為樹脂以外的材料。又，在將母材13作為樹脂的情況，有關樹脂之種類或真比重等，基本上亦非被特別限定於本實施形態。

另外，在將母材13作為樹脂的情況，樹脂之真比重係越接近上述黃色系螢光體粒子2之真比重，螢光體層3就越容易成為分散有螢光體粒子的構造。另外，如後面所述，由於樹脂之真比重，通常小於上述黃色系螢光體粒子2之真比重，所以樹脂之真比重，在未超過上述黃色系螢光體粒子2之真比重的範圍內越大則越佳。

在樹脂之真比重較小的情況，係於螢光體層3之形成中黃色系螢光體粒子2容易依重力而下沉，而螢光體3不易成為分散有螢光體粒子的構造。從該種觀點來看，樹脂之真比重係在0.8以上且螢光體粒子之真比重以下的範圍內較宜，較佳為1.0以上且螢光體粒子之真比重以下的範圍，更佳為1.5以上且螢光體粒子之真比重以下的範圍。

另外，依據塑膠資料手冊(伊藤公正編，工業調查會)或

非金屬資料手冊(日本規格協會)等，環氧樹脂之真比重為1.0以上且2.1以下，丙烯酸樹脂之真比重為1.0以上且1.4以下，聚醯亞胺樹脂之真比重為1.3以上且1.5以下，尿素樹脂之真比重約為1.5，矽樹脂之真比重為1.7以上且2.0以下。

另外，圖1至圖3所示之半導體發光元件的例子中，螢光體層3雖係使用螢光體粒子與樹脂(母材)之混合體，但是取而代之，亦可成型(燒結)螢光體材料以形成螢光體層。

- 一般的製造方法 -

有關本發明之半導體發光元件之具體的製造方法之例，雖於後面有詳述，但是首先仍就具有分散螢光體粒子之構造的螢光體層3之製造方法的概略、及較佳的實施形態加以說明。

具有分散螢光體粒子之構造的螢光體層3，係可藉由將螢光體糊劑，利用注入或塗敷等的方法，配置於半導體發光元件之特定位置上，並使該螢光體糊劑硬化來製造，而該螢光體糊劑係使具有位於特定範圍內之真比重的黃色系螢光體粒子2，分散於具有位於特定範圍內之真比重的母材13中者。

螢光體糊劑，例如係可藉由將秤量到特定之螢光體濃度的黃色系螢光體粒子2與樹脂等之母材13予以揉合(kneading)的方式來而製作。兩者之揉合中雖可採用各種的手法，但是若舉一例，則有採用研鉢之揉合、採用攪拌機之揉合、採用輥子之揉合等。



另外，在進行兩者之揉合時，對黃色系螢光體粒子2之母材13的較佳重量比例(螢光體濃度)，係在10重量%以上且80重量%以下之範圍，更佳為20重量%以上且60重量%以下之範圍。在螢光體濃度低於該範圍時，就會成為黃色系螢光體之發光較弱的螢光體層3，且使用該螢光體層3所構成的半導體發光元件，將釋放出帶藍色感較強的光，而很難獲得色調良好的白色光。另一方面，在螢光體濃度高於該範圍時，就會成為黃色系螢光體之發光較強的螢光體層3，且使用該螢光體層3所構成的半導體發光元件，將釋放出帶黃色感較強的光，而很難獲得色調良好的白色光。

在本發明之螢光體層之製造方法中，螢光體糊劑之硬化方式並非被限定於特定之方法。母材13，亦可以使用由二液體混合而硬化之材料在螢光體糊劑中發生二液體混合硬化的方式使之硬化，或藉由使用熱硬化材料加熱螢光體糊劑使之硬化，或藉由使用光硬化材料並對之照射光使之硬化。無論是利用哪一種之螢光體糊劑之硬化方法，均可獲的螢光體層3。

較佳者係在形成分散有螢光體粒子之構造的螢光體層3時，抑制母材13中之黃色系螢光體粒子2的下沉速度。

以下，為了參考起見，就下沉溶媒中之螢光體粒子的下沉速度加以簡單說明。若依據史托克(Stoke's)定律，下沉至密度 ρ_1 黏性率 η (=黏度，單位：Pa·s或P(泊))之流體中的半徑 r (單位：m)密度 ρ_2 之球狀物體的下沉速度 u (m/s)，係以下面公式(5)表示。其中，公式(5)中， g 為重力加速度

(52)

(單位： $\text{m}\cdot\text{s}^{-2}$)

$$u = \{2 \times r^2 \times (\rho_2 - \rho_1) \times g\} / (9 \times \eta) \quad (5)$$

因而，下沉至作為溶媒之樹脂中的螢光體粒子之下沉速度，以定性而言，螢光體粒子之中心粒徑越小就越慢，螢光體粒子與樹脂之比重差越小就越慢，樹脂之黏度越高就越慢。

從上述之史托克定律來看，依以下之方法 1.~4.，有可能減慢黃色系螢光體 3 之樹脂中的下沉速度。

1. 使用真比重較小且輕的螢光體粒子。
2. 使用真比重較大的樹脂。
3. 使用中心粒徑較小的螢光體粒子。
4. 使用黏度較高的樹脂。

但是，在上述之方法 1.~4. 中，分別有從製程來看的限制、從成本來看的限制、從螢光體層之發光性能來看的限制等各種的限制。

在本發明之螢光體層之製造方法中，係將用以限定包含發光之主峰值波長範圍之元素的黃色系螢光體粒子 2 之真比重與樹脂真比重兩者限定在特定範圍內，較佳的形態，係進一步將黃色系螢光體之中心粒徑限定在特定範圍內，更佳的形態，係限定黃色系螢光體之種類與組成。

首先，黃色系螢光體粒子 2，係為不包含鎘 (Cd)，而室溫下發光之主發光峰值波長為 560 nm 以上且 600 nm 以下之範圍，較佳為超過 560 nm 且 600 nm 以下之範圍，更佳為 565 nm 以上且 600 nm 以下之範圍內的螢光體。其次，將黃

色系螢光體粒子2之真比重限定在3.0以上且4.65以下之範圍，較佳為3.0以上且4.60以下之範圍，更佳為3.0以上且4.55未滿之範圍內，同時將樹脂之真比重限定在0.8以上且黃色系螢光體之真比重以下的範圍，較佳為1.0以上且黃色系螢光體之真比重以下的範圍，1.5以上且黃色系螢光體之真比重以下的範圍。

從公式(5)所示之史托克定律可知，若如以上構成時，黃色系螢光體粒子2與樹脂之比重差會變少，樹脂中之螢光體粒子的下沉速度會變慢，結果，容易製造分散有螢光體粒子之構造的螢光體層。

尤其是，作為未包含Cd之黃色系螢光體，係有藉由以如下元素構成之化合物為母體的螢光體，該化合物包含有選自Mg、Ca、Sr、Ba、Sc、Y、鏷系元素、Ti、Zr、Hf、V、Nb、Ta、Mo、W、Zn、B、Al、Ga、In、Si、Ge、Sn、P中之至少一個元素；以及選自O、S、Se、F、Cl、Br中之至少一個元素。另外，該等的元素之有害性亦比較少。

另外，將黃色系螢光體粒子2之主峰值波長限定在560 nm以上且600 nm以下之範圍內的理由，係為了獲得較佳色調的白色光之故。又，將樹脂之真比重限定在上述範圍內的理由，及限定在不含鎘(Cd)之螢光體的理由如前述記載所示。

本發明之半導體發光元件之發光層的製造方法，基本上並非被特別限定於黃色系螢光體粒子2之種類，只要其不含鎘(Cd)，而室溫下發光之主發光峰值波長為560 nm以上

且 600 nm 以下之範圍內，且真比重為 3.0 以上且 4.65 以下之範圍內的黃色系螢光體粒子 2 即可。黃色系螢光體粒子 2，亦可為或不可為前面所說明之矽酸鹽螢光體粒子。

另一方面，在習知半導體發光元件中，作為螢光體粒子，不含有害物質，在藍色光激勵下釋放出黃色系之光，且在本實施形態中所說明之該種真比重之範圍內之較輕的黃色系螢光體粒子 2 並不被採用，故不得不採用真比重較大之黃色發光 YAG 系螢光體以製造上述螢光體層。黃色發光 YAG 系螢光體粒子之真比重，係在超過 4.65 且 4.98 左右以下之範圍，而黃色系 YAG 系螢光體粒子，由於發光光譜係隨著真比重變大而移位至長波長側，所以在習知之發光元件中，很難獲得如本實施形態之發光元件的優越特性。

在本發明較佳的形態中，係將黃色系螢光體粒子 2 之中心粒徑，限定在 0.5 μm 以上且 30 μm 以下之範圍，較佳為 1 μm 以上且 25 μm 以下之範圍，更佳為 3 μm 以上且 20 μm 以下之範圍。另外，作為較佳的形態，有關限定黃色系螢光體粒子 2 之中心粒徑的理由如前面說明般。

在更佳的形態中，作為黃色系螢光體粒子 2，係採用以前面說明之化學式 (1) 表示的化合物，換句話說係採用以 $(\text{Sr}_{1-a1-b1-x}\text{Ba}_{a1}\text{Ca}_{b1}\text{Eu}_x)_2\text{SiO}_4$ 表示之化合物為主體而構成的矽酸鹽螢光體。該矽酸鹽螢光體，雖因組成而使真比重有若干變動，但是由於容易製作真比重為 3.0 以上且 4.65 以下之範圍內的黃色系螢光體粒子 2，所以可容易製造分

散有螢光體粒子之構造的螢光體層。另外，以化學式(1)表示之化合物為主體而構成的矽酸鹽螢光體之比重，係鋇(Ba)置換量越多就越大，鈣(Ca)置換量越多就越小。

在此，就螢光體之真比重加以補充說明。在使用麥克羅梅里蒂克斯(Micro Meritex)公司製之多量(multi volume)密度計1305，依氦(He)氣體置換法之定容量膨脹法所進行的螢光體之真密度測定中，在YAG系螢光體($(Y_{0.7}Gd_{0.28}Ce_{0.02})_3Al_5O_{12}$ ：主發光峰值波長565 nm)、矽酸鹽螢光體($(Ba_{0.05}Sr_{0.93}Eu_{0.02})_2SiO_4$ ：主發光峰值波長575 nm)、組成之方面與之不同的鋇(Sr)較少的矽酸鹽螢光體($(Ba_{0.24}Sr_{0.74}Eu_{0.02})_2SiO_4$ ：主發光峰值波長559 nm)之真比重，係分別為4.98、4.53、4.67(測定精度 $\pm 1\%$)。作為其一例，當就釋放出在565 nm附近具有主發光峰值之發光的螢光體加以敘述時，可知矽酸鹽螢光體之真比重約小於YAG系螢光體10%。

圖48係顯示YAG系螢光體與矽酸鹽螢光體之真比重與主發光峰值波長之關係的示意圖。從圖48可知，釋放出在560~600 nm之波長領域中，尤其是在565~600 nm之波長領域中具有主發光峰值的黃色系光，且真比重為4.65以下的螢光體，就無法在YAG系螢光體中獲得，或是即使其可獲得亦很難獲得。相對於此，以化學式(1)表示的化合物，換句話說以 $(Sr_{1-a1-b1-x}Ba_{a1}Ca_{b1}Eu_x)_2SiO_4$ 表示之化合物為主體而構成的矽酸鹽螢光體中，則可容易獲得釋放出在560~600 nm之波長領域中，尤其是在565~600 nm之波長領

域中具有主發光峰值的黃色系光，且真比重為4.65以下的螢光體。

其次，就樹脂或螢光體糊劑之黏度加以說明。本發明之半導體發光元件之螢光體層的製造方法，並非被特別限定於後面所述之製造方法中。但是，如上所述，當樹脂或螢光體糊劑之黏度過低時螢光體粒子會依重力而下沉，無法獲得螢光體粒子分散於樹脂中的構造，其相反面，在樹脂之黏度太高時，會招致在半導體發光元件之製程上的處理變得很麻煩的不利益情形。當考量該等問題點時，樹脂或螢光體之黏度，係在0.01 Pa.s以上且10 Pa.s以下之範圍，較佳為0.03 Pa.s以上且3 Pa.s以下之範圍，更佳為0.1 Pa.s以上且1 Pa.s以下之範圍。但是，樹脂或螢光體糊劑等的液狀流體之黏度由於會依溫度及壓力而變動，且溫度越高就越小，當壓力增加時就變大，所以很難對之單純規定，而製造時，只要能利用亦包含壓力、溫度之條件的調整，將樹脂或螢光體糊劑之黏度調整在上述範圍內即可。

又，本發明之半導體發光元件之螢光體層的製造方法中，亦可在螢光體糊劑中，進一步地以包含有一次粒子之平均直徑在1 nm以上且100 nm以下之範圍內，較佳為3 nm以上且50 nm以下之範圍內的超微粒子之狀態，使螢光體糊劑硬化來形成。

如從上述公式(5)可知，粒子半徑極小之超微粒子的螢光體糊劑中之下沉速度極為慢。因而，當將該種超微粒子含於螢光體糊劑中時，極慢下沉之超微粒子，將發揮阻礙黃

色系螢光體粒子2之粒子下沉的作用。結果，藉由將超微粒子添加在螢光體糊劑中，螢光體糊劑中之黃色系螢光體粒子2的下沉速度就會變慢，而可容易獲得樹脂中具有分散螢光體粒子之構造的螢光體層3。

作為該種的超微粒子，例如有氣溶膠(aerosil，德格薩(DEGUSA公司：德國)之商品名為人所知的二氧化矽粉末。但是，能添加於螢光體糊劑中的超微粒子之材料，並非被限定於二氧化矽，只要為一次粒子之平均直徑在1 nm以上且100 nm以下之範圍內的超微粒子材料即可。作為二氧化矽以外之超微粒子材料，例如亦有氧化鋁等。

另外，粒徑約5 nm以下之超微粒子，不可能利用如前面說明之雷射繞射/散射式粒度分佈測定器進行測定。因而，以電子顯微鏡觀察所得的觀察像為基礎而實際測得各超微粒子之粒子直徑，並將其平均值定義為一次粒子之平均直徑。

如以上說明般，藉由採用上述半導體發光元件之螢光體層的製造方法，即可形成具有分散螢光體粒子之構造的螢光體層3，並利用具有分散螢光體粒子之構造之螢光體層的半導體發光元件，即可達成如下之作用，及發揮顯著的功效。

亦即，該種的螢光體層，由於實質上並未包含光吸收因子或光散射因子，所以例如與習知之螢光體粒子彼此之間相接觸的螢光體層相比較時，螢光體粒子彼此之間相接觸的機率會變小，且即使相接觸其接觸面積亦會大幅地變

小，且實質沒有包含螢光體層中之光的吸收衰減因子。因此，螢光體層之光透過性變佳，不會吸收衰減藍色LED之藍色光，而會透過螢光體層、或有助於螢光體之激勵。又，由於成為藍色光能照射螢光體粒子之全表面之態樣的螢光體層，所以螢光體粒子之激勵截面積實質上亦會增加，而螢光體層中之螢光體粒子會有效率地發光。另外，雖照射螢光體粒子但無助於螢光體之激勵的藍色光，係在螢光體粒子表面反射後當作藍色光而在螢光體層之外部釋放出。在使用相同種類之藍色LED時，由於藍色LED所釋放出的藍色光之輸出為固定，所以在依藍色LED之藍色光與黃色系螢光體之黃色光的顏色相加而得到白色光的白色半導體發光元件中，若螢光體層中之光的吸收衰減因子較少的話，則即使其是使用在藍色光之激勵下發光效率(外部量子效率)較低之螢光體材料的螢光體層，若為內部量子效率較高的螢光體，仍可釋放出較高的光束。

又，在半導體發光元件之螢光體層的表面積(圖1至圖3所示之半導體發光元件中之螢光體層3之最上面的面積)相同的情況，當與使用和本實施形態之半導體發光元件相同之體積量的螢光體粒子，且較多的螢光體粒子彼此之間互相接觸的習知螢光體層(參照圖7之螢光體層3)時，如本實施形態所示在樹脂中分散有螢光體粒子之構造的螢光體層(參照例如圖2所示之螢光體層3)中，螢光體層之實質厚度亦會增大。因而，在本實施形態之半導體發光元件中，即使螢光體層3之表面凹凸多少有變大的情況，螢光

體層3之表面的凹凸助於螢光體層3之厚度變動的比例會變小，而因螢光體層3之厚度變動而產生的發光不均勻亦會變少。

- 第二實施形態 -

其次，就本發明之發光裝置的實施形態，係邊參照圖式而邊加以說明。

另外，本說明書中，係將使用半導體發光元件之各種顯示裝置(例如LED資訊顯示終端、LED交通信號燈、汽車之LED煞車燈或LED方向指示燈等)或各種照明裝置(LED屋內外照明燈、車內LED燈、LED緊急照明燈、LED表面發光源等)廣泛地定義為發光裝置。

圖4至圖6係顯示本發明之第二實施形態之發光裝置的立體圖。圖4係概略顯示作為本發明第一例之發光裝置的站立式照明裝置構成的立體圖。

如圖4所示，第一例之發光裝置，係具備有並排多數個如第一實施形態中所說明之本發明半導體發光元件11的照明部，及使半導體發光元件11點亮用的開關12，當開關12接通(ON)時，半導體發光元件11將通電而釋放出光來發光(未圖示)。

另外，圖4所示之照明裝置只不過是顯示發光裝置之較佳一例而已，有關本發明之發光裝置，並未被限定於此例。本發明之發光裝置，例如是採用第一實施例所揭示之本發明半導體發光元件11而構成者較佳。但是，本發明之發光裝置，亦可為組合第一實施形態中之白色系半導體發

光元件、及例如釋放出藍色、綠色、黃色、紅色等光的LED者。又，半導體發光元件11所發出光的光之顏色、大小、數量、發光部分之形狀等，亦非被特別限定於特定者。再者，其亦可為使之收斂來自半導體發光元件之光以釋出雷射的半導體雷射釋出式照明裝置。藉此，其不僅在做為照明裝置之視野性方面優，而且亦可提高其光之強度。

又，在本第一例之照明裝置中，較佳的色溫度雖係在2000K以上且12000K以下之範圍，更佳為3000K以上且10000K以下之範圍，再佳為3500K以上且8000K以下之範圍，但是作為本發明之發光裝置的照明裝置，並非被限定於該範圍內之色溫度。

圖5係概略顯示作為本發明第二例之發光裝置的影像顯示裝置構成之立體圖。

如圖5所示，第二例之影像顯示裝置，係具備有將第一實施形態中所說明之本發明的半導體發光元件11並排成多數矩陣狀的顯示部。然後，影像顯示裝置整體之尺寸雖可任意製作，但是較佳者係寬度為1cm以上且10m以下之範圍，高度為1cm以上且10m以下之範圍，縱深度為5mm以上且5m以下之範圍。又，半導體發光元件11之個數，係可依影像顯示裝置之尺寸來選擇。

作為發光裝置之一例的該影像顯示裝置，係與第一例之照明裝置相同，以採用第一實施形態中所說明之半導體發光元件11而構成者較佳。但是，除了本發明之半導體發光元件，例如亦可為組合釋放出藍色、綠色、黃色、紅色等

光的LED與螢光體層者。又，半導體發光元件11所發出光的光之顏色、大小、數量、發光部分之形狀、或半導體發光元件11之配置形狀等，亦非被特別限定於特定者。更且，外觀形狀亦未被特別限定者。

圖6係概略顯示作為本發明第三例之發光裝置的圖案顯示裝置構成之立體圖。

如圖6所示，第三例之圖案顯示裝置，係具備有如第一實施形態中所說明之本發明的半導體發光元件11，並排成能依各像素之發光、非發光而顯示0-9之任意數字的顯示部。

但是，圖案顯示裝置所顯示的圖案，並非被限定於圖6所示之數字，亦可為顯示漢字、片假名、阿拉伯數字、希臘文字等。又，即使在圖案顯示裝置係顯示數字的情況，半導體發光元件11之大小、數量、像素之形狀等，亦非被限定於圖6所示之構造。

作為發光裝置之一例的該圖案顯示裝置，係與第一例之照明裝置相同，以採用第一實施形態中所說明之半導體發光元件11而構成者較佳。但是，除了本發明之半導體發光元件，例如亦可為組合釋放出藍色、綠色、黃色、紅色等光的LED與螢光體層者。又，半導體發光元件11所發出光的光之顏色、大小、數量、發光部分之形狀、或半導體發光元件11之配置形狀等，亦非被特別限定於特定者。更且，外觀形狀亦未被特別限定者。

另外，在圖4至圖6所示之發光裝置中，當形成採用複數

個僅使用一種類之LED晶片的半導體發光元件11而構成的發光裝置時，就有可以完全相同之驅動電壓或注入電流進行各半導體發光元件之動作的優點。又，在該情況，因周圍溫度等的外部要因而造成發光元件之特性變動亦可成為大致相同，且可減少相對於電壓變化或溫度變化而產生發光元件的發光強度或色調之變化率，同時可獲得取樣發光裝置之電路構成的優點。

又，當採用像素面大致平坦的半導體發光元件以構成發光裝置時，由於可獲得顯示面大致平坦之顯示裝置或表面發光之照明裝置等發光面整體大致平坦的發光裝置，所以可提供具有良好畫質的影像顯示裝置、或設計性優的照明裝置。

本發明之發光裝置，例如為照明裝置或顯示裝置時，藉由採用具有如第一實施形態之構造之半導體發光元件，即可形成抑制顏色不均勻的發光裝置。第一實施形態之半導體發光元件因顏色不均勻現象少，結果製品良率變高，且變得價格低廉。因而，藉由採用第一實施形態之半導體發光元件而構成發光裝置，即可獲得一種不僅作為發光裝置之顏色不均勻現象變少，且製造成本低廉的發光裝置。又，第一實施形態之半導體發光元件，由於釋放出凌駕採用習知YAG系螢光體之半導體發光元件的光束，所以亦可提高發光裝置整體的光束。

另外，本說明書中，係將使用半導體發光元件之各種顯示裝置(例如LED資訊顯示終端、LED交通信號燈、汽車之



LED煞車燈或LED方向指示燈等)或各種照明裝置(LED屋內外照明燈、車內LED燈、LED緊急照明燈、LED表面發光源等)廣泛地定義為發光裝置。

-關於半導體發光元件之製造方法的實施形態-

(矽酸鹽螢光體之製造方法)

用於本發明之半導體發光元件的矽酸鹽螢光體之製造方法，雖並非被限定於以下說明之製造方法，但是矽酸鹽螢光體，例如可依以下之方法來製造。

矽酸鹽螢光體，例如可經由以下之各處理來獲得。

第一處理：螢光體原料之秤量及調合

第二處理：螢光體原料之混合

第三處理：混合螢光體原料之燒成

第四處理：燒成物之後段處理(分解弄碎、分級、洗淨、乾燥等)

以下，係就各處理之內容更進一步加以詳細說明。

第一處理：螢光體原料之秤量及調合

首先，秤量及調合螢光體原料。作為螢光體原料，係可採用各種的鹼土類金屬化合物、矽化合物、鎔化合物等的各種粉末。另外，上述鹼土類金屬化合物之一例，係為鹼土類金屬之碳酸鹽(碳酸鋇、碳酸鋇、碳酸鈣)、硝酸鹽(硝酸鋇、硝酸鋇、硝酸鈣)、氫氧化物(氫氧化鋇、氫氧化鋇、氫氧化鈣)、氧化物(氧化鋇、氧化鋇、氧化鈣)、硫酸鹽(硫酸鋇、硫酸鋇、硫酸鈣)、草酸鹽(草酸鋇、草酸鋇、草酸鈣)等。又，亦可使用鹵化物(氯化鋇、氯化鋇、氯化鈣、

氟化鋇、氟化鋇、氟化鈣、溴化鋇、溴化鋇、溴化鈣等)。又，上述矽化合物之一例，雖為二氧化矽或一氧化矽等的氧化物，但是氮化矽等的非氧化物亦可依條件來使用。另外，為了提高螢光體原料彼此之間的反應性之目的，較佳者係使用以「氣溶膠(aerosil)」之商品名為人周知的德格薩公司(德國)製之超微粉末矽石等超微粉末的二氧化矽。又，上述鎔化合物之一例，係為氧化鎔、氟化鎔、氯化鎔等。另外，作為關於含有以前接觸之鎔螢光體的鎔原料，係可採用氧化鎔等的鎔化合物。

然後，在該第一處理中，鹼土類金屬元件、矽、鎔元素等，係在螢光體中以成為所希望之元素比例的方式，而秤量及調合該等鹼土類金屬化合物、矽化合物、鎔化合物。

另外，為了提高螢光體原料彼此之間的反應性之目的，亦可在螢光體原料或是螢光體原料之暫時燒成物或一次燒成物中，混合助溶劑(flux)。作為上述助溶劑，可採用各種的鹵化物或硼化合物。作為上述鹵化物，有氟化鋇、氟化鋇、氟化鈣、氟化鎔、氟化鉍、氟化鋰、氟化鈉、氟化鉀、氟化鋇、氟化鋇、氟化鈣、氟化鎔、氟化鉍、氟化鋰、氟化鈉、氟化鉀等，作為硼化合物，有硼酸、氧化硼、硼酸鋇、硼酸鋇、硼酸鈣等。另外，用作助溶劑之化合物之相對於螢光體1莫耳的莫耳數，係在0.0001莫耳以上且1莫耳以下之範圍，通常在0.001莫耳以上且0.3莫耳以下。

第二處理：螢光體原料之混合

其次，混合在上述第一處理中經秤量及調合過之特定莫

耳比例或重量比例的螢光體原料，以獲得混合螢光體原料。在螢光體原料之混合中有採用各種的手法。當舉一例時，有利用研鉢(mortar)之混合、利用球磨粉機(ball mill)之混合、利用V字型混合機之混合、利用交叉旋轉攪拌機(cross rotary mixer)之混合、利用噴射磨粉機(jet mill)之混合、利用攪拌機之混合等，該等的混合方法係周知之技術。又，作為混合方式，可採用不完全採用溶媒而只混合螢光體原料的乾式混合，或是在水或有機溶媒等之溶媒中投入螢光體原料，並在上述溶媒中使之分散而混合的濕式混合等。作為上述有機溶媒，係可使用乙醇、甲醇等。另外，在實施上述濕式混合的情況，一般而言係從螢光體原料與溶媒所構成的懸浮液中，使用例如布克納(Buchner)過濾器等以過濾混合螢光體原料，之後，使用乾燥機等，將過濾後之混合螢光體原料，在60~200℃左右之溫度下乾燥數小時至數十小時以獲得混合螢光體原料。

第三處理：混合螢光體原料之燒成

其次，依以下之順序，燒成混合螢光體原料。燒成時使用電氣爐或瓦斯爐等的加熱裝置。加熱裝置之種類並非被特別限定，只要能在所希望溫度之所希望環境中將混合螢光體原料燒成所希望時間即可使用。當舉使用作為加熱裝置之電氣爐的情況之一例時，可使用管狀霧圍氣爐、霧圍氣控制箱型爐、帶式運送(belt conveyor)爐、輥子室(roller house)爐、托盤推進式(tray pusher)連續爐等。又，一般而言，雖係將混合螢光體原料，置入坩堝或晶舟等之燒成容



器內，並依情況在燒成容器上置蓋，與燒成容器同時加熱，但是亦可不使用燒成容器而只燒成混合螢光體原料。另外，作為燒成容器，其材質可使用由鉑、石英、氧化鋁、氧化鋯、氧化鎂、碳化矽、氮化矽、瓷器、碳等所構成者，且可依情況複合使用該等。

若燒成溫度在 800°C 以上且 1600°C 以下之範圍內，則可製造上述矽酸鹽螢光體。在燒成溫度高於該溫度範圍時，由於螢光體粒子彼此之間會燒結或熔解所以很難獲得粉末狀的矽酸鹽螢光體，而另一方面，在燒成溫度低於該溫度範圍時，很難從螢光體獲得較高的發光。但是，為了獲得顯示更高發光效率之粉末狀的矽酸鹽螢光體，燒成溫度係設在 1000°C 以上且 1500°C 以下之範圍較宜，較佳為 1100°C 以上且 1450°C 以下之範圍，更佳為 1200°C 以上且 1400°C 以下之範圍。

又，燒成時間雖在 10 分鐘以上且 1000 小時以下之範圍即已足夠，但是從製造之效率提高或螢光體之品質提高的觀點來看，較佳的燒成時間，係在 30 分鐘以上且 500 小時以下之範圍，更佳為 1 小時以上且 100 小時以下之範圍。就燒成次數而言雖無特別限制，但是從提高螢光體之製造效率的觀點來看，係以較少的次數較佳，而以一次就使之完成最好。

燒成環境，係可任意選自大氣中、低壓環境、真空環境、惰性氣體環境、氮氣環境、氧化環境、還原環境等中之任一環境。但是，由於有必要使 Eu^{2+} 離子形成於螢光體中以

作為發光中心，所以有必要在燒成之最終階段或接近最終的階段，於至少使 Eu^{2+} 離子能形成於螢光體中的環境中燒成。作為該環境，從裝置簡便且廉價即可完成之理由、或可容易進行氣體或材料之處理的理由來看，較佳者係使用氮及氫之混合氣體或以一氧化碳之還原環境，尤其是氮及氫之混合氣體環境。另外，當限定於氮及氫混合氣體環境來加以說明時，從最小限之還原力的確保及氣體之安全性的確保之兩觀點來看，較佳者係氫濃度為0.1%以上且10%以下之範圍，尤其是1%以上且5%以下之範圍。另外，為了提高混合螢光體彼此之間的反應之目的，亦可事先在 $400^{\circ}\text{C} \sim 1400^{\circ}\text{C}$ 等之大氣中進行暫時燒成。

第四處理：燒成物之後段處理

最後，對依上述燒成而得的燒成物(螢光體)施予後段處理以獲得矽酸鹽螢光體。後段處理，主要包含有分解弄碎步驟(稱為將之分解開以形成粉末狀的步驟)、分級步驟、洗淨步驟、及乾燥步驟。

在粉碎步驟中，係將依上述燒成而得的燒成後之螢光體(粒子之凝聚體)粉碎成粒子狀。另外，在燒成物之分解弄碎中有採用各種的手法。當舉一例時，有利用研鉢之分解弄碎、利用球磨粉機之分解弄碎、利用V字型混合機之分解弄碎、利用交叉旋轉攪拌機之分解弄碎、利用噴射磨粉機之分解弄碎、及利用壓碎機(crusher)、馬達磨粉機(motor grinder)、振動杯形磨粉機(cup mill)、圓盤磨粉機(disc mill)、轉子速度磨粉機(rotor speed mill)、切削磨粉機

(cutting mill)、鎚擊磨粉機(hammer mill)之分解弄碎等。又，作為分解弄碎方式，可採用不完全採用溶媒而只分解弄碎燒成物的乾式分解弄碎，或是在水或有機溶媒等之溶媒中投入燒成物，並在上述溶媒中使之分解弄碎的濕式分解弄碎等。作為上述有機溶媒，係可使用乙醇、甲醇等。

在分級步驟中，係將依上述分解弄碎而得的螢光體粒子之集合體，形成具有特定粒度分佈之粒子。分級中雖可使用各種的手法，但是當舉一例時，有利用篩子之分級、或利用螢光體粒子下沉至水或是醇等溶媒中之下沉現象的分級手法等。另外，在利用篩子之分級中，當使用50~1000個網眼左右之篩子來分級時，即可獲得適用於半導體發光元件之上述範圍(第一實施形態中所說明之範圍)內之中心粒徑的矽酸鹽螢光體。又，即使是分級方式，亦可使用不完全採用溶媒的乾式分級，或是在水或有機溶媒等之溶媒中投入分解弄碎物，與上述溶媒同時使之分級的濕式分級。為了獲得尖銳的粒度分佈之目的，亦有採用該等複數個分級手法的情況。

在洗淨步驟中，主要係用以除去在上述燒成後含於燒成物中之殘留助溶劑成份、或在分解弄碎或是分級步驟中混入製造物中的微粒子。洗淨中雖亦可採用各種的手法，但是當舉一例時，有利用酸之洗淨、利用鹼之洗淨、利用蒸餾水或純水等之水的洗淨、利用乙醇或甲醇等之有機溶媒的洗淨等，且使用依螢光體材料之種類或組成而適當地選擇分解弄碎或分級後之螢光體粒子的溶媒來使洗淨。另



外，使分解弄碎或是分級步驟成為濕式，該等的步驟亦可兼做洗淨步驟。又，依所製造之螢光體的種類，亦能省略洗淨步驟。

在乾燥步驟中，係加熱經由分解弄碎步驟、分級步驟、洗淨步驟而得的螢光體粒子之集合體，並使該集合體中含有多量或少量之水或有機溶媒等的溶媒蒸發及乾燥，以獲得最終製品或接近最終製品之螢光體粒子的集合體。乾燥中雖亦可使用各種的手法，但是當舉一例時，有利用恆溫乾燥機或真空乾燥機之乾燥。另外，在使用恆溫乾燥機的情況，係以60~300℃左右之範圍內的溫度，使之乾燥30分鐘至100小時左右。又，依所製造之螢光體的種類，亦能省略洗淨步驟及乾燥步驟。

另外，上述之分解弄碎步驟、分級步驟、洗淨步驟及乾燥步驟之組合方法、或順序、次數等，可依螢光體之種類或目的而臨機應變做決定。

-矽酸鹽螢光體之製造方法的具體例-

以下，係摻混助溶劑之效果，並使用實驗數據說明矽酸鹽螢光體之製造方法的具體例。

圖11係顯示矽酸鹽螢光體之一次燒成後的發光強度(主發光峰值強度)及二次燒成後之發光強度(主發光峰值強度)當作一次燒成溫度之函數的示意圖。同圖所示之一次燒成後的發光強度，係將調合成為 $(\text{Sr}_{0.93}\text{Ba}_{0.05}\text{Eu}_{0.02})_2\text{SiO}_4$ 之螢光體組成的螢光體原料，在從室溫至1400℃之還原環境(氮氫混合氣體)中燒成(一次燒成)2小時而

得的一次燒成物之數據。又，同圖所示之二次燒成後之發光強度，係將作為助溶劑之氯化鋇(BaCl_2)，秤量成($\text{Sr}_{0.93}\text{Ba}_{0.05}\text{Eu}_{0.02}$) $_2\text{SiO}_4$ 矽酸鹽螢光體： $\text{BaCl}_2=1\text{ mol}$ (莫耳): 0.1 mol 之比例，而添加於上述一次燒成物中，並經充分混合之後，在 1400°C 之還原雰囲気中燒成(二次燒成)2小時而得的二次燒成物之數據。同圖所示之一次燒成物的發光強度，係為了參考而顯示者。該矽酸鹽螢光體，係可如此地經由一次燒成(但是，亦可省略)、助溶劑添加及混合、二次燒成之燒成順序而製造。

另外，從一次燒成物之X射線繞射圖案中，可確認在至少 800°C 以上之一次燒成溫度下燒成的一次燒成物中，存在具有斜方晶系之結晶構造的($\text{Sr}_{0.93}\text{Ba}_{0.05}\text{Eu}_{0.02}$) $_2\text{SiO}_4$ 矽酸鹽螢光體。又，亦可確認依 1000°C 、 1200°C 、 1400°C 之一次燒成溫度之燒成而得的一次燒成物，係具有斜方晶系之結晶構造，且大致為單一結晶相的矽酸鹽螢光體。

又，從二次燒成物之X射線繞射圖案中，可確認無關於一次燒成溫度，所有的二次燒成物，均為具有斜方晶系之結晶構造的($\text{Sr}_{0.93}\text{Ba}_{0.05}\text{Eu}_{0.02}$) $_2\text{SiO}_4$ 矽酸鹽螢光體。亦即，圖11係顯示即使不使用助溶劑，可藉 $800\text{--}1400^\circ\text{C}$ 之一次燒成獲得矽酸鹽螢光體，而在室溫(沒有一次燒成)至 1400°C 之溫度下所燒成的一次燒成物中添加混合助溶劑並再次燒成(二次燒成)時，可進而獲得發光強度較強(未使用助溶劑時的約 $1.4\sim 1.6$ 倍)矽酸鹽螢光體。

