

200904948

發明專利說明書

PD1072328

(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：96127244

※申請日期：96.7.16

※IPC分類：C09K11/66 (2006.01)

一、發明名稱：(中文/英文)

新穎螢光體與其製造方法

A NOVEL PHOSPHOR AND FABRICATION OF THE SAME

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

1001 TA-HSUEH RD., HSINCHU, 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/CHEN, TENG-MING

2. 邱奕禎/CHIU, YI-CHEN

國 籍：(中文/英文)

1. ~ 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：

本案未在國外申請專利

無主張專利法第二十七條第一項國際優先權：

主張專利法第二十九條第一項國內優先權：

【格式請依：申請日、申請案號 順序註記】

主張專利法第三十條生物材料：

須寄存生物材料者：

國內生物材料 【格式請依：寄存機構、日期、號碼 順序註記】

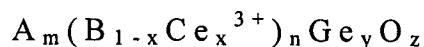
國外生物材料 【格式請依：寄存國家、機構、日期、號碼 順序註記】

不須寄存生物材料者：

所屬技術領域中具有通常知識者易於獲得時，不須寄存。

五、中文發明摘要：

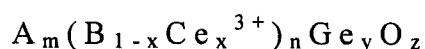
本發明係提供一系列新穎化學組成之螢光體，係為下列一般式所示：



其中 A 為選自於 Ca、Sr、Ba 所組成之群組中至少一元素；B 為選自於 La、Y、Gd 所組成之群組中至少一元素；m、n、y、z 分別為大於 0 之數值，且符合 $2m+3n+4y=2z$ 之計算式；以及 x 之數值範圍為 $0.0001 \leq x \leq 0.8$ 。

六、英文發明摘要：

The present invention provides a light emitting diode-converted phosphor compound having the following chemical formula:



wherein A is at least one element selected from the group consisting of Ca, Sr and Ba; B is at least one element selected from the group consisting of La, Y and Gd; m, n, y and z is more than 0 respectively, and $2m+3n+4y=2z$; and $0.0001 \leq x \leq 0.8$.

200904948

七、指定代表圖：

(一)本案指定代表圖為：第 5 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】

本發明係提供一系列新穎化學組成螢光體及其製法，特別是用於發光裝置上之螢光體組成物。

【先前技術】

利用發光二極體 (light-emitting diode, LED) 而產生與太陽光色相似之白光，以全面取代傳統日光燈等白光照明光源，已是本世紀照明光源科技領域積極研發的目標。因為與傳統光源相比，發光二極體比傳統照明設備高出 10 倍以上的使用壽命，而且體積小、亮度高，在製作過程與廢棄物處理上均較傳統光源具備成本低廉與環保等優點。因此，發光二極體早已被全世界視為下一世代的光源。

目前白光發光二極體之製作技術主要可分為單晶片及多晶片型，其中多晶片型使用紅、綠與藍色三色發光二極體混成白光，此方式之優點為其可視不同需要而調整光色，但由於同時要使用多個發光二極體，故其成本較高，而且因三色發光二極體所屬材料均不相同，故其驅動電壓亦有所差異，而必須設計三套分別控制電流之電路。此外，三種發光二極體晶片之衰減速率、溫度特性及壽命不盡相同，因此將導致混成之白光光色隨時間產生變化。所以目前商品化之白光發光二極體之產品與未來之趨勢仍以單晶片行为主流。至於單晶片型製作技術主要有下列三種：

(1) 藍色發光二極體配合黃光螢光體，其係為利用藍光發光二極體激發可發黃光之螢光體，其所使用之螢光體主

要為鈇鋁石榴石結構與 $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}^{3+}$ (或 YAG)化學組成之螢光體，其所發出的黃光與未被吸收之藍光混合，即可產生白光。目前商品化之白光發光二極體多屬這種方式製作。此種發光二極體的優點在於其單一晶片即可發出自白光，成本低、製作簡單，但其卻有發光效率低、演色性差、不同輸出電流導致光色改變、容易有光色不均等缺點。

(2) 藍色發光二極體配合紅色與綠色螢光體，其係利用藍光發光二極體分別激發可發出紅、綠光之螢光體，所使用之螢光體主要以含硫之螢光體為主，其所發出的紅、綠光與未被吸收之藍光混合，即可產生白光。此種發光二極體的優點在於其光譜為三波長分布，演色性較高、光色及光溫可調。

(3) UV-發光二極體配合紅、綠與藍色三色螢光體，其係利用 UV-發光二極體產生之紫外光同時激發三種或三種以上可分別發出紅、藍與綠光之螢光體，以將所發射出之三色光混成白光，此一技術產生白光之方式類似日光燈。其具有高演色性、光色及光溫可調，使用高轉換效率螢光體組成物可提高其發光效率、且光色均勻不隨電流變化等優點，但其具有粉體混合困難，高效率螢光體尋找不易等缺點。

而該螢光體，亦即所謂的螢光轉換材料(螢光轉換組成物； phosphors)係可將紫外光或藍色光轉換為不同波長的可見光。而其所產生的可見光顏色則取決於螢光體的特定成份。該螢光體組成物可能僅含有單一種螢光體或者兩種或兩種以上的螢光體。而要將發光二極體作為光源，則需要能夠

產生更亮更白的光線才可以作為發光二極體燈具使用。因此，將螢光體塗佈於發光二極體上以產生成白光。而每一種螢光體在不同的波長激發下均可轉換為不同的顏色的光，例如在近紫外光或藍光發光二極體之 $250\text{nm} \sim 500\text{nm}$ 波長下，則可轉換為可見光。而由激發螢光體轉換而成的可見光具有高強度與高亮度的特性。

就人類的視覺觀點而言，感覺上同樣的色彩實際上卻有可能是由不同波長的色光所混合產生的效果，而紅、藍、綠三原色光按照不同比例的搭配，可以在視覺上感受不同色彩的光，此乃三原色原理。國際照明委員會(CIE, Commission Internationale de l'Eclairage)確定了原色當量單位，標準的白光光通量比為： $\Phi_r : \Phi_g : \Phi_b = 1 : 4.5907 : 0.0601$

