

發明專利說明書

(本說明書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※ 申請案號：96129502

※ 申請日期：96.8.10

※IPC 分類：C09K 11/55, (2006.01)

11/81, (2006.01)

11/08, (2006.01)

一、發明名稱：(中文/英文)

螢光材料與發光裝置/Phosphors and lighting apparatus

H01L 33/00 (2006.01)

二、申請人：(共 1 人)

姓名或名稱：(中文/英文)

國立交通大學/National Chiao Tung University

代表人：(中文/英文) 吳重雨/ Wu, Chung- Yu

住居所或營業所地址：(中文/英文)

新竹市大學路 1001 號/ No.1001, Dasyue Rd., East District, Hsinchu City 300,
Taiwan (R.O.C.)

國 籍：(中文/英文) 中華民國 R.O.C.

三、發明人：(共 2 人)

姓 名：(中文/英文)

1. 陳登銘/ Teng-Ming Chen

2. 周怡君/ Yi-Chun Chou

國 籍：(中文/英文)

1. 中華民國 R.O.C.

2. 中華民國 R.O.C.

四、聲明事項：

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

申請前已向下列國家（地區）申請專利：

【格式請依：受理國家（地區）、申請日、申請案號 順序註記】

有主張專利法第二十七條第一項國際優先權：

無主張專利法第二十七條第一項國際優先權：

主張專利法第二十九條第一項國內優先權：

【格式請依：申請日、申請案號 順序註記】

主張專利法第三十條生物材料：

須寄存生物材料者：

國內生物材料 【格式請依：寄存機構、日期、號碼 順序註記】

國外生物材料 【格式請依：寄存國家、機構、日期、號碼 順序註記】

不須寄存生物材料者：

所屬技術領域中具有通常知識者易於獲得時，不須寄存。

五、中文發明摘要：

一種螢光材料，其化學通式如下： $A(B_{1-m}Eu_m^{2+})PO_4$ ；其中 A 係選自 Li、Na、K 所組成之族群至少其中之一；B 係選自 Ca、Sr、Ba 所組成之族群至少其中之一；其中 $0.0001 \leq m \leq 0.8$ 。

六、英文發明摘要：

A phosphor has the general formula: $A(B_{1-m}Eu_m^{2+})PO_4$, wherein A is at least one of the group consisting of Li and Na K, and B is at least one of the group consisting of Ca, Sr and Ba, and $0.0001 \leq m \leq 0.8$.

七、指定代表圖：

(一)本案指定代表圖為：第 (2) 圖。

(二)本代表圖之元件符號簡單說明：

無

八、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：



九、發明說明：

【發明所屬之技術領域】

本發明係關於一種螢光材料，特別是可供應用於發光裝置的螢光材料

【先前技術】

半導體發光裝置包括了發光二極體(light emitting diodes, LEDs) 以及雷射二極體(laser diodes)。利用半導體發光裝置提供紫外光(ultraviolet)或近紫外光(near ultraviolet)，搭配不同的螢光材料可以供製作各式光源所使用。

白光發光二極體是 LED 產業中最被看好的新興產品，可以應用在取代日光燈、指示平面顯示器的背光源以及，具有體積小、低熱量、低耗電、使用壽命長等優點。所謂的白光是多種顏色混合而成的光，人眼可見的白光形式至少要有兩種光混合，例如：藍色光與黃色光的組合，或是綠色光、藍色光與紅色光的組合。

目前 LED 轉換螢光材料所使用的綠色螢光材料有許多種類，如： $(\text{Ba,Ca,Sr})\text{MgAl}_{10}\text{O}_{17}:\text{Eu}^{2+}, \text{Mn}^{2+}$ (簡稱 BAM: Eu,Mn)、 $(\text{Ca,Sr,Ba})\text{Al}_2\text{O}_4:\text{Eu}^{2+}$ 、 $(\text{Mg,Ca,Sr,Ba})_3\text{Si}_2\text{O}_7:\text{Eu}^{2+}$ 與 $\text{Ca}_8\text{Mg}(\text{SiO}_4)_4\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}, \text{Mn}^{2+}$ 均是常用的 LED 轉換綠光螢光材料，具有色純度高以及高發光效能等優點。另外 $\text{BaAl}_{12}\text{O}_{19}:\text{Mn}^{2+}$ 也是另一種綠光螢光材料的選擇，同樣具有色純度高的優點 (S. Shionoya and W. M. Yen, Phosphor Handbook, Chap. 10, CRC Press, Boca Raton, FL (1998).)。

目前可以利用添加適當的稀土離子或過渡金屬離子來發掘新材料並提升綠光螢光材料的亮度，例如： $\text{SrAl}_{12}\text{O}_{19}:\text{La Eu}^{2+}, \text{Mn}^{2+}$ (Philips Technical Review, 37(1977) pp. 221-233)，係利用激發 Eu^{2+} 發出的藍光來激發 Mn^{2+} ，可得到高強度綠色放射光，並且具有較短的螢光衰減生命期。

【發明內容】

本發明之主要目的係提供一系列的螢光材料，具有新穎的組成成分。

本發明之另一目的係提供一系列螢光材料，用於發光裝置，可提供寬波段的綠光輻射源。

本發明之再一目的係提供一系列新穎組成的螢光材料，可搭配紅光螢光材料與藍光螢光材料，應用於白光發光裝置。

根據以上目的，本發明提供一種螢光材料，其化學通式如下： $A(B_{1-m}Eu_m^{2+})PO_4$ ；其中 A 係選自 Li、Na、K 所組成之族群至少其中之一；B 係選自 Ca、Sr、Ba 所組成之族群至少其中之一；其中 $0.0001 \leq m \leq 0.8$ 。

本發明接著提供一種發光裝置，包括一半導體光源以及一種螢光材料，此種螢光材料的化學通式為 $A(B_{1-m}Eu_m^{2+})PO_4$ ；其中 A 係選自 Li、Na、K 所組成之族群至少其中之一；B 係選自 Ca、Sr、Ba 所組成之族群至少其中之一；其中 $0.0001 \leq m \leq 0.8$ 。

【實施方式】

以下係藉由具體實施例進一步詳述本發明，熟習此項技藝之人士，可由本說明書所揭示之內容輕易了解本發明之特點及功效。本發明亦可藉由其他不同實施例加以實行或應用，本說明書中各項細節，亦可基於不同觀點在不悖離本發明之精神下，進行各種修飾與變更。

本發明之螢光材料係利用固態法於高溫所製備，以 $Na(Ca_{1-m}Eu_m^{2+})PO_4$ 為較佳實施例，該方法包括下列步驟：依化學計量秤取碳酸鈣($CaCO_3$)、碳酸鈉(Na_2CO_3)、三氧化二銻(Eu_2O_3)、磷酸氫二銨($(NH_4)_2HPO_4$)均勻混合後研磨 10 分鐘，放入坩堝中再置入高溫爐，於還原氣氛下約 $800^\circ C \sim 1200^\circ C$ 燒結數小時後，即可得到本發明揭露之螢光材料： $Na(Ca_{1-m}Eu_m^{2+})PO_4$ ，其中 $0.0001 \leq m \leq 0.8$ 。