-半導體發光元件之製造方法的第一具體例-

邊參照圖式而邊加以說明。作為第一具體例，係就利用轉移工法而製造之白色發光的半導體發光元件之製造方法及製造裝置加以說明。圖12(a)~(d)係顯示第一具體例中之半導體發光元件之製程的剖視圖。

首先，準備圖12(a)所示之作為藍色LED的藍色發光半導體晶片101。該藍色發光半導體晶片101，例如係具有使用GaN等之在450 nm~560 nm之範圍中具有發光光譜之峰值的藍色LED，其主面上具有陽極101a及陰極101b。

然後，在圖12(b)所示之步驟中，將藍色發光半導體晶片101利用覆晶連接法搭載固定在矽納二極體102上。此時，將藍色發光半導體晶片101與矽納二極體102互相進行電連接。具體而言，係互相電連接藍色發光半導體晶片101之陽極101a與矽納二極體102之陰極102b，並互相電連接藍色發光半導體晶片101之陰極101b與矽納二極體102之陽極102a。

其次，在圖12(c)所示之步驟中，將固定有藍色發光半導體晶片101之矽納二極體102搭載固定在基板103上。此時，使用銀糊劑等的黏著材料塗敷在基板103上，並將矽納二極體102固定在基板103上。另外，此時所用的黏著材料亦可為鐸錫等的其他黏接材料。

之後，將矽納二極體102之陽極102a連接在設於基板103上之特定電極端子104上。在本實施形態中，於該連接時係使用金線105而將陽極102a連接在電極端子104上。藉此，藍色發光半導體晶片101之陰極101b可電連接在基板

103之電極端子104上。另外，亦可將稽納二極體102之陰極102b連接在設於基板103上之電極端子104上，或可將稽納二極體102之陽極102a及陰極102b連接在設於基板103上之個別的電極端子104上。

其次，在圖12(d)所示之步驟中，係形成具有螢光體粒子的樹脂，俾使從藍色發光半導體晶片101所發出之光通過。具體而言，係將基板103配置於特定之模子107內，並將密封樹脂流入該模子107中。一般而言，係採用具有多數個模子107之密封裝置，並同時形成釋放出白色光之多數個半導體發光元件。在此，作為密封樹脂，係採用使螢光體粒子108分散於環氧樹脂106之中者。之後，從模子107中分離出釋放出白色光的半導體發光元件。環氧樹脂係使用日東電工公司製NTT8506的環氧樹脂。之後，使環氧樹脂硬化。

圖13(a)、(b)係分別順序依第一具體例之製程所形成的半導體發光元件之上視圖及剖視圖。其中，在圖13(a)中，係將環氧樹脂106及螢光體粒子108當作透明體來處理。如圖13(a)、(b)所示，可獲得一種在基板103上，具有藍色發光半導體晶片(藍色LED101)及螢光體層109的半導體發光元件，其中藍色LED101係藉由稽納二極體102而搭載者，而螢光體層109係在環氧樹脂106中比較均勻地分散存在著螢光體粒子(黃色系螢光體粒子)108者。

以上，作為利用轉移工法所製造的白色發光半導體元件之製造方法，係包含有：將作為藍色發光元件之藍色

LED101連接在稽納二極體102(基板)上的步驟；及設置螢光體粒子108與樹脂106俾使從藍色LED101發出之光通過的步驟。

更且，詳細而言，如圖49所示，包含有：在具有複數個稽納二極體102之晶圓109上將作為藍色發光元件之藍色LED連接在各自的稽納二極體上的步驟；設置具有螢光等的樹脂俾使從藍色LED發出之光通過的步驟；以及各別分離稽納二極體的步驟。

利用該種的製造方法，即可製造具有藍色LED、電連接於藍色LED上的稽納二極體(基板)、及設計成使從藍色LED發出之光通過的螢光體粒子分散於樹脂中的螢光體層之白色發光的半導體發光元件。

另外，亦可製造沒有稽納二極體，而只具有藍色LED、及以使從藍色LED發出之光通過的方式將螢光體粒子分散於樹脂中而成的螢光體層之白色發光的半導體發光元件。

另外，作為構成本具體例中之藍色LED的材料，有氮化鎵系化合物半導體、硒化鋅半導體、氧化鋅半導體。作為螢光材料係可採用在上述之第一實施形態中所述的螢光體，尤其是選擇矽酸鹽螢光體較佳。

-半導體發光元件之製造方法的第二具體例-

作為第二具體例，係就砲彈型白色發光之半導體發光元件的製造方法及製造裝置加以說明。圖14(a)~(c)係顯示第二具體例中之半導體發光元件之製程中之前半部份的剖視圖。圖15(a)、(b)係顯示第二具體例中之半導體發光元



件之製程中之後半部份的剖視圖。

首先，圖 14(a)所示之步驟，係將藍色 LED101 搭載固定在台架 110(導線架)上。該台架 110 係包含有用以配置藍色發光半導體元件 101 的凹部 111 與連接於凹部 111 的端子 112；及未連接於凹部 111 的端子 113。實際上，端子 112 及端子 113 雖為了防止該等的端子脫離而利用與端子相同的金屬在凹部 111 之相反側進行連接，但是該連接係在後段步驟時被切斷。又，端子 112 亦可沒有連接在凹部 111 上。在此，如圖 14(a)所示，藍色 LED101 係配置在凹部 111 之底面上，並使用銀糊劑等的黏接材料固定在端子 112 上。另外，此時所用的黏接材料亦可為鐸錫等的其他黏接材料。

之後，在圖 14(b)所示之步驟中，將藍色 LED101 之陽極及陰極與端子 112c、113 分別利用金線 114 來做電連接。

其次，在圖 14(c)所示之步驟中，在凹部 111 上，將螢光體粒子 116 與樹脂 115 之混合體流入台架 110 之凹部 111 內。在此，樹脂 115 係使用環氧樹脂，並在該環氧樹脂 115 中分散有螢光體粒子 116。然後，以加熱溫度 115℃、加熱時間 12 小時之條件，或加熱溫度 120℃、加熱時間 5 小時之條件使該環氧樹脂 115 硬化。藉此，形成螢光體粒子 116 分散於樹脂 115 中的螢光體層 119。在該第二具體例中，環氧樹脂係使用微聚合物(Fine Polymers)公司製的環氧樹脂。另外，流入凹部 111 內的樹脂 115，當使用不需要利用熱使之硬化的樹脂材料，例如利用紫外線照射使之硬化的環氧樹脂(油化瑟耳(Cell)公司製 YL6663)、或利用硬化劑使之

硬化的樹脂材料時，即可抑制加熱時樹脂115之軟化。因而，可阻礙樹脂115硬化前起因於樹脂115軟化而促進螢光體粒子116之下沉的現象。因而，藉由使用不需要利用熱使之硬化的樹脂材料，即可使樹脂115中之螢光體116的分散性更加均勻。

之後，在圖15(a)所示之步驟中，使該台架110翻轉而配置於特定之模子117上，並將密封用的樹脂118流入該模子117內。在此，密封用的樹脂118係採用環氧樹脂。另外，該密封用的樹脂118，從白色發光元件之可靠度的觀點來看，係以使用利用熱而硬化的環氧樹脂較佳。然而，亦可使用不利用熱而硬化的樹脂。

之後，藉由使樹脂硬化，即可獲得如圖15(b)所示之砲彈型白色發光的半導體發光元件。亦即，可獲得一種具有螢光體粒子116在樹脂115中分散的螢光體層119，且釋放出如第一實施形態中所說明之色調良好的白色光之砲彈型半導體發光元件。

在此，設置藍色LED101的台架110只要其剖面為凹形狀即可。因而，台架110，係包含有用以將藍色LED接地的設置部112a(在此為凹部之底面)、及包圍住設置部112a的側部112b、及端子112c、113，且具有可在由設置部112a與側部112b所構成的空間(凹部111)上設置螢光體層的構造。凹部111之形狀，可為一方之底面為開放的圓柱、多角柱，或底面為開放的圓錐、多角錐，或進而上面或下面為開放的圓錐台、多角錐台中之任一種形狀。

如此，側部 112b，藉由形成將設置於設置部 112a(底面)上的藍色 LED101 所發出的光予以反射的構成，即可提高半導體發光元件整體的外部光取出效率。

又，較佳者係將分散有螢光體粒子 116 之樹脂 115，填充至低於凹部 111 之側部高度的位置上，換句話說螢光體層 119 沒有到達凹部 111 之上端。此即使在凹部 111 之形狀為圓柱、多角柱、圓錐、多角錐、圓錐台、多角錐台中之任一種形狀的情況，亦可共通。藉此，在設置複數個白色發光之半導體發光元件，並利用來自各自的半導體發光元件之發光的情況，即可消除在某一個半導體光元件、及與之鄰接的半導體發光元件之間，一方所發出的藍色光因激勵另一方之半導體發光元件之樹脂中的螢光體粒子，而發生串擾的不良情形。尤其是，在該藍色發光半導體元件之藍色光與利用依該藍色光所激勵之螢光體的黃色光而發出白色光的元件中，由於其係形成藍色光亦朝外部釋放出的構造，所以該種的串擾問題會變得嚴重，但是螢光體層 119，藉由設置成低於凹部 111 之側部 112b 的高度，即可消除該種的串擾。

如以上所述，第二具體例中之半導體發光裝置之製造方法，係一種包含有將藍色 LED101 設置於設置部 112a 上的步驟(或機構)，及形成螢光體粒子 116 與樹脂 115 之混合體所構成的螢光體層 119 俾使由藍色 LED 發出之光通過的步驟(或機構)之製造方法(或製造裝置)。

更詳言之，設置上述樹脂之步驟(或機構)，係一種在形

成於設置部 112a 與側部 112b 之間的凹部 111 上，包含有設置之步驟(或機構)的製造方法(或製造裝置)。更詳言之，係一種包含有將上述藍色發光二極體設於設置部上的步驟(或機構)，及設置具有螢光體之第一樹脂俾使從上述藍色發光二極體發出之光通過的步驟(或機構)，及設置不具有螢光體的第二樹脂俾使從上述藍色發光二極體發出之光通過的步驟(或機構)之製造方法(或製造裝置)。在此，較佳者係在第一樹脂中選擇不利用熱使之硬化的樹脂，而在第二樹脂中選擇利用熱使之硬化的樹脂。

另外，作為構成藍色 LED 之材料，可採用氮化鎵系化合物半導體、硒化鋅半導體、氧化鋅半導體。作為螢光體材料，係可採用第一實施形態中所說明的材料，尤其是選擇矽酸鹽螢光體較佳。

本具體例中，雖採用環氧樹脂做為樹脂 125，但是亦可採用矽樹脂等的其他樹脂。

又，藍色 LED 之陽極及陰極與各端子之間的電連接，雖係利用金線來進行，但是只要其為可進行電連接的材料作為金屬線即可。例如，亦可採用鋁線。

- 半導體發光元件之製造方法的第三具體例 -

作為第三具體例，係就側視(side view)型白色發光之半導體發光元件之製造方法及製造裝置加以說明。圖 16(a)~(c)係顯示第三具體例中之半導體發光元件之製程中之前半部份的剖視圖。

首先，在圖 16(a)所示之步驟中，將藍色 LED 101 搭載固



定於框體 120 上。該框體 120，係具有配置藍色 LED101 用之基部 120、側部 121；以及從凹部 128 之底面上開始貫穿框體 120 之側部 121 並朝外方取出的外部連接端子 122、123。在此，如圖 16(a) 所示，藍色 LED101 係設置於凹部 128 之底面並使用銀糊劑等的黏接材料加以固定。另外，此時所用的黏接材料亦可為錐錫等的其他黏接材料。

之後，在圖 16(b) 所示之步驟，係將藍色 LED101 之陽極及陰極、與端子 122、123 分別利用金線 124 作電連接。

其次，在圖 16(c) 所示之步驟，係將樹脂 125 與螢光體粒子 126 之混合體流入框體 120 之凹部 128 內。該具體例中，樹脂 125 係使用環氧樹脂，並使螢光體粒子 126 分散在該環氧樹脂中。然後，以加熱溫度 115℃、加熱時間 12 小時之條件，或加熱溫度 120℃、加熱時間 5 小時之條件使該環氧樹脂 125 硬化。藉此，形成螢光體粒子 126 分散於樹脂 125 中的螢光體層 129。在該第二具體例中，環氧樹脂係使用微聚合物 (Fine Polymers) 公司製的環氧樹脂。另外，流入凹部 128 內的樹脂 125，當使用不需要利用熱使之硬化的樹脂材料，例如利用紫外線照射使之硬化的環氧樹脂 (油化瑟耳 (Cell) 公司製 YL6663)、或利用硬化劑使之硬化的樹脂材料時，即可抑制加熱時樹脂 125 之軟化。因而，可阻礙樹脂 125 硬化前起因於樹脂 125 軟化而促進螢光體粒子 126 之下沉的現象。因而，藉由使用不需要利用熱使之硬化的樹脂材料，即可使樹脂 125 中之螢光體 126 的分散性更加均勻。

之後，藉由使樹脂硬化，即可獲得如圖 16(c)所示之側視型白色發光的半導體發光元件。亦即，可獲得一種具有螢光體粒子 126 在樹脂 125 中分散的螢光體層 129，且釋放出如第一實施形態中所說明之色調良好的白色光之砲彈型半導體發光元件。

在此，設置藍色 LED101 的框體 120 只要其剖面為凹形狀即可。因而，框體 120，係包含有用以將藍色 LED 接地的基部 120、及在基部 120 上包圍住凹部 128 的側部 121、及外部連接端子 122、123，且具有可在由基部 120 與側部 121 所構成的空間(凹部 128)上設置螢光體層的構造。凹部 128 之形狀，可為一方之底面為開放的圓柱、多角柱，或底面為開放的圓錐、多角錐，或進而上面或下面為開放的圓錐台、多角錐台中之任一種形狀。

如此，側部 121，藉由形成具有將設置於基部 120 上的藍色 LED101 所發出的光予以反射之反射板功能的構成，即可提高半導體發光元件整體的外部光取出效率。

又，較佳者係將分散有螢光體粒子 126 之樹脂 125，填充至低於側部 121(凹部之側壁)之高度的位置上，換句話說螢光體層 129 沒有到達凹部 128 之上端。此即使在凹部 128 之形狀為圓柱、多角柱、圓錐、多角錐、圓錐台、多角錐台中之任一種形狀的情況，亦可共通。藉此，在設置複數個白色發光之半導體發光元件，並利用來自各自的半導體發光元件之發光的情況，即可消除在某一個半導體發光元件、及與之鄰接的半導體發光元件之間，一方所發出的藍

色光因激勵另一方之半導體發光元件之樹脂中的螢光體粒子，而發生串擾的不良情形。尤其是，在該藍色發光半導體元件之藍色光與利用依該藍色光所激勵之螢光體的黃色光而發出白色光的元件中，由於其係形成藍色光亦朝外部釋放出的構造，所以該種的串擾問題會變得嚴重，但是螢光體層129，藉由設置成低於側部121之高度，即可消除該種的串擾。

如以上所述，第三具體例中之半導體發光裝置之製造方法，係一種包含有將藍色LED101(藍色發光元件)設置於基部120上的步驟，及形成螢光體粒子126與樹脂125之混合體所構成的螢光體層129俾使由藍色LED發出之光通過的步驟之製造方法。

更詳言之，係一種包含有將藍色發光二極體設置於基部上的步驟，及設置螢光體層俾使從藍色發光元件發出之光通過的步驟，及設置不具有螢光體的透過性樹脂俾使從上述藍色發光二極體發出之光通過的步驟之製造方法。在此，較佳者係在構成螢光體層之樹脂中選擇不利用熱使之硬化的樹脂，而在不具有螢光體之樹脂中選擇利用熱使之硬化的樹脂。

另外，作為構成藍色LED之材料，可採用氮化鎵系化合物半導體、硒化鋅半導體、氧化鋅半導體。作為螢光體材料，係可採用第一實施形態中所說明的材料，尤其是選擇矽酸鹽螢光體較佳。

本具體例中，雖採用環氧樹脂做為樹脂125，但是亦可



採用矽樹脂等的其他樹脂。

又，藍色LED之陽極及陰極與各端子之間的電連接，雖係利用金線來進行，但是只要其為可進行電連接的材料作為金屬線即可。例如，亦可採用鋁線。

在此，較佳者係在上述具體例中之半導體發光裝置之製程中，使螢光體粒子儘量在樹脂中均勻分散。因此，以下係就在半導體發光元件之製程中，使螢光體粒子儘量在樹脂中均勻分散用的具體例加以說明。

-使螢光體粒子均勻分散用的第一具體例-

在第一具體例中，係說明在樹脂硬化中施加振動的方法及裝置。圖17(a)、(b)係分別顯示在半導體發光元件之製程中施加超音波振動的二個方法之平面圖。亦即，如圖17(a)所示，在超音波振動層130 (KAIJODENNKI公司製)中設置模子107，並使樹脂106硬化之期間，藉由在模子107整體上施加振動即可使螢光體粒子108均勻地分散於樹脂106中。又，如圖17(b)所示，亦可利用振動附加機構131(超音波喇叭等)在模子107上直接施加振動。例如由於樹脂106與螢光體粒子108之比重差較大，所以會如圖21(b)所示，即使在螢光體層109中螢光體粒子108下沉至樹脂106之底部，如圖17(a)、(b)所示，藉由使模子107振動，螢光體粒子108及樹脂106就會振動，且如圖21(d)所示，螢光體粒子108會均勻地分散於樹脂106中。

圖18(a)、(b)係分別顯示在半導體發光元件之製造方法的第一具體例(砲彈型半導體發光元件之製造方法)中施加

超音波振動的二個方法之平面圖；並顯示在圖 15(b)所示之步驟中，施加超音波振動時的狀態。亦即，如圖 18(a)所示，在超音波振動層 130 (KAIJODENNKI 公司製) 中設置模子 117，並使樹脂 115 硬化之期間，藉由在模子 117 整體上施加振動即可使螢光體粒子 116 均勻地分散於樹脂 115 中。又，如圖 18(b)所示，亦可利用振動附加機構 131 (超音波喇叭等) 在模子 117 上直接施加振動。例如由於樹脂 115 與螢光體粒子 116 之比重差較大，所以會如圖 21(a)所示，即使在螢光體層 119 中螢光體粒子 116 下沉至樹脂 115 之底部，如圖 18(a)、(b)所示，藉由使模子 117 振動，螢光體粒子 116 及樹脂 115 會振動，而如圖 21(c)所示般之在樹脂 115 中可均勻地分散於樹脂 115 中。

同樣地，在半導體發光元件之製造方法的第三具體例 (側視型半導體發光元件之製造方法) 之圖 16(c)所示的步驟中，可使用超音波振動裝置 130 或超音波附加機構 131。即使在該情況，由於例如樹脂 125 與螢光體粒子 126 之比重差較大，所以即使在螢光體層 129 中螢光體粒子 126 下沉至樹脂 125 之底部，藉由使螢光體粒子 126 與樹脂 125 振動，亦可使螢光體粒子 126 均勻地分散於樹脂 125 中。

- 均勻分散螢光體粒子用之第二具體例 -

在第二具體例中，就在樹脂硬化中使模子上下翻轉的方法及裝置加以說明。圖 19(a)、(b)係顯示在半導體發光元件之製程中使模子上下翻轉之方法的平面圖；且顯示使模子上下翻轉時的狀態。亦即，如圖 19(a)所示，採用具有旋轉軸 141 及使旋轉軸 141 旋轉之驅動馬達 (未圖示) 的翻轉機

構，並在模子107上安裝旋轉軸141，且在使樹脂106硬化之期間，藉由使模子107整體在圖19(a)所示之正常位置與圖19(b)所示之翻轉位置之間反覆上下翻轉，即可使螢光體粒子108均勻地分散於樹脂106中。例如由於樹脂106與螢光體粒子108之比重差較大，所以會如圖21(b)所示，即使在螢光體層109中螢光體粒子108下沉至樹脂106之底部，如圖19(a)、(b)所示，藉由使模子107上下翻轉，使螢光體粒子108及樹脂106移動則如圖21(d)所示，亦可使螢光體粒子108均勻地分散於樹脂106中。

在此，使模子107翻轉的次數越多則樹脂106中之螢光體粒子108的分散性就越佳。又，為了使樹脂在最初的1小時整體硬化約90%，較佳者係在該1小時內使模子107(即樹脂106)上下翻轉。

圖20(a)、(b)係顯示在半導體發光元件之第二具體例之製程中之圖15(a)所示的步驟，使模子上下翻轉時的狀態。亦即，如圖20(a)所示，採用具有旋轉軸141及使旋轉軸141旋轉之驅動馬達(未圖示)的翻轉機構，並在模子117上安裝旋轉軸141，且在使樹脂115硬化之期間，藉由使模子117整體在圖20(a)所示之正常位置與圖20(b)所示之翻轉位置之間反覆上下翻轉，即可使螢光體粒子116均勻地分散於樹脂115中。例如由於樹脂115與螢光體粒子116之比重差較大，所以會如圖21(a)所示，即使在螢光體層119中螢光體粒子116下沉至樹脂115之底部，如圖18(a)、(b)所示，藉由使模子117上下翻轉，使螢光體粒子116及樹脂115移



動則如圖 21(c)所示，亦可使螢光體粒子 116 均勻地分散於樹脂 115 中。

在該情況，亦使模子 117 翻轉的次數越多則樹脂 115 中之螢光體粒子 116 的分散性就越佳。又，為了使樹脂在最初的 1 小時整體硬化約 90%，較佳者係在該 1 小時內使模子 117 (即樹脂 115) 上下翻轉。

同樣地，在半導體發光元件之製造方法的第三具體例 (側視型半導體發光元件之製造方法) 之圖 16(c) 所示的步驟中，可使用翻轉機構。即使在該情況，由於例如樹脂 125 與螢光體粒子 126 之比重差較大，所以即使在螢光體層 129 中螢光體粒子 126 下沉至樹脂 125 之底部，藉由使螢光體粒子 126 與樹脂 125 振動，亦可使螢光體粒子 126 均勻地分散於樹脂 125 中。

- 均勻分散螢光體粒子用之第三具體例 -

在第三具體例中，就分數次進行將樹脂填充至凹部或模子內並使之硬化的處理之方法加以說明。

在該具體例中，係在例如半導體發光元件之製造方法的第一具體例 (轉移工法) 之圖 12(d) 所示的步驟中，將含有螢光體粒子 108 之樹脂 106 每次填充其總量之 1/3 至模子 107 內，並將加熱時間設為 5 小時，且將加熱溫度設為 120°C 以使樹脂 106 硬化。藉由反覆進行該處理 3 次，以在模子 107 上形成螢光體層 109。

如此，藉由分數次進行樹脂填充及硬化，即可如圖 21(b) 所示在螢光體層 109 中不會使螢光體粒子 108 下沉至樹脂

106之底部，而可使螢光體粒子108較均勻地分散於樹脂106中。

同樣地，在半導體發光元件之製造方法的第二具體例(砲彈型半導體發光元件之製造方法)之圖14(c)所示的步驟、或半導體發光元件之製造方法的第三具體例(側視型半導體發光元件之製造方法)之圖16(c)所示的步驟中，藉由對模子或凹部進行數次的樹脂之填充及硬化，即可使螢光體粒子較均勻地分散於樹脂中。

在此，將樹脂填充至模子或凹部內並使之硬化的次數越多則樹脂中之螢光體粒子的分散性就越佳。但是，由於該次數若增多則製造時間會變長，所以較佳者係設在5次以下的次數；尤其是設在3次左右最佳。

-均勻分散螢光體粒子用之第四具體例-

在第四具體例中，係就形成螢光體層時使用高黏度樹脂之方法加以說明。

在該具體例中，在例如半導體發光元件之製程(例如圖17(c)所示之步驟)中，藉由將含有螢光體粒子108之樹脂106的黏度設在較高的黏度，即在樹脂106之硬化中可使螢光體粒子108不會下沉。該具體例中，係將樹脂106之黏度設在螢光體粒子108不會下沉的程度。較佳為1 Pa·s以上且100 Pa·s以下之範圍內的黏度。

如此，藉由採用高黏度的樹脂，就如圖21(b)所示在螢光體層109中不會使螢光體粒子108下沉至樹脂106之底部，而使螢光體粒子108較均勻地分散於樹脂106中。



同樣地，在半導體發光元件之製造方法的第二具體例(砲彈型半導體發光元件之製造方法)之圖14(c)所示的步驟、或半導體發光元件之製造方法的第三具體例(側視型半導體發光元件之製造方法)之圖16(c)所示的步驟中，藉由採用高黏度之樹脂，以使螢光體粒子較均勻地分散於樹脂中。

-均勻分散螢光體粒子用之第五具體例-

在第五具體例中，係就為了在形成螢光體層時使用不需要加熱之樹脂的方法加以說明。

在該具體例中，例如在半導體發光元件之製程(例如圖12(d)所示之步驟)中，作為含有螢光體粒子108之樹脂106，係採用利用紫外線而硬化的樹脂(油化瑟耳(Cell)公司製YL6633)(以下，稱為紫外線硬化型樹脂)。又，作為樹脂106亦可採用利用樹脂硬化劑而硬化的樹脂(以下稱為二液硬化樹脂)。

結果，在利用熱而硬化的樹脂中，由於在硬化前有樹脂黏度降低的時期，所以可看見螢光體粒子108之若干下沉的情形，相對於此，當採用不利用熱而進行硬化之紫外線硬化型樹脂或二液硬化樹脂時，可知螢光體粒子108會較均勻地分散於樹脂106中。

同樣地，在半導體發光元件之製造方法的第二具體例(砲彈型半導體發光元件之製造方法)之圖14(c)所示的步驟、或半導體發光元件之製造方法的第三具體例(側視型半導體發光元件之製造方法)之圖16(c)所示的步驟中，藉

由採用不利用熱而進行硬化之紫外線硬化型樹脂或二液硬化樹脂，以使螢光體粒子較均勻地分散於樹脂中。

然後，如上述第一至第五具體例所示，藉由設計使螢光體粒子更均勻地分散於樹脂中的步驟或機構，即可獲得如下述的效果。藉由使螢光體粒子均勻地，尤其是在樹脂中呈縱方向均勻分散，比起偏位存在有螢光體粒子的情況，就不會過度封入於偏位存在有藍色LED發出之藍色光(450 nm~560 nm之間具有發光光譜之峰值的光)的螢光體粒子內而可朝外部取出，且可獲得適當的白色光。

又，螢光體粒子所發出的螢光本身，並不會過度封入於偏位存在之螢光體粒子中，而可向外部取出。

更且，在螢光體粒子偏位存在於樹脂中的情況，尤其是如圖21(a)、(c)所示，比起螢光體下沉至基板103上的情況，還可完成在採用同一藍色LED之情況即使是少於10%左右之螢光體量亦為相同色溫度的白色發光半導體元件，並可以相同的色溫度增加亮度、強度。

另外，上述第一至第五具體例之步驟或機構，雖然單獨亦可獲得效果但是藉由進行二者以上即可獲得更多的相乘效果。

-關於螢光體層之攪拌的具體例-

圖22係顯示在半導體發光元件之腔室內流入含有矽酸鹽螢光體之螢光體糊劑時所採用的螢光體糊劑吐出裝置之較佳具體例的剖視圖。圖22中，200係原料槽，201係噴嘴頭，CA係半導體發光元件之腔室，204係幫浦，205係分

散噴嘴，206係螢光體糊劑，207係螢光體糊劑206中所含的螢光體粒子，208係螢光體糊劑206中之樹脂。噴嘴頭201，例如包含有：用以貯存自原料槽200移動而來之螢光體糊劑206的槽室202；將螢光體糊劑206噴出至腔室CA的噴嘴203；以及配置於槽室202內的金屬球S。貯存於原料槽200內的螢光體糊劑，係依循環幫浦204之加壓而供至槽室202，並從噴嘴203而連續噴出至腔室CA。

貯存於原料槽200內或槽室202內的螢光體糊劑206，係有隨著時間之經過而凝聚螢光體粒子207，以形成螢光體粒子207之凝聚物的傾向。當形成螢光體粒子207之凝聚物時，因發生噴嘴203之堵塞，或被噴出之螢光體糊劑206中的螢光體粒子207之濃度發生變化，而有難以使螢光體粒子207在腔室CA內均勻分散的情況。因此，在本具體例之螢光體糊劑吐出裝置中，係藉由攪拌貯存於原料槽200、槽室202內的螢光體糊劑206，以抑制螢光體粒子207之凝聚物的形成。在圖22所示之例子中，在原料槽200或槽室202內置入金屬球S，並依磁力使金屬球S在槽內移動，即可藉以攪拌螢光體糊劑206。藉此，即可抑制螢光體在原料槽200或槽室202內凝聚。

另外，原料槽200或槽室202內之螢光體糊劑206的攪拌方法，並未被限定於採用如圖22所示之金屬球S的方法，只要是在槽室等之內部儘量抑制螢光體糊劑207之濃度分佈的變化之方法，即可採用其他的方法。例如，亦可對槽室202提供振動，或只事先在槽室202內附設攪拌構件。

又，藉由事先在原料槽200內設置過濾器，且在原料槽200內透過過濾器供給螢光體糊劑206，即可將凝聚物予以解體。

更且，在本具體例之螢光體糊劑吐出裝置中，設有用以控制螢光體糊劑206之流速的分散噴嘴205。當螢光體糊劑206通過分散噴嘴205時，螢光體糊劑206中之螢光體粒子207的凝聚物就會被噴射流所細分化，而該凝聚會被分解開。若事先將分散噴嘴205之頸徑設定成適合噴嘴頭202之噴嘴徑，則在原料槽200內或供給路徑之中途所凝聚的螢光體糊劑206中之凝聚物就可被適度地分解開，而可使來自噴嘴203之噴出穩定化。透過分散噴嘴205而對噴嘴頭202抑制螢光體之凝聚，不僅可藉此進一步防止噴嘴203中之堵塞，亦可容易在腔室CA內使螢光體粒子207均勻分散。另外，並不一定需要設置分散噴嘴205，只要使之對應矽酸鹽螢光體之黏度等而加以適當設置即可。

- 螢光體層之帶電 -

造成YAG系螢光體沉積的原因，雖然有起因於螢光體與母材之比重較大而產生者，但是其他原因亦可考慮係因YAG系螢光體帶正電所引起。換句話說，當作為母材之樹脂帶同樣正電時，一般兩者由於會互相排斥而使YAG系螢光體沉積。

另一方面，當考慮以化學式 $(\text{Sr}_{1-a1-b1-x}\text{Ba}_{a1}\text{Ca}_{b1}\text{Eu}_x)_2\text{SiO}_4$ 表示之化合物為主體所構成的矽酸鹽螢光體不對相同樹脂沉積的事實、以及上述帶電與沉積的關係時，由於該矽

酸鹽螢光體粒子會帶與樹脂相反的負電而使兩者處於互相吸引的關係，所以可考慮矽酸鹽螢光體粒子會分散至樹脂之整體上。做為該種帶正電的樹脂，有環氧樹脂與矽樹脂。

基於以上，作為提高YAG係螢光體粒子之分散性的手段，可考慮利用帶負電的氧化物等來塗敷螢光體粒子的方法。

在螢光體粒子之表面上塗敷氧化物、氟化物之方法，首先係在混合攪拌螢光體糊劑之懸浮液及所需之氧化物或氟化物之塗敷粒子的懸浮液之後，對之吸引過濾，且在125℃以上予以乾燥後以350℃來燒成。為了提高螢光體與氧化物、氟化物之黏著力，亦可加入少量的樹脂、有機矽烷、水玻璃(矽酸鈉)等。

又，將螢光體粒子之表面塗敷成膜狀的方法，亦有利用有機金屬化合物之加水分解的方法。藉此，就可塗敷容易在螢光體粒子之表面帶負電的氧化物之 SiO_2 。又，在形成 Al_2O_3 膜的情況，係將螢光體使用做為鋁之醇鹽(alkoxide)的 $\text{Al}(\text{OC}_2\text{H}_5)_3$ ，並將之置入醇溶液中混合攪拌，以在螢光體表面塗敷 Al_2O_3 。

如此，本發明人等獲得以下知識，即藉由將帶電極性與樹脂之帶電極性相反之材料所構成的構件附著或塗敷在螢光體粒子之表面，因樹脂分子包圍住附著或塗敷有與樹脂之帶電極性相反之極性上所帶電之構件的螢光體粒子周圍，而可抑制螢光體粒子彼此之間的凝聚，同時可防止



螢光體粒子之下沉。本發明人等發現即使在YAG係螢光體粒子、矽酸鹽螢光體粒子中之任一個的情況，若至少選擇分別將分散有螢光體粒子之樹脂與螢光體粒子在逆極性上帶電的構件的話，則不會發生如習知之顯著的螢光體粒子下沉情形。

在此，塗敷至螢光體粒子之表面帶負電的氧化物或氟化物之塗敷量，當過少時效果就少，當過多時就會吸收所產生的光，而有降低亮度之虞。因此，螢光體粒子之表面帶負電的氧化物或氟化物之塗敷量的較佳範圍，相對於螢光體粒子之重量係在0.05%~2.0%，此為本發明人等進行各種的實驗所得的知識。

如此，在本發明之更進一步的發明中，形成一種在環氧樹脂中具有使之塗敷或附著SiO₂的YAG系螢光體。亦即，形成在環氧樹脂中具有使之附著或塗敷帶負電之氧化物、氟化物之YAG系螢光體的構造及製造該種構造的方法。更詳言之，藉由形成在作為帶負電之樹脂的環氧樹脂中具有使之附著或塗敷帶負電之氧化物、氟化物之YAG系螢光體的構造及製造該種構造的方法，進而藉由形成使藍色LED之發光通過該環氧樹脂的構成及製造該種構成的方法，則如圖21(c)、(d)所示，可提供一種發出均勻分散螢光體粒子之白色系光的半導體發光元件。

-半導體發光元件之矽酸鹽螢光體的例子-

以下，係記載有關本發明之半導體發光元件的實施例。

製作矽酸鹽螢光體之順序例

首先，製作釋放出黃色系光之組成的矽酸鹽螢光體粒子。作為螢光體原料，係採用碳酸鋇(BaCO_3)、碳酸鋇(SrCO_3)、氧化鎔(Eu_2O_3)、二氧化矽(SiO_2)之各粉末，而助溶劑則採用氯化鈣(CaCl_2)。螢光體原料之純度均在99.9%以上，而螢光體原料之中心粒徑係採用10 nm以上且5 μm 以下之範圍內者。另外，有關各原料，為了消除因吸附氣體所帶來的秤量之誤差，而要事先調查在約900°C之大氣中之加熱前後的重量變化，以便對之掌握。

在使用電子天秤來秤量粉末狀之碳酸鋇9.9g、碳酸鋇138.0g、氧化鎔2.6g、二氧化矽30.7g及氯化鈣1.7g之後，利用自動研鉢將該等的粉末充分混合，以獲得混合螢光體原料粉末。之後，將混合螢光體原料粉末裝在氧化鋁晶舟內，並將氧化鋁配置在當作爐心管之管狀氛圍爐內的特定位置之後，進行燒成。燒成條件，係在加熱溫度1400°C，且氫5%及氮95%之環境中，加熱時間設在2小時。

在確認爐心管內部已冷卻至室溫之後，將燒成物(矽酸鹽螢光體)取出，以進行分解弄碎、洗淨、分級及乾燥等的後段處理。經由以上作業程序，即獲得具有斜方晶之結晶構造，且釋放出黃色系光的矽酸鹽螢光體。

以下，係說明事前評估所獲得之矽酸鹽螢光體之特性的結果。在此，係評估利用X射線繞射法所得之矽酸鹽螢光體粒子的結晶構成物、及利用雷射繞射及散射式粒度分佈測定器所得之矽酸鹽螢光體粒子的粒度分佈及中心粒徑，並使用ICP發光分光分析法來評估該矽酸鹽螢光體之