原色光單位確定後，白光 F_w 的配色關係為：

$$F_w = 1[R] + 1[G] + [B]$$

其中 R 代表紅光，G 代表綠光，B 代表藍光。

對任意一彩色光 F 而言，其配方程式為 $F_w = r[R] + g[G] + b[B]$ ，其中 r、g、b 為紅、藍、綠三色係數（可由配色實驗測得），其對應的光通量(Φ)為： $\Phi = 680(R + 4.5907G + 0.0601B)$ 流明(lumen，簡稱 lm，為照度單位)，其中 r、g、b 的比例關係決定了所配色的光之色彩度(色彩飽和程度)，它們的數值則決定了所配成彩色光的亮度。 $r[R]$ 、 $g[G]$ 、 $b[B]$ 通稱為物理三原色，三色係數間的關係，可以利用矩陣加以表示，經過標準化(normalization)之後可以寫成： $F = X[X] + Y[Y] + Z[Z] = m\{x[X] + y[Y] + z[Z]\}$ ，其中 $m = X + Y + Z$

且 $x = (X/m)$ 、 $y = (Y/m)$ 、 $z = (Z/m)$ 。每一個發光波長都分別有對應的 r 、 g 、 b 值，將可見光區範圍的合為 X ， g 值相加總合為 Y ， b 值相加總合為 Z ，因此我們可以使用 x 、 y 直角座標來表示螢光粉發光的色度，這就是我們所謂 C.I.E.1931 標準色度學系統，簡稱 C.I.E. 色度座標。當光譜量測後，計算各個波長光線對光譜的貢獻，找出 x 、 y 值後，在色度座標圖上標定出正確的座標位置，也就可以定義出螢光粉所發出光之色度值。

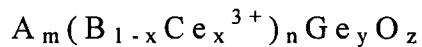
然而，在利用藍光與 UV- 發光二極體搭配不同顏色螢光體之白光二極體的應用上，螢光體的搭配係為最重要之關鍵，因此目前世界上各國國際光電大廠無不積極尋找發光轉換效率高、色飽和度良好之螢光體，以製作成高演色性的白光發光二極體。

有鑑於此，若能提供一種可以改善光源演色係數，同時達到高穩定、成本低廉之螢光體，並使其能應用於白光發光二極體裝置之螢光層，則可以用以取代現今發光二極體的轉換螢光體商品，且更能對白光發光二極體的色溫進行調控，並有效提升其演色性。

【發明內容】

本發明揭露一種製備成本低廉、材料穩定且可供激發範圍寬廣 ($300 \sim 500$ nm，亦即紫外至藍光)，且具有新穎化學配方之綠光螢光體，可供發射藍、近紫外或紫外光之發光二極體 (LED) 或雷射二極體 (LD) 與匹配適當之紅、藍 (或綠) 光螢光粉，而有效製作成高演色性白光發光裝置。

本發明係提供一系列新穎化學組成螢光體，係為摻雜三價鈰離子鹼土鋯酸鹽類化合物，且為下列一般式所示：



其中 A 為選自於 Ca、Sr、Ba 所組成之群組中至少一元素；B 為選自於 La、Y、Gd 所組成之群組中至少一元素；m、n、y、z 分別為大於 0 之數值，且符合 $2m + 3n + 4y = 2z$ 之計算式；以及 x 之數值範圍為 $0.0001 \leq x \leq 0.8$ 。而 Ca 與 Sr 以及 Ba 等離子價數或氧化數均為 2^+ ，而且三者的化學性質相似；而 La, Gd 與 Y 級子價數亦均為 3^+ ，而且三者的離子半徑、化學性質相似。且該螢光體可藉由一發光元件所發射之一次輻射而激發該螢光體產生二次輻射，其中該發光元件所發射之一次輻射的發光光譜之波長係在 $300\text{nm} \sim 500\text{nm}$ 之範圍，且該螢光體所被激發的二次輻射發光光譜波長較該發光元件之一次輻射發光光譜波長更長。

特別是該發光元件所發射之一次輻射的發光光譜之波長較佳係在 $320\text{nm} \sim 480\text{nm}$ 之範圍，以激發本發明之一螢光體 $Ca_3(Y_{0.99}Ce_{0.01})_2Ge_3O_{12}$ 而產生二次輻射發光色調 CIE 色度座標 (x,y) 值可為 $0.20 \leq x \leq 0.40$, $0.40 \leq y \leq 0.60$ ，且產生之二次輻射發光波長在 CIE 色度座標中為綠光。此外，該發光元件所發射之一次輻射的發光光譜之波長更佳為在 $350\text{nm} \sim 470\text{nm}$ 範圍，以激發該螢光體而產生之二次輻射發光色調 CIE 色度座標 (x,y) 值為 $0.25 \leq x \leq 0.35$, $0.45 \leq y \leq 0.55$ 。其中，最佳為該發光元件所發射之一次輻射的發光光譜之波長係在 $400\text{nm} \sim 440\text{nm}$ 範圍，以激發該螢光體而產生二次

輻射發光光譜波長為 450 nm ~ 680 nm 之綠光。

特別是該發光元件所發射之一次輻射的發光光譜之波長較佳係在 310 nm ~ 400 nm 之範圍，以激發本發明之另一螢光體 $\text{Sr}_3(\text{Y}_{0.99}\text{Ce}_{0.01})_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ 而產生二次輻射發光色調 CIE 色度座標 (x,y) 值可為 $0.02 \leq x \leq 0.22$, $0.49 \leq y \leq 0.69$ ，且產生之二次輻射發光波長在 CIE 色度座標中為綠光。此外，該發光元件所發射之一次輻射的發光光譜之波長更佳為在 350 nm ~ 470 nm 範圍，以激發該螢光體而產生之二次輻射發光色調 CIE 色度座標 (x,y) 值為 $0.07 \leq x \leq 0.17$, $0.48 \leq y \leq 0.59$ 。其中，最佳為該發光元件所發射之一次輻射的發光光譜之波長係在 350 nm ~ 470 nm 範圍，以激發該螢光體而產生二次輻射發光光譜波長為 400 nm ~ 530 nm 之藍光。