以上方法中的碳酸鈣($CaCO_3$)可以改用碳酸鋇($SrCO_3$)或碳酸鋇($BaCO_3$)等各種不同的金屬碳酸鹽類；碳酸鈉(Na_2CO_3)可以改用成碳酸鋰(Li_2CO_3)或碳酸鉀(K_2CO_3)等各種不同的鹼金屬碳酸鹽類；選用不同的金屬鹽類可以得到本發明揭露之各種螢光材料。

根據以上方法所製備的 $\text{Na}(\text{Ca}_{0.995}\text{Eu}_{0.005})\text{PO}_4$ 與 $\text{K}(\text{Ca}_{0.995}\text{Eu}_{0.005})\text{PO}_4$ ，其 X 光粉末繞射圖譜如第 1 圖所示，利用 X 光繞射方法進行晶相鑑定的結果顯示，本發明中所合成之兩主體為單相螢光材料，其中並無觀察到任何其他雜質存在。

如第 2 圖所示，係利用螢光光譜儀 (Spectrofluorometer) 所偵測本發明之一較佳實施例所製備 $\text{Na}(\text{Ca}_{0.995}\text{Eu}_{0.005})\text{PO}_4$ 螢光材料之激發及放射光普，結果顯示本發明 $\text{Na}(\text{Ca}_{0.995}\text{Eu}_{0.005})\text{PO}_4$ 從紫外經近紫外光至藍光區域有一非常寬廣的吸收，其主放射波峰波長約為 501 nm，且其帶寬約為 200 nm 之發射帶，證實本發明之螢光材料在可被波長約 280 nm 至約 450 nm 之間的紫外光、近紫外光或藍光的輻射源所激發，且本身放射綠光，放光強度達 10^7 cps 以上。

如第 3 圖所示，利用螢光光譜儀所偵測本發明之一較佳實施例所製備 $\text{K}(\text{Ca}_{0.995}\text{Eu}_{0.005})\text{PO}_4$ 螢光材料之激發及放射光普，結果顯示本發明 $\text{K}(\text{Ca}_{0.995}\text{Eu}_{0.005})\text{PO}_4$ 從紫外經近紫外光至藍光區域有一非常寬廣的吸收，本實施例中主放射波峰波長約為 475 nm，放光強度達 10^7 cps 以上。

由第 2 圖與第 3 圖可得知，本發明提供之螢光材料，其主放射波峰波長係界於約 475nm 至約 501nm 之間，且其發射帶帶寬主要界於約 450nm 至約 600nm 之間，且放光強度皆可到達 10^7 cps 以上。

第 4 圖所示為本發明所合成之一 $\text{Na}(\text{Ca}_{0.995}\text{Eu}_{0.005})\text{PO}_4$ 螢光材料與日本化成公司(Kasei Optonix)產品 LP-G3 ($\text{BAM}:\text{Eu}^{2+}, \text{Mn}^{2+}$) 的光致發光與激發光譜之比較，本發明在藍光激發頻寬範圍較 LP-G3 ($\text{BAM}:\text{Eu}^{2+}, \text{Mn}^{2+}$) 為寬，且放光強度與 LP-G3 相近，有利於藍光激發光二極體之應用。

目前市場上容易取得之紫外光 LED 晶片具有 365 nm 的激發波長，第 5 圖所示係以 365 nm 所測得之本發明揭露之 $\text{Na}(\text{Ca}_{0.995}\text{Eu}_{0.005})\text{PO}_4$ 與日本化成公司產品 LP-G3 ($\text{BAM}:\text{Eu}^{2+}, \text{Mn}^{2+}$) 發光光譜之比較，本發明之發射帶涵蓋波長範圍較寬，且輝度值(發射帶之積分面積)相近，並具有高量子效率。

目前市場上極容易取得之近紫外光 LED 晶片具有 400nm 的激發波長，第 6 圖所示係以 400nm 為激發波長所測得本發明所揭露之 $\text{Na}(\text{Ca}_{0.995}\text{Eu}_{0.005})\text{PO}_4$ 與日本化成公司產品 LP-G3 ($\text{BAM}:\text{Eu}^{2+}, \text{Mn}^{2+}$) 激發光譜之比較，本發明之放光強度與 LP-G3 相近，但發射帶涵蓋波長較寬，且輝度值(發射帶之積分面積)相近，並具有高量子效率。

第 7 圖所示係本發明所合成之一 $\text{Na}(\text{Ca}_{0.995}\text{Eu}_{0.005})\text{PO}_4$ 、 $\text{K}(\text{Ca}_{0.995}\text{Eu}_{0.005})\text{PO}_4$ 螢光材料與日本化成公司產品 LP-G3 ($\text{BAM}:\text{Eu}^{2+}, \text{Mn}^{2+}$) 之色度坐標之比較， $\text{Na}(\text{Ca}_{0.995}\text{Eu}_{0.005})\text{PO}_4$ 與 $\text{K}(\text{Ca}_{0.995}\text{Eu}_{0.005})\text{PO}_4$ 之色度座標分別位於(0.22, 0.47)與(0.20, 0.46)之處，其中 $\text{Na}(\text{Ca}_{0.995}\text{Eu}_{0.005})\text{PO}_4$ 之色度值與 LP-G3 ($\text{BAM}:\text{Eu}^{2+}, \text{Mn}^{2+}$) 相近，為藍綠光。

第 8 圖所示係為本發明所揭露之一 $\text{Na}(\text{Ca}_{1-m}\text{Eu}_m^{2+})\text{PO}_4$ 螢光材料在 Eu^{2+} 摻雜濃度為 0.001 至 0.01 情況下，發光強度、相對輝度與 Eu^{2+} 摻雜濃度之關係，結果顯示：在 Eu^{2+} 摻雜約為 0.005 時，該螢光材料具有最佳發光強度及輝度值。

第 9 圖為本發明所揭露之一 $\text{Na}(\text{Ca}_{0.995}\text{Eu}_{0.005})\text{PO}_4$ 螢光材料與主體 NaCaPO_4 漫反射光譜之比較，係用以偵測本發明揭露之螢光材料 $\text{Na}(\text{Ca}_{0.995}\text{Eu}_{0.005})\text{PO}_4$ 之吸收波段，結果顯示當 NaCaPO_4 未摻雜 Eu^{2+} 時，僅在約 200~230 nm 範圍有吸收，此吸收為主體之吸收波段；當摻入 Eu^{2+} 離子後，可觀察到波長在約 230nm 至約 450nm 波段範圍出現一極寬吸收帶，證明此螢光材料具備有效吸收紫外光、近紫外光及藍光波長之能力。

本發明所揭露之螢光材料，可應用於發光裝置，發光裝置係包括一半導體光源，例如：發光二極體或雷射二極體，此半導體光源可發出紫外光、近紫外光或藍光之光源。當半導體光源搭配本發明之螢光材料時，可放射綠光。