組成、矽酸鹽螢光體之激勵光光譜及發光光譜、和藍色激勵光之反射光譜及依藍色光而激勵之螢光體的光譜。

圖 23 係顯示對矽酸鹽螢光體進行的 X 射線繞射解析之結果，並顯示繞射角與 X 射線繞射強度之關係的 X 射線繞射圖案示意圖。圖 23 所示之 X 射線繞射圖案，係與之後說明的斜方晶系 Sr_2SiO_4 化合物的 X 射線繞射圖案(參照圖 27(b))相同的圖案。此係顯示關於實施例之矽酸鹽螢光體，具有斜方晶之結晶構造之單一結晶相之 $(\text{Sr}、\text{Ba}、\text{Eu})_2\text{SiO}_4$ 螢光體。

圖 24 係顯示利用 X 射線繞射法所得之矽酸鹽螢光體的粒度分佈圖。如同圖所示，其顯示關於實施例之矽酸鹽螢光體粒子的粒徑，係分佈於約 3 μm 以上且 30 μm 以下之範圍內，且由具有 11.5 μm 之中心粒徑的螢光體粒子群所構成的螢光體。另外，由電子顯微鏡觀察的結果，發現矽酸鹽螢光體之一個粒子，係凝聚帶圓形狀之數個一次粒子所構成者。又，上述一次粒子之表面，雖然有些粗糙氣比較平滑。

其次，使用 ICP 發光分光分析法，以評估該矽酸鹽螢光體之組成。結果，上述矽酸鹽螢光體之組成，係 $(\text{Ca}_{0.015}\text{Sr}_{0.92}\text{Ba}_{0.05}\text{Eu}_{0.015})\text{Si}_{0.99}\text{O}_x$ ，大致與裝入時之矽酸鹽螢光體的組成比一致。

其次，評估上述矽酸鹽螢光體之激勵光光譜及發光光譜。結果已如圖 8 所示。為了比較起見，圖 8 有顯示 YAG 系螢光體粒子之激勵光光譜及發光光譜。如圖 8 所示，其顯

示有關該例之矽酸鹽螢光體，係在250~300 nm附近具有激勵光峰值，並吸收100~500 nm之較寬波長範圍的光，且於569 nm中具有發光峰值的黃色系螢光體。另外，矽酸鹽螢光體所釋放出的黃色系光之CIE色度座標上的色度(x、y)，係分別為(0.484、0.506)。

圖25係顯示使用積分球就矽酸鹽螢光體之發光加以積分評估的結果示意圖。在此，係對以上述處理所得的矽酸鹽螢光體照射波長470 nm之激勵用藍色光，來評估藍色激勵光之反射光譜與依藍色光而激勵之螢光體的發光光譜。另外，470 nm之藍色光，係依將Xe燈泡之光通過單色光鏡(monochrometer)所得。為了比較起見，圖25亦顯示YAG系螢光體之上述反射光譜及發光光譜強度。另外，圖25中，470 nm之發光峰值係依激勵光(藍色光)所得者。圖25有顯示該矽酸鹽螢光體比YAG系螢光體更具有容易反射三倍以上藍色光的性質，以及該矽酸鹽螢光體比起YAG系螢光體依藍色光所激勵的發光強度較弱，且為YAG螢光體之發光強度的約一半。

-矽酸鹽螢光體之各種特性-

以下，係詳細說明依上述順序而製造的矽酸鹽螢光體之特性。圖53係為了參考起見而將矽酸鹽螢光體之代表的組成與特性作成表而顯示的示意圖。圖53中所示之組成，基本上係依ICP發光分光分析法而定量評估的組成，或從上述定量分析之結果中推定而得的組成。

首先，說明矽酸鹽螢光體之組成與結晶構造的關係。另

外，以下之說明，係關於將鎔 (Eu) 濃度 (以 $= \text{Eu}/(\text{Sr}+\text{Ba}+\text{Ca}+\text{Eu})$ 定義之)，設為典型的 2 原子 % (亦即，鎔 (Eu) 濃度 $= 0.02$)，並依 1400°C 之還原環境中之 2 小時的燒成而得的矽酸鹽螢光體者。

如前面說明般，矽酸鹽螢光體，係依組成而至少取得斜方晶系、單斜晶系、六方晶系之三種結晶構造。有關該等各種的結晶構造，係邊參照圖 26(a)~圖 30(b) 而邊加以說明。

圖 26(a)、(b) 係分別依序為完全不含 Ca 與 Ba 之 $(\text{Sr}_{0.98}\text{Eu}_{0.02})_2\text{SiO}_4$ 螢光體及公知之單斜晶系 Sr_2SiO_4 化合物的各 X 射線解析圖案示意圖。圖 27(a)、(b) 係分別依序為完全不含 Ca 而包含 5 原子 % 之 Ba 作為置換量之 $(\text{Sr}_{0.93}\text{Ba}_{0.05}\text{Eu}_{0.02})_2\text{SiO}_4$ 螢光體及公知之斜方晶系 Sr_2SiO_4 化合物的各 X 射線解析圖案示意圖。圖 28(a)、(b) 係分別依序為完全不含 Ca 與 Sr 之 $(\text{Ba}_{0.98}\text{Eu}_{0.02})_2\text{SiO}_4$ 螢光體及公知之斜方晶系 Ba_2SiO_4 化合物的各 X 射線解析圖案示意圖。圖 29(a)、(b) 係分別依序為各包含 38 原子 %、60 原子 % 之 Ca 與 Ba 之 $(\text{Ca}_{0.38}\text{Ba}_{0.60}\text{Eu}_{0.02})_2\text{SiO}_4$ 螢光體及公知之六方晶系 $\text{Ba}_{0.3}\text{Ca}_{0.7}\text{SiO}_4$ 化合物的各 X 射線解析圖案示意圖。圖 30(a)、(b) 係分別依序為完全不含 Sr 與 Ba 之 $(\text{Ca}_{0.98}\text{Eu}_{0.02})_2\text{SiO}_4$ 螢光體及公知之單斜晶系 Ca_2SiO_4 化合物的各 X 射線解析圖案示意圖。

在此，各 X 射線解析圖案示意圖，係在常溫常壓之條件下所測定的數據。又，圖 26(b)、圖 27(b)、圖 28(b)、圖 29(b)、



圖 30(b)，係分別為依 JCPDS (Joint Committee on Powder Diffraction Standards) 卡而成公知的化合物之數據，在各圖中有顯示化合物編號。圖 26(a)至圖 30(a)與圖 26(b)至圖 30(b)之 X 射線繞射圖案之各個的比對，可知由本例所製作的螢光體之結晶構造，係分別為單斜晶系、斜方晶系、斜方晶系、六方晶系、單斜晶系。

另外，矽酸鹽螢光體之組成與主要結晶構造的關係，係如圖 53 所示。 $(\text{Sr}, \text{Ba})_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$ 螢光體及 $(\text{Ca}, \text{Sr})_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$ 螢光體，係取得單斜晶系與斜方晶系之結晶構造。 $(\text{Ca}, \text{Ba})_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$ 螢光體，係取得斜方晶系與六方晶系與單斜晶系之結晶構造。又，鋇 (Sr) 置換量 $(= \text{Sr} / (\text{Sr} + \text{Ba} + \text{Ca} + \text{Eu}))$ 至少為 50 原子 % 以上的 $(\text{Sr}, \text{Ba}, \text{Ca})_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$ 螢光體之結晶構造係為斜方晶。

在結晶構造方面特別引人注目的物質，係 $(\text{Sr}_{1-a1-x}\text{Ba}_{a1}\text{Eu}_x)_2\text{SiO}_4$ 螢光體。完全不含鋇 (Ba) 之純粹的 $(\text{Sr}_{1-x}\text{Eu}_x)_2\text{SiO}_4$ 螢光體，雖然在至少 $0 \leq x \leq 0.1$ 之鋁 (Eu) 濃度範圍內，具有單斜晶系之結晶構造，但是藉由鋇 (Ba) 置換量 $(= \text{Ba} / (\text{Sr} + \text{Ba} + \text{Ca} + \text{Eu}))$ 包含 1 原子 % 程度以上的鋇 (Ba)， $(\text{Sr}_{1-a1-x}\text{Ba}_{a1}\text{Eu}_x)_2\text{SiO}_4$ 螢光體，就會在至少 $0 \leq x \leq 0.3$ 之範圍內，具有斜方晶系之結晶構造 (參照圖 53)。

圖 31(a)、(b) 係 Si 之一部分以鍺 (Ge) 置換的 $(\text{Sr}_{0.84}\text{Ba}_{0.14}\text{Eu}_{0.02})_2(\text{Si}_{0.8}\text{Ge}_{0.2})\text{O}_4$ 螢光體及公知之斜方晶系 Sr_2SiO_4 化合物的各 X 射線解析圖案示意圖。圖 31(a)、(b) 係為了參考起見而顯示者，由於兩圖之圖案一致，所以可知鍺 (Si)

之一部分以鍺 (Ge) 置換的 $(\text{Sr}_{0.84}\text{Ba}_{0.14}\text{Eu}_{0.02})_2(\text{Si}_{0.8}\text{Ge}_{0.2})\text{O}_4$ 螢光體之結晶構造係斜方晶。另外，實驗數據雖省略，但是 Si 之一部分以鍺 (Ge) 置換的 $(\text{Sr}_{0.84}\text{Ba}_{0.14}\text{Eu}_{0.02})_2(\text{Si}_{0.8}\text{Ge}_{0.2})\text{O}_4$ 螢光體之結晶構造，係鍺 (Ge) 置換量 $(=\text{Ge}/(\text{Si}+\text{Ge}))$ 係在 0~100 原子 % 之全置換範圍的斜方晶系。

其次，就本例之矽酸鹽螢光體之組成與發光特性之關係加以說明。另外，以下之說明，亦為將鎔 (Eu) 濃度 (以 $=\text{Eu}/(\text{Sr}+\text{Ba}+\text{Ca}+\text{Eu})$ 定義之)，設為典型的 2 原子 %，並依 1400°C 之還原環境中之 2 小時的燒成而得的矽酸鹽螢光體之情況者。

圖 32 係顯示鋇 (Ba) 置換量 (a3) 不同的 $(\text{Sr}_{0.98-a3}\text{Ba}_{a3}\text{Eu}_{0.02})_2\text{SiO}_4$ 螢光體的發光光譜圖。圖 33 係顯示包含 5 原子 % 作為置換量且鈣 (Ca) 置換量 (b3) 不同的 $(\text{Ca}_{b3}\text{Sr}_{0.93-b3}\text{Ba}_{0.05}\text{Eu}_{0.02})_2\text{SiO}_4$ 螢光體的發光光譜圖。圖 34 係顯示鈣 (Ca) 置換量 (b3) 不同的 $(\text{Ca}_{b3}\text{Ba}_{0.98-b3}\text{Eu}_{0.02})_2\text{SiO}_4$ 螢光體的發光光譜圖。圖 32 至圖 34 係分別為了參考起見而顯示的示意圖。

圖 35 係顯示鈣 (Ca) 置換量 (b3) 為 19 原子 %，鋇 (Ba) 置換量 (a3) 為 24 原子 % 的 $(\text{Ca}_{0.19}\text{Sr}_{0.55}\text{Ba}_{0.24}\text{Eu}_{0.02})_2\text{SiO}_4$ 螢光體的發光光譜圖。同圖所示之數據，係在實驗之關係上，歸納在波長 254 nm 之紫外線的激勵下所測定的結果。

另外，當比較藍色光之激勵下與波長 254 nm 之紫外線之激勵下的發光光譜時，雖然是局部取樣的評估結果，但是

大致相似。

又，各矽酸鹽螢光體之激勵光光譜雖省略，但是關於本發明之 $(\text{Sr}_{1-a3-b3-x}\text{Ba}_{a3}\text{Ca}_{b3}\text{Eu}_x)_2\text{SiO}_4$ 矽酸鹽螢光體，雖有程度之差，但是在全組成範圍中，至少可在主發光峰值波長為470 nm藍色光的激勵下，以目視檢查來確認可釋放出藍綠色~綠色~黃色~橙色之發光的螢光體，而其主發光峰值波長係在505 nm~598 nm之範圍內。

另外，即使在 $(\text{Sr}_{1-a3-b3-x}\text{Ba}_{a3}\text{Ca}_{b3}\text{Eu}_x)_2\text{SiO}_4$ 矽酸鹽螢光體之中，尤其是在鋇(Sr)之比例較多者中，亦可確認在藍色光之激勵下有比較高的發光效率。

圖36係顯示 $(\text{Sr}_{0.98-a3}\text{Ba}_{a3}\text{Eu}_{0.02})_2\text{SiO}_4$ 螢光體(矽酸鹽螢光體)中之主發光峰值波長之鋇(Ba)置換量(a3)依存性的示意圖。 $(\text{Sr}_{0.98-a3}\text{Ba}_{a3}\text{Eu}_{0.02})_2\text{SiO}_4$ 螢光體中之鋇(Ba)置換量(a3)與主發光峰值波長的關係，亦在圖53中顯示。從該等圖中可知，該矽酸鹽螢光體之鋇(Ba)置換量為0原子%以上且0.3原子%未滿之範圍中，主發光峰值波長就在535~545 nm附近，且該矽酸鹽螢光體所釋放出的發光為綠色；相對於此，至少在鋇(Ba)置換量為0.3原子%以上且24原子%以下之範圍中，主發光峰值波長會在550 nm以上且600 nm以下之黃色領域，且矽酸鹽螢光體所釋放出的發光為黃色系光。另外，當考慮實驗誤差、雜質之影響，例如高溫環境等特殊條件下之特性等時，可推知鋇(Ba)置換量在0原子%以上且30原子%程度以下之範圍中的矽酸鹽螢光體，可釋放出黃色系光。

又，圖 37 係顯示 $(Ca_{b3}Sr_{0.93-b3}Ba_{0.05}Eu_{0.02})_2SiO_4$ 螢光體 (矽酸鹽螢光體) 中之主發光峰值波長之鈣 (Ca) 置換量 (b3) 依存性的示意圖。如同圖所示，至少在鈣 (Ca) 置換量為 0 原子% 以上且 57 原子% 以下之範圍中，該矽酸鹽螢光體之主發光峰值波長會在 550 nm 以上且 600 nm 以下之黃色領域，且鈣 (Ca) 置換量在 70 原子% 程度以下之範圍內的矽酸鹽螢光體所釋放出的發光為黃色系光。另外，當考慮實驗之誤差等時，可推知鈣 (Ca) 置換量在 0 原子% 以上且 80 原子% 程度以下之範圍中的矽酸鹽螢光體 ($(Ca_{b3}Sr_{0.93-b3}Ba_{0.05}Eu_{0.02})_2SiO_4$ 螢光體)，可釋放出黃色系光。

圖 38 係顯示 $(Ca_{b3}Ba_{0.98-b3}Eu_{0.02})_2SiO_4$ 螢光體 (矽酸鹽螢光體) 中之主發光峰值波長之鈣 (Ca) 置換量 (b3) 依存性的示意圖。如同圖所示，遍及於 $(Ca_{b3}Ba_{0.98-b3}Eu_{0.02})_2SiO_4$ 螢光體之全組成範圍上，主發光峰值波長係在 500 nm 以上且 550 nm 未滿之綠色領域，且 $(Ca_{b3}Ba_{0.98-b3}Eu_{0.02})_2SiO_4$ 螢光體所釋放出的發光為綠色系光而非黃色系光。

另外， $(Ca_{0.19}Sr_{0.55}Ba_{0.24}Eu_{0.02})_2SiO_4$ 螢光體之主發光峰值波長，從圖 35 所示之發光光譜中可知，係在 50 nm 以上且 600 nm 以下之黃色領域，且 $(Ca_{0.19}Sr_{0.55}Ba_{0.24}Eu_{0.02})_2SiO_4$ 螢光體所釋放出的發光為黃色系光。

如以上所述，從組成範圍被限定的矽酸鹽螢光體中可獲得黃色系光，而其組成範圍，係在鋇 (Ba) 置換量 (a3) 為 $0 \leq a3 \leq 0.3$ 之範圍，鈣 (Ca) 置換量 (b3) 為 $0 \leq b3 \leq 0.8$ 之範圍。又，較佳者，係鋇 (Ba) 置換量 (a3) 為 $0 < a3 \leq 0.2$ 之範圍，

鈣 (Ca) 置換量 (b3) 為 $0 < b3 \leq 0.7$ 之範圍。另外，從圖 53 中可知，該組成範圍內之矽酸鹽螢光體的結晶構造均為斜方晶系。

圖 39 係為了參考起見而顯示矽 (Si) 之一部分以鍺 (Ge) 置換的 $(\text{Sr}_{0.84}\text{Ba}_{0.14}\text{Eu}_{0.02})_2(\text{Sr}_{0.8}\text{Ge}_{0.2})\text{O}_4$ 螢光體之發光光譜的示意圖。如同圖所示，該螢光體亦為在藍色光之激勵下可發光的螢光體，而其發光強度雖隨著鍺 (Ge) 置換量 ($=\text{Ge}/(\text{Si}+\text{Ge})$) 之增大而大幅降低，但是至少鍺 (Ge) 置換量在 20 原子 %~100 原子 % 之置換範圍中為黃綠色 (主發光峰值波長：約 550 nm)。

其次，說明矽酸鹽螢光體之發光中心濃度 (與 $=\text{Eu}/(\text{Sr}+\text{Ba}+\text{Ca}+\text{Eu})$ ：鎔 (Eu) 濃度同意) 與結晶構造及發光特性之關係。另外，以下之說明，係將組成設為 $(\text{Sr}_{1-x}\text{Eu}_x)_2\text{SiO}_4$ 或 $(\text{Sr}_{0.95-x}\text{Ba}_{0.05}\text{Eu}_x)_2\text{SiO}_4$ ，且依 1400℃ 之還原環境中之 2 小時的燒成而得的矽酸鹽螢光體之情況。

圖 40 係為了參考起見而顯示鎔 (Eu) 濃度 (x) 為各種不同之 $(\text{Sr}_{1-x}\text{Eu}_x)_2\text{SiO}_4$ 螢光體之發光光譜的示意圖。圖 41 係為了參考起見而顯示 $(\text{Sr}_{0.95-x}\text{Ba}_{0.05}\text{Eu}_x)_2\text{SiO}_4$ 螢光體之發光光譜的示意圖。圖 40 及圖 41 之資料，係得到各個波長在 254 nm 之紫外光激勵下所測得的結果者。當就該等螢光體之結晶構造加以簡單說明時，在 X 射線繞射圖案之評估結果中，至少鎔 (Eu) 濃度 (x) 為 $0 \leq x \leq 0.1$ 之範圍內的 $(\text{Sr}_{1-x}\text{Eu}_x)_2\text{SiO}_4$ 螢光體之結晶構造係為單斜晶系。又，至少鎔 (Eu) 濃度 (x) 為 $0 \leq x \leq 0.3$ 之範圍內的 $(\text{Sr}_{0.95-x}\text{Ba}_{0.05})$



$\text{Eu}_x)_2\text{SiO}_4$ 螢光體、至少 $x=0.3$ 之 $(\text{Sr}_{1-x}\text{Eu}_x)_2\text{SiO}_4$ 螢光體的結晶構造係為斜方晶系。

圖 42 係顯示 $(\text{Sr}_{1-x}\text{Eu}_x)_2\text{SiO}_4$ 螢光體、與 $(\text{Sr}_{0.95-x}\text{Ba}_{0.05}\text{Eu}_x)_2\text{SiO}_4$ 螢光體之主發光峰值波長與鎔 (Eu) 濃度依存性的示意圖。如同圖所示，在已說明之矽酸鹽螢光體的結晶構造與發光色之間有相關關係。亦即，具有單斜晶系之結晶構造，且至少鎔 (Eu) 濃度 (x) 在 $0.001 \leq x \leq 0.1$ 之範圍內的 $(\text{Sr}_{1-x}\text{Eu}_x)_2\text{SiO}_4$ 螢光體之主發光峰值波長係在 500 nm 以上且 550 nm 未滿之綠色領域；相對於此，具有斜方晶系之結晶構造，且至少鎔 (Eu) 濃度 (x) 在 $0.001 \leq x \leq 0.3$ 之範圍內的 $(\text{Sr}_{0.95-x}\text{Ba}_{0.05}\text{Eu}_x)_2\text{SiO}_4$ 螢光體、與 $x=0.3$ 之 $(\text{Sr}_{1-x}\text{Eu}_x)_2\text{SiO}_4$ 螢光體之主發光峰值波長，係在 550 nm 以上且 600 nm 以下之黃色領域。

從以上之實驗數據可知，在 254 nm 之紫外線激勵下或上述藍色光激勵下所可知道的黃色系發光，係如上述之說明般只由組成被限定之斜方晶系的矽酸鹽螢光體所釋放出者。

然後，從以上之實驗數據來看，為了發揮發明效果之矽酸鹽螢光體的各元素之適當範圍，係如下所示。

鋇 (Ba)

黃色之波長由於在 550 nm 以上且 600 nm 以下之範圍內，所以依圖 32 可知從該化合物中獲得黃色波長的條件，係鋇 (Ba) 置換量之組成比為 0.0~0.3 之範圍。另外，鋇 (Ba) 置換量在組成比為 0.3 之化合物的實驗結果，雖未顯示於



圖 32 中，但是從組成比為 0.24 之化合物的實驗結果、與組成比 b 為 0.43 之化合物的實驗結果中，可容易推測即使在組成比為 0.3 之化合物中亦可獲得黃色之波長。

又，從圖 36 中可知從該化合物獲得黃色波長的條件，係鋇 (Ba) 置換量為 0~30 原子%。另外，鋇 (Ba) 置換量為 30 原子%之化合物的實驗結果，雖未顯示於圖 36，但是從鋇 (Ba) 置換量為 24 原子%之化合物的實驗結果、與鋇 (Ba) 置換量為 43 原子%之化合物的實驗結果中，可推測即使在鋇 (Ba) 置換量為 30 原子%之化合物中亦可獲得黃色之波長。

鈣 (Ca)

從圖 33 中可知，從該化合物中獲得黃色波長之最適當條件，係鈣 (Ca) 置換量之組成比為 0.0~0.6。另外，Ca 之組成比為 0.7 之化合物的實驗結果雖未被顯示，但是從鈣 (Ca) 置換量之組成比為 0.57 之化合物的實驗結果、與置換量之組成比為 0.76 之化合物的實驗結果中，可推測即使在鈣 (Ca) 置換量之組合比為 0.7 之化合物中亦可獲得黃色之波長。又，雖然利用實驗結果，可推測鈣 (Ca) 置換量之組成比為 0.8 之化合物的發光峰值波長係脫離黃色之波長，但是當考慮亦包含實驗誤差時，就可考量除了鈣 (Ca) 置換量之組成比為 0.0~0.6 之範圍的化合物外，亦包含組成比為 0.7、0.8 之組成比 0.0~0.8 取得黃色之波長用的化合物之 Ca 組成比的條件。

又，依圖 37 可知，從該化合物獲得黃色波長的條件，係鈣 (Ca) 置換量為 0~80 原子%。另外，鈣 (Ca) 置換量為 70 原

子%之實驗結果雖未顯示，但是從鈣(Ca)置換量為57原子%之實驗結果、與鈣(Ca)置換量為76原子%之實驗結果中，可推測即使在鈣(Ca)置換量為70原子%之情況亦可獲得黃色之波長。又，雖然利用實驗結果，可推測鈣(Ca)置換量為80原子%之發光峰值波長係脫離黃色之波長，但是考慮亦包含實驗誤差並涵蓋於最適當值中。

鋇(Sr)

從圖34、圖38中可知，完全不含鋇(Sr)之化合物，不發出黃色光。

結晶構造

從圖42中可知，結晶構造為單斜晶者無論是否與鎔(Eu)置換量有關仍無法獲得黃色，而結晶構造為斜方晶者無論是否與鎔(Eu)置換量有關仍可獲得黃色之波長。

鎔(Eu)

從圖43中可知，雖然結晶構造為斜方晶者，無論是否與鎔(Eu)置換量有關仍可獲得黃色之波長，但是當考慮發光峰值高度時，鎔(Eu)置換量在10%以下較佳。

另外，鎔(Eu)濃度與發光強度(主發光峰值強度(高度))之關係，係如圖43所示。無論在 $(\text{Sr}_{1-x}\text{Eu}_x)_2\text{SiO}_4$ 螢光體、與 $(\text{Sr}_{0.95-x}\text{Ba}_{0.05}\text{Eu}_x)_2\text{SiO}_4$ 螢光體之任一種的情況下，均隨著鎔(Eu)濃度之增加，發光強度會變強，且鎔(Eu)濃度在1~1.5原子%附近變成最大之後，顯示發光強度逐漸降低的相同傾向。在發光強度、發光光譜形狀、色度等的方面較佳的鎔(Eu)濃度(組成比x)，從圖43、圖41及圖53可知，在

0.005 < x ≤ 0.1 之範圍，更佳在 0.01 < x ≤ 0.05 之範圍，最佳在 0.01 < x ≤ 0.02 之範圍。

在此，於先前技術欄中所述之日本專利特開 2001-143869 號公報中有記載綠色螢光體，並述及 $\text{Sr}_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$ 矽酸鹽螢光體與 $(\text{BaSr})_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$ 螢光體。

如使用實驗數據加以說明般，只要在本發明人等所進行實驗下， $\text{Sr}_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$ 矽酸鹽螢光體，係依含微量之鋇 (Ba) 等的雜質，且可具有斜方晶系 (Orthorhombic) 與單斜晶系 (Monoclinic) 之二個結晶相的螢光體，且在常壓室溫之條件下，至少在實用上所用的 Eu^{2+} 發光中心添加量 (=Eu 原子數 / (Sr 原子數 + Eu 原子數) : x)，在 0.01 < x < 0.05 之範圍內，斜方晶 $\text{Sr}_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$ (α' - $\text{Sr}_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$)，係釋放出在波長 560~575 nm 附近具有主發光峰值之黃色系光的黃色系螢光體；而單斜晶 $\text{Sr}_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$ (β - $\text{Sr}_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$)，係釋放出在波長 535~545 nm 附近具有主發光峰值之綠色光的綠色螢光體 (參照圖 42、圖 53)。

另外，鎔 (Eu) 組成比 (=Eu / (Sr + Eu) 原子比例)，在發光強度方面實用之 0.001 以上且 0.3 以下之範圍 (即 0.1 原子 % 以上且 30 原子 % 以下之範圍)，尤其是在 0.003 以上且 0.03 以下之範圍內，依發明人等可知主發光峰值波長幾乎不會變化。因而，在日本專利特開 2001-143869 號公報中所記載之 $\text{Sr}_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$ 綠色螢光體，可當作單斜晶 $\text{Sr}_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$ 螢光體。

另外， Sr_2SiO_4 化合物之結晶構造，依含有少量之 Ba，而



取得斜方晶系與單斜晶系，乃屬已公知者(例如 G. PIEPER et al., Journal of The American Ceramic Society, Vol. 55, No. 12 (1972) pp. 619-622)。又，單斜晶系之 Sr_2SiO_4 化合物的結晶構造，較為人所周知者係在約 383K 之溫度下對斜方晶系進行可逆相變化者(例如，參考 M. Catti et al., Acta Cryst., B39 (1983) pp. 674-679)。

又，對鋇 (Sr) 原子之鋇 (Ba) 雜質原子的含有量 ($\text{Ba}/(\text{Sr}+\text{Ba})$ 原子比例：以後，記為鋇 (Ba) 含有量) 為 1% 程度以上之化合物，即鋇 (Ba) 含有量多於 $(\text{Sr}_{0.99}\text{Ba}_{0.01})_2\text{SiO}_4$: Eu^{2+} 的化合物，係結晶構造成為斜方晶之螢光體，且主發光峰值波長隨著鋇 (Ba) 含有量之增加，而在 575 nm 附近至 505 nm 附近間變化(參照圖 32、圖 36、圖 53)。當考慮實驗中之測定誤差等時，從圖 32、圖 36、圖 53 中可知，在至少以化學式 $(\text{Sr}_{0.98-a_3}\text{Ba}_{a_3}\text{Eu}_{0.02})_2\text{SiO}_4$ 表示之化合物為主體而構成的矽酸鹽螢光體(其中， a_3 滿足 $0 \leq a_3 \leq 0.98$ 之數值)中， $0.1 \leq a_3 \leq 0.3$ 之組成範圍的化學式 $(\text{Sr}_{0.98-a_3}\text{Ba}_{a_3}\text{Eu}_{0.02})_2\text{SiO}_4$ 矽酸鹽螢光體，係在波長 550 nm 以上且 600 nm 以下之範圍內具有主發光峰值的黃色系螢光體，而 $0.3 < a_3 \leq 0.98$ 之組成範圍的矽酸鹽螢光體，係在波長 505 nm 以上且 550 nm 未滿之範圍內具有主發光峰值的綠色系螢光體。

另外，依發明人等之其他實驗可知，鎔 (Eu) 濃度在發光強度方面有用之組成比為 0.001 以上且 0.3 以下之範圍，尤其是在 0.003 以上且 0.03 以下之範圍內，主發光峰值波長幾乎不會變化。因而，上述日本專利特開 2001-143869 號公

報中所記載之 $(\text{BaSr})_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$ 綠色螢光體，可看作至少為
 $0.3 < a_3 \leq 0.98$ 之組成範圍的 $(\text{Sr}_{1-a_3-x}\text{Ba}_{a_3}\text{Eu}_x)_2\text{SiO}_4$ 矽酸鹽
 螢光體(其中， x 滿足 $0.001 \leq x \leq 0.3$ 之數值)。

最後，就具有斜方晶系之結晶構造，並釋放出黃色系發
 光且使鎔(Eu)濃度適當化的矽酸鹽螢光體
 $((\text{Ca}_{0.015}\text{Sr}_{0.92}\text{Ba}_{0.05}\text{Eu}_{0.015})_2\text{SiO}_4$ 螢光體)與YAG系螢光體
 $(\text{Y}_{0.7}\text{Gd}_{0.28}\text{Ce}_{0.02})_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 之發光特性的比較結果加以說
 明。

-YAG系螢光體與矽酸鹽螢光體之亮度特性的比較-

首先，就使用YAG系螢光體之半導體發光元件、與使用
 矽酸鹽螢光體之半導體發光元件的亮度特性差異加以說
 明。

圖54係將就使用YAG系螢光體之半導體發光元件、與使
 用矽酸鹽螢光體之半導體發光元件的亮度特性進行之實
 驗數據作成表而顯示的示意圖。圖54中，係對各取樣，顯
 示主要螢光體材料之種別、其重量%、亮度、全光束、全
 放射束及色度。

圖54中，係顯示YAG系螢光體(取樣D、E)之重量%，可
 以少於矽酸鹽螢光體(其他的取樣)的量獲得黃色系之顏
 色。具體而言，在獲得色度(0.35、0.35)附近之光的情況，
 YAG系螢光體之螢光體重量%為7.4%(取樣D)、9.8%(取樣
 E)；相對於此，例如在使用矽酸鹽螢光體之取樣A、B、C
 方面，成為約50%之螢光體重量%，另一方面，該情況下
 之光束亦沒有降低。從此現象可知，藍色LED所釋放出之

410 nm以上且530 nm以下之範圍、將藍色光轉換成550 nm以上且600 nm以下之範圍的黃色系光之轉換效率，係YAG系螢光體較低於矽酸鹽螢光體。亦即，由於YAG系螢光體之轉換效率較大，所以為了獲得適度強度的黃色光只能在螢光體層中採用少量的螢光體。結果，可推測螢光體粒子較容易偏位存在於母材中。另一方面，在矽酸鹽螢光體之情況，用於半導體發光元件中之螢光體的量會變多，且在半導體發光元件中可形成實質厚度較大的螢光體層。結果，可改善螢光體糊劑之搖變性(thixotropy)(換句話說，搖變性指數在適當範圍)，且不容易偏位存在於螢光體層之母材中，同時可維持均勻分散螢光體粒子而散佈的狀態，並可抑制顏色不均勻的發生。

又，使用取樣F、G、H、I、J、K，並使矽酸鹽螢光體之重量%產生變化，以測定對亮度、色度、全光束、全放射束變化的影響。

圖44係顯示螢光體濃度與亮度之關係的示意圖。圖45係顯示螢光體濃度與全光束之關係的示意圖。圖46係顯示螢光體濃度與全放射束之關係的示意圖。圖47係顯示螢光體濃度與色度(x值)之關係的示意圖。圖44至圖47，係顯示根據圖54之數據而得結果的示意圖；且在各圖中有顯示螢光體為30重量%、40重量%、50重量%之各自情況的各測定值。首先，有螢光體之重量比例越大，亮度、全光束及全放射束就越小的傾向。另一方面，在色度之情況，則傾向於螢光體之重量比例越大，色度(x值)就越大且黃色感會增

加。從該現象來看，可謂螢光體之重量比例，較佳為至少大於30%。更佳為，螢光體之重量比例在30%以上且50%以下之範圍內。

-搖變性賦予劑之添加-

其次，就對半導體發光元件之矽酸鹽螢光體插入超微粉末矽石等之超微粉末的二氧化矽(商品名「氣溶膠」德格薩公司(德國)製)當作搖變性賦予劑(在此，係指具有提高搖變性指數之功能者)的情況之效果加以說明。

圖55係將對半導體發光元件之矽酸鹽螢光體插入超微粉末矽石等之超微粉末的二氧化矽當作搖變性賦予劑的取樣之各種特性作成表而顯示的示意圖。

圖55所示之數據，係使用含30重量%之矽酸鹽螢光體的取樣1、含約30重量%且氣溶膠之濃度為0.57之矽酸鹽螢光體的取樣2、及含約30重量%且氣溶膠之濃度為1.11之矽酸鹽螢光體的取樣3之合計三種類的取樣進行實驗所得結果者。圖55有顯示色度(x、y)在(0.3、0.3)附近之情況各取樣對亮度、全光束、全放射束的結果。從取樣2與取樣3之比較中顯示，氣溶膠之濃度越大不僅亮度就越提高，就連光束、放射束亦會變大。

又，在相對於各取樣之亮度、色度(x值)、全光束、全放射束各自之每一屬性中顯示標準偏差。對應取樣3之全部的標準偏差，在三種取樣中變成最小，而可靠度變得最高。的確，色度之大小有若干差異且為參考，但是取樣1之亮度、光速量及放射束雖較大，但可解釋其標準偏差即

使在取樣之中亦會變成較大的值且可靠度較低者。

從以上之現象可推測，越添加氣溶膠，不僅使亮度、光速量、放射束變得越大，且越提高可靠度。此係因矽酸鹽螢光體糊劑之搖變性會依氣溶膠而變大，且螢光體糊劑之黏度被適度地設定之故。具體而言，在對半導體發光元件插入矽酸鹽螢光體糊劑時，由於可邊保持適度的黏度而邊滑順地灌注，所以矽酸鹽螢光體粒子可較均勻地分散於螢光體糊劑中。在置入發光裝置之腔室內之後，由於黏度會比灌注時更往上提高，所以矽酸鹽螢光體粒子不會下沉，而可維持必較均勻地分散於母材中的狀態。藉此，就可抑制如YAG系螢光體之顏色不均勻現象，並可提高亮度、光速量及可靠度。

- 第三實施形態 -

本實施形態中，係就形成較薄螢光體層之方法加以說明。本實施形態，係如將以化學式 $(\text{Sr}_{1-a1-b1-x}\text{Ba}_{a1}\text{Ca}_{b1}\text{Eu}_x)_2\text{SiO}_4$ ($a1$ 、 $b1$ 、 x ，各在 $0 \leq a1 \leq 0.3$ 、 $0 \leq b1 \leq 0.8$ (更理想為 $0 \leq b1 \leq 0.6$)、 $0 < x < 1$ 之範圍內的數值) 表示，用以釋放出在 550 nm 以上且 600 nm 以下之波長領域中具有發光峰值之光的黃色系螢光體顯示於圖 1、圖 2、圖 3 中的半導體發光元件，藉由使之密集於發光二極體附近，以減薄螢光體層，並藉由減少光透過之厚度以減低光之衰減者。例如，係一種用以形成位於螢光體層之藍色發光元件之光取出面上的部分之實質厚度，設在 50 μm 以上且 1000 μm 以下之範圍內的半導體發光元件之方法。



