



(12) 发明专利申请

(10) 申请公布号 CN 102321478 A

(43) 申请公布日 2012.01.18

(21) 申请号 201110157772.2

(22) 申请日 2011.06.13

(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 陶尊新

(51) Int. Cl.

C09K 11/79 (2006.01)

H01L 33/50 (2010.01)

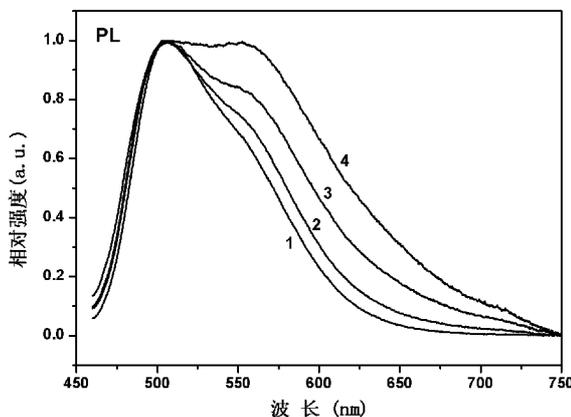
权利要求书 1 页 说明书 5 页 附图 2 页

(54) 发明名称

一种氮氧化物荧光粉及其制备方法和应用

(57) 摘要

一种氮氧化物荧光粉及其制备方法和应用,涉及发光技术领域中的荧光材料。解决现有技术中显色指数偏低,合成温度较高的问题。材料化学式为: $M_3(Ln_{2-x}Ce_x)D_3O_{12-6n}N_{4n}$, 其中 M 代表 Mg、Ca、Sr、Ba 或 Zn 中的至少一种; Ln 代表 Al、Ga、In、Sc、Y、La、Gd 或 Lu 中的至少一种; D 代表 Si、Ge、Sn、Ti、Zr 或 Hf 中的至少一种; 所述 x 的取值范围为 $0.0001 \leq x \leq 0.4$, n 的取值范围为 $0.01 \leq n \leq 1$ 。将上述材料进行研磨混合均匀后置入坩埚,在还原气氛条件下放入高温炉中,获得荧光粉。用该荧光粉制作的白光 LED 具有较高的显色指数和较低的色温,很好地改善了白光 LED 的色彩品质。



1. 一种氮氧化物荧光粉,其特征是,材料化学式为 $M_3(Ln_{2-x}Ce_x)D_3O_{12-6n}N_{4n}$,其中 M 代表 Mg、Ca、Sr、Ba 或 Zn 中的至少一种;Ln 代表 Al、Ga、In、Sc、Y、La、Gd 或 Lu 中的至少一种;D 代表 Si、Ge、Sn、Ti、Zr 或 Hf 中的至少一种;所述 x 的取值范围为 $0.0001 \leq x \leq 0.4$, n 的取值范围为 $0.01 \leq n \leq 1$ 。

2. 基于权利要求 1 所述的一种氮氧化物荧光粉的制备方法,其特征是,该方法由以下步骤实现:

(1) 以化学式为 $M_3(Ln_{2-x}Ce_x)D_3O_{12-6n}N_{4n}$ 中元素的氧化物、氟化物、氯化物、氮化物或相应的盐类为原料,按摩尔比称取,充分研磨混合均匀,获得混合物样品;所述 M 代表 Mg、Ca、Sr、Ba 或 Zn 中的至少一种;Ln 代表 Al、Ga、In、Sc、Y、La、Gd 或 Lu 中的至少一种;D 代表 Si、Ge、Sn、Ti、Zr 或 Hf 中的至少一种;所述 x 的取值范围为 $0.0001 \leq x \leq 0.4$, n 的取值范围为 $0.01 \leq n \leq 1$;

(2) 将步骤 (1) 获得的混合物样品置入坩埚中,在还原气氛条件下,放入高温炉中焙烧,获得烧结体;所述混合物样品的焙烧温度为 $1200-1400^\circ\text{C}$,焙烧时间为 4 小时;