若發光裝置進一步包含一紅光螢光材料以及一藍光螢光材料時，此發光裝置可發出白光或近似於白光之光源，其中的紅光材料可使用

(Sr,Ca)S:Eu²⁺、(Y,La,Gd,Lu)₂O₃:Eu³⁺,Bi³⁺、(Y,La,Gd,Lu)₂O₂S:Eu³⁺,Bi³⁺、Ca₂Si₅N₈:Eu²⁺或 ZnCdS:AgCl 等。其中該藍光螢光材料可選用 BaMgAl₁₀O₁₇:Eu²⁺。

綜上所述，本發明所提供的螢光材料不僅具有新穎的組成成分，且具有寬廣的激發範圍(從紫外光到藍光區域)，可搭配易取得之紫外光 LED 晶片。此外，本發明所提供之螢光材料，具有高放光強度，最佳可達 10⁷cps 以上，可供應用於製作各式發光裝置；本發明所提供之螢光材料可搭配紅光螢光材料與藍光螢光材料，適用於白光發光裝置。

以上所述僅為本發明較佳實施例而已，並非用以限定本發明申請專利權利；同時以上的描述對於熟之本技術領域之專門人士應可明瞭與實施，因此其他未脫離本發明所揭示之精神下所完成的等效改變或修飾，均應包含於下述之申請專利範圍。

【圖式簡單說明】

- 第 1 圖 係本發明較佳實施例之 X 光粉末繞射圖譜
- 第 2 圖 係本發明之一較佳實施例之激發與螢光放射光譜
- 第 3 圖 係本發明之一較佳實施例之激發與螢光放射光譜
- 第 4 圖 係本發明之一較佳實施例與 LP-G3 (BAM:Eu²⁺, Mn²⁺) 之激發與螢光放射光譜之比較圖
- 第 5 圖 係本發明之一較佳實施例與 LP-G3 (BAM:Eu²⁺, Mn²⁺) 之螢光放射光譜之比較圖
- 第 6 圖 係本發明之一較佳實施例與 LP-G3 (BAM:Eu²⁺, Mn²⁺) 之螢光放射光譜之比較圖
- 第 7 圖 係本發明之一較佳實施例與 LP-G3 (BAM:Eu²⁺, Mn²⁺) 之色度座標之比較圖
- 第 8 圖 係本發明一系列較佳實施例之發光強度、相對輝度值與鎔離子摻雜濃度之關係圖

第9圖 係本發明之一較佳實施例之銻離子摻雜與未摻雜的主體漫反射光譜之比較圖

【主要元件符號說明】

無

十、申請專利範圍：

1. 一種螢光材料，其化學通式如下：



其中 A 係選自 Li、Na 所組成之族群至少其中之一；B 係選自 Ca、Sr、Ba 所組成之族群至少其中之一；其中

$$0.0001 \leq m \leq 0.8$$

2. 如申請專利範圍第 1 項所述之螢光材料，其中

$$0.001 \leq m \leq 0.01$$

3. 如申請專利範圍第 1 項所述之螢光材料，其中該螢光材料係可為紫外光、近紫外光以及藍光所激發。

4. 如申請專利範圍第 1 項所述之螢光材料，其中該螢光材料係可為波長約 280nm 至約 450nm 輻射源所激發。

5. 如申請專利範圍第 1 項所述之螢光材料，其中該螢光材料係可為波長約 365nm 之輻射源所激發。

6. 如申請專利範圍第 3 項所述之螢光材料，其中該螢光材料之放射波長範圍係界於約 450nm 至約 600nm 之間。

7. 如申請專利範圍第 3 項所述之螢光材料，其中該螢光材料主放射波峰波長係界於約 475nm 至約 501nm 之間。

如申請專利範圍第 1 項所述之螢光材料，其中該螢光材料之 CIE 座標值之 x 值約為 0.20-0.23，y 值約為 0.46-0.48。

8. 如申請專利範圍第 1 項所述之螢光材料，其中該螢光材料的放光強度係達 10^7 cps 以上。

9. 一種螢光材料，其化學通式如下：



其中 B 係選自 Ca、Ba 所組成之族群至少其中之一；其中

$$0.0001 \leq m \leq 0.8$$

10. 如申請專利範圍第 9 項所述之螢光材料，其中

$$0.001 \leq m \leq 0.01$$

11. 如申請專利範圍第 9 項所述之螢光材料，其中該螢光材料係可為紫外光、近紫外光以及藍光所激發。
12. 如申請專利範圍第 9 項所述之螢光材料，其中該螢光材料係可為波長約 280nm 至約 450nm 輻射源所激發。
13. 如申請專利範圍第 9 項所述之螢光材料，其中該螢光材料係可為波長約 365nm 之輻射源所激發。
14. 如申請專利範圍第 11 項所述之螢光材料，其中該螢光材料之放射波長範圍係界於約 450nm 至約 600nm 之間。
15. 如申請專利範圍第 11 項所述之螢光材料，其中該螢光材料主放射波峰波長係界於約 475nm 至約 501nm 之間。
16. 如申請專利範圍第 9 項所述之螢光材料，其中該螢光材料之 CIE 座標值之 x 值約為 0.20-0.23，y 值約為 0.46-0.48。
17. 如申請專利範圍第 9 項所述之螢光材料，其中該螢光材料的放光強度係達 10^7 cps 以上。
18. 一種發光裝置，包括：
 - 一半導體光源；以及
 - 一種螢光材料，其化學通式如下：



其中 A 係選自 Li、Na 所組成之族群至少其中之一；B 係選自 Ca、Sr、Ba 所組成之族群至少其中之一；其中

$$0.0001 \leq m \leq 0.8$$

19. 如申請專利範圍第 18 項所述之發光裝置，其中 m 之值為 0.005。
20. 如申請專利範圍第 18 項所述之發光裝置，其中該半導體光源包括一發光二極體。
21. 如申請專利範圍第 18 項所述之發光裝置，其中該半導體光源包括一雷射二