以下，係就該製造方法的各例加以說明。

- 製造方法之第一例 -

圖 50(a)~(c)係顯示本實施形態之製造方法之第一例中之製程的剖視圖。

首先，在圖 50(a)所示之步驟中，在模子 301 之腔室內，設置基板 303 與搭載於基板 303 上之發光二極體 302 (例如藍色 LED)。然後，將具有透光性之樹脂所構成的母材 310 與含黃色系螢光體之螢光體粒子 311 為主要構成要素的第一螢光體糊劑 307，從容器 305 注入模子 301 內。此時，將螢光體糊劑 307 注入至比發光二極體 302 之上面更高的位置為止。發光二極體 302 之主光取出面，係朝向同圖所示之上方的面。

其次，在圖 50(b)所示之步驟中，從容器 306 將螢光體粒子 311 之濃度薄於第一螢光體糊劑 307 的第二螢光體糊劑 308 注入模子 301 內。

其次，在圖 50(c)所示之步驟中，當使樹脂硬化時，在母材 310 之中，於發光二極體 302 之附近區域，尤其是位於主光取出面之上方的區域上，密集分散螢光體粒子 311，另一方面，形成在遠離光二極體 302 之母材 320 中粗略地分散螢光體粒子 311 的狀態。之後，從模子 301 中取出半導體發光元件。

如以上所述，在母材 310 之中，於發光二極體 302 之至少位於光取出面之上方的區域上密集存在有螢光體粒子 311，而可形成顏色不均勻較少的白色半導體發光元件。

又，藉由將該種半導體發光元件組入圖4至圖6所示之發光裝置內，即可製造顏色不均勻受抑制的白色發光裝置。

- 製造方法之第二例 -

圖51(a)~(c)係顯示本實施形態之製造方法之第二例中的製程之剖視圖。

首先，在圖51(a)所示之步驟中，在模子401之腔室內，設置基板403與搭載於基板403上的發光二極體402(例如藍色LED)。然後，將含黃色系螢光體之螢光體粒子411，撒在模子401內之發光二極體402的附近，尤其是撒在主光取出面上。發光二極體402之主光取出面，係朝向同圖所示之上方的面。

其次，在圖51(b)所示之步驟中，從容器405將以由具有透光性之樹脂所構成的母材410與含黃色系螢光體之少量的螢光體粒子411為主要構成要素的螢光體糊劑408注入模子401內。

其次，在圖51(c)所示之步驟中，當使樹脂硬化時，在母材410之中，於發光二極體402之附近區域，尤其是位於主光取出面之上方的區域上，密集分散螢光體粒子411，另一方面，形成在遠離發光二極體402之部位上粗略地分散螢光體粒子411的狀態。之後，從模子401中取出半導體發光元件。

如以上所述，在母材410之中，於發光二極體402之至少位於光取出面之上方的區域上密集存在有螢光體粒子411，而可形成顏色不均勻較少的白色半導體發光元件。

又，藉由將該種半導體發光元件組入圖4至圖6所示之發光裝置內，即可製造顏色不均勻受抑制的白色發光裝置。

- 製造方法之第三例 -

圖52(a)~(d)係顯示本實施形態之製造方法之第三例中之製程的剖視圖。

首先，在圖52(a)所示之步驟中，在模子501之腔室內，設置基板503與搭載於基板503上之發光二極體502(例如藍色LED)。然後，從容器505將以揮發性溶媒510與含黃色系螢光體之螢光體粒子511為主要構成要素的懸浮液507注入模子501內。此時，係將懸浮液507注入至高於發光二極體502之上面的位置為止。發光二極體502之主光取出面，係朝向同圖所示之上方的面。

其次，在圖52(b)所示之步驟中，利用加熱或低壓使懸浮液507中之揮發性溶媒510蒸發。

其次，在圖52(c)所示之步驟中，從容器506將以由具有透光性之樹脂所構成的母材512與含黃色系螢光體之少量的螢光體粒子511為主要構成要素的螢光體糊劑508注入模子501內。

其次，在圖52(d)所示之步驟中，當使樹脂硬化時，在母材512之中，於發光二極體502之附近區域，尤其是位於主光取出面之上方的區域上，密集分散螢光體粒子511，另一方面，形成在遠離光二極體502之部位上粗略地分散螢光體粒子511的狀態。之後，從模子501中取出半導體發光元件。

如以上所述，在母材410之中，於發光二極體402之至少位於光取出面之上方的區域上密集存在有螢光體粒子411，而可形成顏色不均勻較少的白色半導體發光元件。又，藉由將該種半導體發光元件組入圖4至圖6所示之發光裝置內，即可製造顏色不均勻受抑制的白色發光裝置。

-製造方法之第四例-

作為沉積YAG系螢光體的理由，雖係起因於螢光體與母材之比重差而產生者，但是其他理由可看作是YAG系螢光體帶正電之故。換句話說，當作為母材之樹脂帶相同正電時，一般而言由於兩者互相排斥所以YAG系螢光體會沉積。

另一方面，可看作當考慮以化學式 $(\text{Sr}_{1-a1-b1-x}\text{Ba}_{a1}\text{Ca}_{b1}\text{Eu}_x)_2\text{SiO}_4$ 表示之化合物為主體所構成的矽酸鹽螢光體粒子不對相同樹脂沉積的事實及上述帶電與沉積之關係時，樹脂之帶電特性為正的；相對於此，螢光體粒子之帶電特性為負的；且兩者處於互相吸引的關係，有助於矽酸鹽螢光體粒子以大致均勻地分佈在樹脂內的方式分散者。作為該種帶正電的樹脂有環氧樹脂、及矽樹脂。

以上用作沉積矽酸鹽螢光體的手段，可考慮利用帶正電的氧化物等來塗敷螢光體粒子的方法。

在螢光體之表面上塗敷氧化物、氟化物之方法，例如有以下之方法。首先，在混合攪拌螢光體粒子及包含所需之氧化物或氟化物之塗敷粒子的懸浮液之後，對之吸引過濾。然後，在125℃以上乾燥未被過濾而殘留的殘留物之

後，以 350°C 來燒成。此時，為了提高螢光體粒子與氧化物、氟化物之黏著力，亦可加入少量的樹脂、有機矽烷、水玻璃等。

又，為了塗敷成膜狀亦有利用有機金屬化合物之加水分解的方法。例如，在形成 Al_2O_3 膜的情況，係將螢光體使用做為鋁之醇鹽(alkoxide)的 $\text{Al}(\text{OC}_2\text{H}_5)_3$ ，並將之置入醇溶液中混合攪拌，以在螢光體表面塗敷 Al_2O_3 。

塗敷至螢光體粒子之表面帶正電的氧化物或氟化物之塗敷量，當過少時效果就少，當過多時就會吸收所產生的光，由於會降低亮度故不佳。根據實驗之結果，所得的較佳範圍，相對於螢光體之重量係在 $0.05\% \sim 2.0\%$ 。

如以上所述，在母材之中，於發光二極體之至少位於光取出面之上方的區域上密集存在有螢光體粒子，而可形成顏色不均勻較少的白色半導體發光元件。又，藉由將該種半導體發光元件組入圖4至圖6所示之發光裝置內，即可製造顏色不均勻受抑制的白色發光裝置。

利用第三實施形態之製造方法，即可獲得一種位於螢光體層之藍色發光元件之光取出面上的部分之實質厚度在 $50\text{ }\mu\text{m}$ 以上且 $1000\text{ }\mu\text{m}$ 以下之範圍內的半導體發光元件。

- 其他實施形態 -

在上述各實施形態中，雖係就在半導體發光元件中，作為藍色發光元件之藍色LED為單數的情況加以說明，但是本發明之半導體發光元件並非被限定於該種的實施形態。

圖56係顯示具備複數個藍色LED之半導體發光元件構造

的剖視圖。如同圖所示，該半導體發光元件，係包含有配置於基板604上的複數個藍色LED601；及用以覆蓋各藍色LED601之各主光取出面(在圖56所示之狀態為上面)的螢光體層603。螢光體層603，係包含具有在上述各實施形態中所說明之組成的黃色系螢光體之螢光體粒子602；及分散配置有螢光體粒子602之作為母材的樹脂613。樹脂613之材質，可採用上述各實施形態中所說明者，亦可在基板604上搭載稽納二極體。

利用該構造，即可提高釋放出白色光之半導體發光元件的發光強度，或可依所搭載之藍色LED601的個數來調整發光強度。

又，在關於上述發光裝置之實施形態中，雖係就配置多數個每一個具備藍色LED與螢光體層的半導體發光元件之例子加以說明，但是本發明之發光裝置，並非被限定於該種的實施形態。

圖57係顯示具備多數個藍色LED與單一個螢光體層之發光裝置構造的剖視圖。如同圖所示，該發光裝置，包含有依支撐構件654而支撐的多數個藍色LED651(藍色發光元件)；及配置於各藍色LED651之全面上的單一個螢光體層653。螢光體層653，係包含有二片玻璃基板、填充於二片之間作為母材的樹脂663、及分散配置於樹脂663中的螢光體粒子652，螢光體層653係藉由其周緣部由支撐構件654支撐。而螢光體粒子652，係依具有在上述各實施形態中所說明之組成的黃色系螢光體所構成。樹脂613之材質，係可採用上述各實施形態中所說明者。



當依據圖57所示之構造時，由於亦可對多數個藍色LED651配置一個螢光體層653，所以可刪減製造成本及簡化製程。

產業上之可利用性

本發明之發光裝置及半導體發光元件，係可利用作為各種顯示裝置(例如LED資訊顯示終端、LED交通信號燈、汽車之LED煞車燈或LED方向指示燈等)、或各種照明裝置(LED屋內外照明燈、車內LED燈、LED緊急照明燈、LED表面發光源等)、用於該等顯示裝置的半導體發光元件，尤其是釋放出白色光者。

圖式代表符號說明

- | | |
|---------------------------------------|------------------|
| 1、101、601、651 | 藍色LED(藍色發光半導體晶片) |
| 2、108、116、126、207、311、411、511、602、652 | 黃色系螢光體粒子(螢光體粒子) |
| 3 | YAG系螢光體層 |
| 4、103、303、403、503、604 | 基板(輔助安裝元件) |
| 5 | 導線架 |
| 6 | 杯體 |
| 7 | 密封樹脂 |
| 8、120 | 框體 |
| 9 | YAG系螢光體粒子 |
| 10 | 上部塗敷部 |
| 11 | 半導體發光元件 |
| 12 | 開關 |

(117)



13、310、320、410、512	母材(透光性樹脂)
51、52、112、112c、113、 122、123	外部連接端子(端子)
101a、102a	陽極
101b、102b	陰極
102	稽納二極體
104	電極端子
105、114、124	金線
106	環氧樹脂
107、117、301、401、501	模子
110	台架
111、128	凹部
112a	設置部
112b、121	側部
115、118、125、613、663	樹脂
119、129、603、653	螢光體層
120	基部
130	超音波振動層
131	振動附加機構
141	旋轉軸
200	原料槽
201	噴嘴頭
202	槽室
203	噴嘴
204	幫浦

205	分散噴嘴
206、408、508	螢光體糊劑
302、402、502	發光二極體
305、306、405、505、506	容器
307	第一螢光體糊劑
308	第二螢光體糊劑
507	懸浮液
510	揮發性溶媒
654	支撐構件
CA	腔室
S	金屬球

肆、中文發明摘要

本發明之半導體發光元件，係一種具備有基板4、搭載於基板4上之藍色LED1及螢光體層3的晶片型半導體發光元件，其中螢光體層3係由用以密封藍色LED1之周圍的黃色系螢光體粒子2及母材13(具透光性之樹脂)之混合體所構成。黃色系螢光體粒子2，係吸收藍色LED1所釋放出的藍色光並釋放出在550 nm以上且600 nm以下之波長領域中具有發光峰值的螢光者；其係以化學式 $(\text{Sr}_{1-a1-b1-x}\text{Ba}_{a1}\text{Ca}_{b1}\text{Eu}_x)_2\text{SiO}_4$ ($0 \leq a1 \leq 0.3$, $0 \leq b1 \leq 0.8$, $0 < x < 1$)所示之化合物為主體所構成的矽酸鹽螢光體。該矽酸鹽螢光體之粒子，由於可容易地大致均勻地分散在樹脂中，所以可獲得良好的白色光。

伍、日文發明摘要

半導体発光デバイスは、基板4と、基板4の上に搭載された青色LED1と、青色LED1の周囲を封止する、黄色系蛍光体粒子2及び母材13（透光性樹脂）の混合体からなる蛍光体層3とを備えたチップ型の半導体発光デバイスである。黄色系蛍光体粒子2は、青色LED1が放つ青色光を吸収して550 nm以上で600 nm以下の波長領域に発光ピークを有する蛍光を放つものであって、化学式 $(\text{Sr}_{1-a1-b1-x}\text{Ba}_{a1}\text{Ca}_{b1}\text{Eu}_x)_2\text{SiO}_4$ ($0 \leq a1 \leq 0.3$, $0 \leq b1 \leq 0.8$, $0 < x < 1$)で表される化合物を主体にしてなる珪酸塩蛍光体である。この珪酸塩蛍光体の粒子は、樹脂中にほぼ均一に分散しやすいので、良好な白色光が得られる。

陸、(一)、本案指定代表圖為:第1圖

(二)、本代表圖之元件代表符號簡單說明:

- 1 藍色 LED
- 2 黃色系螢光體粒子
- 3 螢光體層
- 4 基板
- 13 母材

柒、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式:

拾壹、圖式

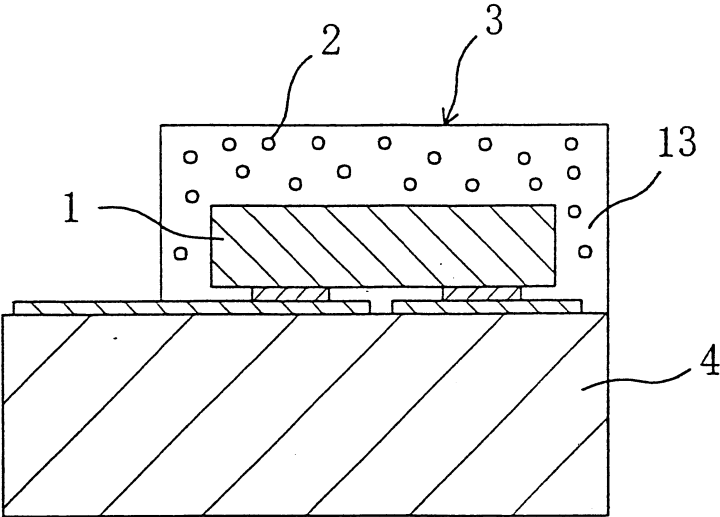


圖 1

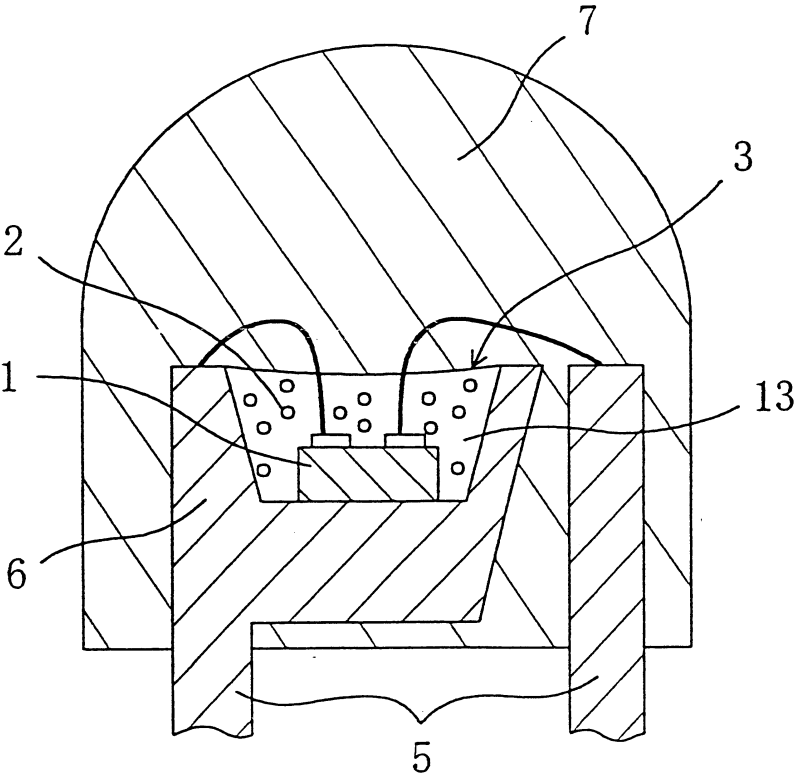


圖 2

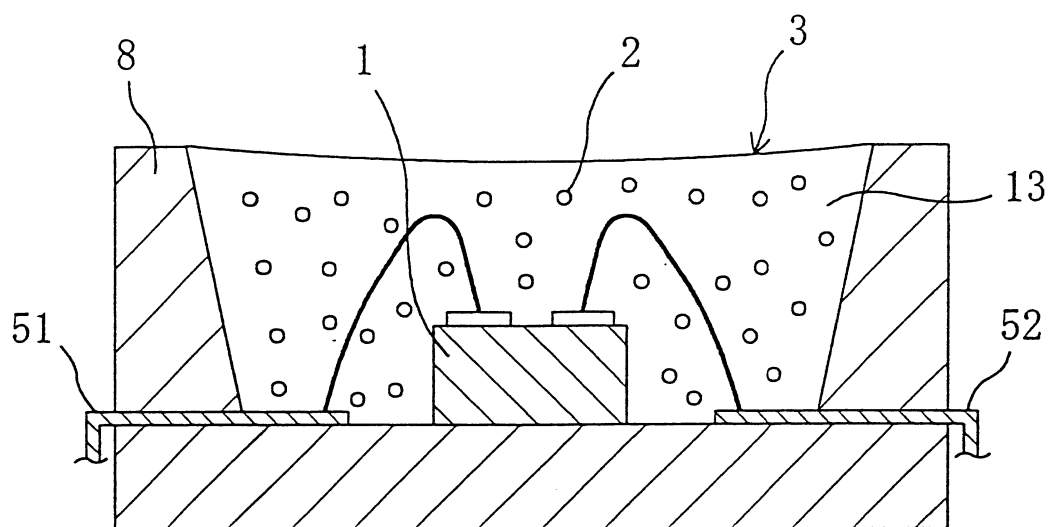


圖 3

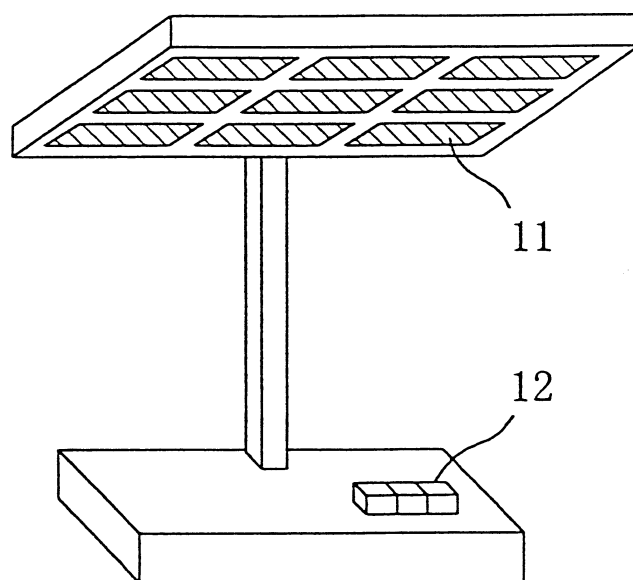


圖 4

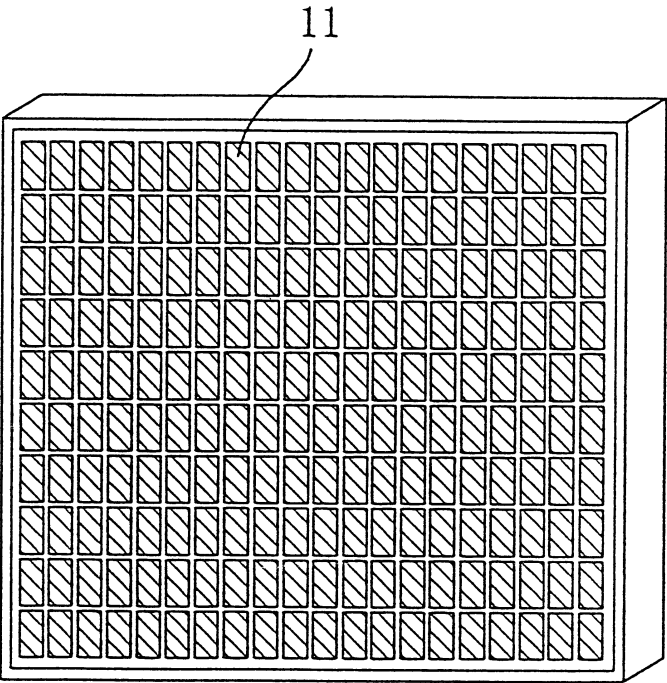


圖 5

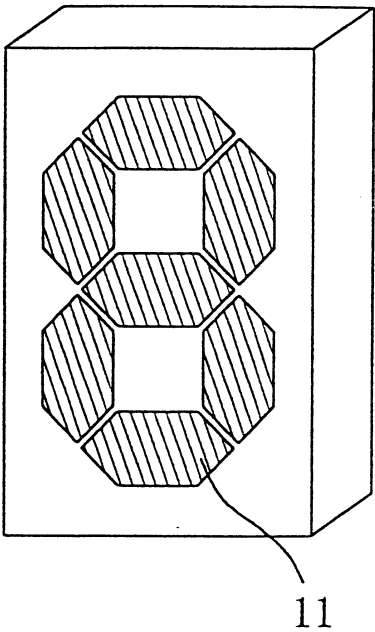


圖 6

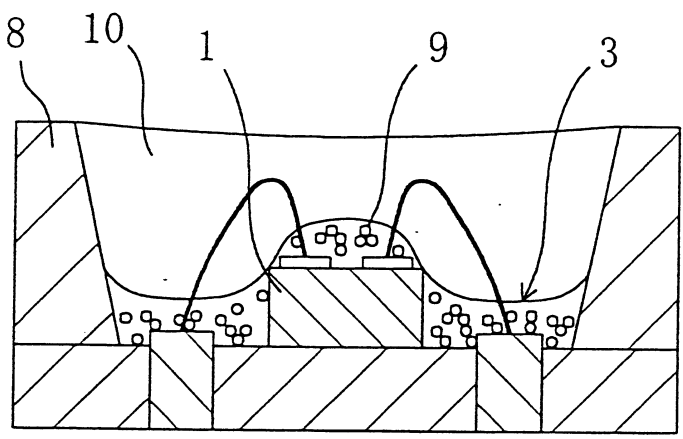


圖 7

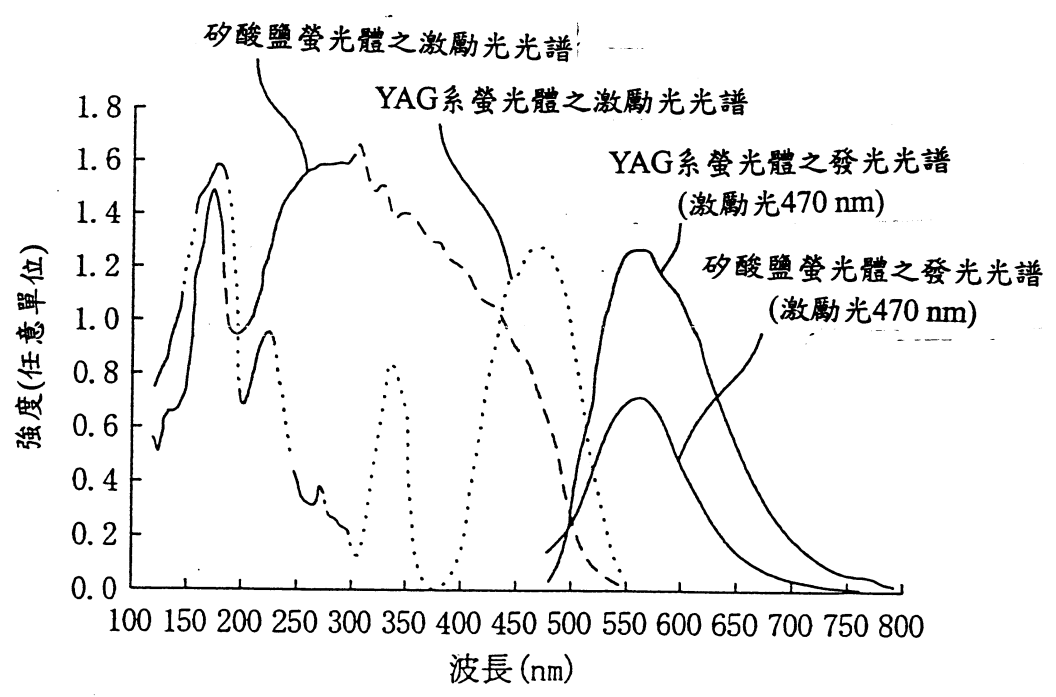


圖 8

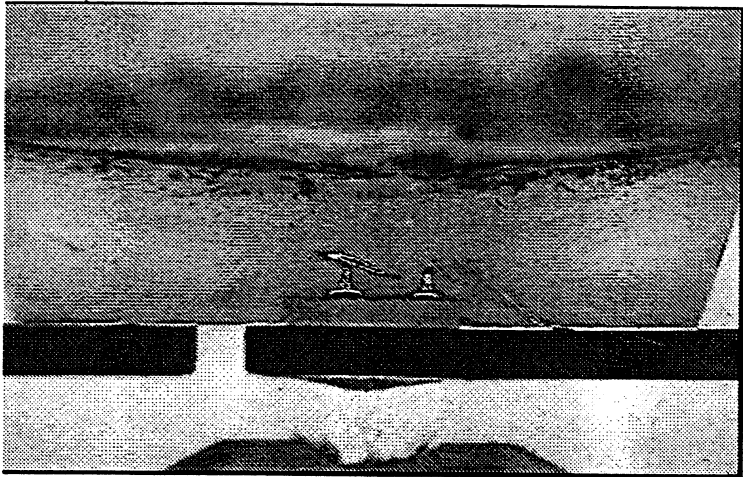


圖 9

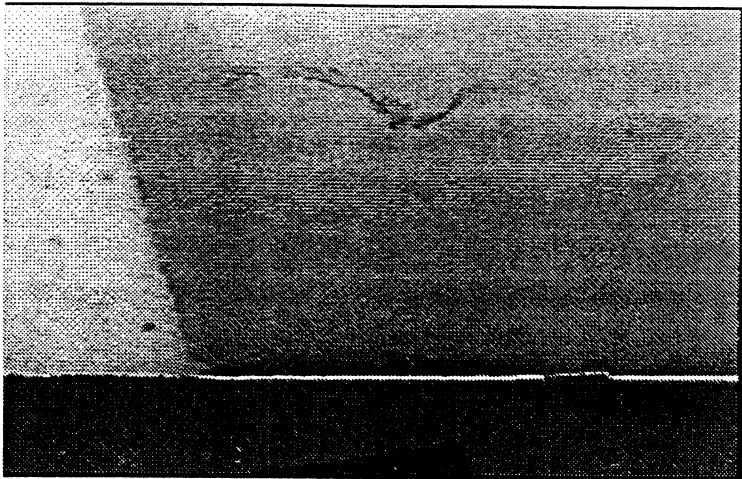


圖 10

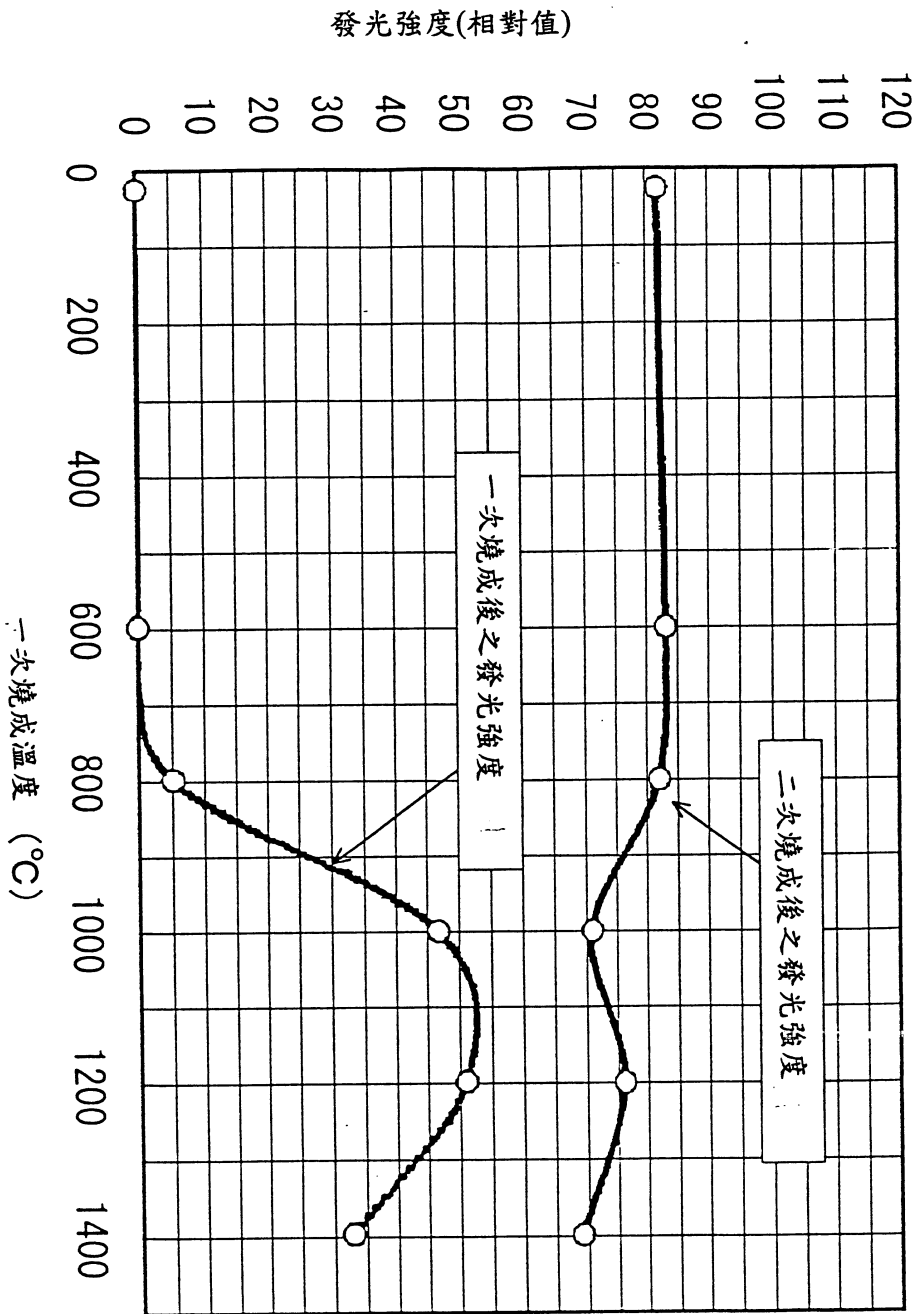


圖 11

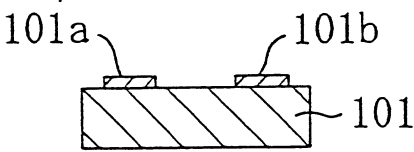


圖 12(a)

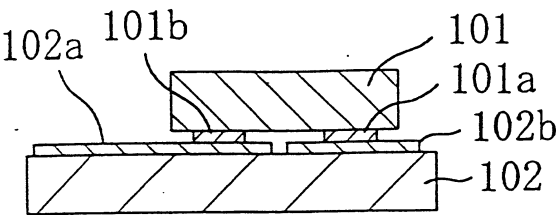


圖 12(b)

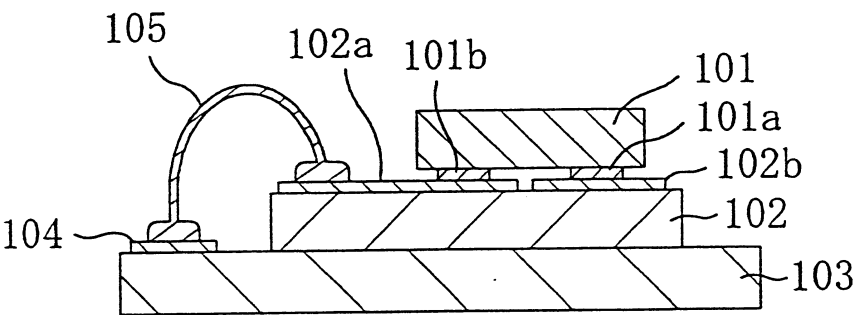


圖 12(c)

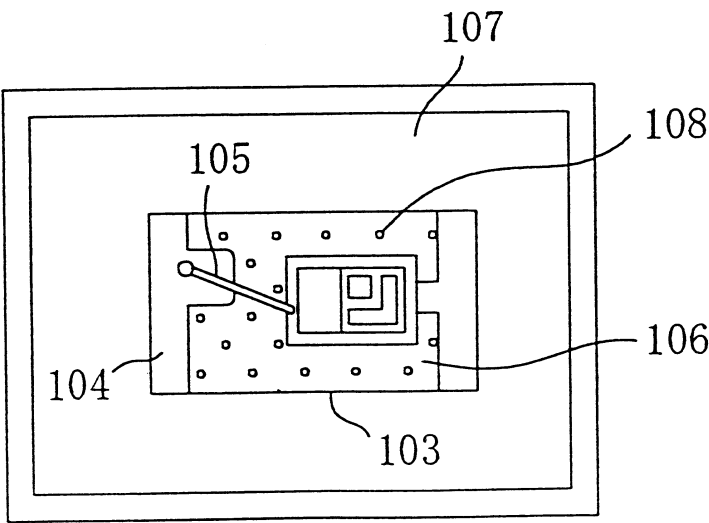


圖 12(d)

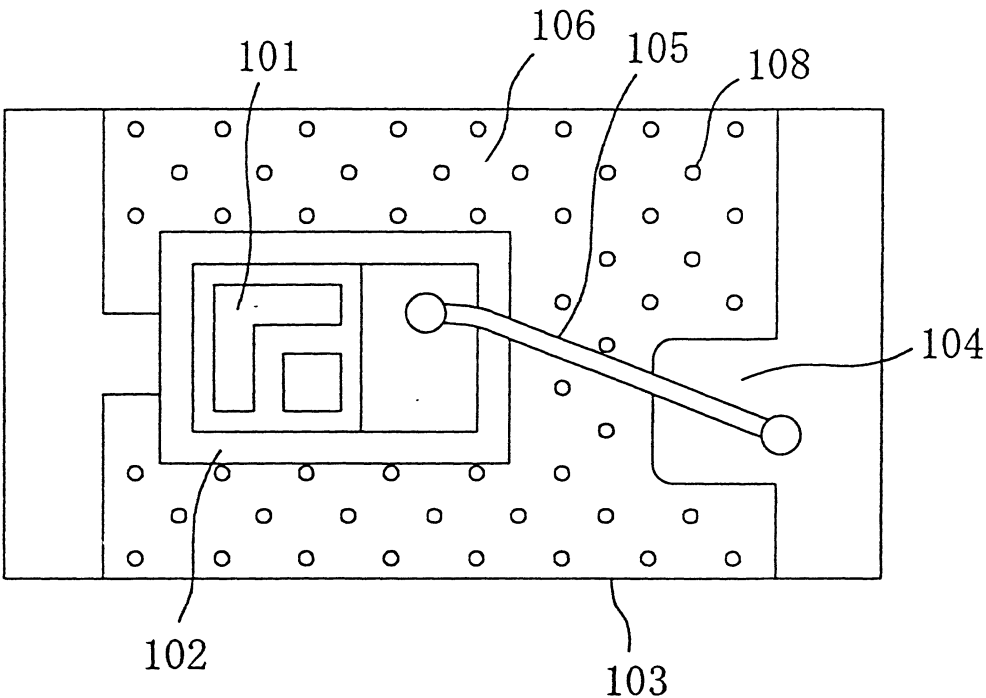


圖 13(a)