(3) 将步骤 (2) 获得的烧结体研磨后即得到所述的荧光粉。

3. 根据权利要求 2 所述的一种氮氧化物荧光粉的制备方法,其特征是,步骤 (2) 所述的还原气氛为一氧化碳或氢气。

4. 根据权利要求 2 所述的一种氮氧化物荧光粉的制备方法,其特征是,步骤 (2) 所述的高温炉为马弗炉或管式炉。

5. 权利要求 1 所述的一种氮氧化物荧光粉在制备白光 LED 中的应用,其特征是,将所述的氮氧化物荧光粉与环氧树脂按照质量比为 0.2 : 1 的比例混合均匀,涂覆在蓝光 InGaN 芯片上,封装固化而制得白光 LED。

一种氮氧化物荧光粉及其制备方法和应用

技术领域

[0001] 本发明涉及发光技术领域中的一种荧光材料,尤其涉及一种氮氧化物荧光粉及其制备方法和应用。

背景技术

[0002] 白光LED(Light Emitting Diode)具有无毒、高效节能、寿命长、全固态、工作电压低、抗震性及安全性好等诸多优点,可被广泛地应用在照明和显示领域。其取代传统的白炽灯和荧光灯而作为新一代照明光源具有深远的意义。

[0003] 实现白光LED普遍而简单的方法是在蓝光LED芯片上涂覆可被蓝光激发而发射黄光的荧光粉。目前,广泛应用在商业化白光LED上的黄色荧光粉主要是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,然而,由于其发射光谱中缺少红光成分,从而导致合成的白光LED的显色指数偏低,色温偏高。这就限制了白光LED在低色温、暖白光照明领域的应用。为了获得高显色性,低色温的暖白光LED,人们提出通过绿色和红色荧光粉混合的方法制作白光LED。这种荧光粉混合的方法存在着不同荧光粉之间再吸收,从而导致整体发光效率较低。同时制作的白光LED的发射光谱随着驱动电流的变化而变化。

[0004] 近年来,氮化物以及氮氧化物荧光粉由于其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,通常需要在大于 $1700^{\circ}C$ 的高温、高压的条件下合成,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。美国研究人员报道了一种具有改善白光LED色彩品质的氧氮化物磷光体(美国专利US7,439,668和国际专利W02006/094139),然而这种氧氮化物磷光体的合成温度($1600^{\circ}C$)也比较高。

发明内容

[0005] 本发明的目的是为了解决现有技术中显色指数偏低,合成温度较高的问题,而提供的一种氮氧化物荧光粉及其制备方法和应用。

[0006] 为了达到上述目的,本发明的采取的技术方案如下:

[0007] 一种氮氧化物荧光粉,其特征是,材料化学式为: $M_3(Ln_{2-x}Ce_x)D_3O_{12-6n}N_{4n}$,其中M代表Mg、Ca、Sr、Ba或Zn中的至少一种;Ln代表Al、Ga、In、Sc、Y、La、Gd或Lu中的至少一种;D代表Si、Ge、Sn、Ti、Zr或Hf中的至少一种;所述x的取值范围为 $0.0001 \leq x \leq 0.4$,n的取值范围为 $0.01 \leq n \leq 1$ 。

[0008] 一种氮氧化物荧光粉的制备方法,该方法由以下步骤实现:

[0009] (1) 以化学式为 $M_3(Ln_{2-x}Ce_x)D_3O_{12-6n}N_{4n}$ 中元素的氧化物、氟化物、氯化物、氮化物或相应的盐类为原料,按摩尔比称取,充分研磨混合均匀,获得混合物样品;所述M代表Mg、Ca、Sr、Ba或Zn中的至少一种;Ln代表Al、Ga、In、Sc、Y、La、Gd或Lu中的至少一种;D代

表 Si、Ge、Sn、Ti、Zr 或 Hf 中的至少一种；所述 x 的取值范围为 $0.0001 \leq x \leq 0.4$ ，n 的取值范围为 $0.01 \leq n \leq 1$ ；

[0010] (2) 将步骤 (1) 获得的混合物样品置入坩埚中，在还原气氛条件下，放入高温炉中焙烧，获得烧结体；所述混合物样品的焙烧温度为 1200-1400℃，焙烧时间为 4 小时；