本發明亦提供一種製造上述螢光體的方法，係包括下列步驟：依化學計量秤取碳酸鈣、碳酸鋨或碳酸鋇、二氧化鉿、三氧化二鈇以及二氧化鋒，將之研磨並均勻混合後，置入氧化鋁舟型坩堝中，利用固態合成法於 1200 ~ 1400 °C 予以固態熔融燒結合成，其需反應時間 4 ~ 10 小時。

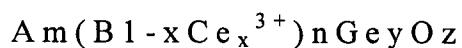
本發明更進一步提供一種發光裝置，係包含一發光元件，所發射之一次輻射的發光波長係介於 300 nm ~ 500 nm；以及一螢光體，其可吸收該發光元件所發出的一次輻射的一部份，而被激發出與所吸收一次輻射之發光光譜波長相異之二次輻射光；其中該螢光體係可選自於本發明前述之螢光體。其中，該發光元件可為半導體光源、發光二極體或有機發光裝置，且該螢光體係塗布於該發光元件之表面或上方，而該

螢光體被激發出之二次輻射發光光譜波長較該發光元件之一次輻射發光光譜波長更長。此外，該發光裝置更包括紅光、綠光螢光體，並予以封裝於該發光元件之上方或表面，而經該發光元件所發射之一次輻射激發後，可混合產生白光。

【實施方式】

為使該所屬技術領域中具有通常知識者能更進一步瞭解本發明之組成成分及其特性，茲配合具體實施例與圖式詳加說明，當更容易瞭解本發明之目的、技術內容、特點及其所達成之功效。

本發明係提供一系列新穎化學組成螢光體，係為摻雜三價鈰離子鹼土鋯酸鹽類化合物，且為下列一般式所示：



其中 A 為選自於 Ca、Sr、Ba 所組成之群組中至少一元素；B 為選自於 La、Y、Gd 所組成之群組中至少一元素；m、n、y、z 分別為大於 0 之數值，且符合 $2m + 3n + 4y = 2z$ 之計算式；以及 x 之數值範圍為 $0.0001 \leq x \leq 0.8$ ，且該螢光體可藉由一發光元件所發射之一次輻射而激發該螢光體產生二次輻射，其中該發光元件所發射之一次輻射的發光光譜之波長係在 $300\text{nm} \sim 500\text{nm}$ 之範圍，且該螢光體所被激發的二次輻射發光光譜波長較該發光元件之一次輻射發光光譜波長更長。

而該一般式所述之螢光體係依據合成時所秤取不同化學計量之碳酸鈣、碳酸鋨或碳酸鋇、二氧化鈦、三氧化二鈓以及二氧化鋯，將之研磨並均勻混合後，置入氧化鋁舟型坩

堀中，送入石英管狀高溫爐中，利用固態合成法於 1200~1400°C 下反應 4~10 小時予以高溫固態燒結合成。

將所合成之螢光體，利用 X 光繞射儀（Bruker AXS D8 Advanced type）進行分析。此外，由於紫外-藍光發光二極體之發光波長介於 250 nm~500 nm 之間，因此可以使用具有相同波長之氘燈，以進行測試本發明之螢光體之發光特性。而在本發明中係利用配備有 450 W 的氘燈之 Spex Fluorolog-3 螢光光譜儀（美國 Jobin-Yvon Spex S.A. 公司）進行其螢光光譜與激發光譜之測量，且利用 U-3010 紫外-可見光光譜儀（日本 hitachi 公司製造）以 190 至 1000 nm 的波長掃瞄本發明之螢光體，而得到其全反射光譜；再利用色彩分析儀（DT-100 color Analyzer 日本 LAIKO 公司製造）搭配螢光光譜儀及可測得螢光體之輝度與色度。

第 1 與 2 圖分別顯示本發明較佳實施例 $\text{Ca}_3(\text{Y}_{0.99}\text{Ce}_{0.01})_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ 與 $\text{Sr}_3(\text{Y}_{0.99}\text{Ce}_{0.01})_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ 之粉末 X 光繞射圖譜，圖譜分析證實兩者晶相純度接近 100%，此証實本發明之製程可以有效製備高純度之螢光材料。

接著利用螢光光譜儀測試本發明所揭露螢光體的激發波長與放射波長，第 3 與 4 圖分別係本發明較佳實施例 $\text{Ca}_3(\text{Y}_{0.99}\text{Ce}_{0.01})_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ 與 $\text{Sr}_3(\text{Y}_{0.99}\text{Ce}_{0.01})_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ 之光致發光與激發光譜。

第 3 圖顯示，在藍光及近紫外區域有一寬帶吸收，放光峰值波長約為 497 nm 且其帶寬約為 200 nm 之發射帶，此放射帶由 Ce^{3+} 之 $5d \rightarrow ^2F_{5/2}$ 與 $5d \rightarrow ^2F_{7/2}$ 的放射峰組成，證實本

發明之螢光體可被藍光激發並搭配螢光體本身放射綠光。第4圖中係顯示本發明之一較佳實施例 $Sr_3(Y_{1-x}Ce_x)_2Ge_3O_{12}$ 融光體在紫外光及近紫外區域各有一寬帶吸收，放光峰值波長約為 463 nm 且其帶寬約為 100 nm 之發射帶，此放射帶由 Ce^{3+} 之 $5d \rightarrow ^2F_{5/2}$ 與 $5d \rightarrow ^2F_{7/2}$ 的放射峰組成，證實本發明之螢光體可被放射 362 nm 波長紫外光發光二極體或雷射二極體激發，搭配螢光體本身放射藍光。

在第5圖中係顯示本發明之一較佳實施例 $Ca_3(Y_{1-x}Ce_x)_2Ge_3O_{12}$ 融光體的在不同 Ce^{3+} 的摻雜濃度下，其發光強度與相對輝度之關係，結果顯示 Ce^{3+} 在摻雜濃度 1% 時具有最佳的發光強度與輝度，左箭頭（方點虛線）所代表的線條係為強度，而右箭頭（圓點實線）所代表的線條係為輝度。

