



(12) 发明专利申请

(10) 申请公布号 CN 101864309 A

(43) 申请公布日 2010. 10. 20

(21) 申请号 201010229086. 7

(22) 申请日 2010. 07. 16

(71) 申请人 中国科学院长春光学精密机械与物理研究所

地址 130033 吉林省长春市东南湖大路 3888 号

(72) 发明人 张家骅 刘永福 张霞 郝振东

(74) 专利代理机构 长春菁华专利商标代理事务所 22210

代理人 南小平

(51) Int. Cl.

C09K 11/79 (2006. 01)

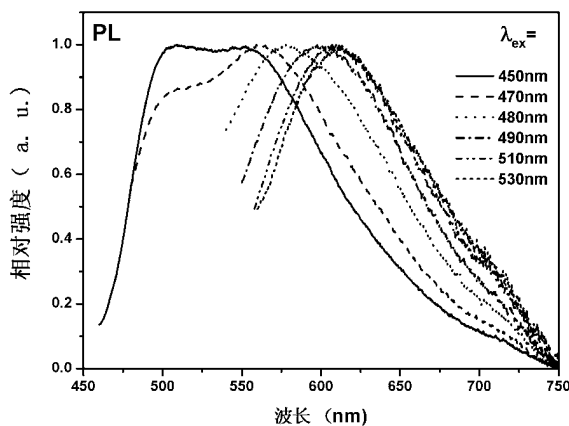
权利要求书 1 页 说明书 3 页 附图 2 页

(54) 发明名称

一种基于蓝光激发的氮氧化物荧光粉及其制备方法

(57) 摘要

本发明涉及发光技术领域中的荧光材料,公开一种基于蓝光激发的氮氧化物荧光粉及其制备方法,该荧光粉的化学式是: $\text{Ca}_{3-3n/2}\text{Sc}_2\text{Si}_3\text{O}_{12-6x}\text{N}_{4x}:\text{nCe}^{3+}$,其中, $0.0001 \leq n \leq 0.3, 0.01 \leq x \leq 1.5$ 。该荧光粉可以被 420-530nm 的蓝绿光激发,发射出峰值范围在 505-615nm 的荧光。该荧光粉通过固态反应法合成,其合成方法简单,反应温度比一般的氮氧化物要低,且不需要高压的条件;合成的荧光粉具有较高的热稳定和化学稳定特性,用该荧光粉制作的白光 LED 的显色指数 $R_a > 80$ 。



1. 一种基于蓝光激发的氮氧化物荧光粉,其特征在于,该荧光粉的化学式是: $\text{Ca}_{3-3n/2}\text{Sc}_2\text{Si}_3\text{O}_{12-6x}\text{N}_{4x}:\text{nCe}^{3+}$,其中, $0.0001 \leq n \leq 0.3$, $0.01 \leq x \leq 1.5$ 。

2. 如权利要求1所述的基于蓝光激发的氮氧化物荧光粉,其特征在于,所述荧光粉中Ca元素来源于含有 Ca^{2+} 离子的氧化物或氮化物或者盐类。

3. 如权利要求1所述的基于蓝光激发的氮氧化物荧光粉,其特征在于,所述荧光粉中Sc元素来源于含有 Sc^{3+} 离子的氧化物或者盐类。

4. 如权利要求1所述的基于蓝光激发的氮氧化物荧光粉,其特征在于,所述荧光粉中Si元素来源于含有 Si^{4+} 离子的氧化物或氮化物或者盐类。

5. 如权利要求1所述的基于蓝光激发的氮氧化物荧光粉,其特征在于,所述荧光粉中N元素来源于含有 Ca^{2+} 或 Ce^{3+} 或 Si^{4+} 离子的氮化物。

6. 权利要求1-5中任一项所述的基于蓝光激发的氮氧化物荧光粉的制备方法,其特征在于,该方法包括如下步骤:

步骤一、根据荧光粉的化学式,按照荧光粉所需要的原材料进行配比,将配比好的原材料混合研磨均匀;

步骤二、将步骤一得到的混合物置入高纯刚玉坩埚,放入高温炉中,在一氧化碳或氢还原气氛条件下,在 $1100 \sim 1300^\circ\text{C}$ 下灼烧 $3 \sim 5$ 小时;