[0011] (3) 将步骤 (2) 获得的烧结体研磨后即得到所述的荧光粉。

[0012] 所述的还原气氛为一氧化碳或氢气。

[0013] 所述的高温炉为马弗炉或管式炉。

[0014] 上述一种氮氧化物荧光粉在制备白光 LED 中的应用，是将所述的氮氧化物荧光粉与环氧树脂按照质量比为 0.2 : 1 的比例混合均匀，涂覆在蓝光 InGaN 芯片上，封装固化而制得白光 LED。

[0015] 本发明的有益效果：本发明提供了一种氮氧化物荧光粉可作为单一荧光粉制作白光 LED，且获得的白光 LED 具有较高的显色指数和较低的色温，显色指数 $R_a > 80$ ，很好地改善了白光 LED 的色彩品质；该氮氧化物荧光粉通过传统的高温固相反应法合成，其制备方法简单，反应温度比一般的氮氧化物或氮化物低，且不需要高压的条件，合成的氮氧化物荧光粉可被紫外光或蓝绿光有效激发。

附图说明

[0016] 图 1 为本发明实施例 1-4 中氮氧化物荧光粉的发射光谱 ($\lambda_{ex} = 450\text{nm}$) 示意图；

[0017] 图 2 为本发明实施例 1-4 中氮氧化物荧光粉的激发光谱 ($\lambda_{em} = 600\text{nm}$) 示意图；

[0018] 图 3 为本发明实施例 4 中氮氧化物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

[0019] 结合附图和具体实施例对本发明作进一步详细说明：

[0020] 实施例 1

[0021] 一种氮氧化物荧光粉，材料化学式为： $M_3(\text{Ln}_{2-x}\text{Ce}_x)\text{D}_3\text{O}_{12-6n}\text{N}_{4n}$ ，其中当所述化学式中 $M = \text{Ca}, \text{Sr}$ 和 Ba ； $\text{Ln} = \text{Sc}$ 和 Y ； $\text{D} = \text{Si}$ ； $x = 0.1$ ， $n = 0.01$ ，制备分子式为 $(\text{Ca}_{2.8}\text{Sr}_{0.1}\text{Ba}_{0.1})(\text{Sc}_{1.8}\text{Y}_{0.1}\text{Ce}_{0.1})\text{Si}_3\text{O}_{11.94}\text{N}_{0.04}$ 的荧光粉。

[0022] 按摩尔比称取 2.8mol CaCO_3 ，0.1mol SrCO_3 ，0.1mol BaCO_3 ，0.9mol Sc_2O_3 ，0.05mol Y_2O_3 ，0.1mol CeO_2 ，2.97mol SiO_2 ，0.01mol Si_3N_4 混合研磨均匀后，置于高纯刚玉坩埚，在氢气还原气氛条件下，放入高温管式炉中焙烧，在 1400℃ 焙烧 4 个小时，即得 $(\text{Ca}_{2.8}\text{Sr}_{0.1}\text{Ba}_{0.1})(\text{Sc}_{1.8}\text{Y}_{0.1}\text{Ce}_{0.1})\text{Si}_3\text{O}_{11.94}\text{N}_{0.04}$ 荧光粉。

[0023] 实施例 2

[0024] 一种氮氧化物荧光粉，材料化学式为： $M_3(\text{Ln}_{2-x}\text{Ce}_x)\text{D}_3\text{O}_{12-6n}\text{N}_{4n}$ ，其中当所述化学式中 $M = \text{Ca}, \text{Sr}$ 和 Ba ； $\text{Ln} = \text{Sc}$ 和 Y ； $\text{D} = \text{Si}$ ； $x = 0.1$ ， $n = 0.1$ ，制备分子式为 $(\text{Ca}_{2.8}\text{Sr}_{0.1}\text{Ba}_{0.1})(\text{Sc}_{1.8}\text{Y}_{0.1}\text{Ce}_{0.1})\text{Si}_3\text{O}_{11.4}\text{N}_{0.4}$ 的荧光粉。

[0025] 按摩尔比称取 2.8mol CaCO_3 ，0.1mol SrCO_3 ，0.1mol BaCO_3 ，0.9mol Sc_2O_3 ，0.05mol Y_2O_3 ，0.1mol CeO_2 ，2.7mol SiO_2 ，0.1mol Si_3N_4 混合研磨均匀后，置于石墨坩埚，在氢气还原气氛条件下，放入高温管式炉中焙烧，在 1400℃ 焙烧 4 个小时，即得 $(\text{Ca}_{2.8}\text{Sr}_{0.1}\text{Ba}_{0.1})(\text{Sc}_{1.8}\text{Y}_{0.1}\text{Ce}_{0.1})$