因此，本發明之另一較佳實施例係利用具有 Ce^{3+} 1% 摻雜濃度之 $Ca_3(Y_{0.99}Ce_{0.01})_2Ge_3O_{12}$ 融光體進行反射光譜測試，其主要目的係為觀察該螢光體的吸收波段，其結果如第6圖所示，當 $Ca_3Y_2Ge_3O_{12}$ 未摻雜 Ce^{3+} 時，僅在 200 nm ~ 330 nm 出現吸收波段，此波段係為其主體之吸收波段，當摻雜入 Ce^{3+} 離子後，可觀察到在 390 nm ~ 500 nm 的藍光波段出現一寬帶吸收，從而得知 $Ca_3(Y_{0.99}Ce_{0.01})_2Ge_3O_{12}$ 融光體能有效地吸收藍光。

隨後將 $Ca_3(Y_{0.99}Ce_{0.01})_2Ge_3O_{12}$ 融光體與一般市售商品 $ZnS:Cu,Al$ （日本日亞化學公司之商品）之光致發光與激發光譜進行比較，如第7圖所示，其結果發現本發明之螢光體

較一般市售之商品 ZnS:Cu,Al 有更良好的激發效率。另外，第 8 圖則顯示 $\text{Ca}_3(\text{Y}_{0.99}\text{Ce}_{0.01})_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ 、 $\text{Sr}_3(\text{Y}_{0.99}\text{Ce}_{0.01})_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ 與 ZnS:Cu,Al 之 CIE 色度座標之比較，本發明較佳實施例之一 $\text{Ca}_3(\text{Y}_{0.99}\text{Ce}_{0.01})_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ 其係由波長 419 nm 的光激發下，其所測得之色度座標 (x,y) 值分別為 $0.20 \leq x \leq 0.40$ ， $0.40 \leq y \leq 0.60$ ，更佳為 $0.25 \leq x \leq 0.30$ ， $0.45 \leq y \leq 0.55$ ，相較於一般市售之商品 ZnS:Cu,Al 更為接近綠光，色飽和度更佳。

故本發明所提供之新穎螢光體 $\text{Ca}_3(\text{Y}_{0.99}\text{Ce}_{0.01})_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ ，其較佳的激發波長為 400 nm ~ 500 nm，更佳為 400 nm ~ 440 nm，最佳值為 419 nm 的激發下，其發光範圍為 450 ~ 680 nm，主要放射帶波長峰值大約為 460 ~ 500 nm，較佳為 480 nm ~ 510 nm，最佳為 498 nm，所對應之色座標最佳為 (0.28, 0.51)，此項新穎螢光體，發光輝度值與綠光色飽和度均優於日本日亞化學公司之商品 ZnS:Cu,Al。此外，本發明所提供之另一新穎螢光體 $\text{Sr}_3(\text{Y}_{0.99}\text{Ce}_{0.01})_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ ，其較佳的激發波長為 310 nm ~ 400 nm，最佳為 362 nm 的激發下，其發光範圍為 400 ~ 530 nm，主要放射帶波長峰最佳值為 463 nm，所對應之藍光色座標最佳為 (0.20, 0.08)。

此外，本發明之螢光體，其可用於發光二極體，特別是白光發光二極體，為了達到較佳的光色效果，其可為單獨使用，或者為了其他顯色目的而與其他紅光螢光體或藍光螢光體搭配使用。

本發明之較佳實施例其中之一係為發光裝置或燈，該發

光裝置係包括一發光元件，其可為一半導體光源，也就是發光二極體晶片，以及連接於該發光二極體晶片上之電性導引線。該電性導引線可由薄片狀電板予以支持，其係用以提供電流給予發光二極體而使之發出輻射線。

該發光裝置係可包含任何一種半導體藍光或者紫外光光源，其所產生的輻射線係直接照射在混合有本發明之螢光體上而產生白光。

在本發明之一較佳實施例中，發光二極體係可摻雜各種雜質。該發光二極體係可包含各種適合的 III-V、II-VI 或 IV-IV 半導體層，且其發射之輻射波長較佳為 $250 \sim 500\text{ nm}$ 。該發光二極體包括至少由 GaN、ZnSe 或 SiC 所構成之半導體層。例如，由通式 $\text{In}_i\text{Ga}_j\text{Al}_k\text{N}$ （其中 $0 \leq i ; 0 \leq j ; 0 \leq k$ 而 $i+j+k=1$ ）氮化物所組成之發光二極體，其所激發的波長範圍介於 $250\text{ nm} \sim 500\text{ nm}$ 。這種發光二極體半導體係已為習知之技術，而本發明係可以利用這樣的發光二極體作為激發光源。然而本發明所能使用的激發光源不僅限定於上述發光二極體，所有半導體所能激發的光源均可以使用，包括半導體雷射光源。

一般而言，所述之發光二極體係指無機發光二極體，但所屬技術領域中具有通常知識應可以輕易的瞭解前述之發光二極體晶片係可由有機發光二極體或者其他輻射來源所取代，且將混有本發明之螢光體係塗佈於該發光二極體上，並利用發光二極體光源作為激發光源，而產生出自白光。因此，從上述較佳實施例中可以得知：本發明之

$\text{Ca}_3(\text{Y}_{0.99}\text{Ce}_{0.01})_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ 融光體相較於一般市售商品 $\text{ZnS}:\text{Cu}, \text{Al}$ ，其可產生發光輝度與色飽和度相當優良之綠光。

惟以上所述者，僅為本發明之較佳實施例，當無法據此限定本發明之實施範圍，而所屬技術領域中具有通常知識者依據本發明申請專利範圍及發明說明書內容所作之修飾與變化，皆應屬於本發明專利涵蓋之範圍。

【圖式簡單說明】

第 1 圖 本發明較佳實施例 $\text{Ca}_3(\text{Y}_{0.99}\text{Ce}_{0.01})_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ 之粉末 X 光繞射圖譜。

第 2 圖 本發明較佳實施例 $\text{Sr}_3(\text{Y}_{0.99}\text{Ce}_{0.01})_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ 之粉末 X 光繞射圖譜。

第 3 圖 本發明較佳實施例 $\text{Ca}_3(\text{Y}_{0.99}\text{Ce}_{0.01})_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ 之光致發光與激發光譜圖。

第 4 圖 本發明較佳實施例 $\text{Sr}_3(\text{Y}_{0.99}\text{Ce}_{0.01})_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ 之光致發光與激發光譜圖。