步骤三、将步骤二得到的烧结体研磨后即得所述的荧光粉。

7. 如权利要求6所述的基于蓝光激发的氮氧化物荧光粉的制备方法,其特征在于,所述荧光粉由波长在 $420\text{-}530\text{nm}$ 范围的光激发,发射出峰值范围在 $505\text{-}615\text{nm}$ 的荧光。

一种基于蓝光激发的氮氧化物荧光粉及其制备方法

技术领域

[0001] 本发明涉及发光技术领域中的一种荧光材料,尤其涉及一种基于蓝光激发的氮氧化物荧光粉及其制备方法。

背景技术

[0002] 白光LED(Light Emitting Diode)具有无毒、寿命超长(10万小时)、高效节能、全固态、抗震性及安全性好等诸多优点,可广泛用于各种照明设施上,是一种环保、节能的绿色照明光源,因此被普遍认为是替代传统照明器件的新光源。

[0003] 目前实现白光LED普遍采取的是在蓝色LED芯片上涂敷高效的被蓝光激发而发射黄光的荧光粉,其原理是蓝光LED激发荧光材料产生与蓝光互补的黄光,再利用透镜原理将蓝光、黄光予以混合,使人眼产生白光的视觉。目前此种荧光粉主要是YAG钇铝石榴石,其化学式为 $Y_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}$ (参见美国专利5,998,925和欧洲专利862,794)。这种荧光粉制作的白光LED具有很高的流明效率,但是由于发射光谱的红光成分较少而使其显色指数偏低,色温偏高。这就降低了白光LED在低色温、暖白光照明领域的应用。

[0004] 近年来,由于氮化物以及氮氧化物荧光粉优越的性质,如优越的热稳定和化学稳定特性,较宽的激发和发射光谱以及高的流明效率,而引起人们的广泛关注。日本研究人员发明的黄色荧光粉 $Ca-\alpha-SiAlON:Eu^{2+}$ 和绿色荧光粉 $\beta-SiAlON:Eu^{2+}$ 已经应用到了白光LED上。然而,这些氮氧化物荧光粉的合成条件非常苛刻,通常需要高温($>1700^{\circ}C$)、高压的条件,或者采用在空气中不易存放的金属氮化物合成,制备较困难。

发明内容

[0005] 本发明的目的是提供一种基于蓝光激发的氮氧化物荧光粉及其制备方法,其制备成本低,该荧光粉具有较高的热稳定和化学稳定特性,用该荧光粉制作的白光LED具有较高的显色指数。

[0006] 为了达到上述目的,本发明的技术方案如下:

[0007] 基于蓝光激发的氮氧化物荧光粉,化学式是: $Ca_{3-3n/2}Sc_2Si_3O_{12-6x}N_{4x}:nCe^{3+}$,其中, $0.0001 \leq n \leq 0.3, 0.01 \leq x \leq 1.5$ 。

[0008] 上述荧光粉中Ca元素来源于含有 C^{2+} 离子的氧化物或氮化物或者相应的盐类;所述荧光粉中Sc元素来源于含有 Sc^{3+} 离子的氧化物或者相应的盐类;所述荧光粉中Si元素来源于含有 Si^{4+} 离子的氧化物或氮化物或者相应的盐类;所述荧光粉中N元素来源于含有 C^{2+} 或 Ce^{3+} 或 Si^{4+} 离子的氮化物。

[0009] 基于蓝光激发的氮氧化物荧光粉的制备方法,包括如下步骤:

[0010] 步骤一、根据荧光粉的化学式,按照荧光粉所需要的原材料进行配比,将配比好的原材料混合研磨均匀;

[0011] 步骤二、将步骤一得到的混合物置入高纯刚玉坩埚,放入高温炉中,在一氧化碳或氢还原气氛条件下,在 $1100 \sim 1300^{\circ}C$ 下灼烧 $3 \sim 5$ 小时;