$\text{Si}_3\text{O}_{11.4}\text{N}_{0.4}$ 荧光粉。

[0026] 实施例 3

[0027] 一种氮氧化物荧光粉,材料化学式为 $M_3(\text{Ln}_{2-x}\text{Ce}_x)\text{D}_3\text{O}_{12-6n}\text{N}_{4n}$,其中当所述化学式中 $M = \text{Ca}, \text{Sr}$ 和 Ba ; $\text{Ln} = \text{Sc}$ 和 Y ; $\text{D} = \text{Si}$; $x = 0.1, n = 0.5$, 制备分子式为 $(\text{Ca}_{2.8}\text{Sr}_{0.1}\text{Ba}_{0.1})(\text{Sc}_{1.8}\text{Y}_{0.1}\text{Ce}_{0.1})\text{Si}_3\text{O}_9\text{N}_2$ 的荧光粉。

[0028] 按摩尔比称取 2.8mol CaCO_3 , 0.1mol SrCO_3 , 0.1mol BaCO_3 , 0.9mol Sc_2O_3 , 0.05mol Y_2O_3 , 0.1mol CeO_2 , 1.5mol SiO_2 , 0.5mol Si_3N_4 混合研磨均匀后,置于白金坩埚,在氢气还原气氛条件下,放入高温管式炉中焙烧,在 1300℃焙烧 4 个小时,即得 $(\text{Ca}_{2.8}\text{Sr}_{0.1}\text{Ba}_{0.1})(\text{Sc}_{1.8}\text{Y}_{0.1}\text{Ce}_{0.1})\text{Si}_3\text{O}_9\text{N}_2$ 荧光粉。

[0029] 实施例 4

[0030] 一种氮氧化物荧光粉,材料化学式为 $M_3(\text{Ln}_{2-x}\text{Ce}_x)\text{D}_3\text{O}_{12-6n}\text{N}_{4n}$,其中当所述化学式中 $M = \text{Ca}, \text{Sr}$ 和 Ba ; $\text{Ln} = \text{Sc}$ 和 Y ; $\text{D} = \text{Si}$; $x = 0.1, n = 1$, 制备分子式为 $(\text{Ca}_{2.8}\text{Sr}_{0.1}\text{Ba}_{0.1})(\text{Sc}_{1.8}\text{Y}_{0.1}\text{Ce}_{0.1})\text{Si}_3\text{O}_6\text{N}_4$ 的荧光粉。

[0031] 按摩尔比称取 2.8mol CaCO_3 , 0.1mol SrCO_3 , 0.1mol BaCO_3 , 0.9mol Sc_2O_3 , 0.05mol Y_2O_3 , 0.1mol CeO_2 , 1mol Si_3N_4 混合研磨均匀后,置于高纯刚玉坩埚,在氢气还原气氛条件下,放入高温管式炉中焙烧,在 1200℃焙烧 4 个小时,即得 $(\text{Ca}_{2.8}\text{Sr}_{0.1}\text{Ba}_{0.1})(\text{Sc}_{1.8}\text{Y}_{0.1}\text{Ce}_{0.1})\text{Si}_3\text{O}_6\text{N}_4$ 荧光粉。

[0032] 图 1 为本发明实施例 1-4 中氮氧化物荧光粉的发射光谱 ($\lambda_{\text{ex}} = 450\text{nm}$) 示意图,图中的 1 代表 $(\text{Ca}_{2.8}\text{Sr}_{0.1}\text{Ba}_{0.1})(\text{Sc}_{1.8}\text{Y}_{0.1}\text{Ce}_{0.1})\text{Si}_3\text{O}_{11.94}\text{N}_{0.04}$,

[0033] 2 代表 $(\text{Ca}_{2.8}\text{Sr}_{0.1}\text{Ba}_{0.1})(\text{Sc}_{1.8}\text{Y}_{0.1}\text{Ce}_{0.1})\text{Si}_3\text{O}_{11.4}\text{N}_{0.4}$,