第 5 圖 本發明較佳實施例 $\text{Ca}_3(\text{Y}_{0.99}\text{Ce}_{0.01})_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ 發光強度及輝度與 Ce^{3+} 摻雜濃度之相互關係。

第 6 圖 本發明較佳實施例 $\text{Ca}_3(\text{Y}_{0.99}\text{Ce}_{0.01})_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ 之反射光譜圖。

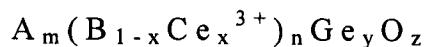
第 7 圖 本發明較佳實施例 $\text{Ca}_3(\text{Y}_{0.99}\text{Ce}_{0.01})_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ 與市售商品 $\text{ZnS}:\text{Cu}, \text{Al}$ 光致發光與激發光譜之比較。

第 8 圖 本發明較佳實施例 $\text{Ca}_3(\text{Y}_{0.99}\text{Ce}_{0.01})_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ 、 $\text{Sr}_3(\text{Y}_{0.99}\text{Ce}_{0.01})_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ 與 $\text{ZnS}:\text{Cu}, \text{Al}$ 之 CIE 色度座標之比較。

【主要元件符號說明】

十、申請專利範圍：

1. 一種螢光體，係為摻雜三價鉻離子鹼土鋯酸鹽類化合物，且為下列一般式所示：



其中 A 為選自於 Ca、Sr、Ba 所組成之群組中至少一元素；B 為選自於 La、Y、Gd 所組成之群組中至少一元素；m、n、y、z 分別為大於 0 之數值，且符合 $2m + 3n + 4y = 2z$ 之計算式；以及 x 之數值範圍為 $0.0001 \leq x \leq 0.8$ 。

2. 如申請專利範圍第 1 項之螢光體，其可藉由一發光元件所發射之一次輻射而激發該螢光體產生二次輻射。
3. 如申請專利範圍第 2 項之螢光體，其中該發光元件所發射之一次輻射的發光光譜之波長係在 $300\text{nm} \sim 500\text{nm}$ 之範圍，且該螢光體所被激發的二次輻射發光光譜波長較該發光元件之一次輻射發光光譜波長更長。
4. 如申請專利範圍第 1 至 3 項中任一項之螢光體，其中該發光元件所發射之一次輻射的發光光譜之波長係在 $320\text{nm} \sim 480\text{nm}$ 之範圍，以激發該螢光體而產生二次輻射發光色調 CIE 色度座標 (x,y) 值可為 $0.20 \leq x \leq 0.40$ ， $0.40 \leq y \leq 0.60$ ，且產生之二次輻射發光波長在 CIE 色度座標中為綠光。
5. 如申請專利範圍第 1 至 3 項中任一項之螢光體，其中該發光元件所發射之一次輻射的發光光譜之波長係在 $350\text{nm} \sim 400\text{nm}$ 範圍，以激發該螢光體而產生之二次輻射發光色調 CIE 色度座標 (x,y) 值為 $0.15 \leq x \leq 0.25$ ，

$0.03 \leq y \leq 0.15$ 。

6. 如申請專利範圍第 1 至 3 項中任一項之螢光體，其中該發光元件所發射之一次輻射的發光光譜之波長係在 $350\text{nm} \sim 400\text{nm}$ 之範圍，以激發該螢光體而產生二次輻射發光色調 CIE 色度座標 (x,y) 值可為 $0.20 \leq x \leq 0.30$ ， $0.03 \leq y \leq 0.20$ ，且產生之二次輻射發光波長在 CIE 色度座標中為藍光。
7. 如申請專利範圍第 4 項之螢光體，其中該發光元件所發射之一次輻射的發光光譜之波長係在 $350\text{nm} \sim 470\text{nm}$ 範圍，以激發該螢光體而產生之二次輻射發光色調 CIE 色度座標 (x,y) 值為 $0.25 \leq x \leq 0.35$ ， $0.45 \leq y \leq 0.55$ 。
8. 如申請專利範圍第 1 至 3 項中任一項之螢光體，其中該發光元件所發射之一次輻射的發光光譜之波長係在 $400\text{nm} \sim 440\text{nm}$ 範圍，以激發該螢光體而產生二次輻射發光光譜波長為 $450\text{nm} \sim 680\text{nm}$ 之綠光。
9. 如申請專利範圍第 1 至 3 項中任一項之螢光體，其中該發光元件所發射之一次輻射的發光光譜之波長係在 $410\text{nm} \sim 430\text{nm}$ 範圍，以激發該螢光體而產生二次輻射發光光譜波長為 $480\text{nm} \sim 510\text{nm}$ 之綠光。
10. 如申請專利範圍第 1 至 3 項中任一項之螢光體，其中該發光元件所發射之一次輻射的發光光譜之波長係在 $350\text{nm} \sim 400\text{nm}$ 範圍，以激發該螢光體而產生二次輻射發光光譜波長為 $450\text{nm} \sim 490\text{nm}$ 之藍光。
11. 一種製造如申請專利範圍第 1 至 10 項中任一項之螢光體

的方法，係包括下列步驟：

依化學計量秤取碳酸鈣、碳酸鋯或碳酸鋇、二氧化鈮、三氧化二鈦以及二氧化鋒，將之研磨並均勻混合後，置入氧化鋁舟型坩堝中，利用固態合成法於 1200~1400°C 予以固態熔融燒結合成。