極體。

22. 如申請專利範圍第 18 項所述之發光裝置，其中該半導體光源係可發出紫外光、近紫外光或藍光之光源。
23. 如申請專利範圍第 18 項所述之發光裝置，其中更進一步包含一紅光螢光材料以及一藍光螢光材料。
24. 如申請專利範圍第 18 項所述之發光裝置，其中該螢光材料可為紫外光、近紫外光以及藍光所激發。
25. 如申請專利範圍第 18 項所述之發光裝置，其中該螢光材料係可為波長約 280nm 至約 450nm 之輻射源所激發。
26. 如申請專利範圍第 18 項所述之發光裝置，其中該螢光材料係可為波長約 365nm 之輻射源所激發。
27. 如申請專利範圍第 18 項所述之發光裝置，其中該螢光材料之放射波長範圍係界於約 450nm 至約 600nm 之間。
28. 如申請專利範圍第 18 項所述之發光裝置，其中該螢光材料主放射波峰波長係界於約 475nm 至約 501nm 之間。
29. 如申請專利範圍第 18 項所述之發光裝置，其中該螢光材料之 CIE 座標值之 x 值約為 0.20-0.23，y 值約為 0.46-0.48。
30. 如申請專利範圍第 23 項所述之發光裝置，其中該紅光螢光材料包括 $(\text{Sr,Ca})\text{S}:\text{Eu}^{2+}$ 、 $(\text{Y,L a,Gd,Lu})_2\text{O}_3:\text{Eu}^{3+},\text{Bi}^{3+}$ 、 $(\text{Y,L a,Gd,Lu})_2\text{O}_2\text{S}:\text{Eu}^{3+},\text{Bi}^{3+}$ 、 $\text{Ca}_2\text{Si}_5\text{N}_8:\text{Eu}^{2+}$ 或 $\text{ZnCdS}:\text{AgCl}$ 。
31. 如申請專利範圍第 23 項所述之發光裝置，其中該藍光螢光材料係 $\text{BaMgAl}_{10}\text{O}_{19}:\text{Eu}^{2+}$ 。
32. 一種發光裝置，包括：
 - 一半導體光源；以及
 - 一種螢光材料，其化學通式如下：



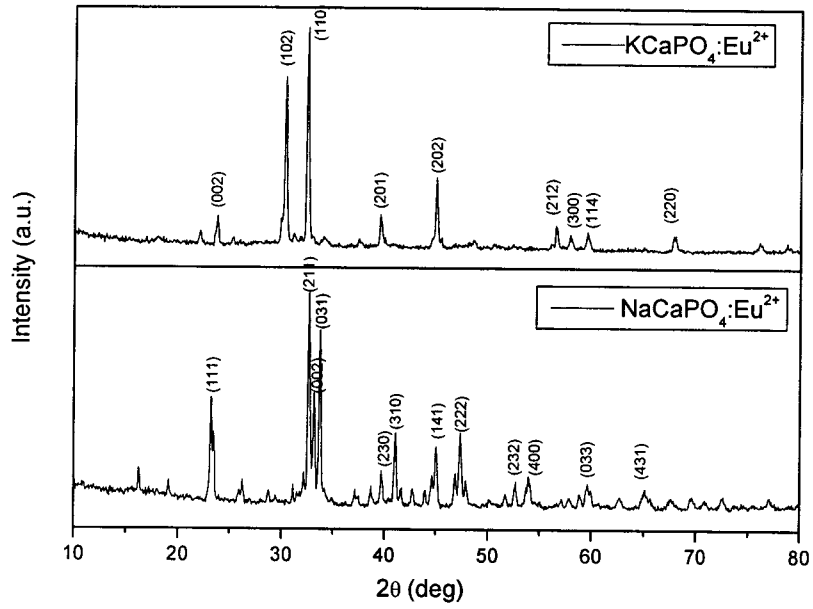
其中 B 係選自 Ca、Ba 所組成之族群至少其中之一；其中

$$0.0001 \leq m \leq 0.8$$

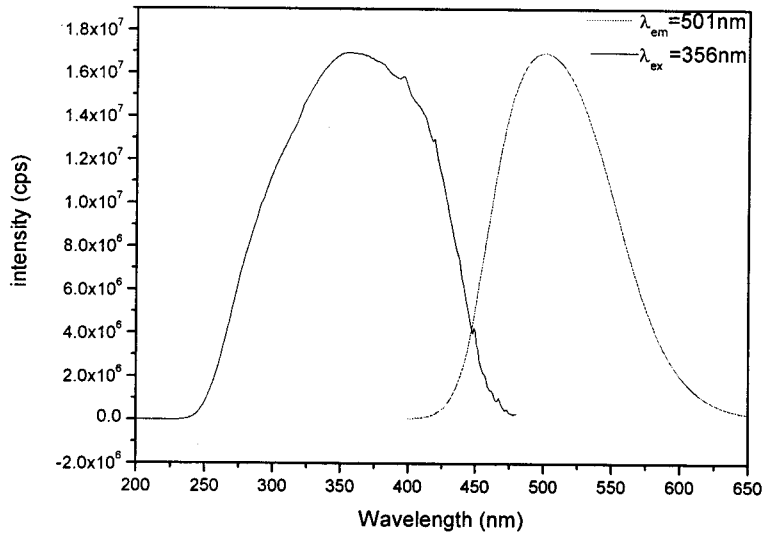
33. 如申請專利範圍第 32 項所述之發光裝置，其中 m 之值為 0.005。
34. 如申請專利範圍第 32 項所述之發光裝置，其中該半導體光源包括一發光二極體。
35. 如申請專利範圍第 32 項所述之發光裝置，其中該半導體光源包括一雷射二極體。
36. 如申請專利範圍第 32 項所述之發光裝置，其中該半導體光源係可發出紫外光、近紫外光或藍光之光源。
37. 如申請專利範圍第 32 項所述之發光裝置，其中更進一步包含一紅光螢光材料以及一藍光螢光材料。
38. 如申請專利範圍第 32 項所述之發光裝置，其中該螢光材料可為紫外光、近紫外光以及藍光所激發。
39. 如申請專利範圍第 32 項所述之發光裝置，其中該螢光材料係可為波長約 280nm 至約 450nm 之輻射源所激發。
40. 如申請專利範圍第 32 項所述之發光裝置，其中該螢光材料係可為波長約 365nm 之輻射源所激發。
41. 如申請專利範圍第 32 項所述之發光裝置，其中該螢光材料之放射波長範圍係界於約 450nm 至約 600nm 之間。
42. 如申請專利範圍第 32 項所述之發光裝置，其中該螢光材料主放射波峰波長係界於約 475nm 至約 501nm 之間。
43. 如申請專利範圍第 32 項所述之發光裝置，其中該螢光材料之 CIE 座標值之 x 值約為 0.20-0.23，y 值約為 0.46-0.48。
44. 如申請專利範圍第 37 項所述之發光裝置，其中該紅光螢光材料包括 $(\text{Sr,Ca})\text{S}:\text{Eu}^{2+}$ 、 $(\text{Y,La,Gd,Lu})_2\text{O}_3:\text{Eu}^{3+},\text{Bi}^{3+}$ 、 $(\text{Y,La,Gd,Lu})_2\text{O}_2\text{S}:\text{Eu}^{3+},\text{Bi}^{3+}$ 、 $\text{Ca}_2\text{Si}_5\text{N}_8:\text{Eu}^{2+}$ 或 $\text{ZnCdS}:\text{AgCl}$ 。

45. 如申請專利範圍第 37 項所述之發光裝置，其中該藍光螢光材料係 $\text{BaMgAl}_{10}\text{O}_{19}:\text{Eu}^{2+}$ 。