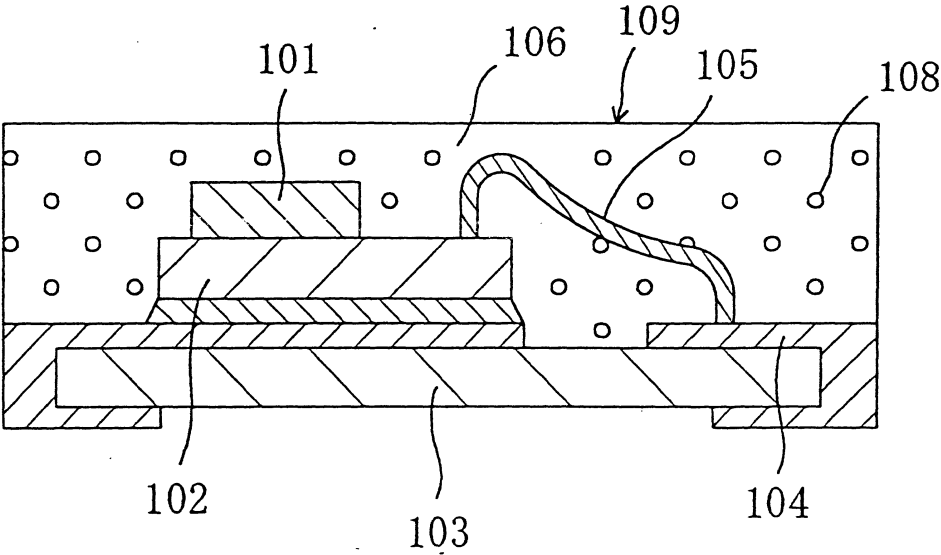


圖 13(b)

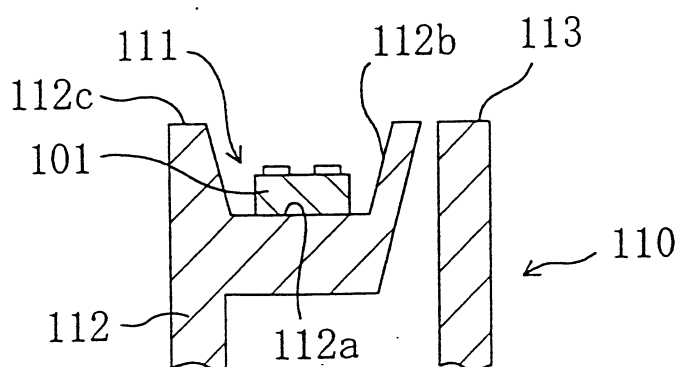


圖 14(a)

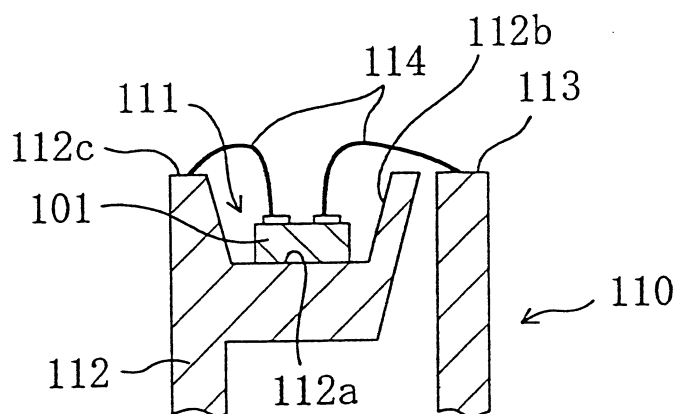


圖 14(b)

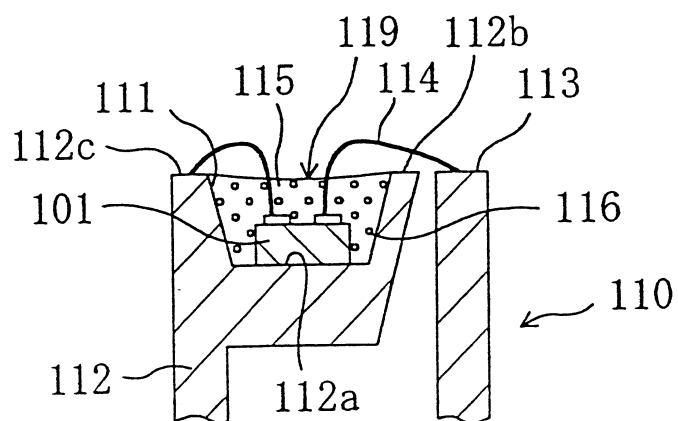


圖 14(c)

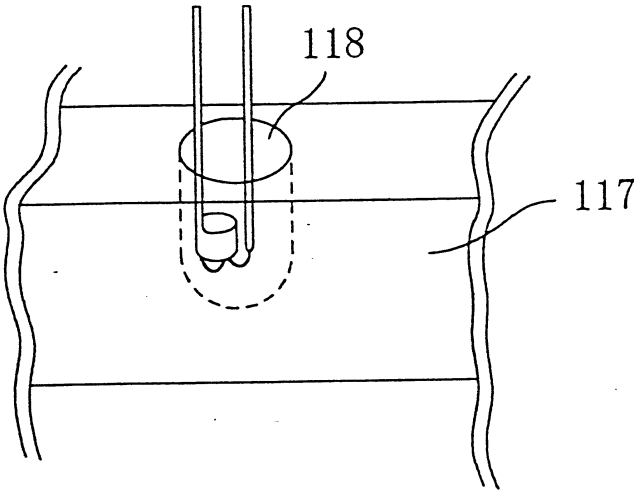


圖 15(a)

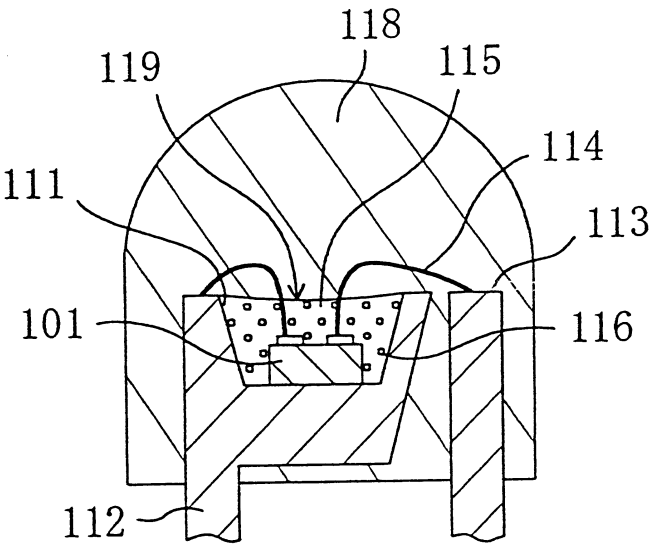


圖 15(b)

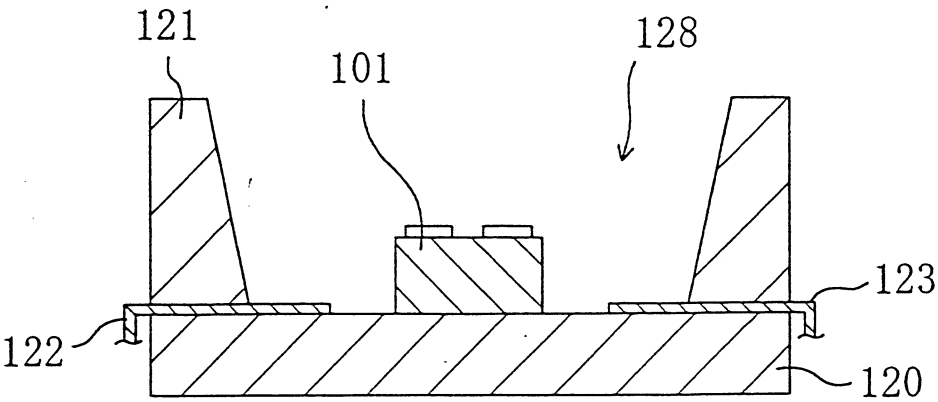


圖 16(a)

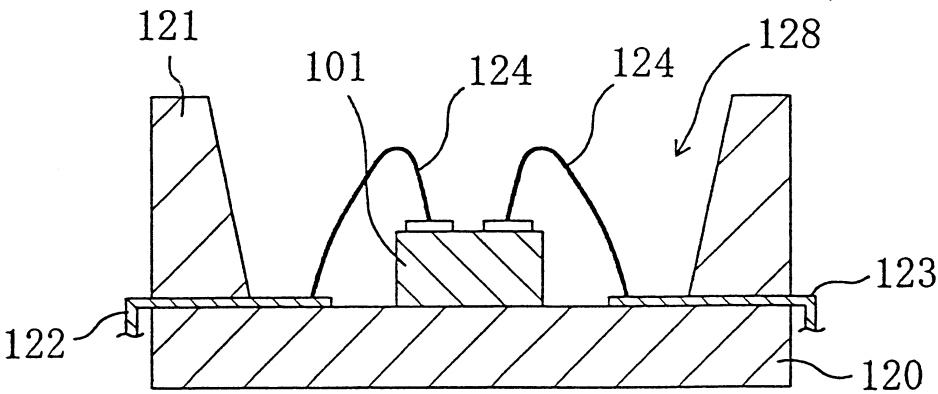


圖 16(b)

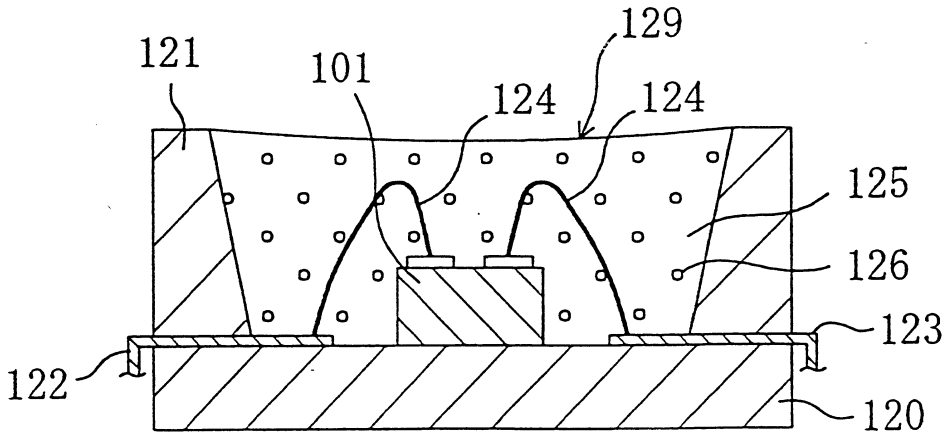


圖 16(c)

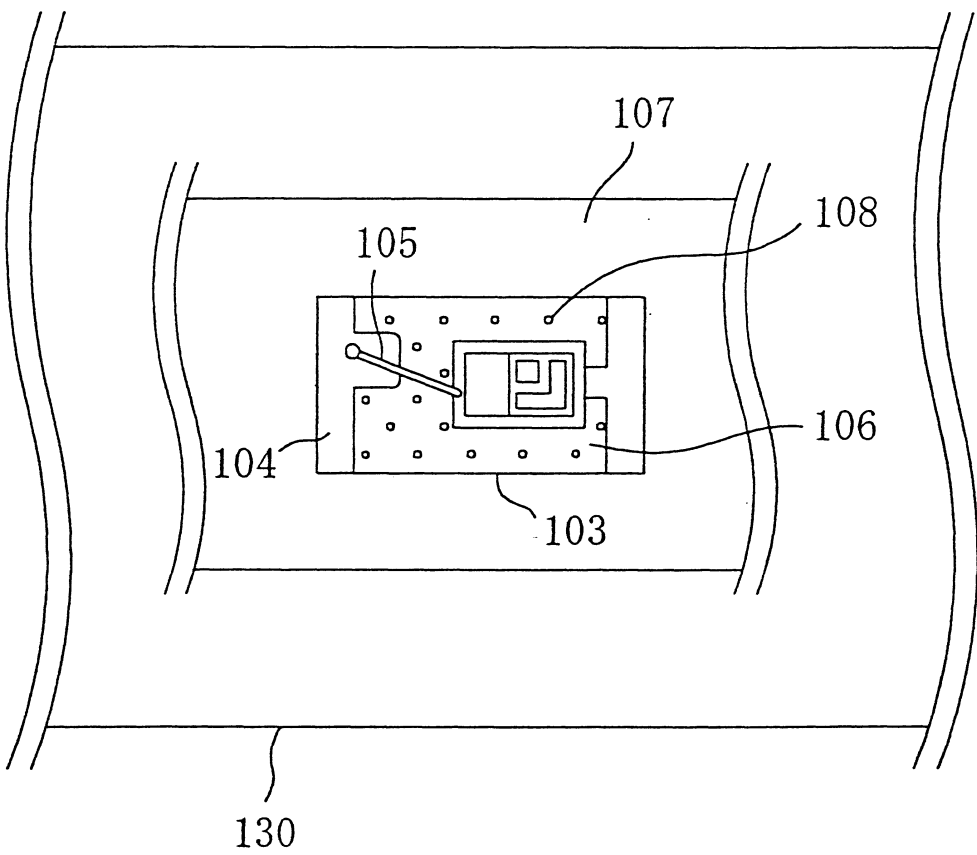


圖 17(a)

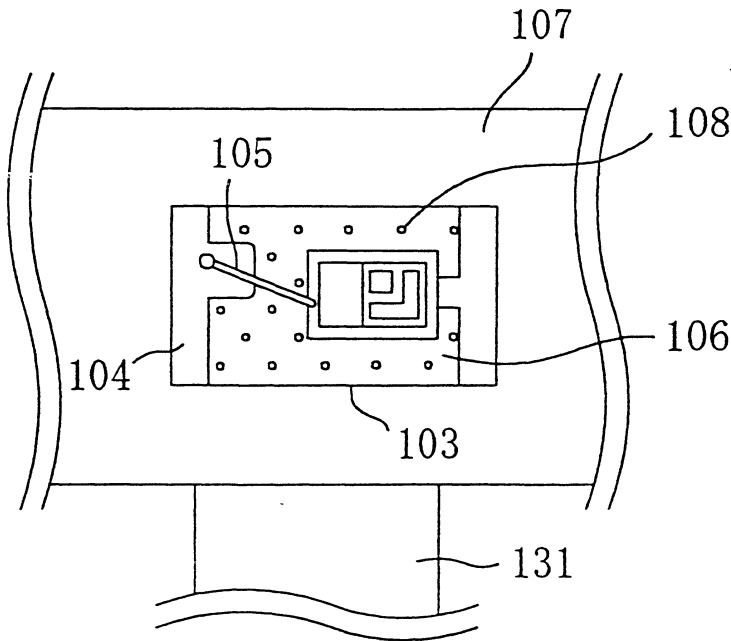


圖 17(b)

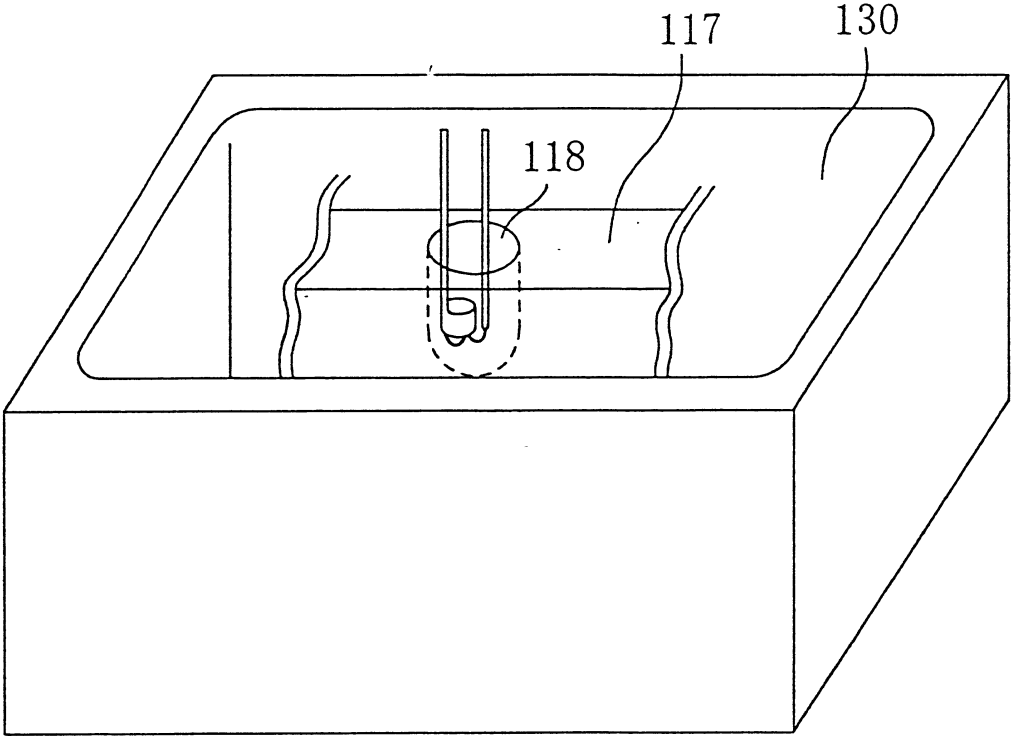


圖 18(a)

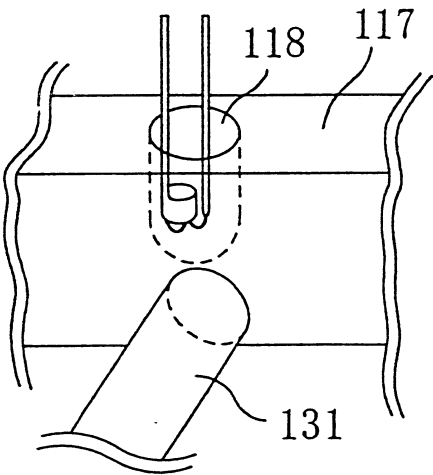


圖 18(b)

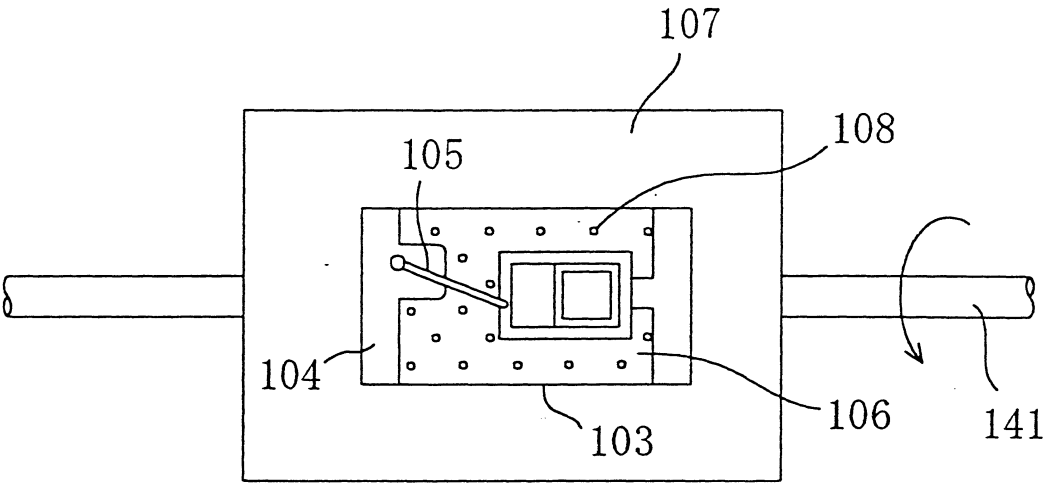


圖 19(a)

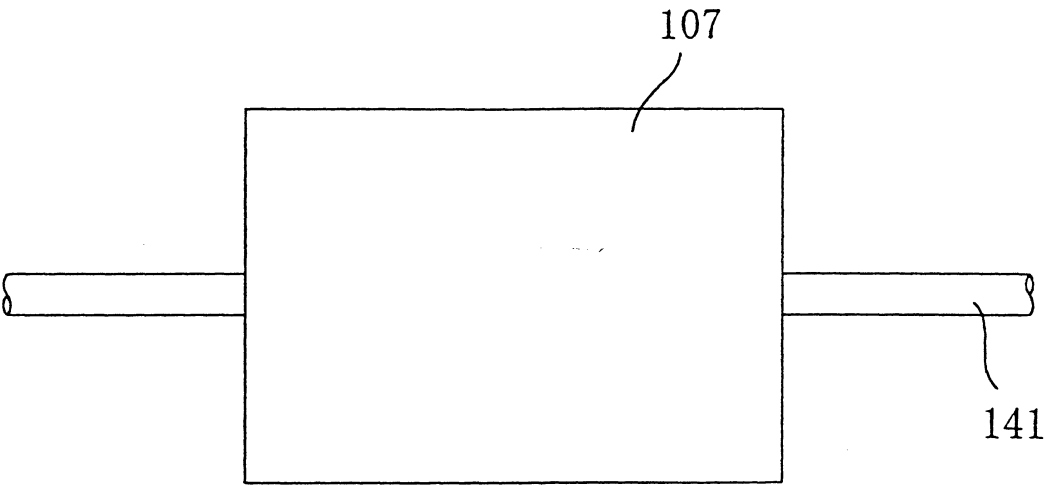


圖 19(b)

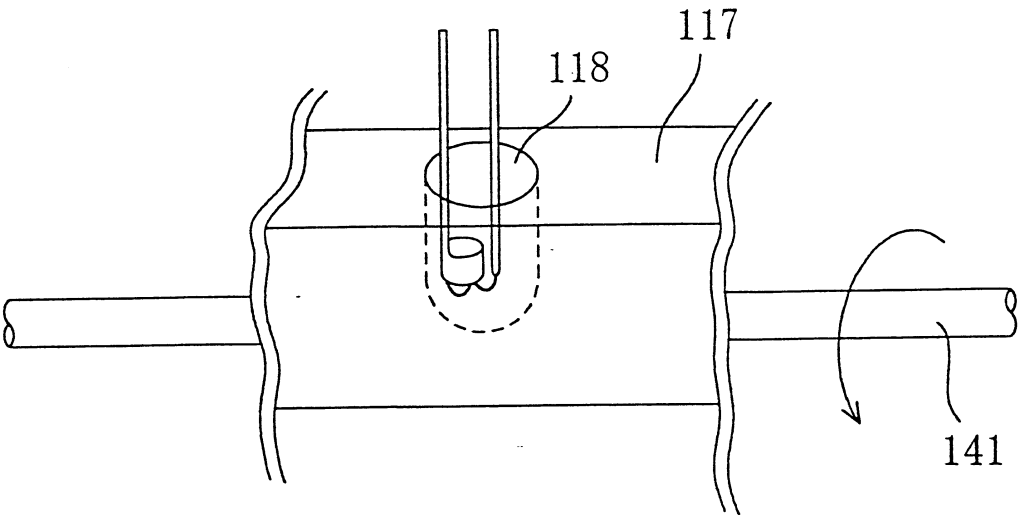


圖 20(a)

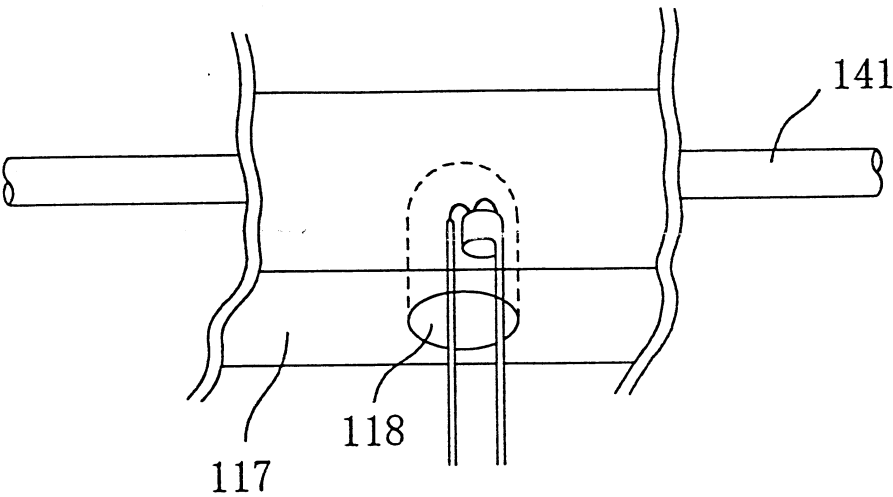


圖 20(b)

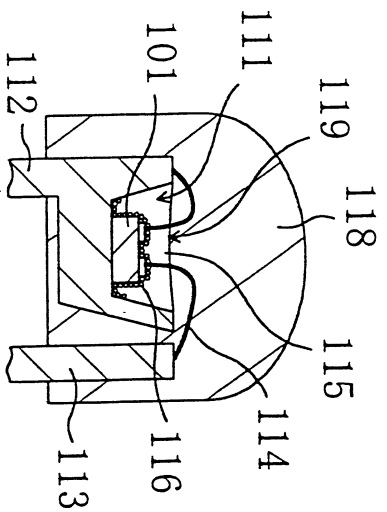


圖 21(a)

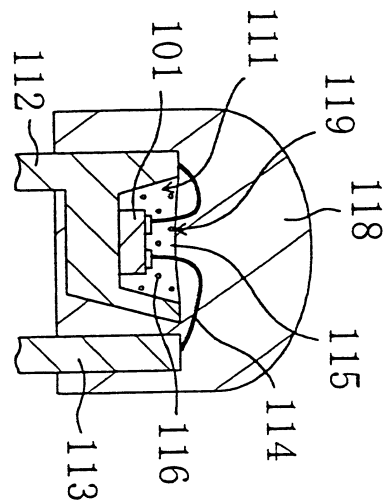


圖 21(c)

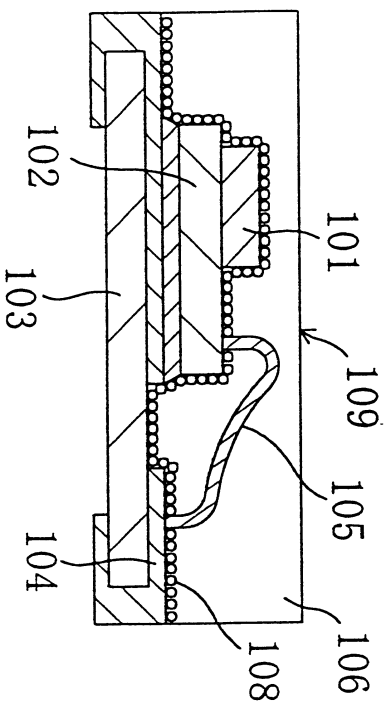


圖 21(b)

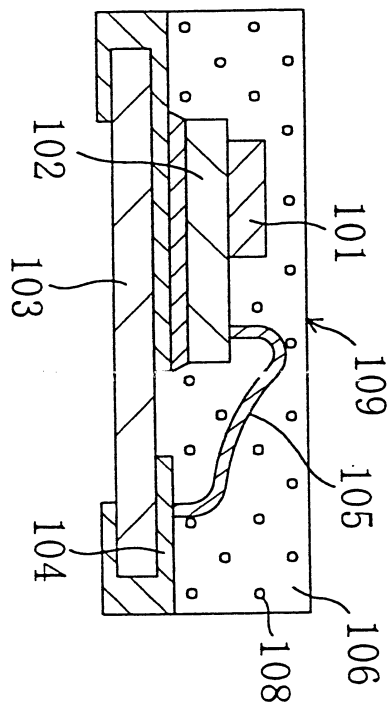


圖 21(d)

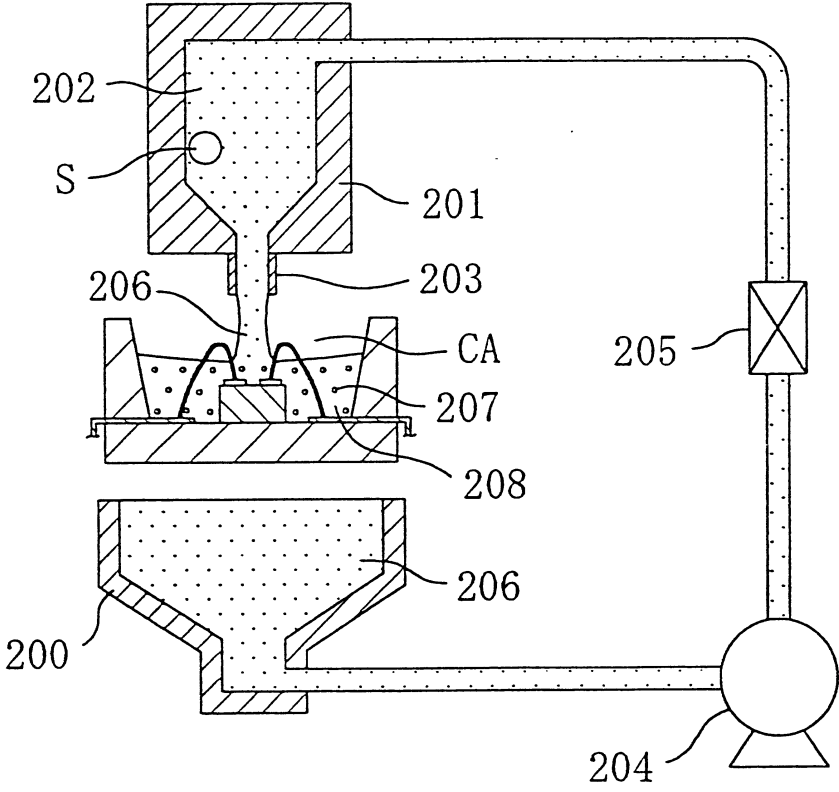


圖 22

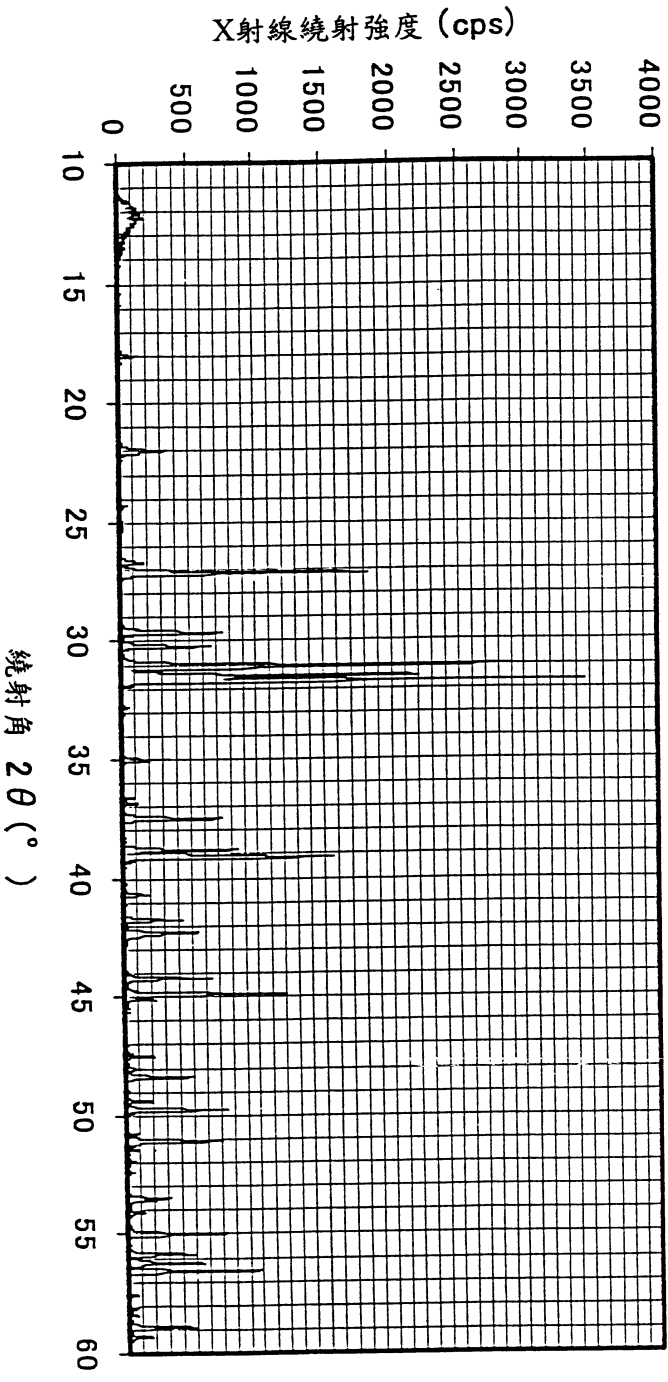


圖 23

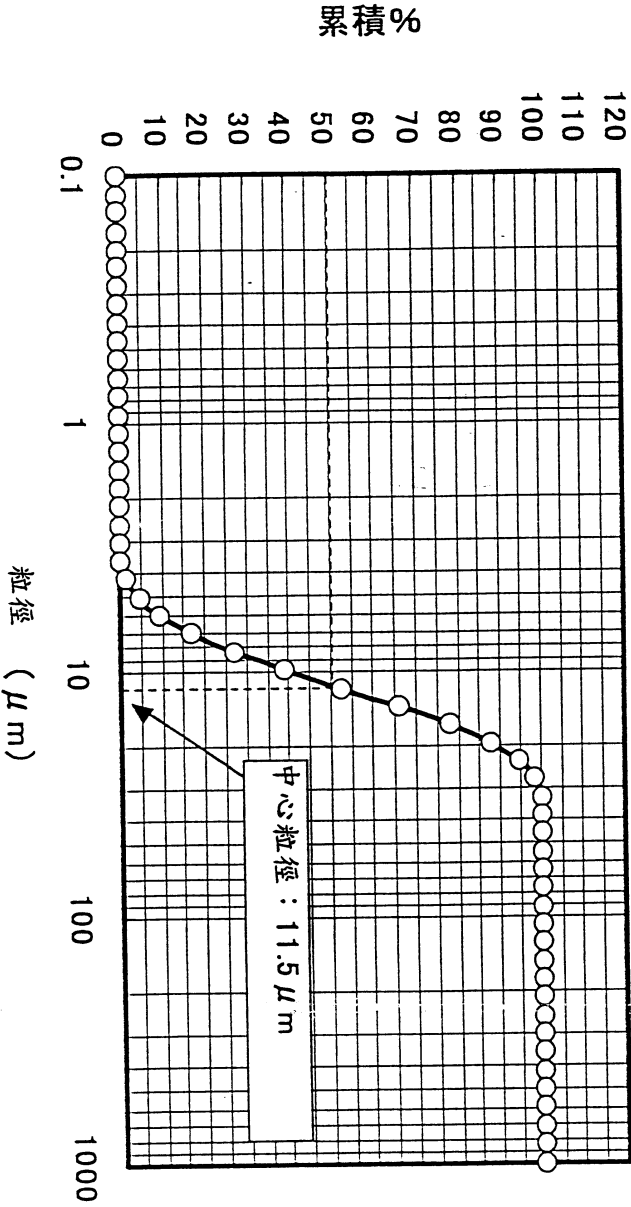


圖 24

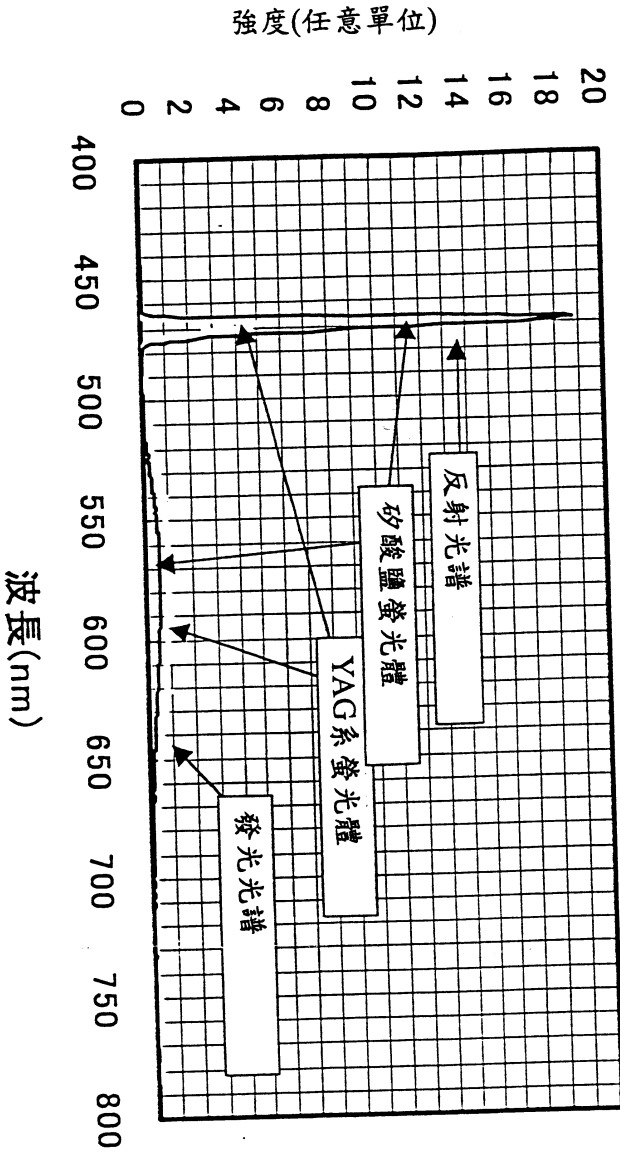


圖 25

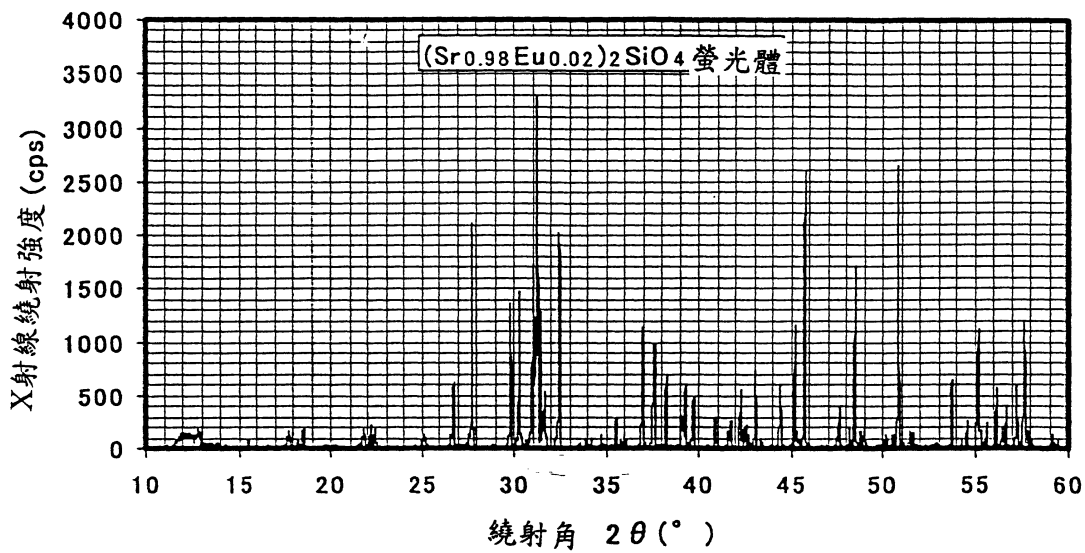


圖 26(a)