12.如申請專利範圍第 11 項之方法，其中該高溫燒結合成時間需反應 4~10 小時。

13.一種發光裝置，係包含

一發光元件，所發射之一次輻射的發光波長係介於 300 nm ~ 500 nm，以及

一螢光體，其可吸收該發光元件所發出的一次輻射的一部份，而被激發出與所吸收一次輻射之發光光譜波長相異之二次輻射光；

其中該螢光體係可選自於如申請專利範圍第 1 至 6 項中任一項之螢光體。

14.如申請專利範圍第 13 項之發光裝置，其中該發光元件可為半導體光源、發光二極體、雷射二極體或有機發光裝置。

15.如申請專利範圍第 13 項之發光裝置，其中該螢光體係塗佈於該發光元件之表面或上方。

16.如申請專利範圍第 13 項之發光裝置，其中該螢光體被激發出之二次輻射發光光譜波長較該發光元件之一次輻射發光光譜波長更長。

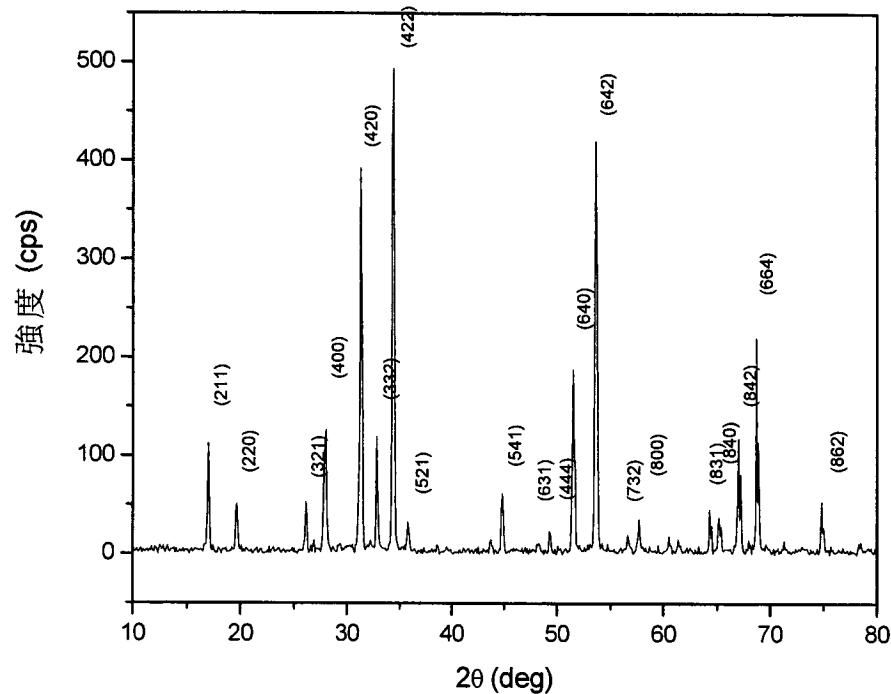
17.如申請專利範圍第 13 項之發光裝置，其更包括紅光、綠

200904948

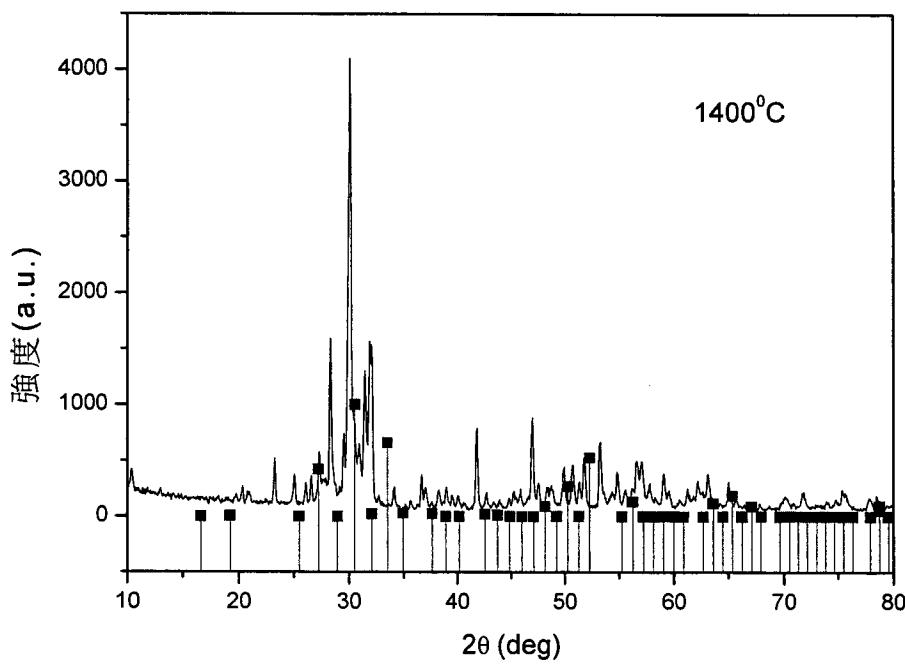
光螢光體，並予以封裝於該發光元件之上方或表面，而經該發光元件所發射之一次輻射激發後，可混合產生白光。