[0012] 步骤三、将步骤二得到的烧结体研磨后即得所述的荧光粉。

[0013] 上述荧光粉可以被 420-530nm 的蓝绿光激发,发射出峰值范围在 505-615nm 的荧光。

[0014] 本发明的有益效果是:该荧光粉通过固态反应法合成,其合成方法简单,反应温度比一般的氮氧化物要低,且不需要高压的条件,所用材料便宜易得;合成的荧光粉具有较高的热稳定和化学稳定特性,用该荧光粉制作的白光 LED 具有较高的显色指数,显示指数 $R_a > 80$ 。

附图说明

[0015] 图 1 为本发明实施例 2 中荧光粉在不同波长激发下的发射光谱;

[0016] 图 2 为本发明实施例 2 中荧光粉在监测不同波长下的激发光谱;

[0017] 图 3 为本发明实施例 2 中荧光粉和蓝光芯片结合制作的白光 LED 光谱图。

具体实施方式

[0018] 下面结合附图和具体实施例对本发明作进一步详细说明。

[0019] 实施例 1

[0020] 将 2.99985molCaCO₃,0.0001molCeO₂,1.00molSc₂O₃,0.60molSiO₂,0.80molSi₃N₄ 混合研磨均匀后,置于高纯刚玉坩埚,放入高温炉中,在氢气还原气氛条件下,在 1250℃灼烧 4 个小时,即得 Ca_{2.99985}Ce_{0.0001}Sc₂Si₃O_{7.2}N_{3.2} 橙黄色荧光粉。

[0021] 实施例 2

[0022] 将 2.955molCaCO₃,0.03molCeO₂,1.00molSc₂O₃,0.60molSiO₂,0.80molSi₃N₄ 混合研磨均匀后,置于高纯刚玉坩埚,放入高温炉中,在氢气还原气氛条件下,在 1250℃灼烧 4 个小时,即得 Ca_{2.955}Ce_{0.03}Sc₂Si₃O_{7.2}N_{3.2} 橙黄色荧光粉。图 1 为由本实施例制得的荧光粉在不同波长激发下的发射光谱;图 2 为由本实施例制得的荧光粉在监测不同波长下的激发光谱。

[0023] 实施例 3

[0024] 将 2.55molCaCO₃,0.30molCeO₂,1.00molSc₂O₃,0.60molSiO₂,0.80molSi₃N₄ 混合研磨均匀后,置于高纯刚玉坩埚,放入高温炉中,在氢气还原气氛条件下,在 1250℃灼烧 4 个小时,即得 Ca_{2.55}Ce_{0.3}Sc₂Si₃O_{7.2}N_{3.2} 橙黄色荧光粉。

[0025] 实施例 4

[0026] 将 2.955molCaCO₃,0.03molCeO₂,1.00molSc₂O₃,2.97molSiO₂,0.01molSi₃N₄ 混合研磨均匀后,置于高纯刚玉坩埚,放入高温炉中,在氢气还原气氛条件下,在 1250℃灼烧 4 个小时,即得 Ca_{2.955}Ce_{0.03}Sc₂Si₃O_{11.94}N_{0.04} 绿色荧光粉。

[0027] 实施例 5

[0028] 将 2.955molCaCO₃,0.03molCeO₂,1.00molSc₂O₃,1.00molSi₃N₄ 混合研磨均匀后,置于高纯刚玉坩埚,放入高温炉中,在氢气还原气氛条件下,在 1250℃灼烧 4 个小时,即得 Ca_{2.955}Ce_{0.03}Sc₂Si₃O₆N₄ 橙黄色荧光粉。

[0029] 实施例 6

[0030] 将 0.985molCa₃N₂,0.03molCeN,1.00molSc₂O₃,1.00molSi₃N₄ 混合研磨均匀后,置于高纯刚玉坩埚,放入高温炉中,在氢气还原气氛条件下,在 1250℃灼烧 4 个小时,即得

$\text{Ca}_{2.955}\text{Ce}_{0.03}\text{Sc}_2\text{Si}_3\text{O}_3\text{N}_6$ 橙黄色荧光粉。

[0031] 由以上实施例可以看出,本发明提出的新型氮氧化物荧光粉合成方法简单。将实施例 2 中的荧光粉和蓝光 LED 芯片,可以制作出高显色指数 ($R_a = 86$) 的白光 LED,其光谱图如图 3 所示。