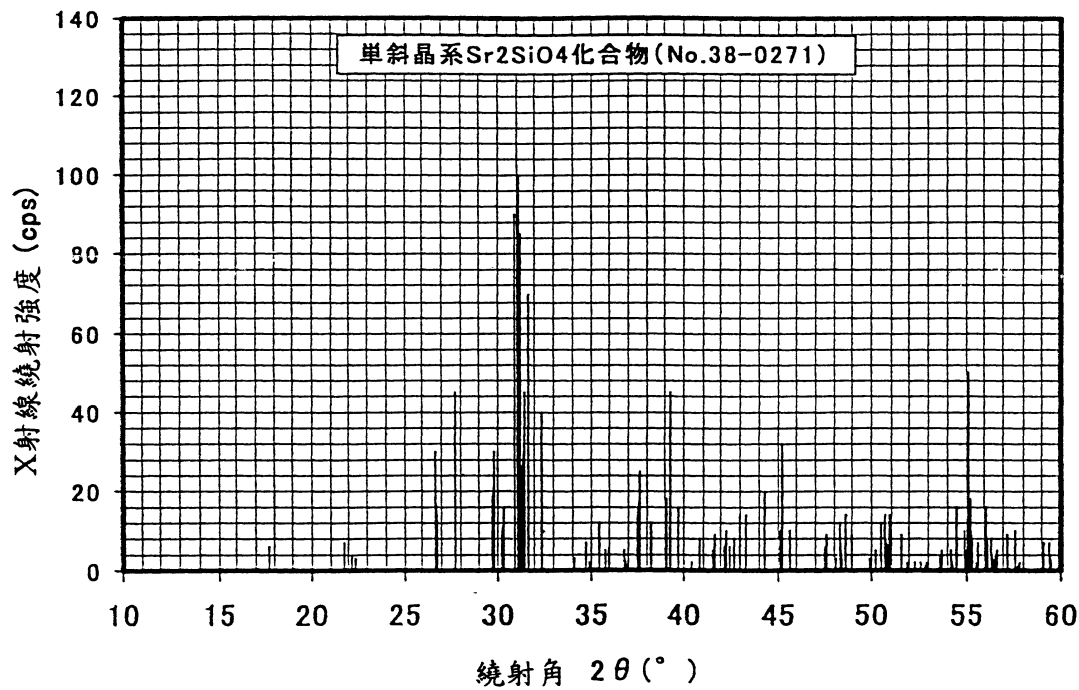


圖 26(b)

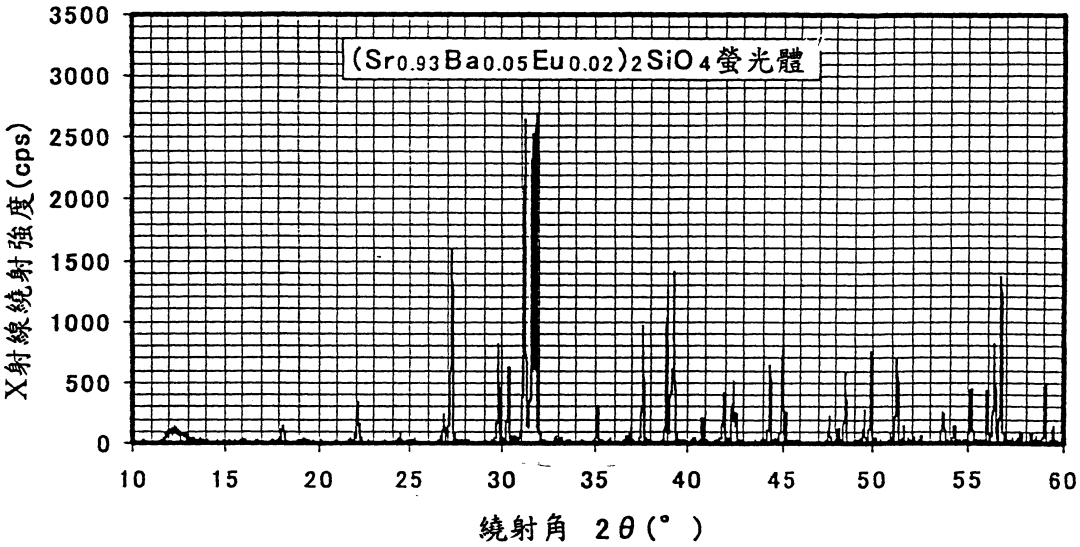


圖 27(a)

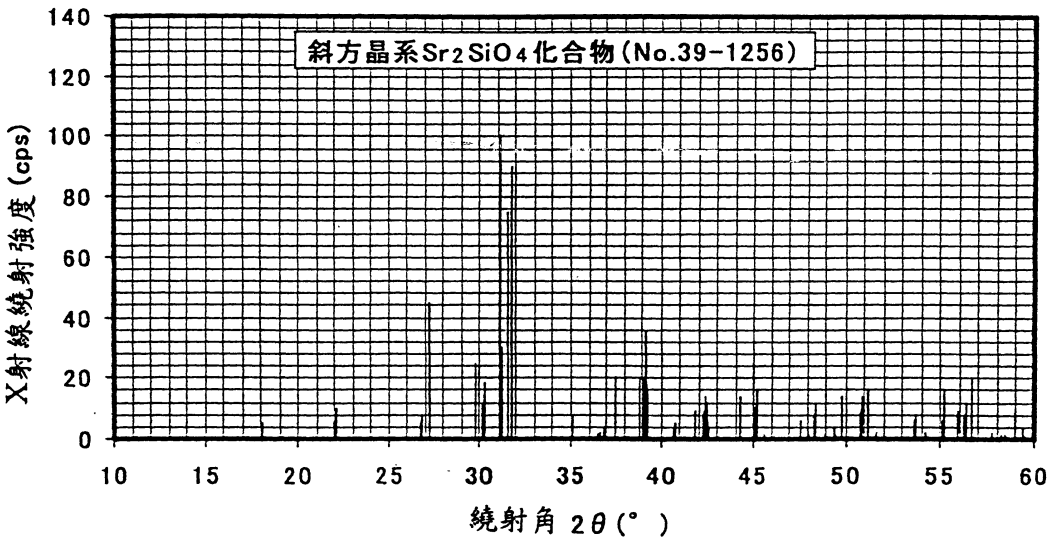


圖 27(b)

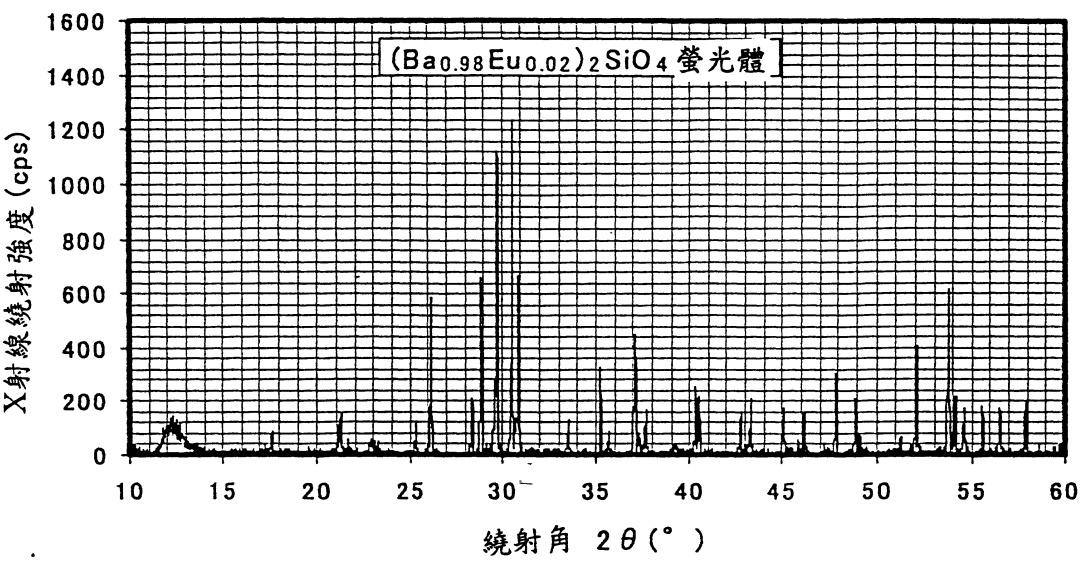


圖 28(a)

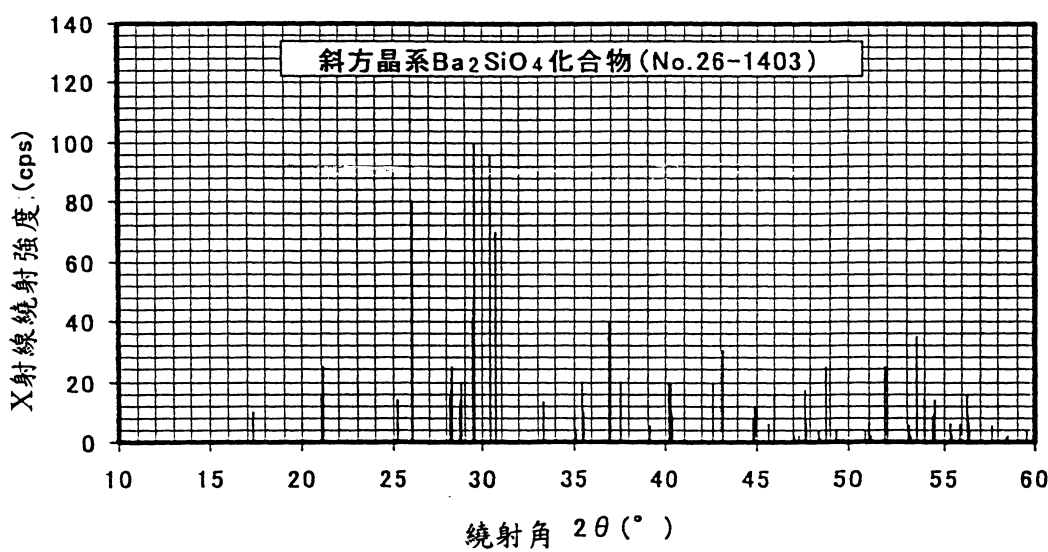


圖 28(b)

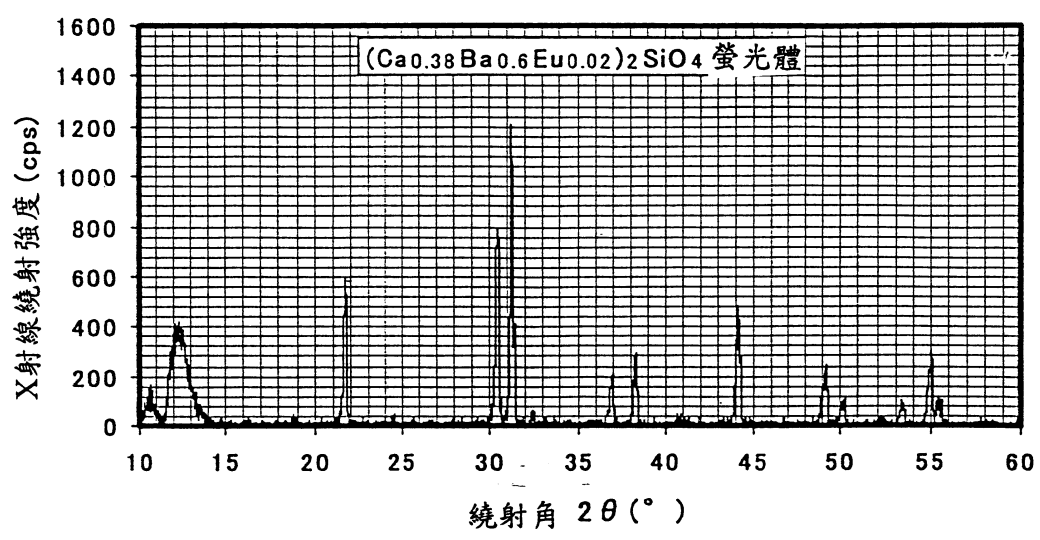


圖 29(a)

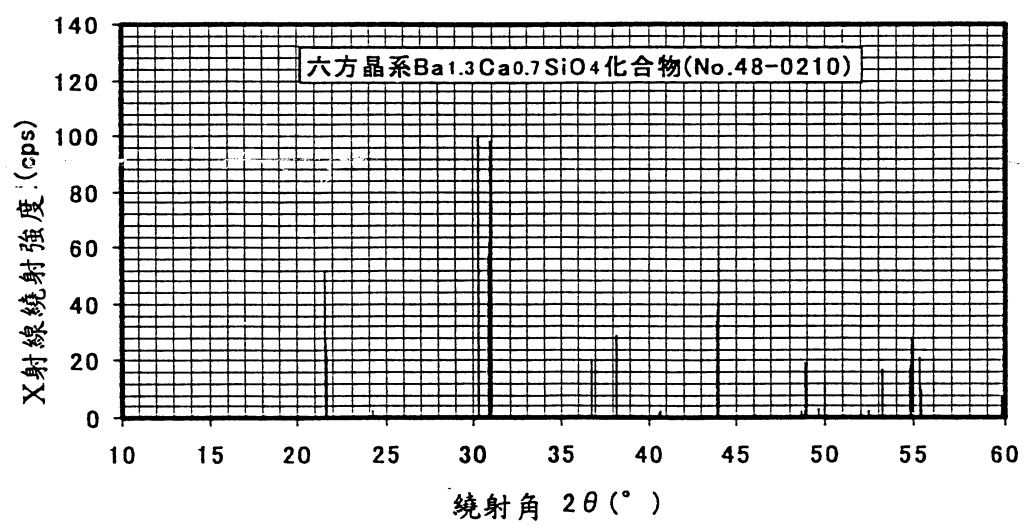


圖 29(b)

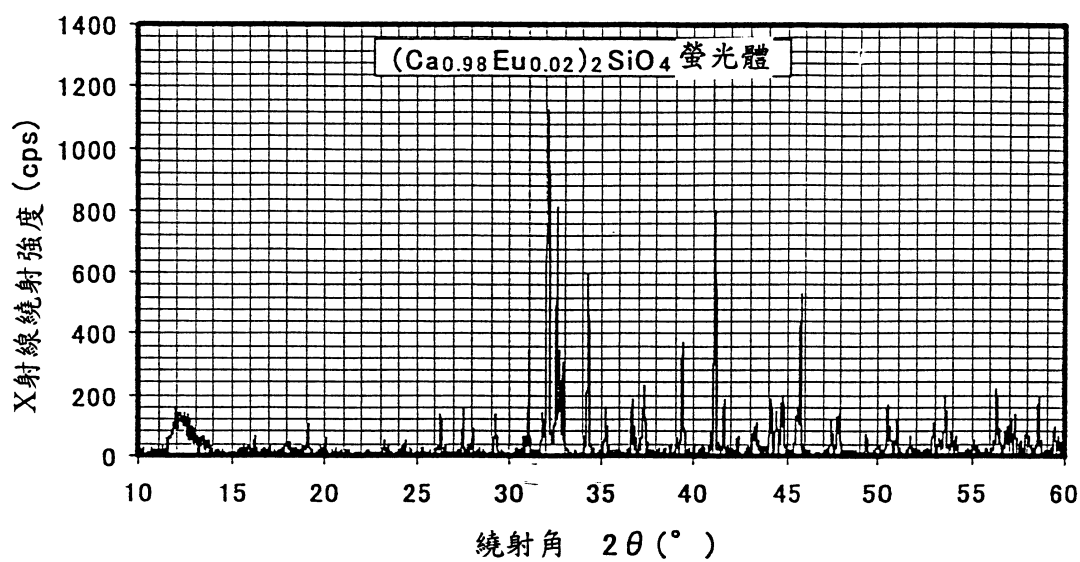


圖 30(a)

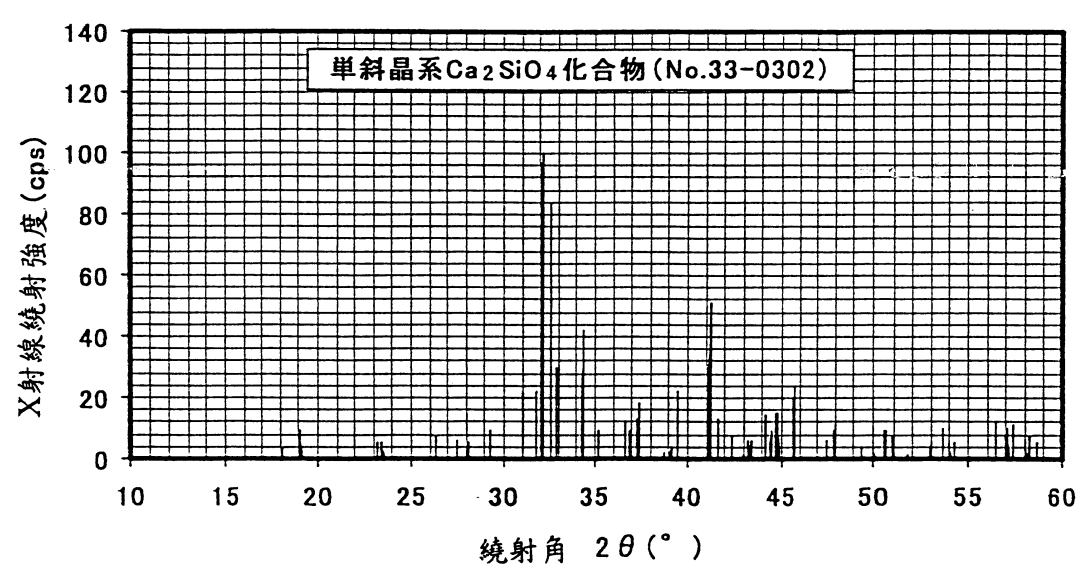


圖 30(b)

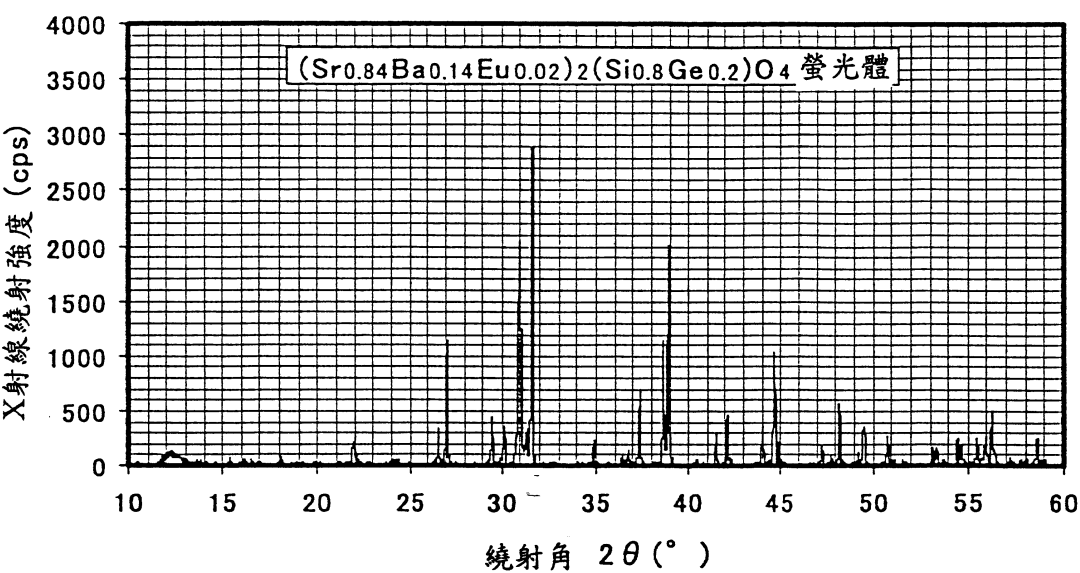


圖 31(a)

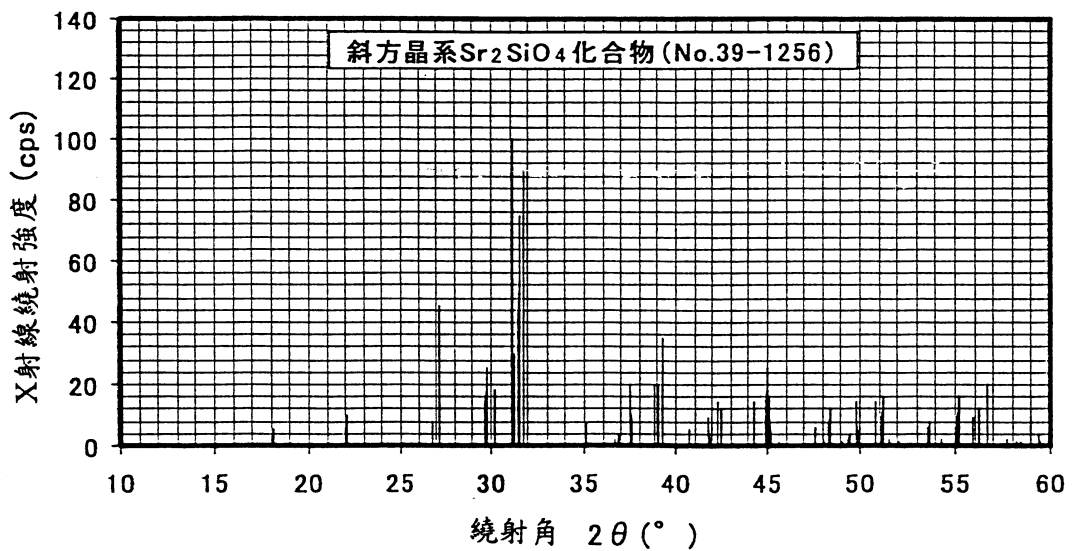


圖 31(b)