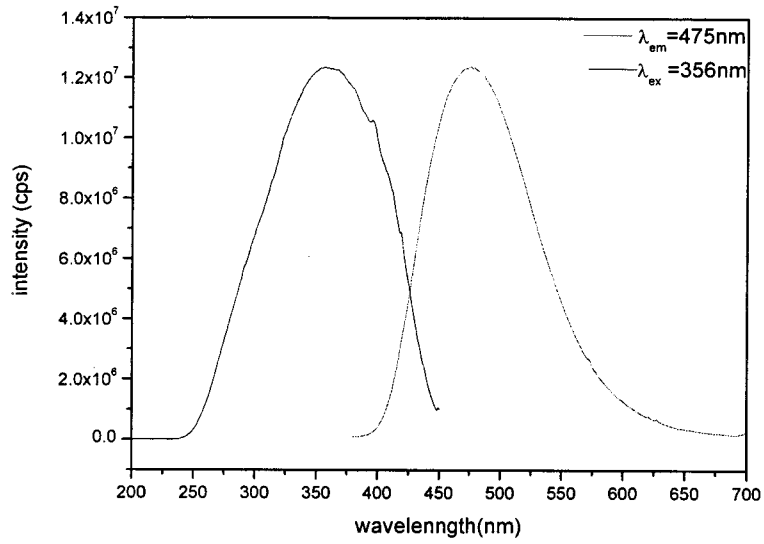
十一、圖式：



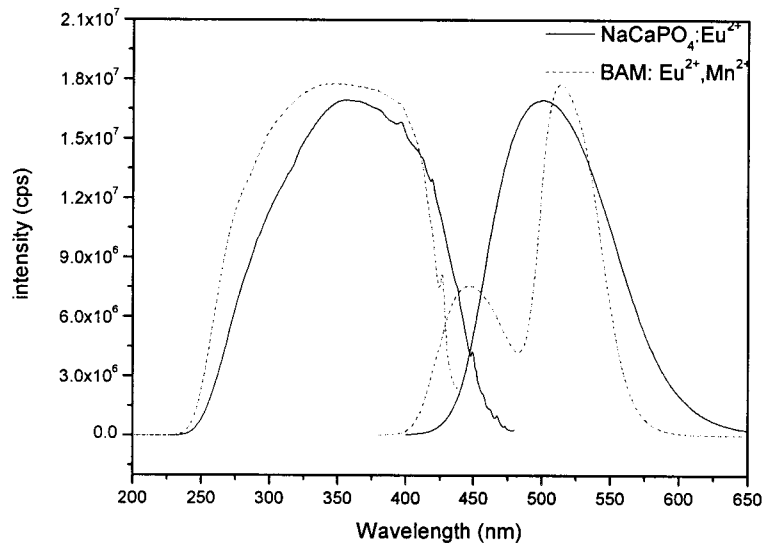
第 1 圖



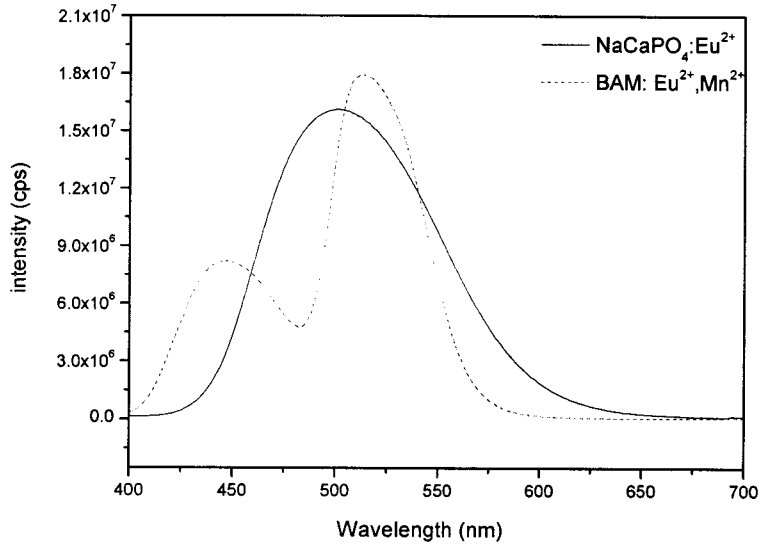
第 2 圖



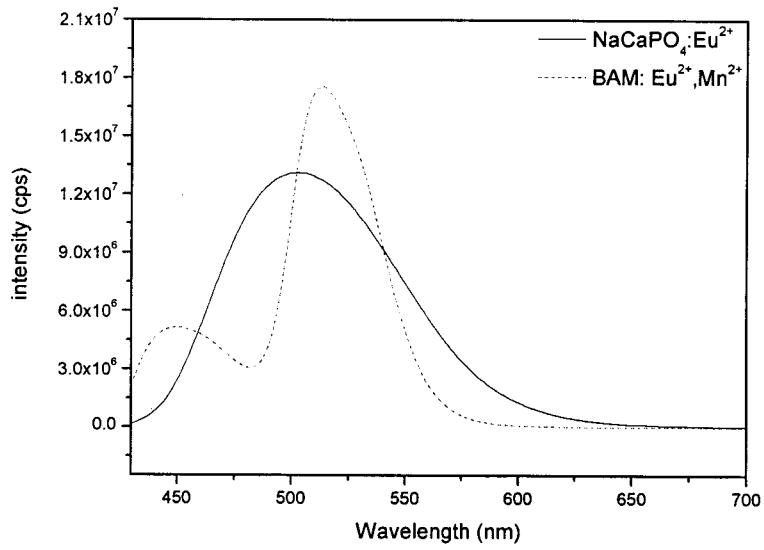
第 3 圖