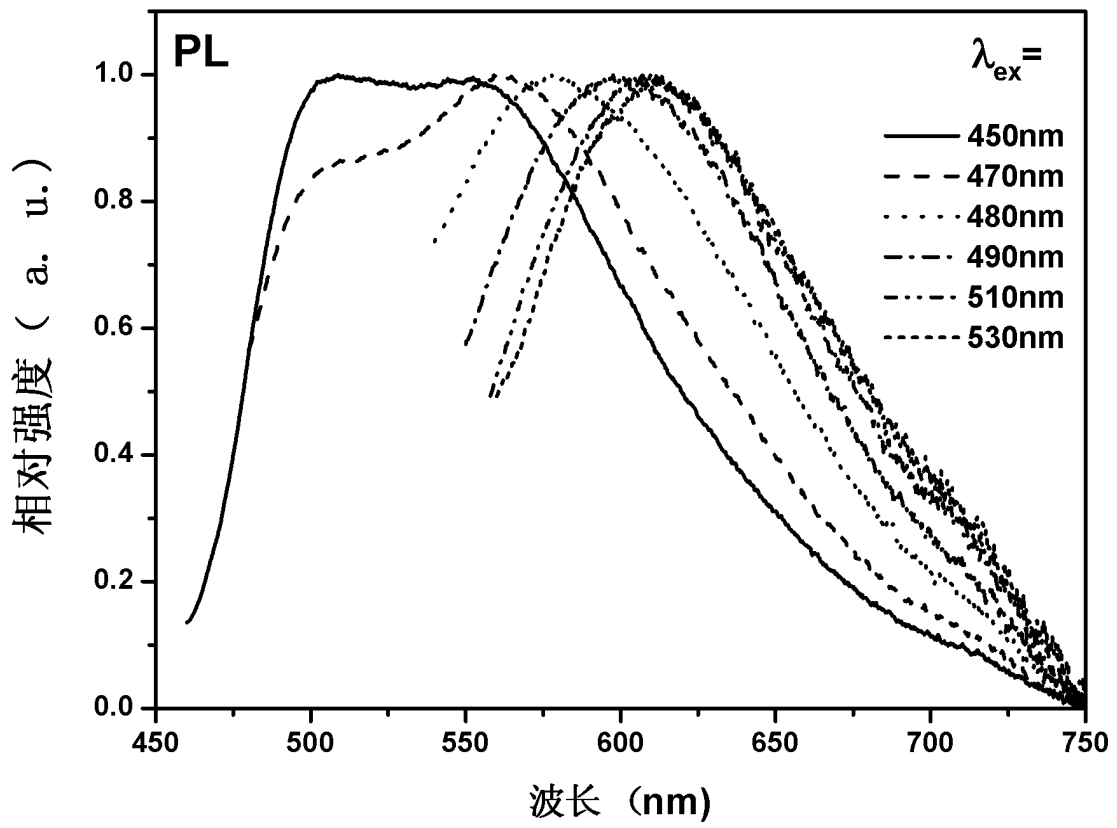


图 1

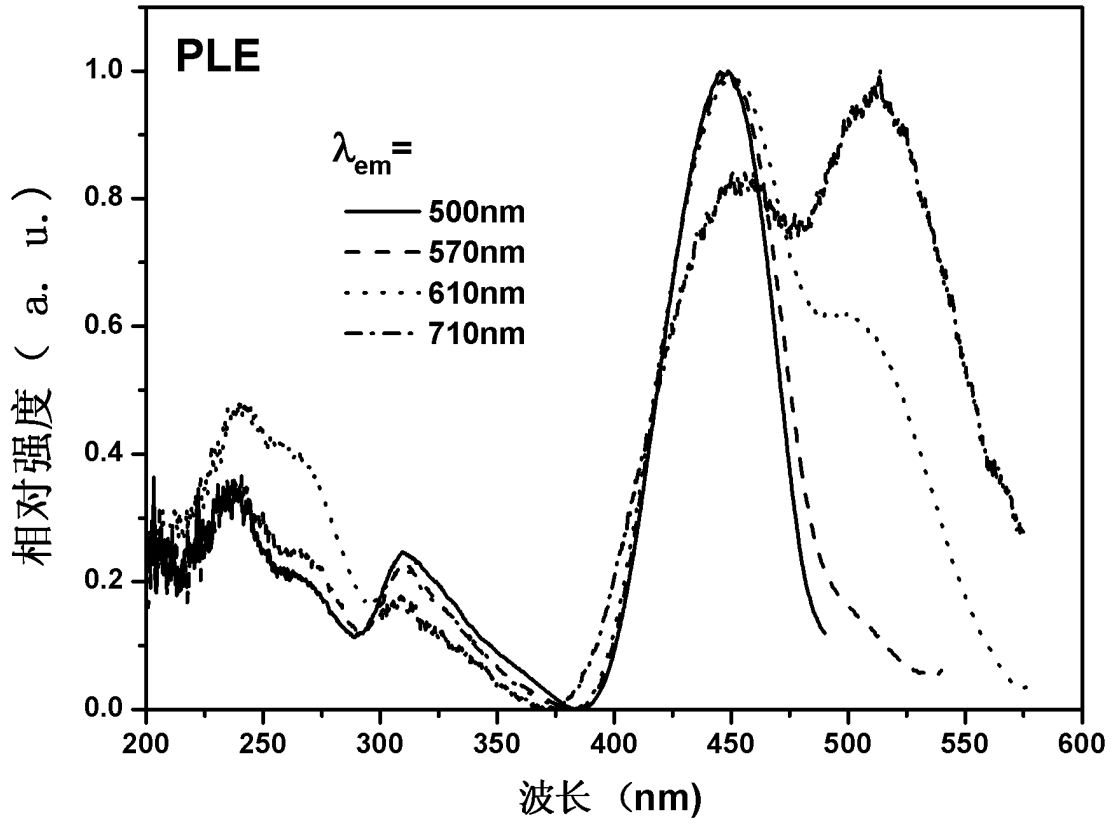