200904948

十一、圖式：

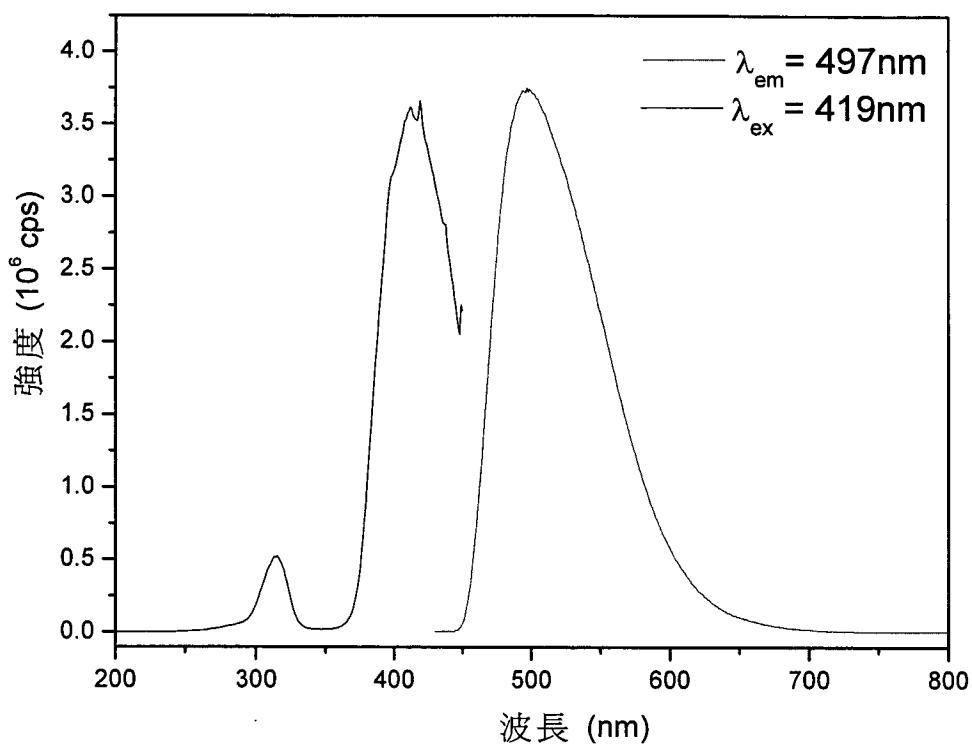


第 1 圖

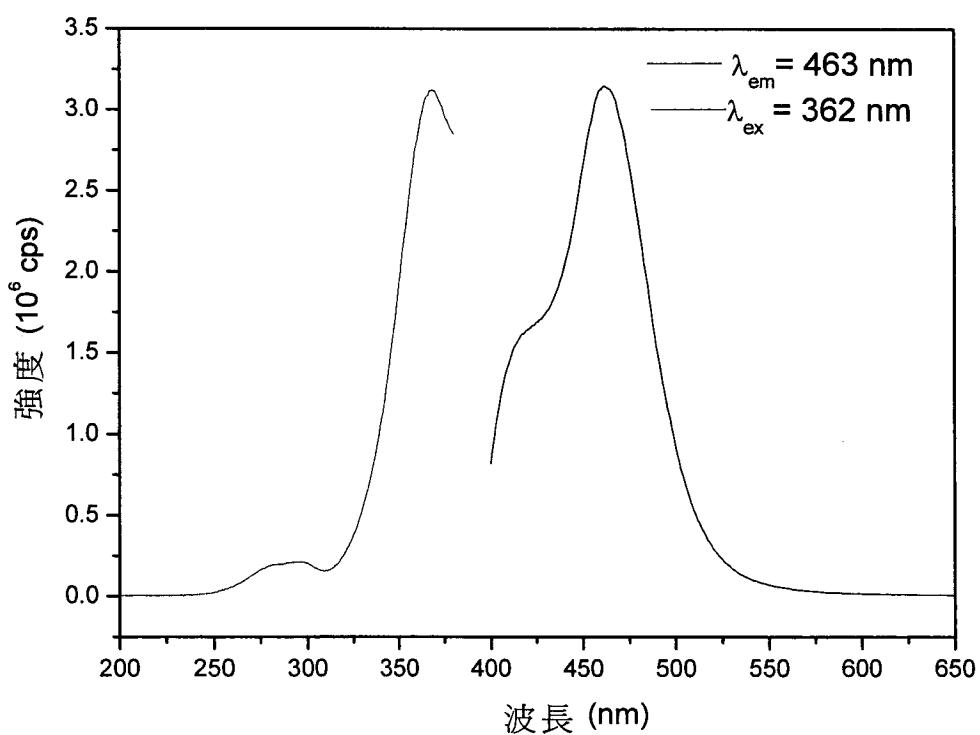


第 2 圖

200904948

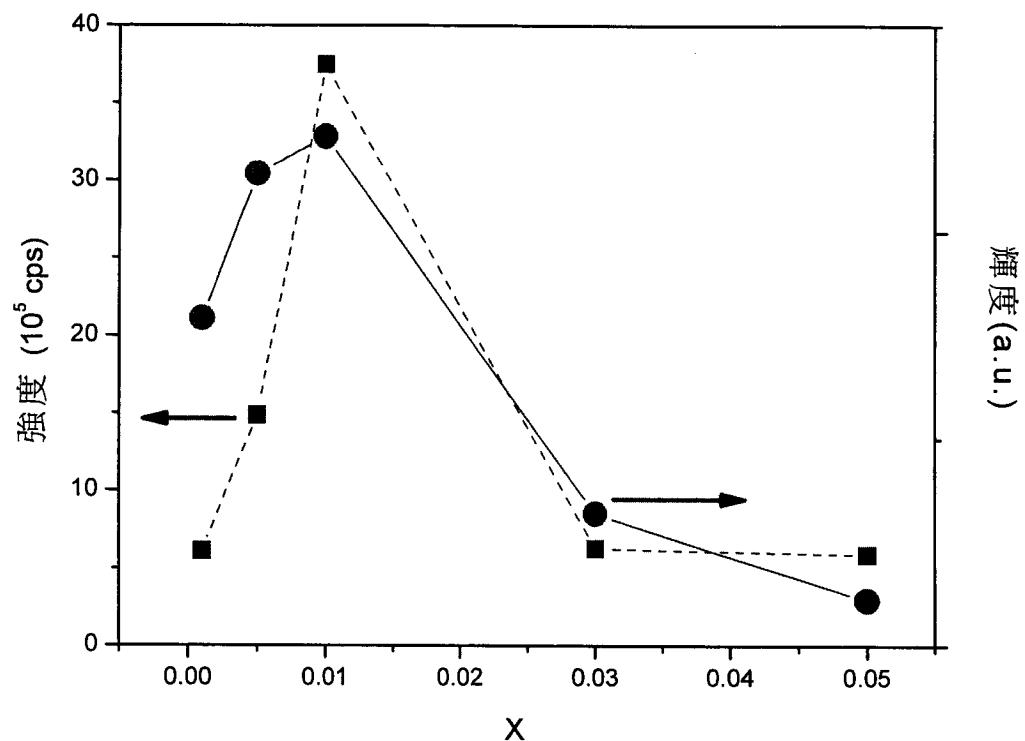


第 3 圖