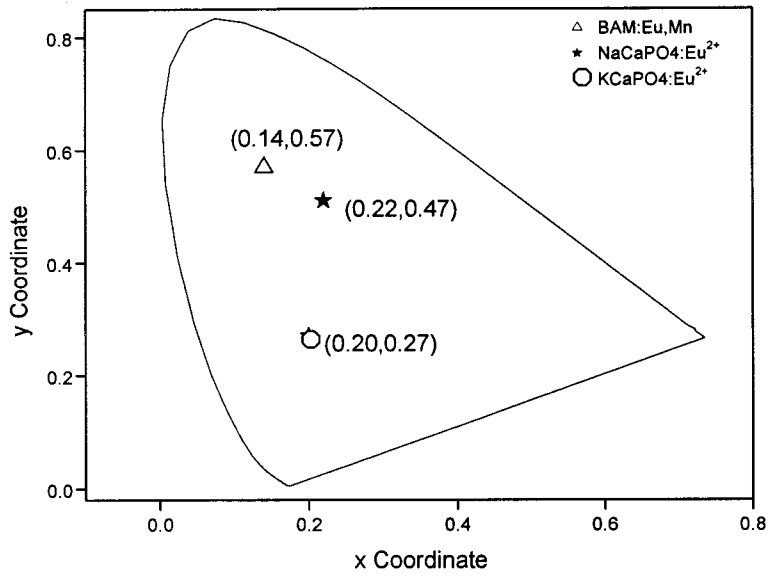
第 4 圖



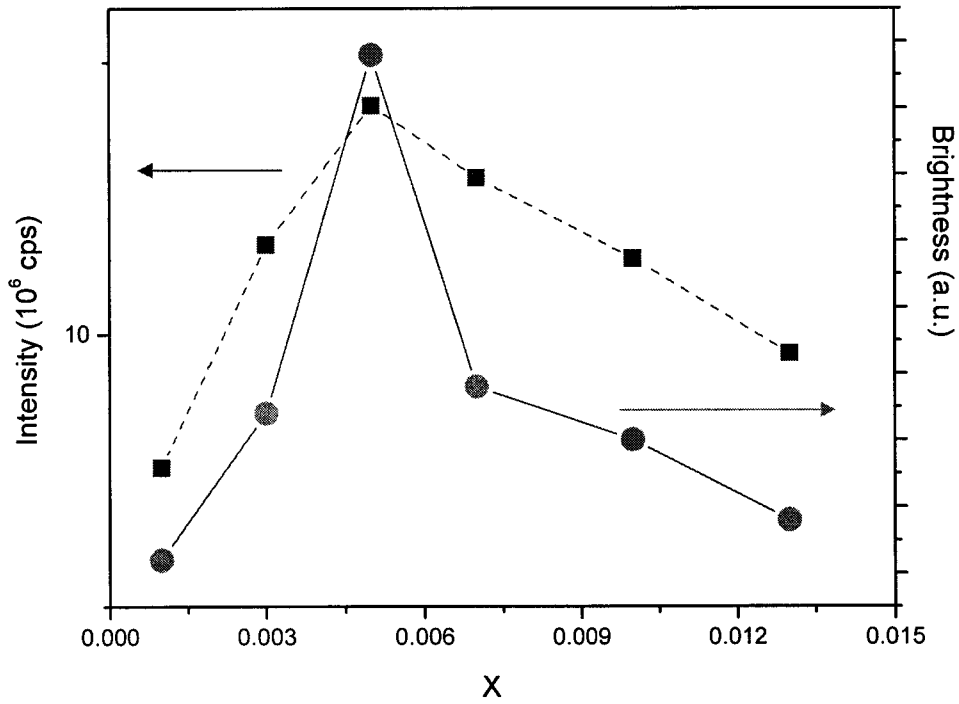
第 5 圖



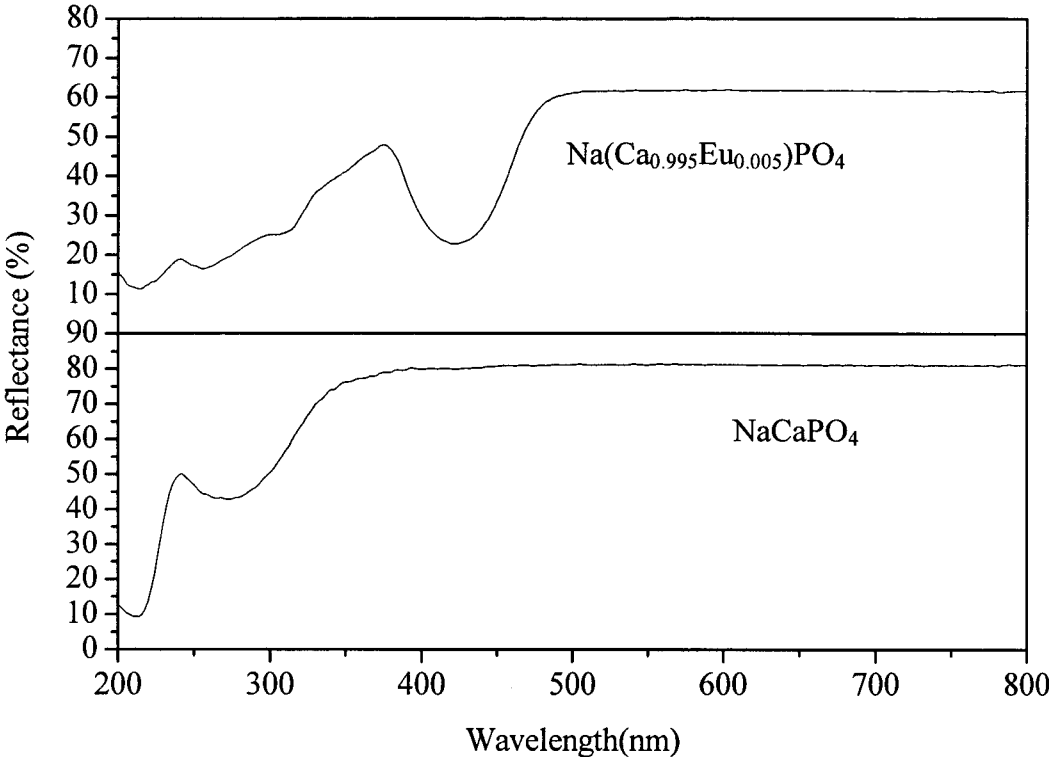
第 6 圖



第 7 圖



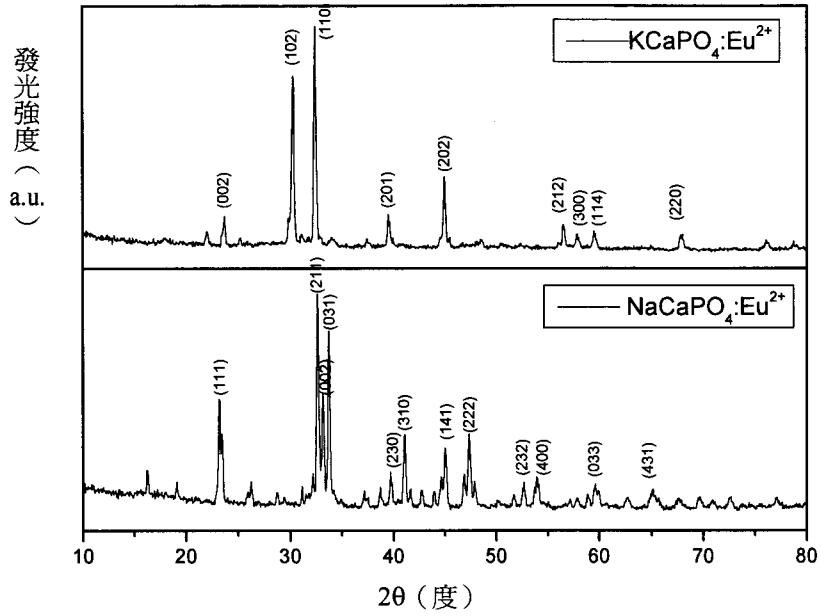
第 8 圖