图 2

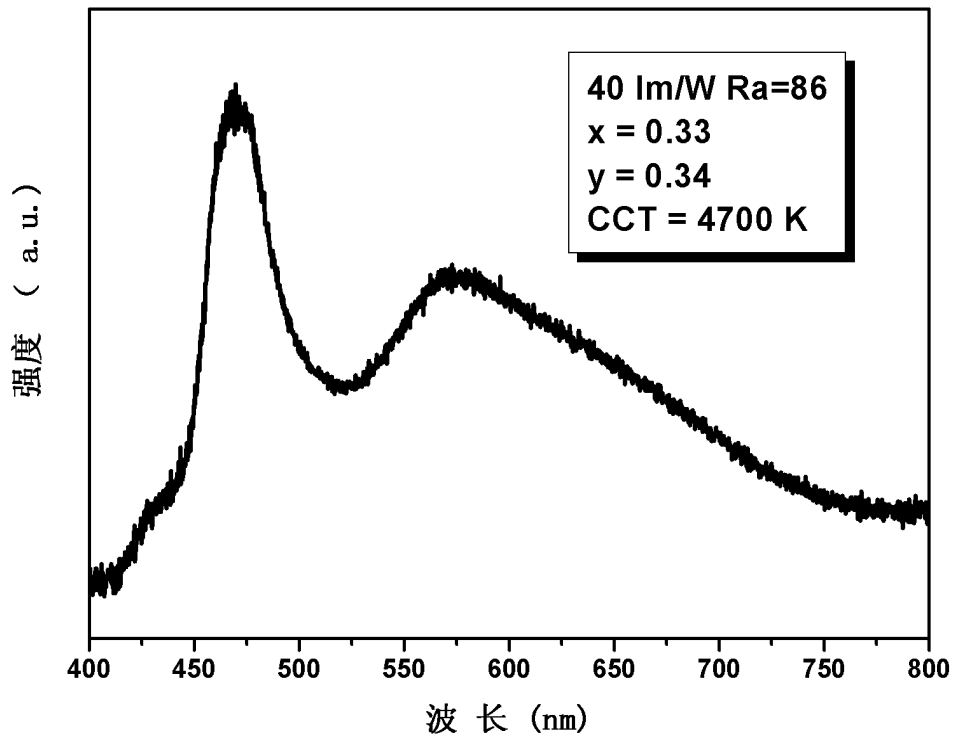


图 3