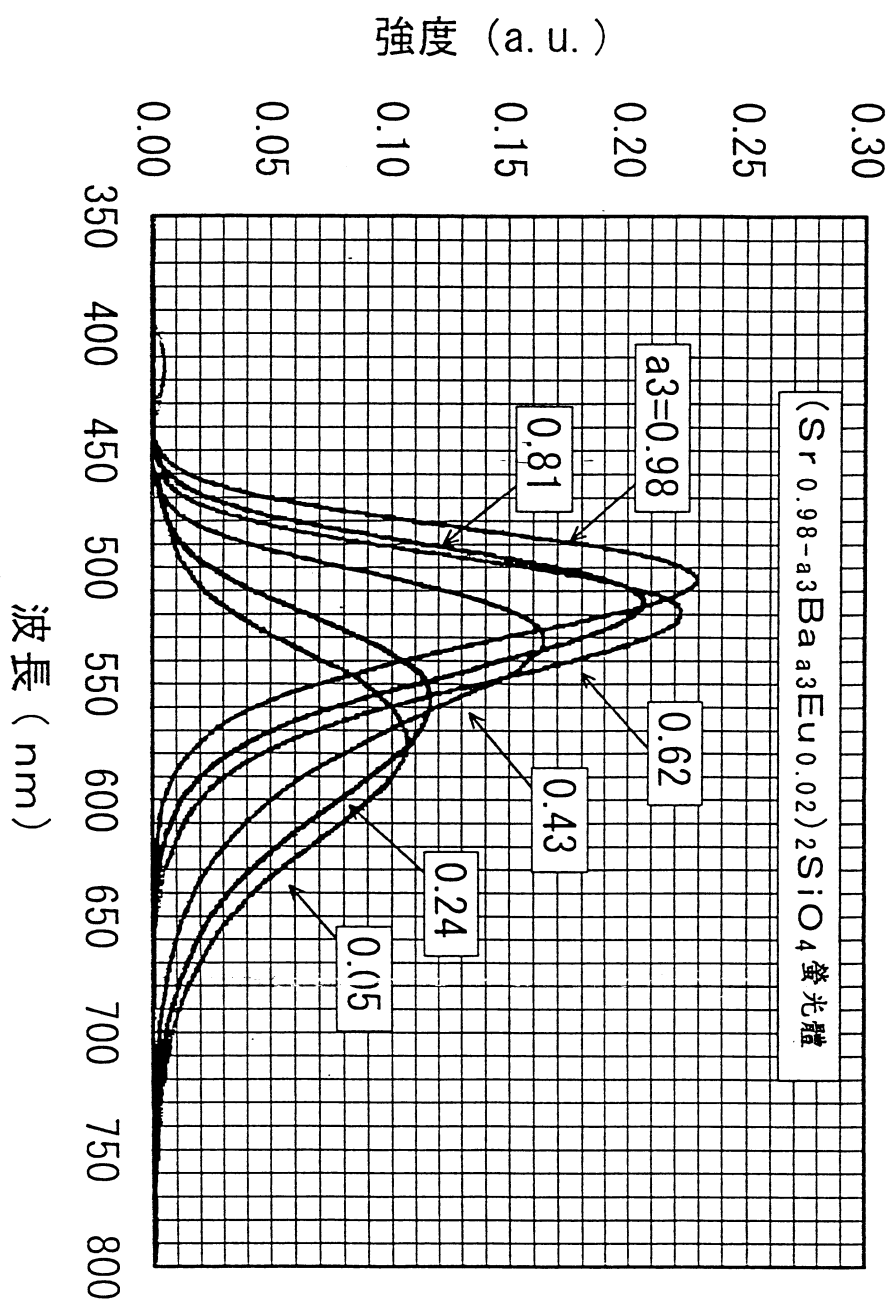


圖 32

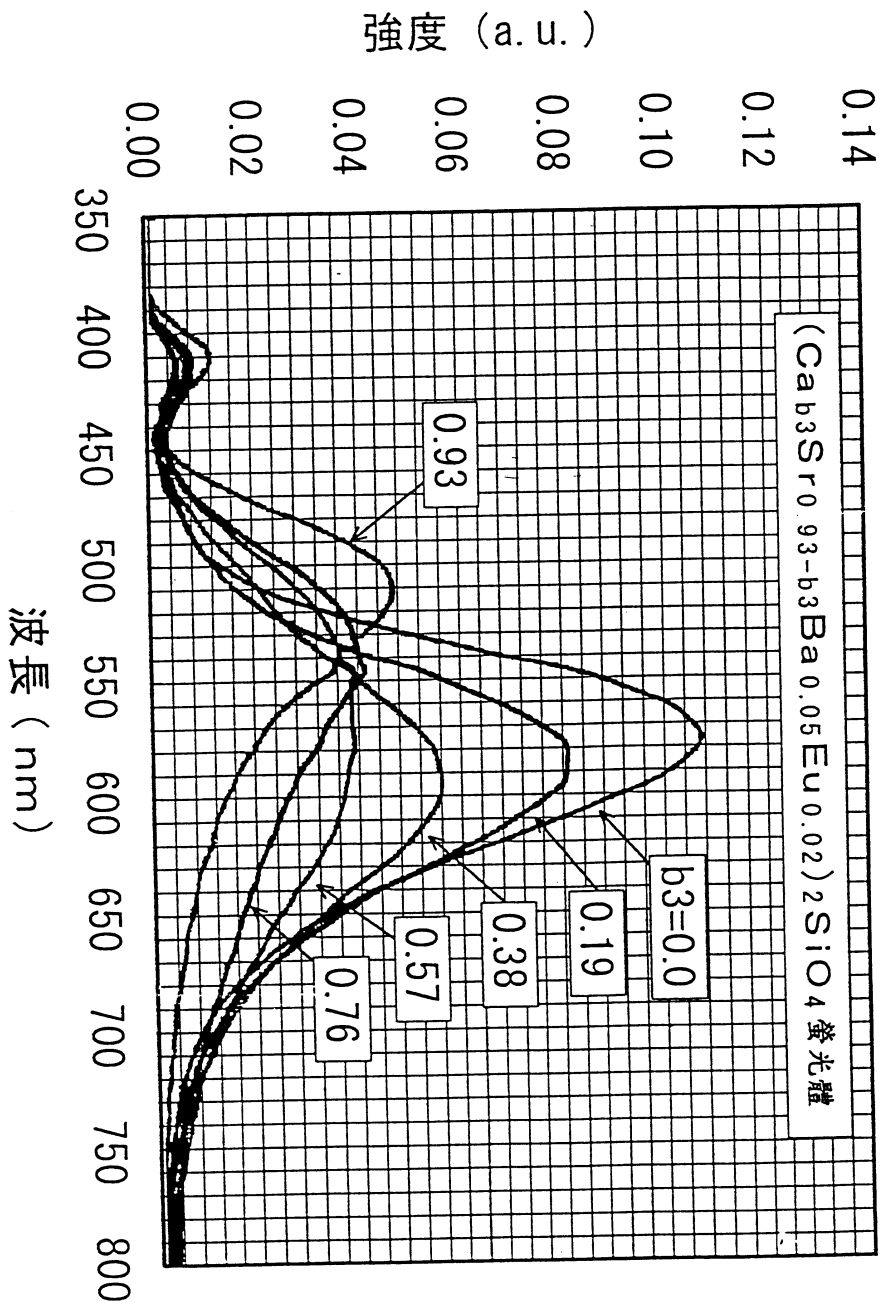


圖 33

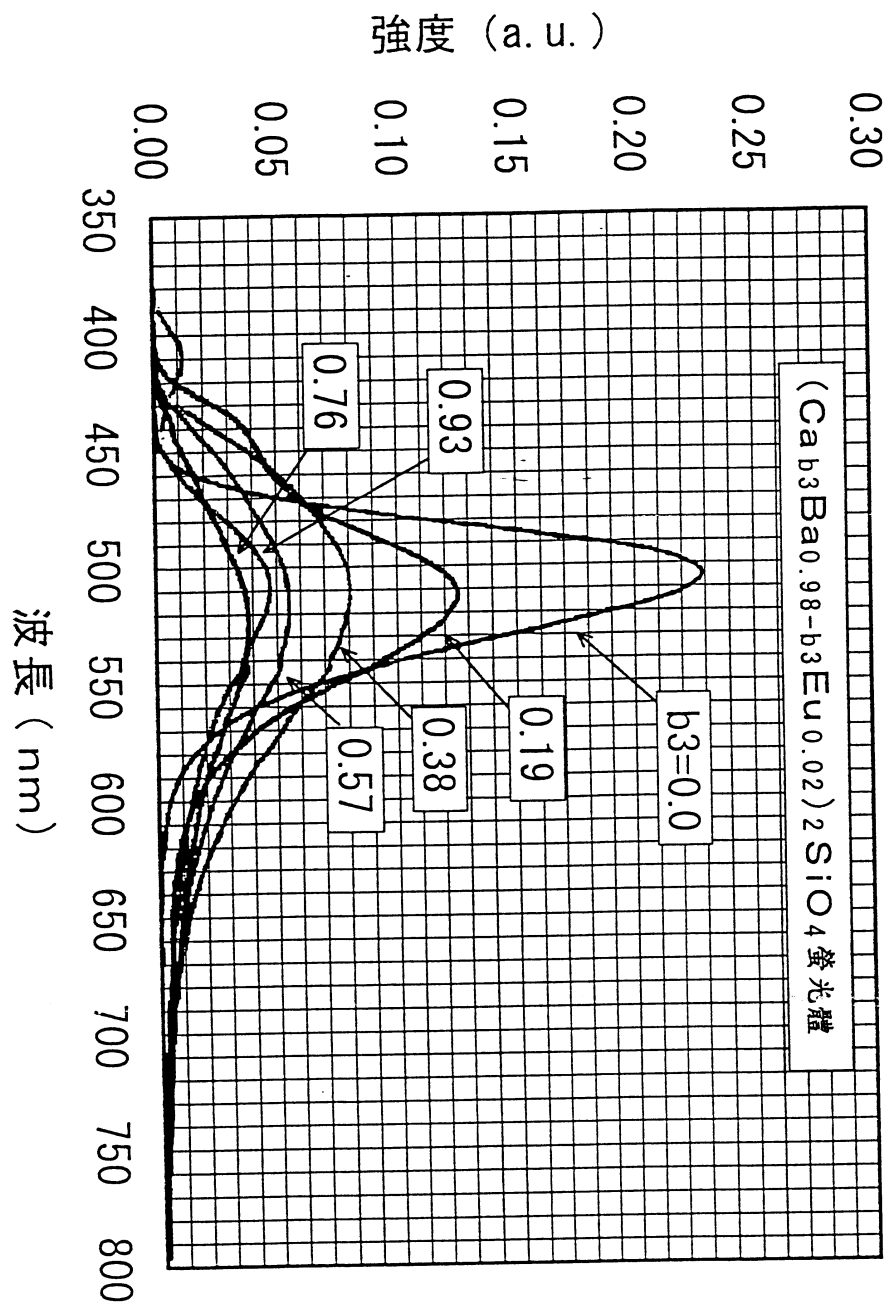


圖 34

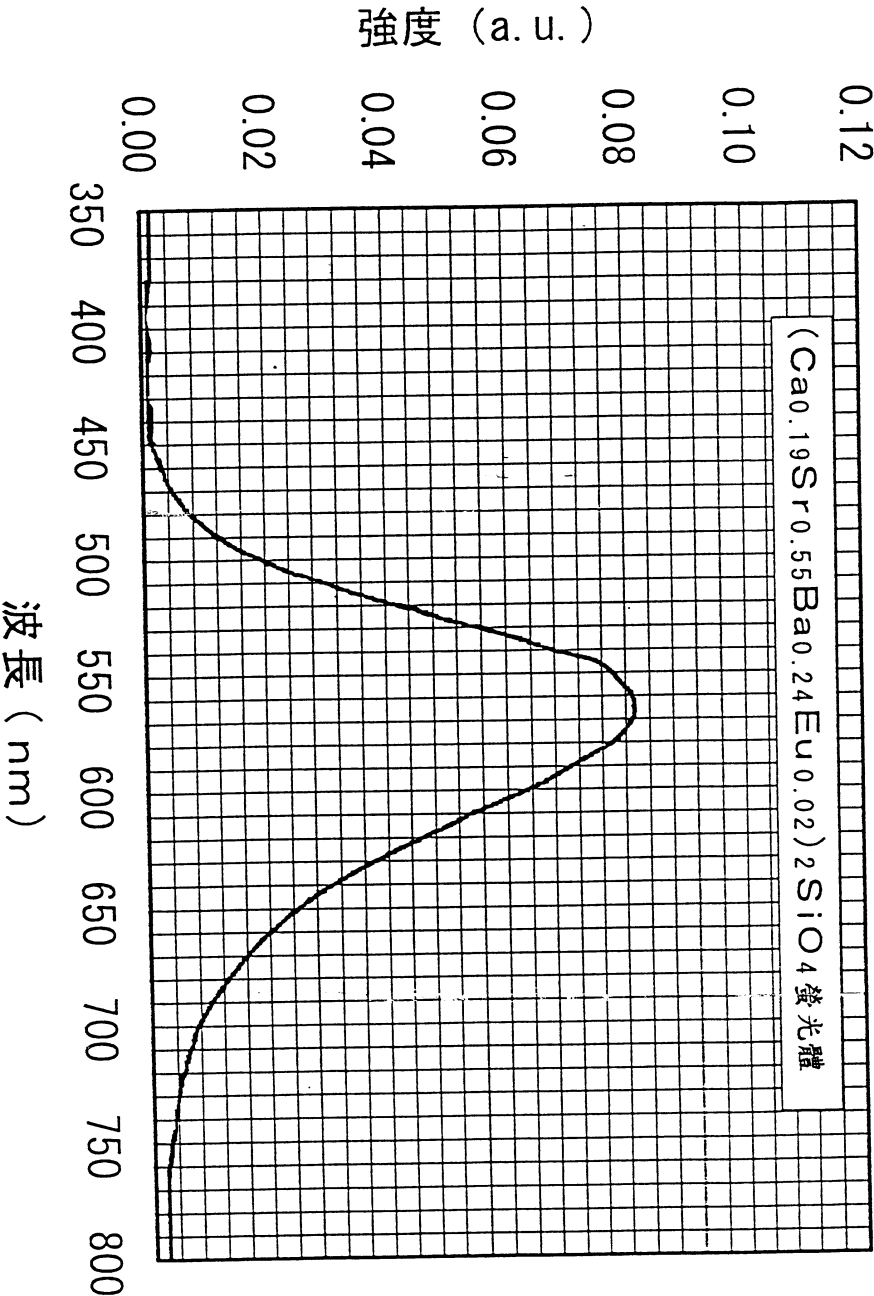


圖 35

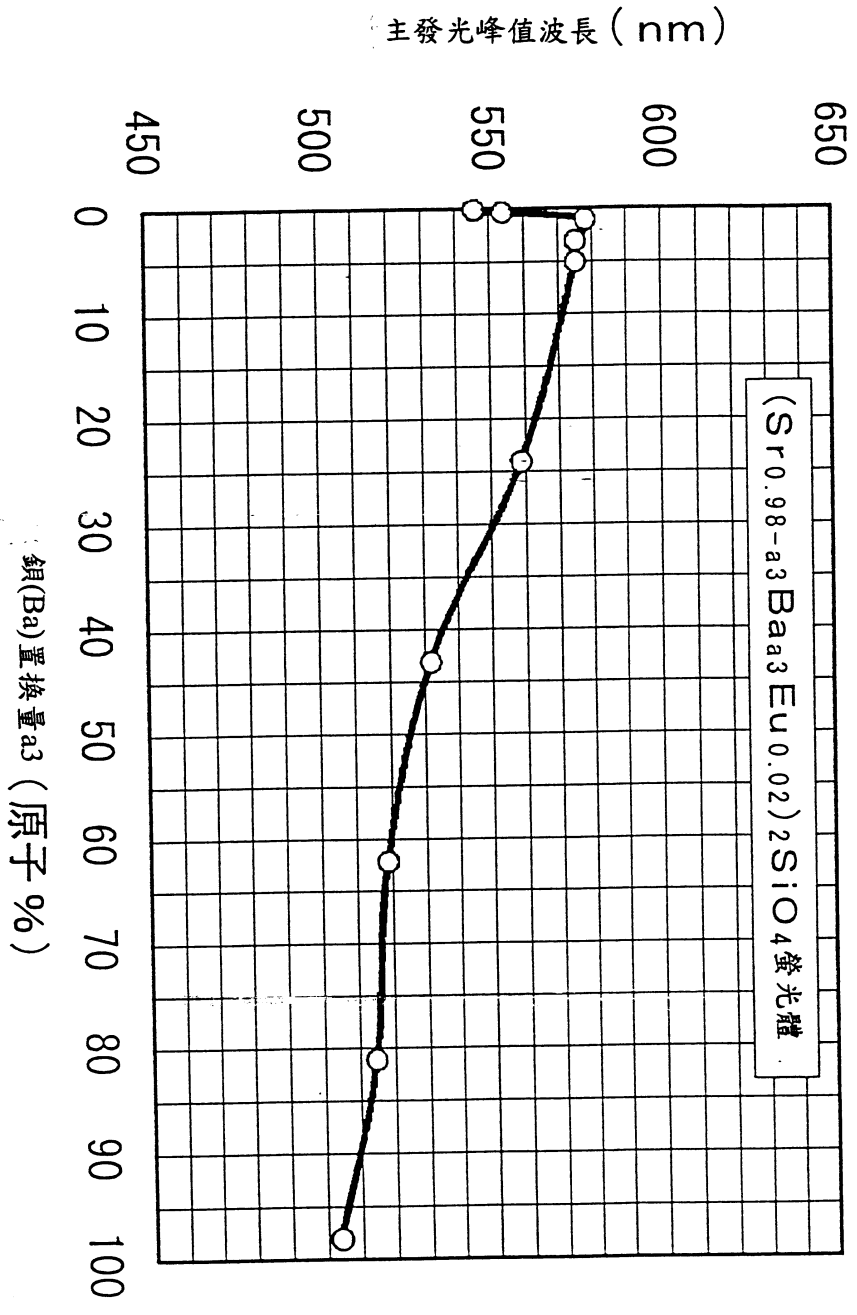


圖 36

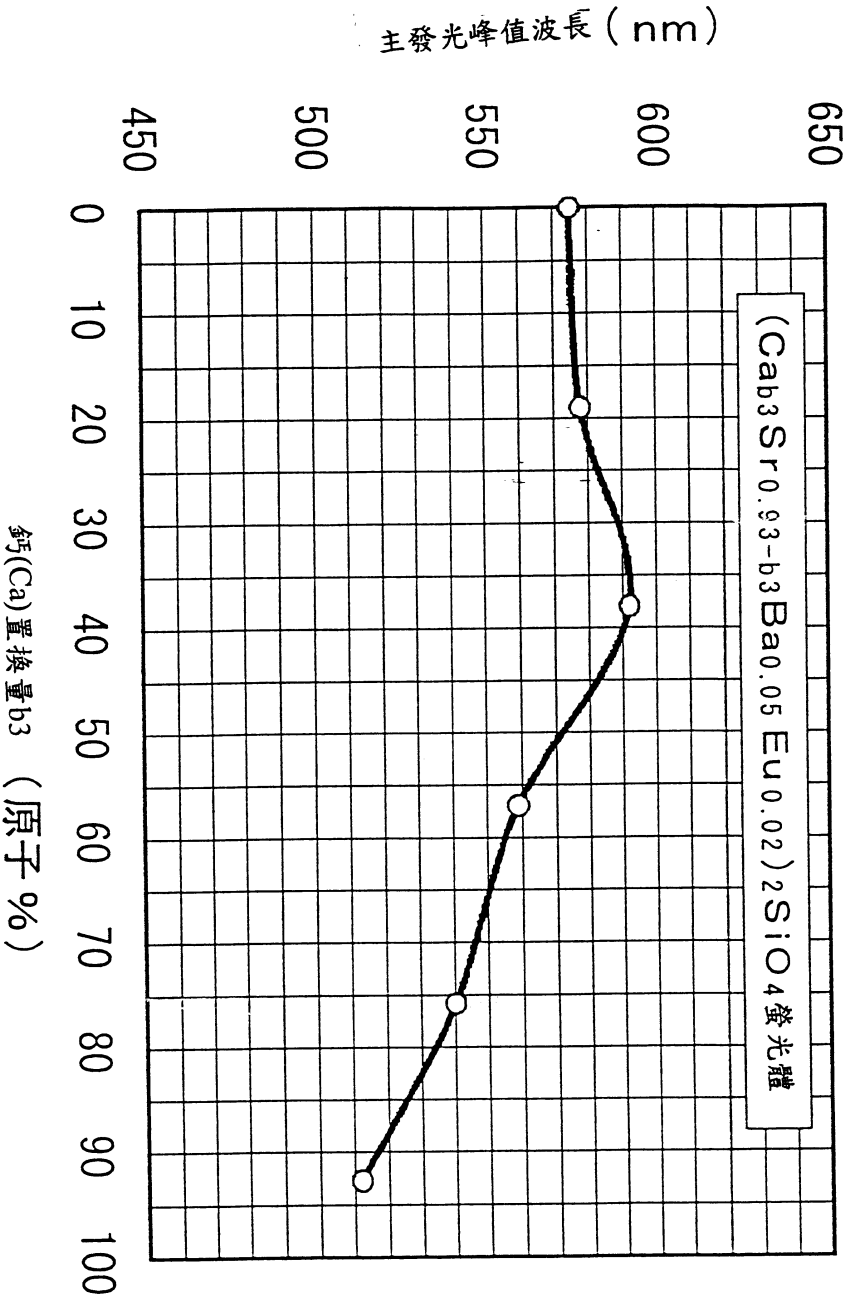


圖 37

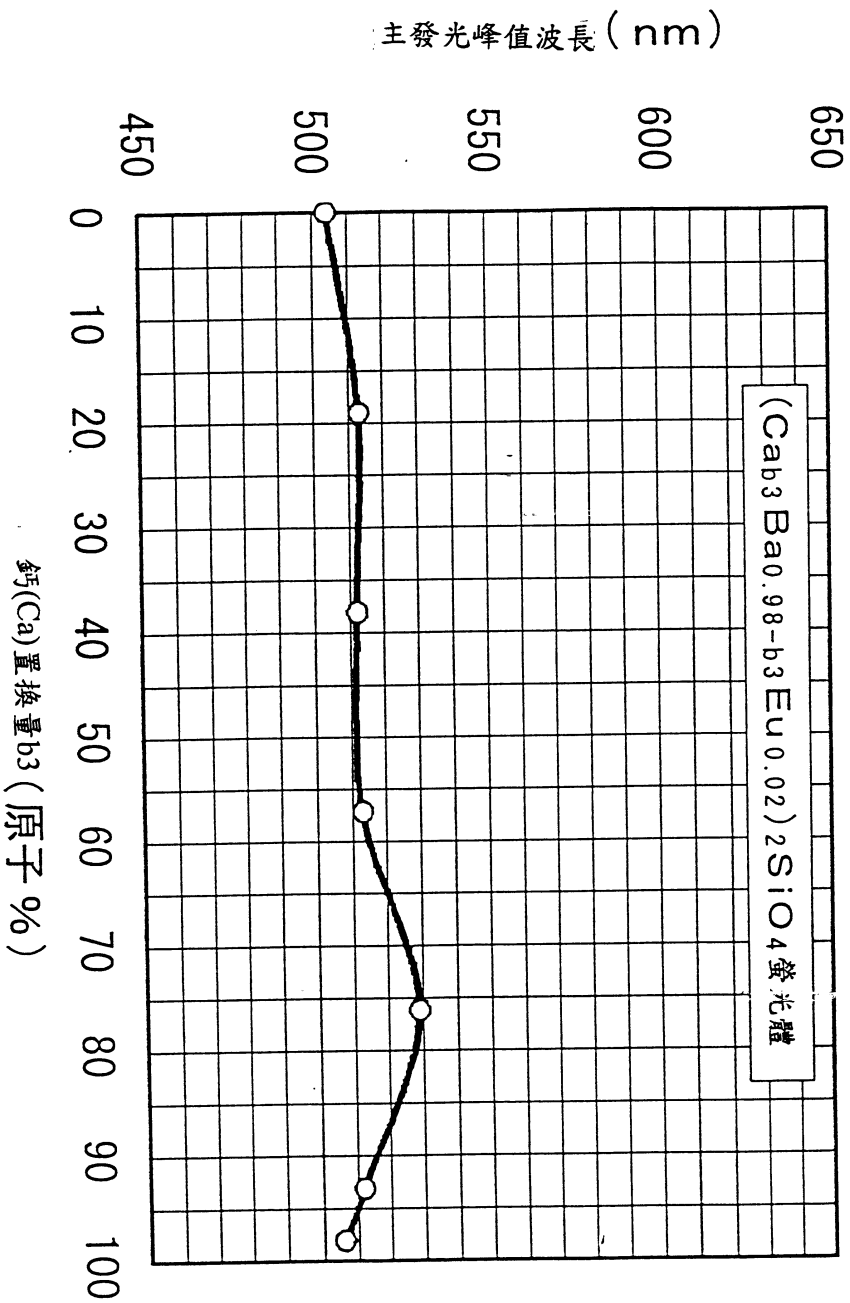


圖 38

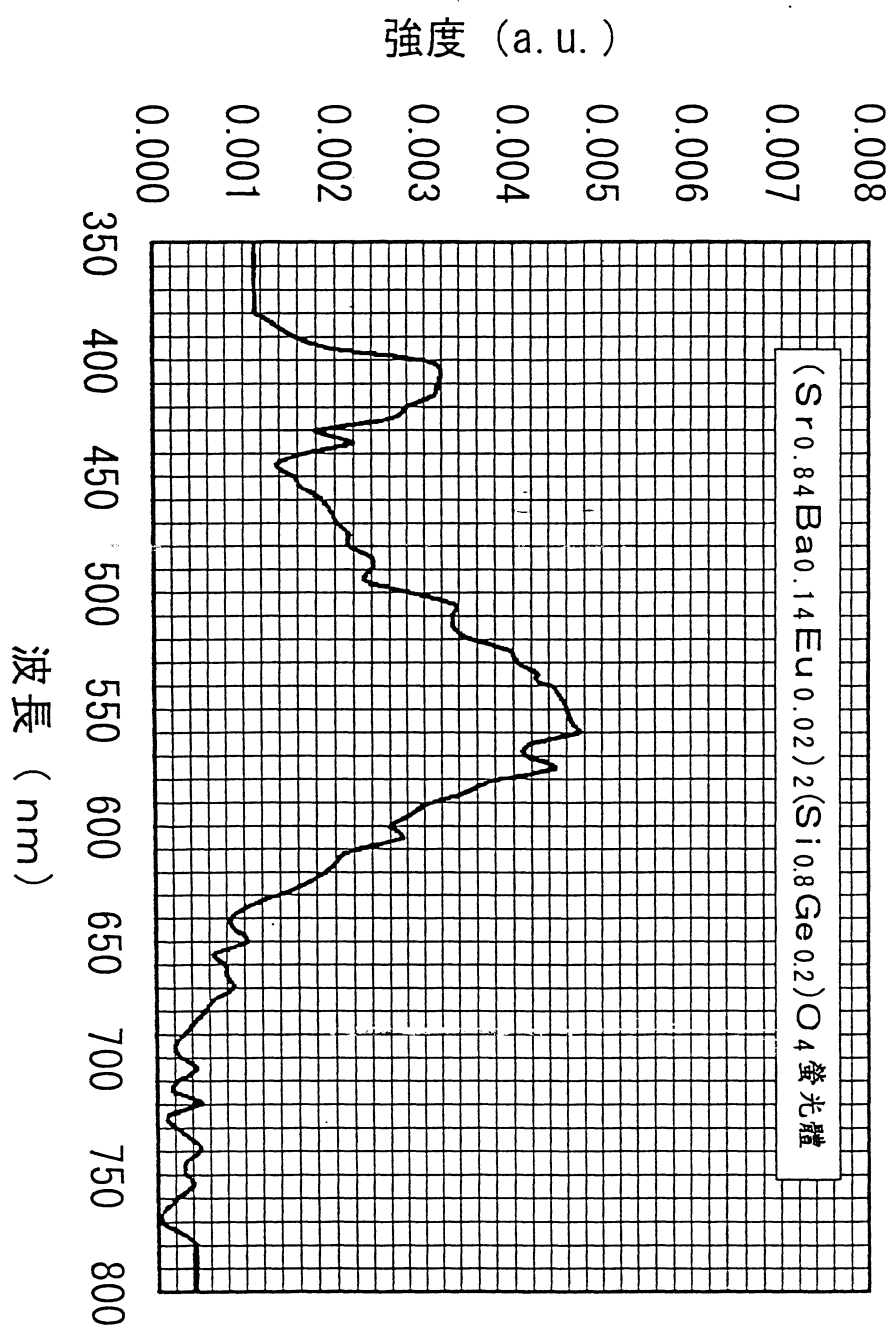


圖 39

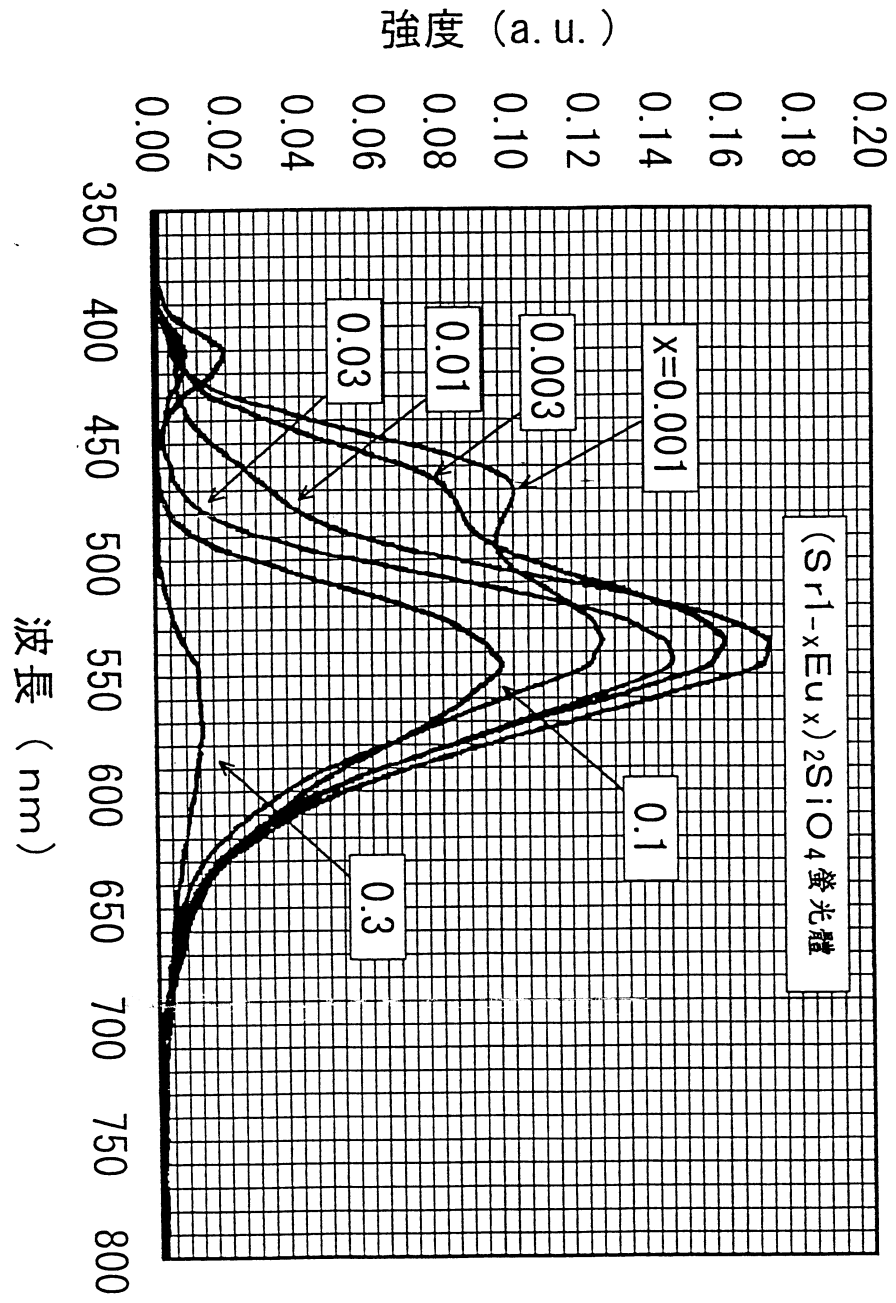


圖 40

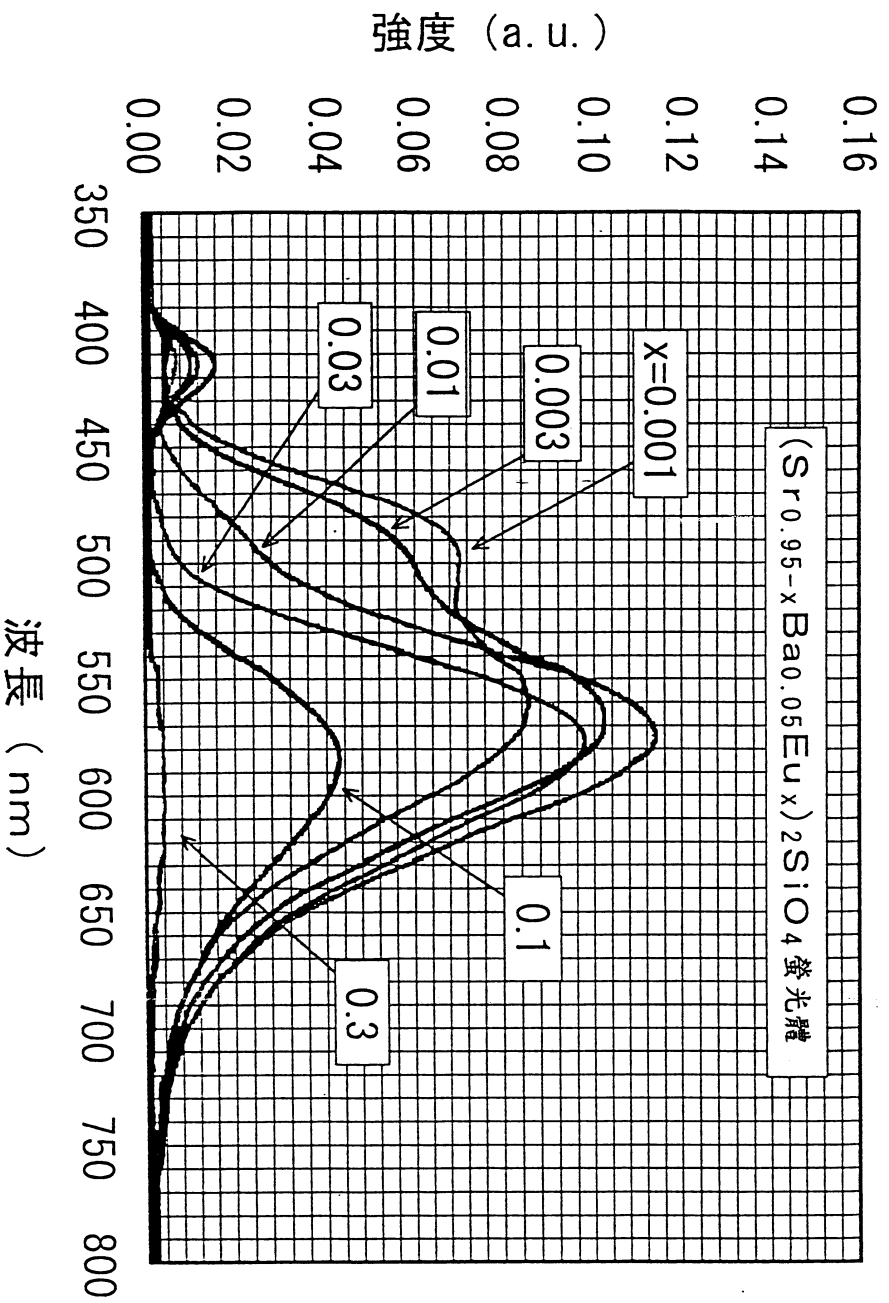


圖 41

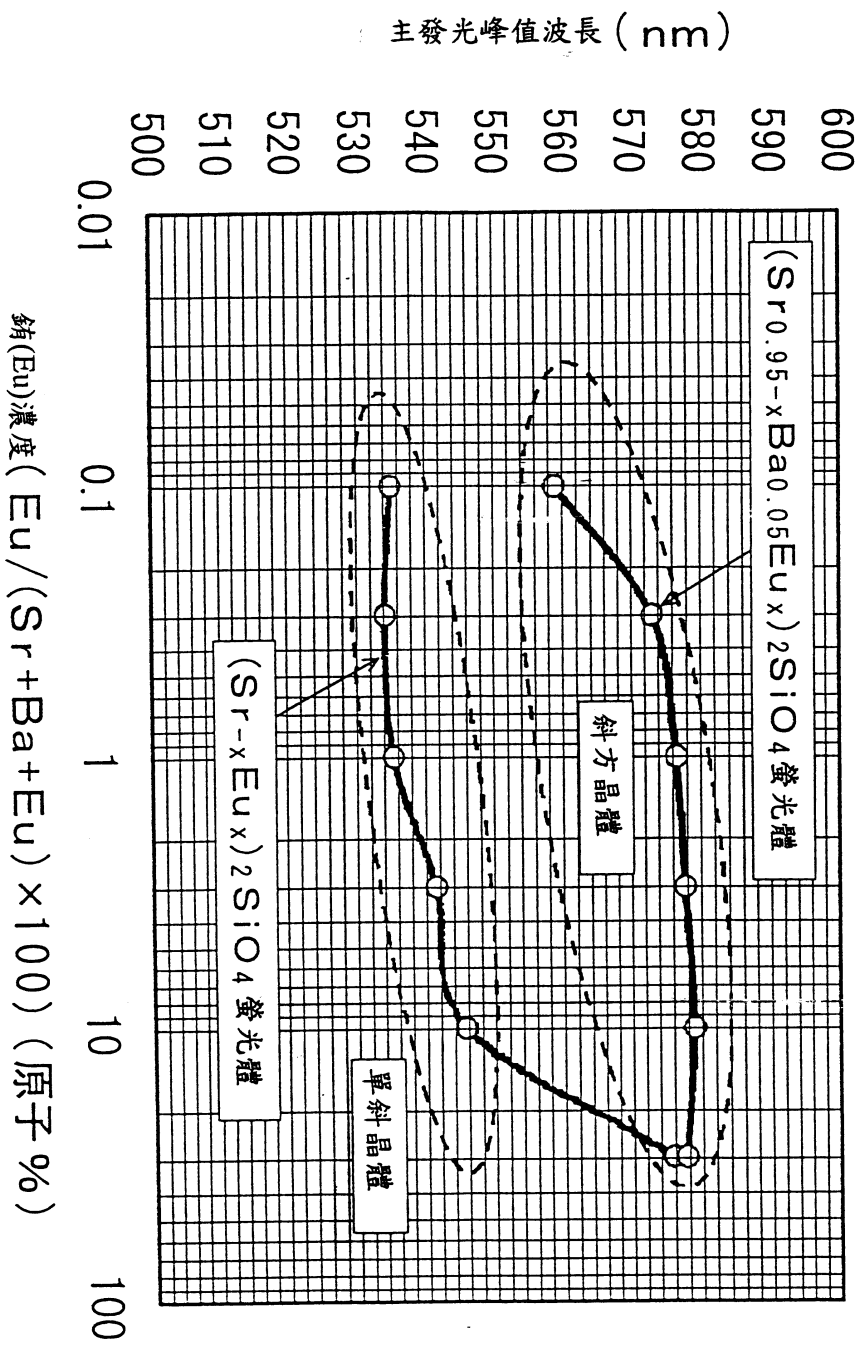


圖 42

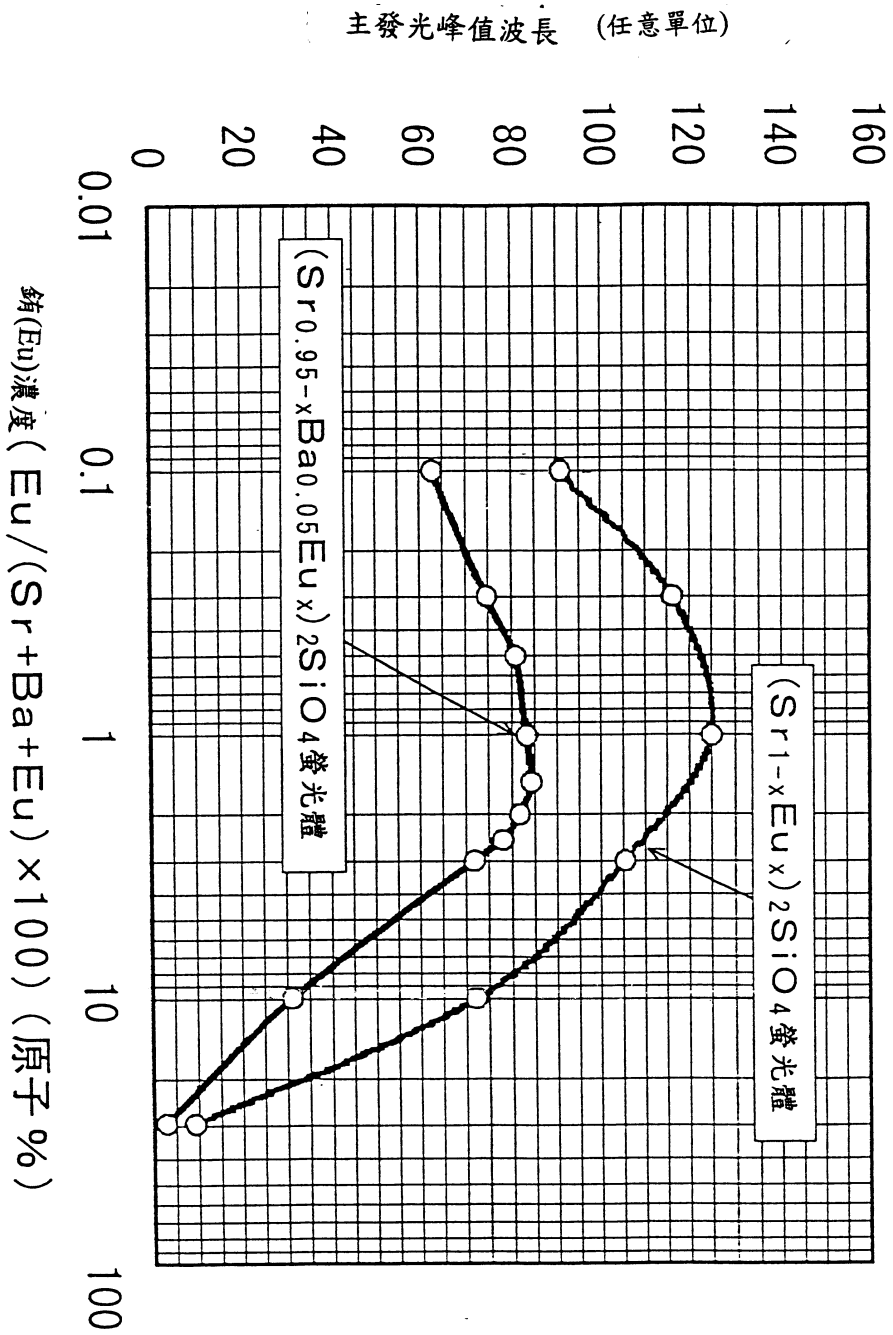


圖 43

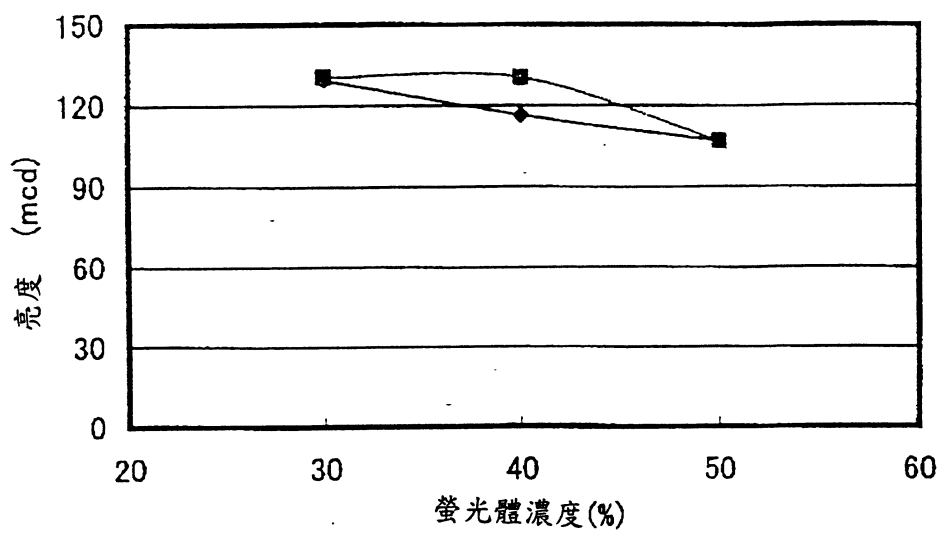


圖 44

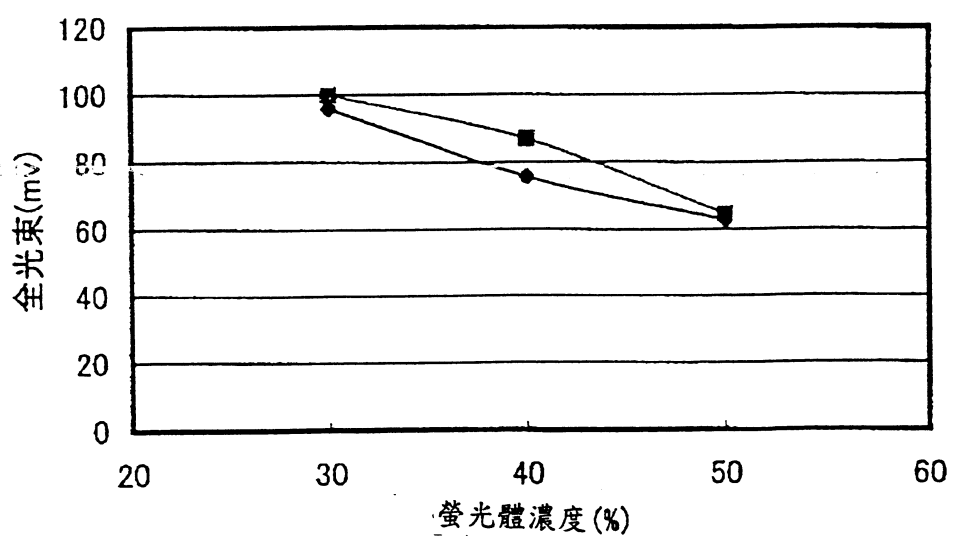


圖 45

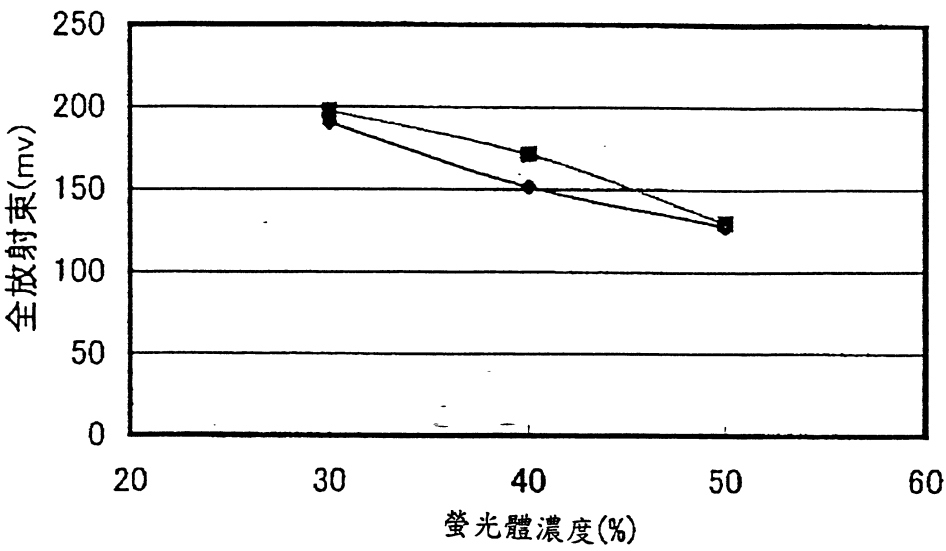


圖 46

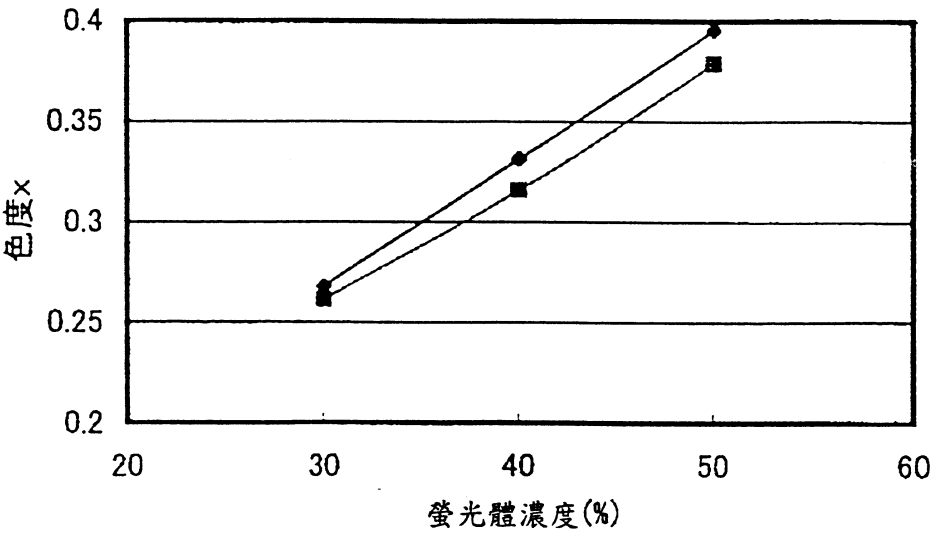


圖 47

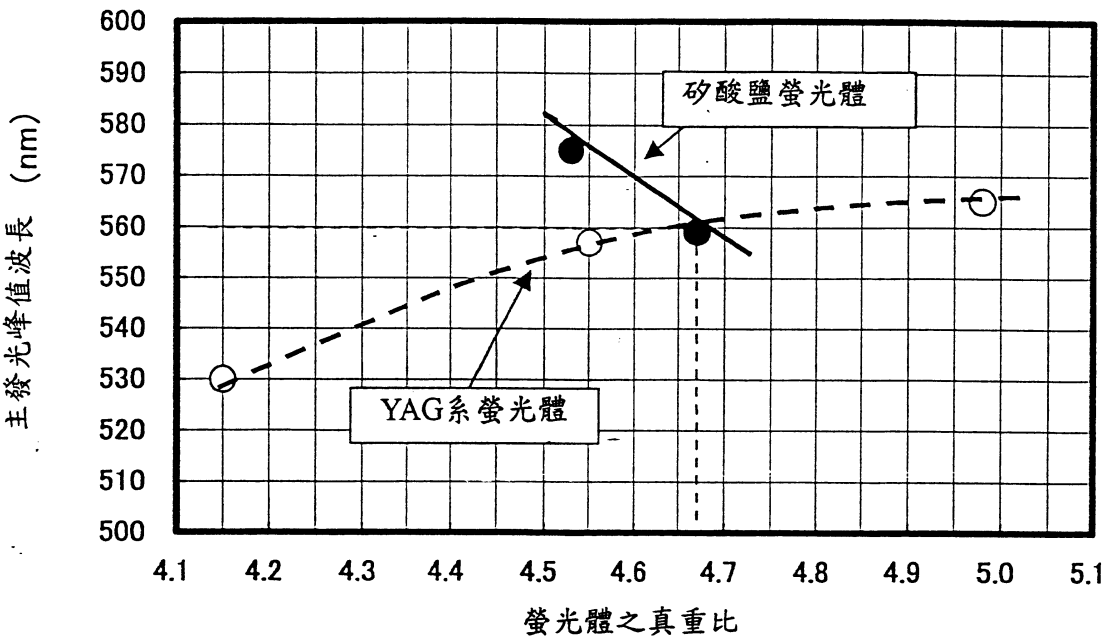


圖 48

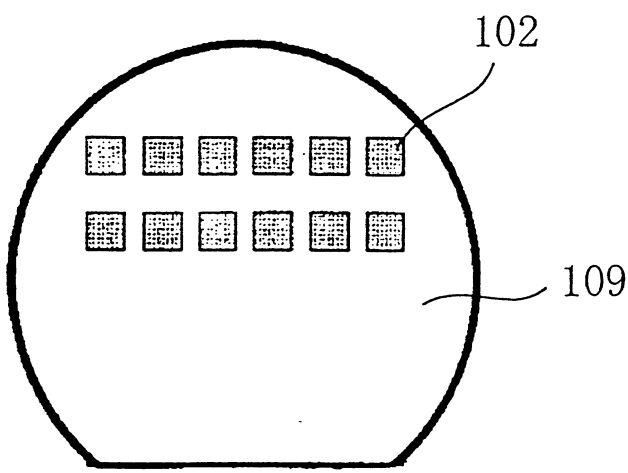


圖 49

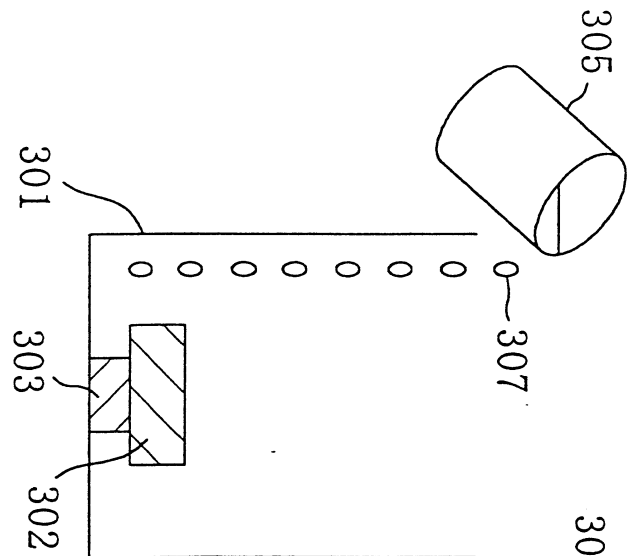


圖 50(a)

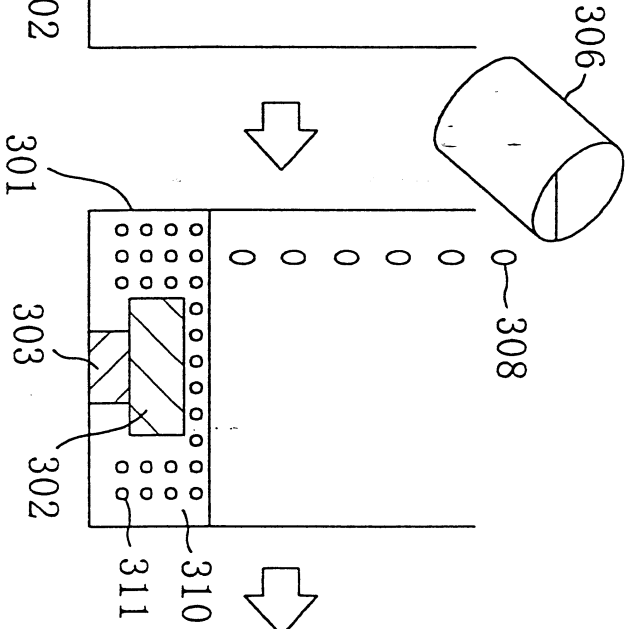


圖 50(b)

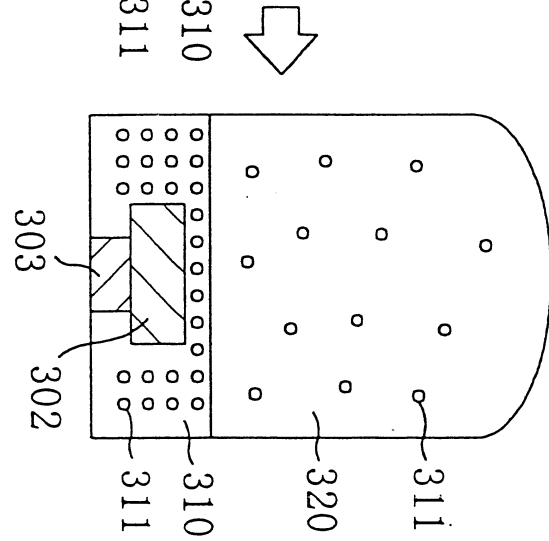


圖 50(c)

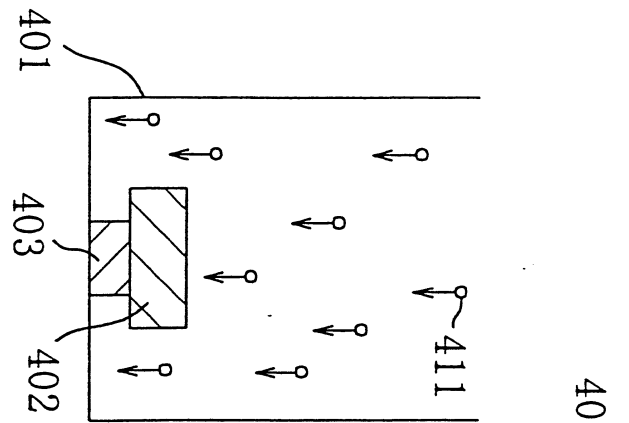


圖 51(a)

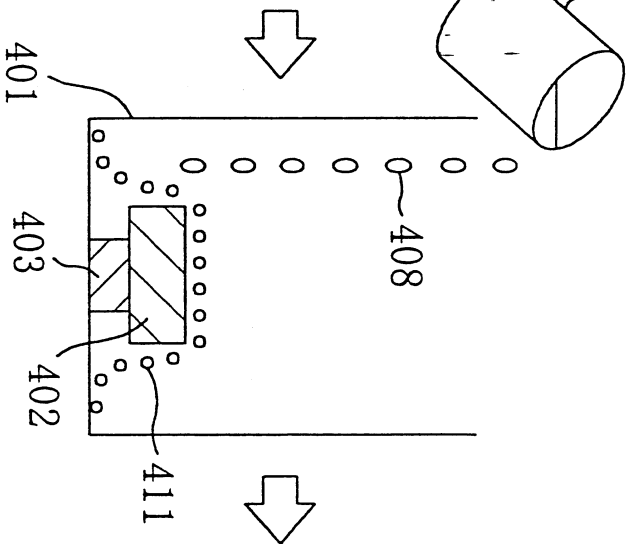


圖 51(b)

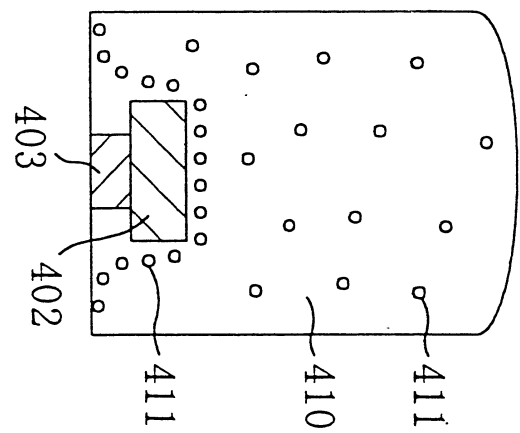


圖 51(c)

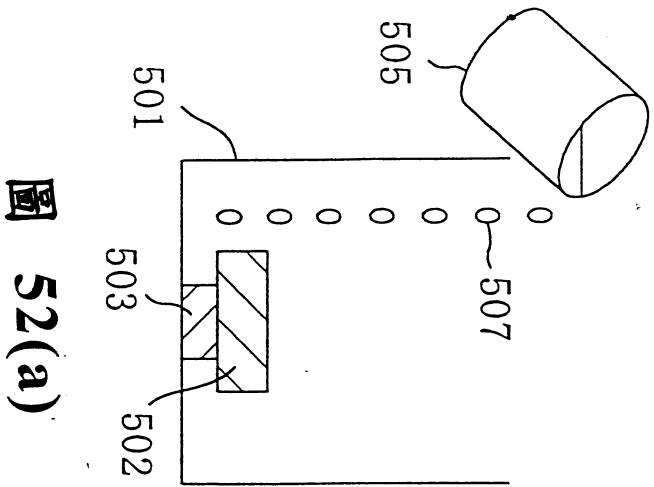


圖 52(a)

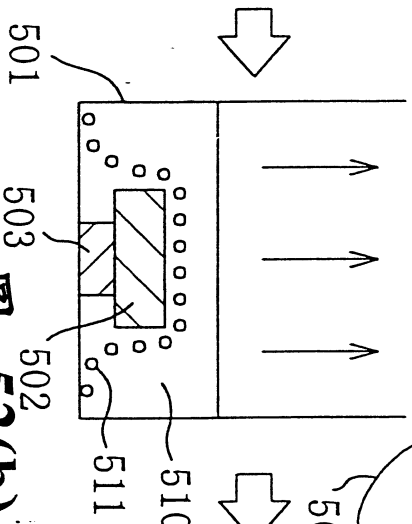


圖 52(b)

圖 52(c)

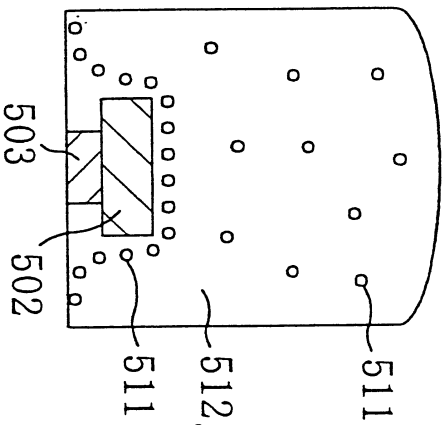
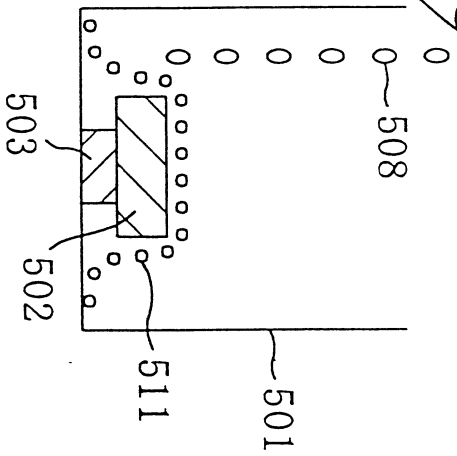


圖 52(d)

圖 53

- 45 -



取樣編號 NO	螢光體	螢光體重量 (%)	亮度 (mcd)	全光束 (mv)	全放射束 (mv)	色 度	
						x	y
A	矽酸鹽	49.6	125.087	75.318	150.549	0.3504	0.3863
B	矽酸鹽	49.8	131.007	77.848	155.445	0.3582	0.3989
C	矽酸鹽	50.7	121.547	75.497	149.465	0.3493	0.3927
D	YAG	7.4	171.5	110.465	243.2	0.3167	0.3436
E	YAG	9.8	178.347	104.841	237.8	0.3577	0.3899
F	矽酸鹽	49.9	106.9867	62.734	127.5747	0.3954	0.4368
G	矽酸鹽	40.0	116.4667	75.562	151.546	0.3314	0.3633
H	矽酸鹽	30.1	129.46	95.76	190.5233	0.2677	0.2816
I	矽酸鹽	50.3	106.9333	64.4753	129.616	0.3791	0.4221
J	矽酸鹽	40.0	130.3533	86.802	171.4407	0.3159	0.3495
K	矽酸鹽	30.0	130.6667	99.8687	197.8747	0.2611	0.274

(數值為平均值)

圖 54

	取樣1	取樣2	取樣3
螢光體重量%	28.75916579	29.80932415	29.25678333
氣溶膠濃度(%)		0.570473617	1.113535297
亮度	143.66	124.725	136.5
色度 (x/y)	0.2728/0.2876	0.3043/0.3254	0.3068/0.3331
全光束	107.552	87.1425	96.386
全放射束	214.402	175.1425	192.506
亮度 O	8.4512	9.5224	5.6546
色度 x O	0.0057	0.0047	0.0017
全光束 O	8.3984	8.5043	3.7828
全放射束 O	14.3229	14.1296	7.9054

圖 55

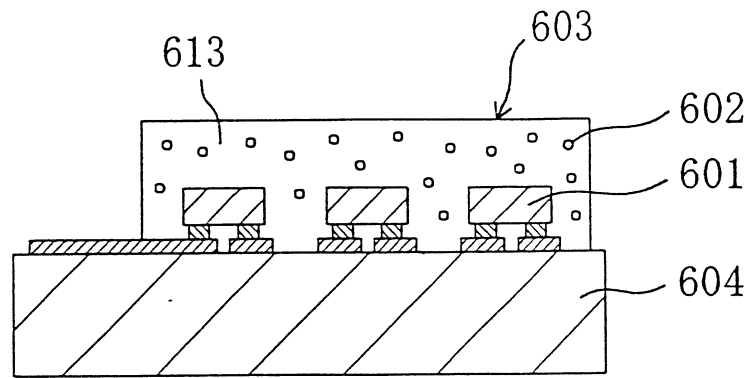


圖 56

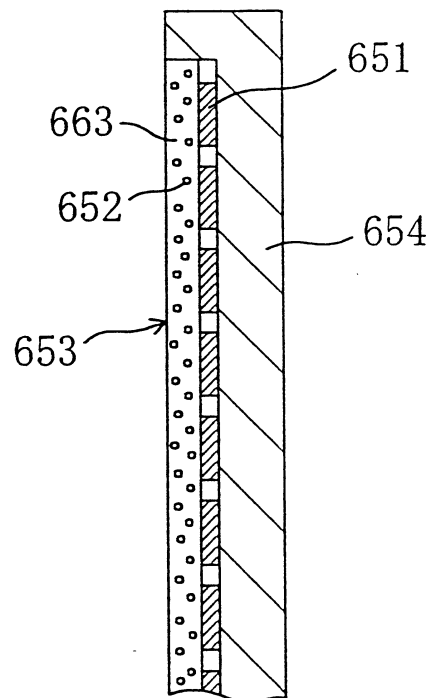


圖 57

第 091120032 號專利申請案
中文申請專利範圍替換本(92 年 11 月)

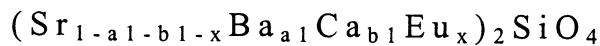
拾、申請專利範圍

1. 一種半導體發光元件，其特徵在於包含有：

至少一個藍色發光元件，具有光取出面，可從該光取出面釋放出藍色光；以及

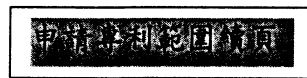
螢光體層，設計成覆蓋上述藍色發光元件之至少上述光取出部，並含黃色系螢光體，用以吸收上述藍色發光元件所釋放出的藍色光並釋放出黃色系的螢光；

上述黃色系螢光體，係以下述化學式表示之至少一種化合物為主體所構成的矽酸鹽螢光體：

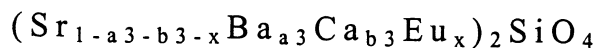


$$(0 \leq a1 \leq 0.3, 0 \leq b1 \leq 0.8, 0 < x < 1)。$$

2. 如申請專利範圍第1項之半導體發光元件，其中上述藍色發光元件，係選自藍色發光二極體、雷射二極體、表面發光雷射二極體、無機電致發光元件及有機電致發光元件中之一的元件。
3. 如申請專利範圍第1項之半導體發光元件，其中上述黃色系螢光體之Ca(鈣)組合比b1，係在 $0 \leq b2 \leq 0.6$ 之範圍內的組成比b2。
4. 如申請專利範圍第1項之半導體發光元件，其中上述藍色發光元件，係釋放出在超過430 nm且500 nm以下之波長區域中具有主發光峰值的發光。
5. 如申請專利範圍第4項之半導體發光元件，其中上述黃色系螢光體，係釋放出在550 nm以上且600 nm以下之波長區域中具有主發光峰值的螢光。



6. 如申請專利範圍第1項之半導體發光元件，其中上述矽酸鹽螢光體，係具有斜方晶系之結晶構造。
7. 如申請專利範圍第6項之半導體發光元件，其中上述藍色發光元件，係由選自氮化鎵系化合物半導體、硒化鋅半導體及氧化鋅半導體中之任一種半導體所構成的藍色無機發光元件。
8. 如申請專利範圍第7項之半導體發光元件，其中半導體發光元件所釋放出的發光色，其CIE色度圖中之發光色度點(x, y)在 $0.21 \leq x \leq 0.48$ 、 $0.19 \leq y \leq 0.45$ 之範圍內。
9. 如申請專利範圍第1項之半導體發光元件，其中上述螢光體層，更包含在超過波長600 nm且660 nm以下之紅色系區域中具有主發光峰值的紅色系螢光體。
10. 如申請專利範圍第9項之半導體發光元件，其中上述螢光體層，係更包含在波長500 nm以上且550 nm未滿之綠色系區域中具有主發光峰值的綠色系螢光體。
11. 如申請專利範圍第10項之半導體發光元件，其中上述綠色系螢光體，係以下述化學式表示之化合物為主體所構成的矽酸鹽螢光體：



$$(0 \leq a3 \leq 1, 0 \leq b3 \leq 1, 0 < x < 1)。$$

12. 如申請專利範圍第8項之半導體發光元件，其中上述矽酸鹽螢光體，係釋放出在550 nm以上且600 nm以下之波長區域中具有主發光峰值的黃色系光，且由組成互異的複數個化合物所構成。

13. 如申請專利範圍第1至10項中任一項之半導體發光元件，其中，

上述螢光體層，係以具有透光性之樹脂作為母材；

上述黃色系螢光體，係在上述母材中以粒子狀分散存在著。

14. 如申請專利範圍第1至10項中任一項之半導體發光元件，其中螢光體層，係將上述矽酸鹽螢光體成形所構成。

15. 如申請專利範圍第1至10項中任一項之半導體發光元件，其中，係藉由上述藍色發光元件所釋放出的藍色光通過上述螢光體層，以使上述藍色光與上述螢光體所釋放出的螢光作顏色相加而釋放出白色光之方式所構成。

16. 如申請專利範圍第1至10項中任一項之半導體發光元件，其更包含有基板；

上述藍色發光元件，係以覆晶狀態搭載於上述基板上；

上述螢光體層，係作為密封上述藍色發光元件之密封樹脂發揮功能。

17. 如申請專利範圍第16項之半導體發光元件，其中上述基板，係具有稽納二極體。

18. 如申請專利範圍第1至10項中任一項之半導體發光元件，其更包含具有杯體部的安裝導線腳；

上述藍色發光元件，係搭載於上述杯體部上；

上述螢光體層，係設在上述杯體內。

19. 如申請專利範圍第1至10項中任一項之半導體發光元

件，其更包含有用以配置藍色發光元件的框體；

上述螢光體層係設在上述框體內。