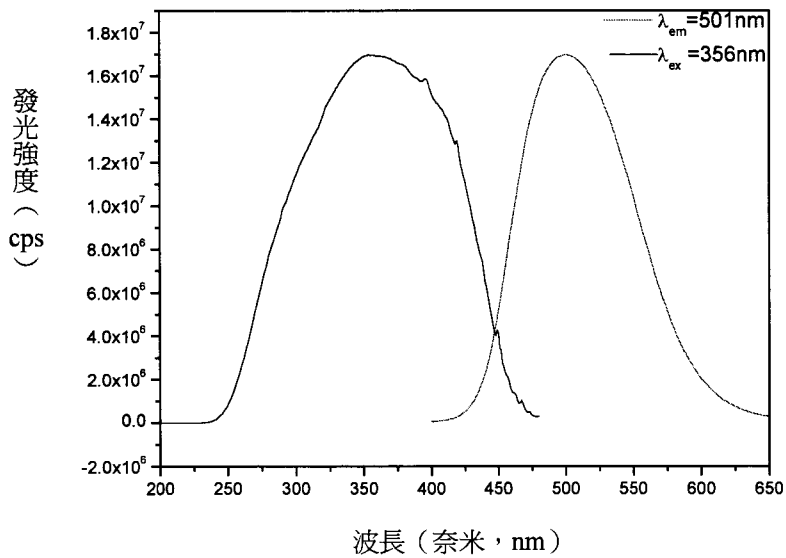
第 9 圖

十一、圖式：

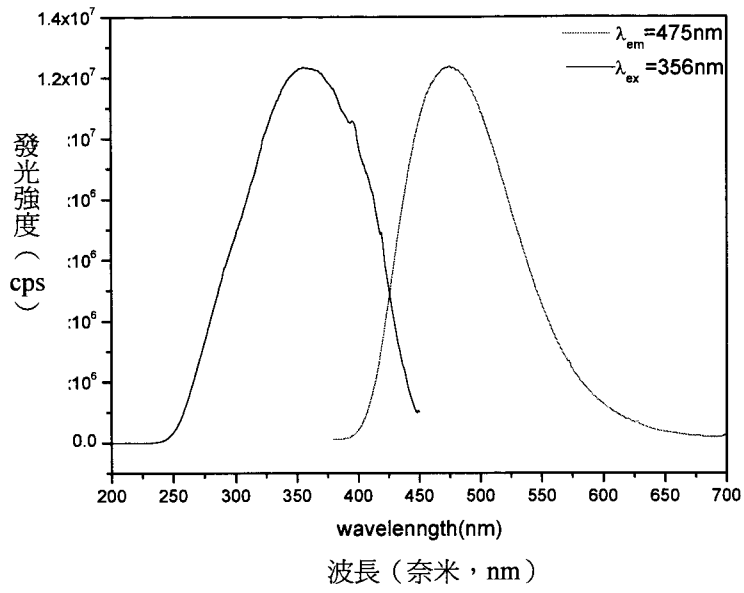
96 12 10



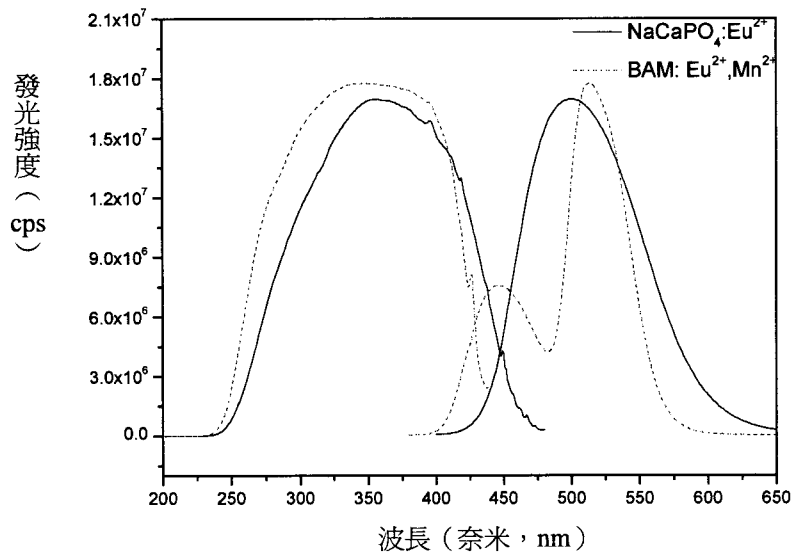
第 1 圖



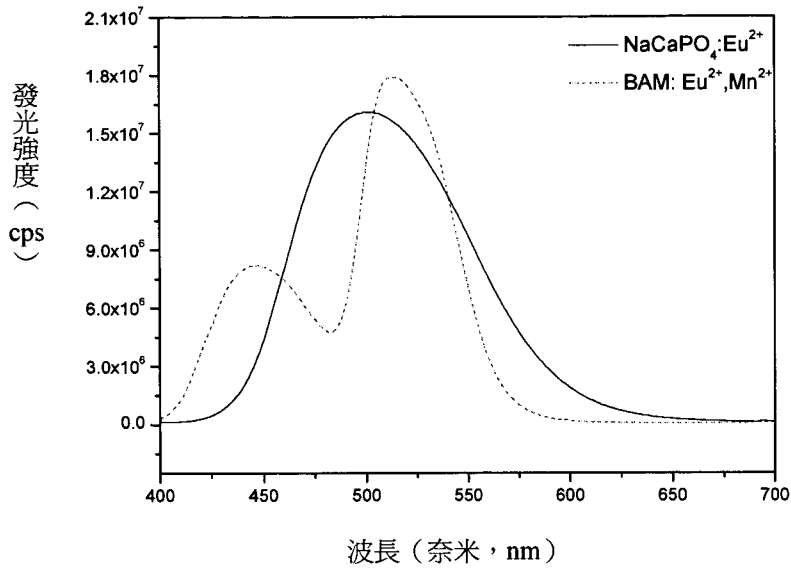
第 2 圖