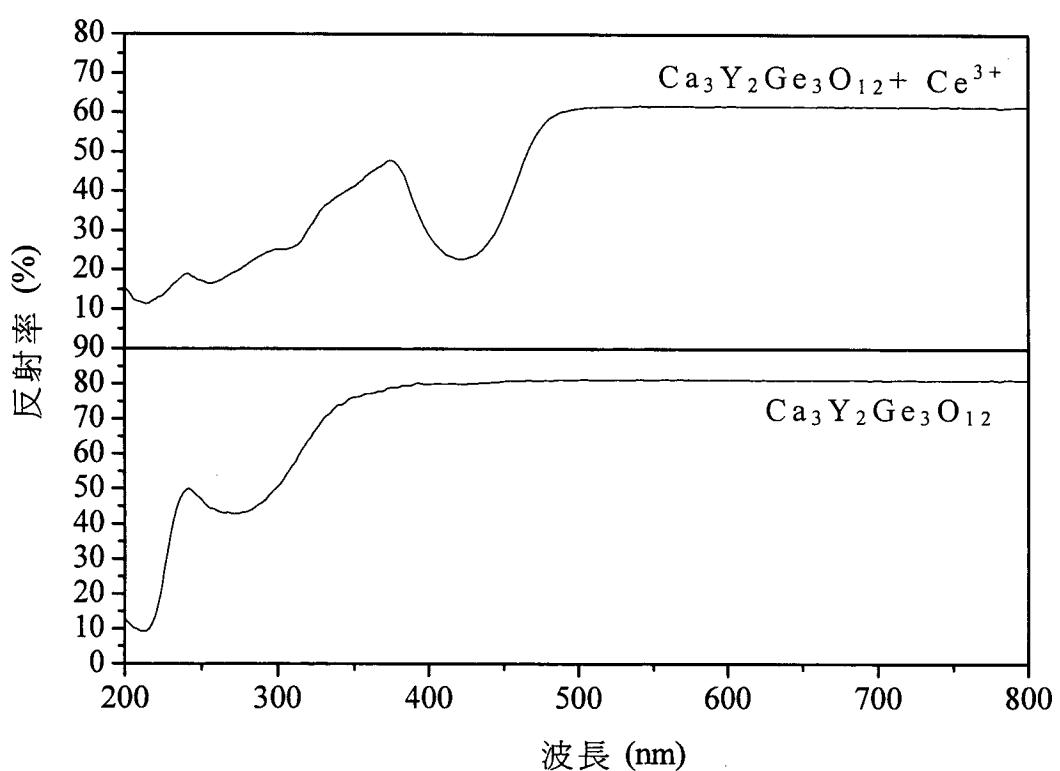


第 4 圖

200904948

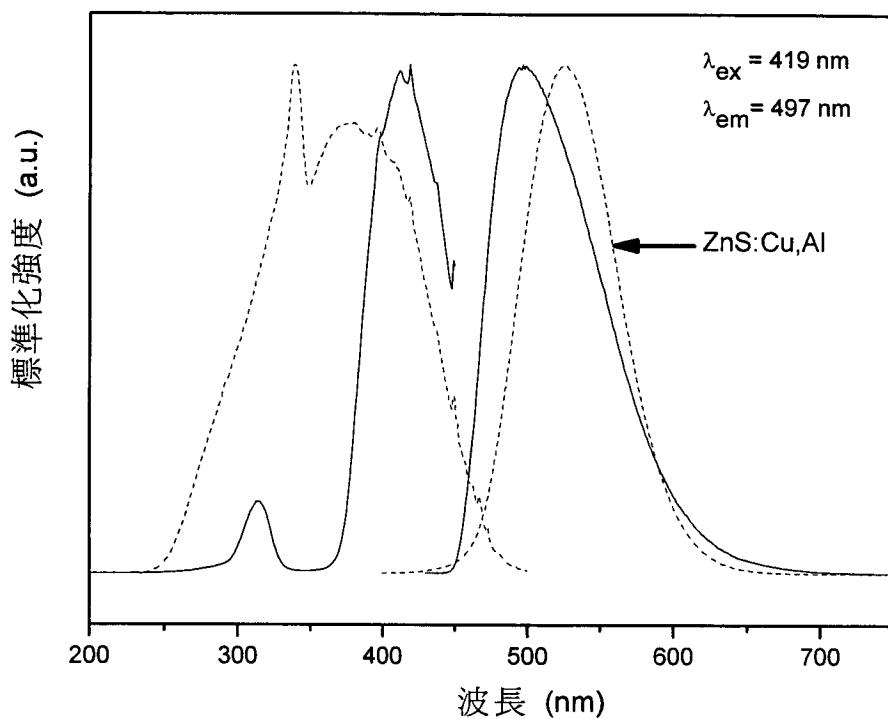


第 5 圖

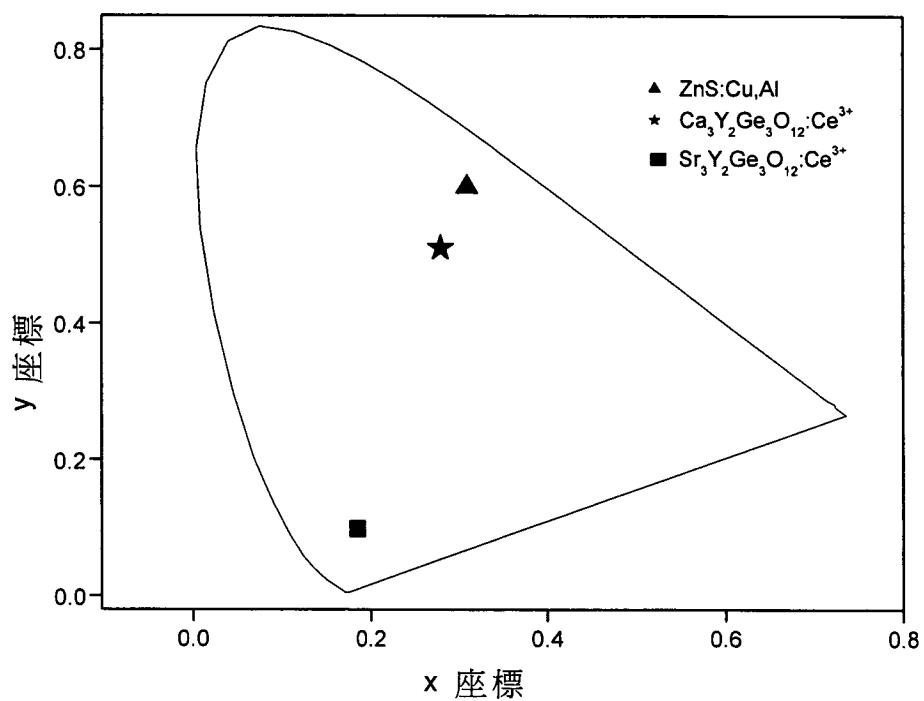


第 6 圖

200904948



第 7 圖



第 8 圖