20. 如申請專利範圍第1至10項中任一項之半導體發光元件，其中，上述螢光體層之位於上述藍色發光元件之上述光取出面上的部分之實質厚度，係在50 μm以上且1000 μm以下之範圍內。

21. 如申請專利範圍第20項之半導體發光元件，其中，上述螢光體層之至少位於藍色發光元件之上述光取出面上的部分之上面，係呈平坦且大致與上述光取出面平行者。

22. 如申請專利範圍第1至10項中任一項之半導體發光元件，其中上述至少藍色發光元件設有複數個；

上述螢光體層，係設計成覆蓋上述複數個藍色發光元件之各光取出面。

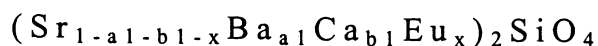
23. 一種發光裝置，其特徵在於包含有：

釋放出藍色光之至少一個藍色發光元件；

至少一個螢光體層，含黃色系螢光體，其係吸收上述藍色發光元件所釋放出的藍色光並釋放出黃色系的螢光；以及

支撐構件，用以支撐上述藍色發光元件及螢光體層；

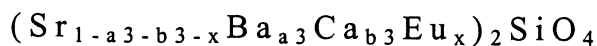
上述黃色系螢光體，係以下述化學式表示之至少一種化合物為主體所構成的矽酸鹽螢光體：



$$(0 \leq a1 \leq 0.3, 0 \leq b1 \leq 0.8, 0 < x < 1)。$$



24. 如申請專利範圍第23項之發光裝置，其中上述藍色發光元件，係藍色發光二極體或表面發光雷射二極體。
25. 如申請專利範圍第23項之發光裝置，其中上述黃色系螢光體之Ca組合比b1，係在 $0 \leq b2 \leq 0.6$ 之範圍內的組成比b2。
26. 如申請專利範圍第23至25項中任一項之發光裝置，其中上述螢光體層，更包含在超過波長600 nm且660 nm以下之紅色系區域中具有主發光峰值的紅色系螢光體。
27. 如申請專利範圍第23至25項中任一項之發光裝置，其中上述螢光體層，係更包含在波長500 nm以上且550 nm未滿之綠色系區域中具有主發光峰值的綠色系螢光體。
28. 如申請專利範圍第27項之發光裝置，其中上述綠色系螢光體，係以下述化學式表示之化合物為主體所構成的矽酸鹽螢光體：



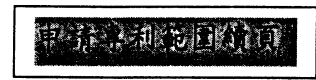
$$(0 \leq a3 \leq 1, 0 \leq b3 \leq 1, 0 < x < 1)。$$

29. 如申請專利範圍第23至25項中任一項之發光裝置，其更包含有基板構件；

上述藍色發光元件，係以覆晶狀態搭載於上述基板構件上；

上述螢光體層，係作為密封上述藍色發光元件之密封樹脂發揮功能。

30. 如申請專利範圍第29項之發光裝置，其中上述基板構件，係具有稽納二極體。



31. 如申請專利範圍第23至25項中任一項之發光裝置，其更包含具有杯體部的安裝導線腳；

上述藍色發光元件，係搭載於上述杯體部上；

上述螢光體層，係設在上述杯體內。

32. 如申請專利範圍第23至25項中任一項之發光裝置，其更包含有用以配置藍色發光元件的框體；

上述螢光體層係設在上述框體內。

33. 如申請專利範圍第23至25項中任一項之發光裝置，其中上述至少一個藍色發光元件設有複數個；

上述螢光體層，係設計成覆蓋上述複數個藍色發光元件之光取出面。

34. 一種半導體發光元件之製造方法，其特徵為該半導體發光元件具備：

藍色發光元件，可釋放出在超過430 nm且500 nm以下之波長區域中具有主發光峰值的發光；以及

螢光體層，含黃色系螢光體，可吸收上述藍色發光元件所釋放出的藍色光並釋放出在550 nm以上且600 nm以下之波長區域中具有主發光峰值的螢光；包含有：

步驟(a)，利用包含真比重在3.0以上且4.65以下之範圍內，且室溫下發光之主發光峰值波長在560 nm以上600 nm以下之範圍內的上述黃色系螢光體，及真比重在0.8以上且在上述黃色系螢光體之真比重以下之範圍內的樹脂的螢光體糊劑來覆蓋至少上述藍色發光元件之光取出面；以及



步驟(b)，使上述螢光體糊劑硬化，藉以形成上述螢光體層；其中，

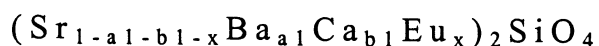
上述步驟(a)中之上述黃色系螢光體，係採用以下元素所構成之化合物為母體的螢光體：

選自 Mg(鎂)、Ca(鈣)、Sr(銦)、Ba(鋇)、Sc(釷)、Y(釷)、
 鑼系元素、Ti(鈦)、Zr(鋯)、Hf(鈹)、V(釩)、Nb(鈮)、
 Ta(鉭)、Mo(鉬)、W(鎢)、Zn(鋅)、B(硼)、Al(鋁)、Ga(鎵)、
 In(銦)、Si(矽)、Ge(鍺)、Sn(錫)、P(磷)之中的至少一個元素；及

選自 O(氧)、S(硫)、Se(硒)、F(氟)、Cl(氯)、Br(溴)之中的至少一個元素。

35. 如申請專利範圍第34項之半導體發光元件之製造方法，其中上述步驟(a)中之上述黃色系螢光體，係採用中心粒徑在 0.5 μm 以上且 30 μm 以下之範圍內的黃色系螢光體。

36. 如申請專利範圍第34項之半導體發光元件之製造方法，其中上述步驟(a)中之上述黃色系螢光體，係以下述化學式表示之至少一種化合物為主體所構成的矽酸鹽螢光體：



$$(0 \leq a1 \leq 0.3, 0 \leq b1 \leq 0.8, 0 < x < 1)。$$

37. 如申請專利範圍第34至36項中任一項之半導體發光元件之製造方法，其中上述步驟(a)中，於上述螢光體糊劑中，更事先含有一次粒子之平均直徑在 1 nm 以上且

100 nm以下之範圍內的超微粒子。

38. 一種半導體發光元件之製造方法，其包含有：

步驟(a)，利用包含樹脂與螢光體粒子之螢光體糊劑來覆蓋藍色發光元件之光取出面；以及

步驟(b)，一邊對上述螢光體糊劑提供振動而一邊使之硬化。

39. 一種半導體發光元件之製造方法，其包含有：

步驟(a)，利用包含樹脂與螢光體粒子之螢光體糊劑來覆蓋藍色發光元件之光取出面；以及

步驟(b)，一邊使上述螢光體糊劑翻轉而一邊使之硬化。

40. 一種半導體發光元件之製造方法，其係反覆進行複數次以下之步驟者，該步驟包含有：

步驟(a)，利用包含樹脂與螢光體粒子之螢光體糊劑來覆蓋藍色發光元件之光取出面；以及

步驟(b)，使上述螢光體糊劑硬化。

41. 一種半導體發光元件之製造方法，其係反覆進行複數次以下之步驟者，該步驟包含有：

步驟(a)，利用螢光體糊劑來覆蓋藍色發光元件之光取出面，而該螢光體糊劑，係包含樹脂與螢光體粒子，且其黏度在1 Pa·S以上且100 Pa·S以下之範圍內；以及

步驟(b)，使上述螢光體糊劑硬化。

42. 一種半導體發光元件之製造方法，其包含有：

步驟(a)，利用包含樹脂與螢光體粒子之螢光體糊劑



來覆蓋藍色發光元件之光取出面；以及

步驟(b)，利用紫外線照射使上述螢光體糊劑硬化。

43. 一種半導體發光元件之製造方法，其包含有：

步驟(a)，利用包含樹脂與螢光體粒子之螢光體糊劑來覆蓋藍色發光元件之光取出面；以及

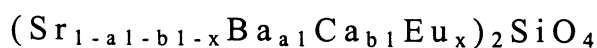
步驟(b)，一邊攪拌上述螢光體糊劑而一邊使之硬化。

44. 一種半導體發光元件之製造方法，其包含有：

步驟(a)，利用第一螢光體糊劑來覆蓋可釋放出在超過430 nm且500 nm以下之波長區域中具有主發光峰值之光的藍色發光元件之至少光取出面，而該第一螢光體糊劑，係具有由具透光性之樹脂所構成之母材及含黃色系螢光體的螢光體粒子；

步驟(b)，在上述步驟(a)之後，利用第二螢光體糊劑來覆蓋上述第一螢光體糊劑，而該第二螢光體糊劑，係具有至少具透光性之樹脂且上述黃色系螢光體之濃度較上述第一螢光體糊劑為低；以及

步驟(c)，使上述第一及第二螢光體糊劑硬化；其中，上述步驟(a)中之上述黃色系螢光體，係用以吸收上述藍色發光元件所釋放出的光，並釋放出在550 nm以上且600 nm以下之波長區域中具有主發光峰值之光的黃色系螢光體，其係以下述化學式表示之至少一種化合物為主體所構成的矽酸鹽螢光體：



$$(0 \leq a1 \leq 0.3, 0 \leq b1 \leq 0.8, 0 < x < 1)。$$



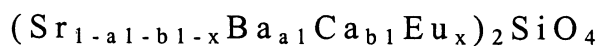
45. 一種半導體發光元件之製造方法，其包含有：

步驟(a)，使含黃色系螢光體之螢光體粒子，附著於釋放出在超過430 nm且500 nm以下之波長區域中具有主發光峰值之光的藍色發光元件之至少光取出面上；

步驟(c)，在上述步驟(a)之後，利用具透光性之樹脂來覆蓋上述藍色發光元件之至少光取出面；以及

步驟(d)，使上述樹脂硬化；其中，

上述步驟(b)中之上述黃色系螢光體，係吸收上述藍色發光元件所釋放出的光，並釋放出在550 nm以上且600 nm以下之波長區域中具有主發光峰值之光的黃色系螢光體，其係以下述化學式表示之至少一種化合物為主體所構成的矽酸鹽螢光體：



$$(0 \leq a1 \leq 0.3, 0 \leq b1 \leq 0.8, 0 < x < 1)。$$

46. 如申請專利範圍第45項之半導體發光元件之製造方法，其中上述步驟(a)中，將上述黃色系螢光體粒子撒在上述藍色發光元件上。

47. 如申請專利範圍第45項之半導體發光元件之製造方法，其中上述步驟(a)中，將藍色發光元件，浸漬在包含含黃色系螢光體之螢光體粒子與揮發性溶媒的懸浮液中之後，再使上述溶媒揮發。

48. 一種半導體發光元件之製造方法，其包含有：

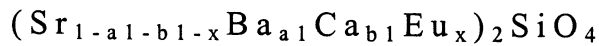
步驟(a)，利用螢光體糊劑來覆蓋用以釋放出在超過430 nm且500 nm以下之波長領域中具有主發光峰值之



光的藍色發光元件之至少光取出面，而該螢光體糊劑，係具有含黃色系螢光體且帶正電之物質附著於其表面的螢光體粒子及透光性樹脂；以及

步驟(c)，在上述步驟(a)之後，使上述螢光體糊劑硬化；其中，

上述步驟(a)中之上述黃色系螢光體，係用以吸收上述藍色發光元件所釋放出的光，並釋放出在550 nm以上且600 nm以下之波長區域中具有主發光峰值之光的黃色系螢光體，其係以下述化學式表示之至少一種化合物為主體所構成的矽酸鹽螢光體：



$$(0 \leq a1 \leq 0.3, 0 \leq b1 \leq 0.8, 0 < x < 1)。$$