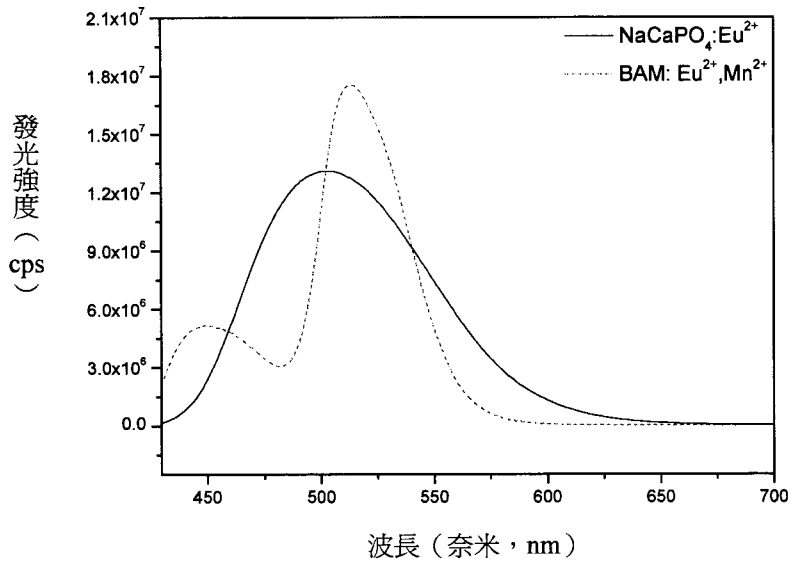
第 3 圖



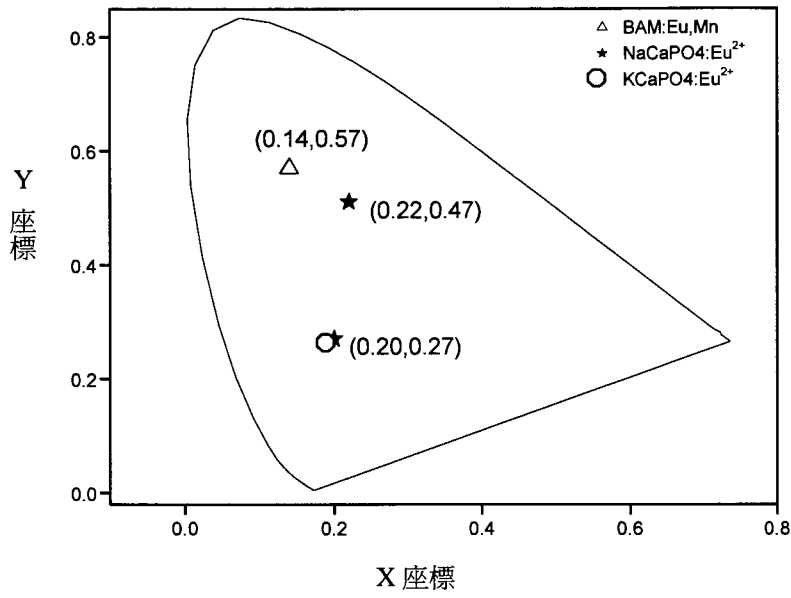
第 4 圖



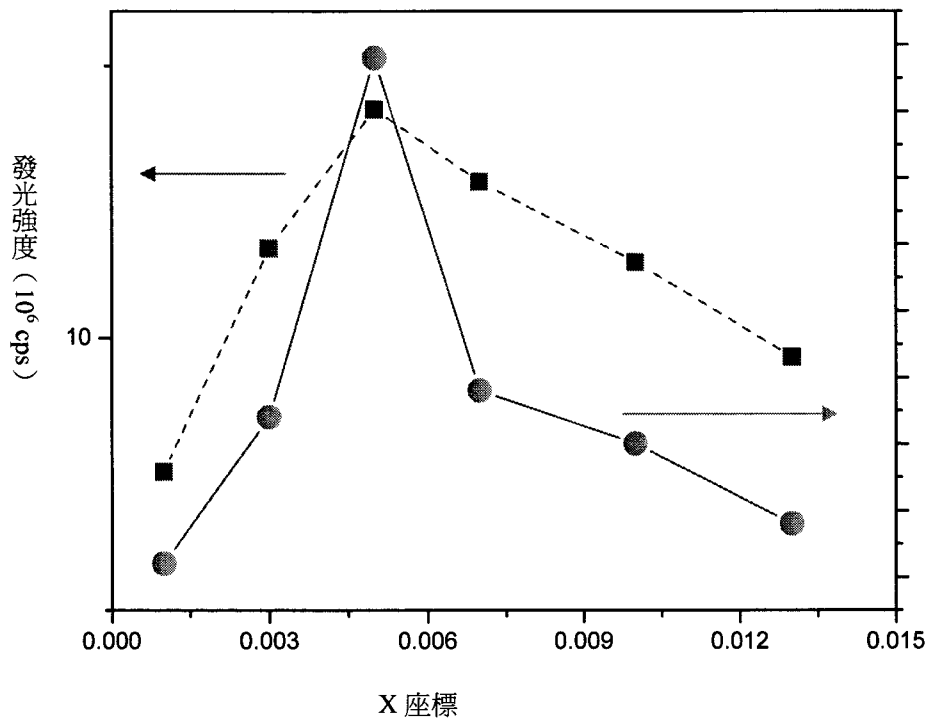
第 5 圖



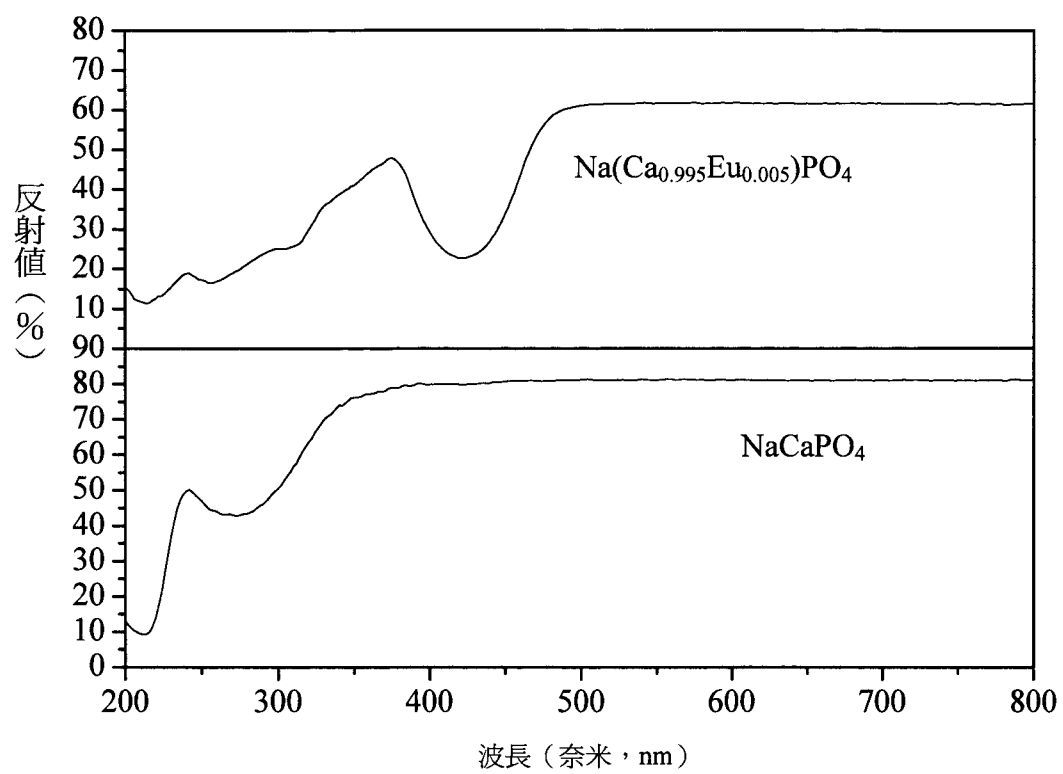
第 6 圖



第 7 圖



第 8 圖



第 9 圖