[0034] 3 代表 $(\text{Ca}_{2.8}\text{Sr}_{0.1}\text{Ba}_{0.1})(\text{Sc}_{1.8}\text{Y}_{0.1}\text{Ce}_{0.1})\text{Si}_3\text{O}_9\text{N}_2$,

[0035] 4 代表 $(\text{Ca}_{2.8}\text{Sr}_{0.1}\text{Ba}_{0.1})(\text{Sc}_{1.8}\text{Y}_{0.1}\text{Ce}_{0.1})\text{Si}_3\text{O}_6\text{N}_4$,从图中可以看出,发射光谱随着荧光粉中氮元素(N)的增加而变化。将发射光谱归一化后,随着荧光粉中 N 元素的增加,光谱中的绿光发射保持不变而橙红光发射逐渐增加。

[0036] 图 2 为本发明实施例 1-4 中氮氧化物荧光粉的激发光谱 ($\lambda_{\text{em}} = 600\text{nm}$) 示意图,图中的 1 代表 $(\text{Ca}_{2.8}\text{Sr}_{0.1}\text{Ba}_{0.1})(\text{Sc}_{1.8}\text{Y}_{0.1}\text{Ce}_{0.1})\text{Si}_3\text{O}_{11.94}\text{N}_{0.04}$,

[0037] 2 代表 $(\text{Ca}_{2.8}\text{Sr}_{0.1}\text{Ba}_{0.1})(\text{Sc}_{1.8}\text{Y}_{0.1}\text{Ce}_{0.1})\text{Si}_3\text{O}_{11.4}\text{N}_{0.4}$,

[0038] 3 代表 $(\text{Ca}_{2.8}\text{Sr}_{0.1}\text{Ba}_{0.1})(\text{Sc}_{1.8}\text{Y}_{0.1}\text{Ce}_{0.1})\text{Si}_3\text{O}_9\text{N}_2$,

[0039] 4 代表 $(\text{Ca}_{2.8}\text{Sr}_{0.1}\text{Ba}_{0.1})(\text{Sc}_{1.8}\text{Y}_{0.1}\text{Ce}_{0.1})\text{Si}_3\text{O}_6\text{N}_4$,从图中可以看出,本发明提出的荧光粉可被紫外光或蓝绿光有效激发,且随着荧光粉中 N 元素的增加,绿光的激发带逐渐增加,从而使激发光谱逐渐加宽。

[0040] 实施例 5

[0041] 一种氮氧化物荧光粉,材料化学式为 $M_3(\text{Ln}_{2-x}\text{Ce}_x)\text{D}_3\text{O}_{12-6n}\text{N}_{4n}$,其中当所述化学式中 $M = \text{Ca}$ 和 Zn ; $\text{Ln} = \text{Sc}$; $\text{D} = \text{Si}$ 和 Ge ; $x = 0.0001, n = 0.4$ 时,制备分子式为 $(\text{Ca}_{2.8}\text{Zn}_{0.2})(\text{Sc}_{1.9999}\text{Ce}_{0.0001})(\text{Si}_{2.8}\text{Ge}_{0.2})\text{O}_{9.6}\text{N}_{1.6}$ 的荧光粉。

[0042] 按摩尔比称取 2.8mol CaCO_3 , 0.2mol ZnO , 0.99995mol Sc_2O_3 , 0.0001mol CeO_2 , 0.2mol GeO_2 , 1.6mol SiO_2 , 0.4mol Si_3N_4 混合研磨均匀后,置于高纯刚玉坩埚,在氢气还原气氛条件下,放入高温管式炉中焙烧,在 1300℃焙烧 4 个小时,即得 $(\text{Ca}_{2.8}\text{Zn}_{0.2})(\text{Sc}_{1.9999}\text{Ce}_{0.0001})(\text{Si}_{2.8}\text{Ge}_{0.2})\text{O}_{9.6}\text{N}_{1.6}$ 荧光粉。

[0043] 实施例 6

[0044] 一种氮氧化物荧光粉,材料化学式为 $M_3(Ln_{2-x}Ce_x)D_3O_{12-6n}N_{4n}$,其中当所述化学式中 $M = Ca$ 和 Zn ; $Ln = Sc$; $D = Si$ 和 Ge ; $x = 0.01$, $n = 0.4$ 时,制备分子式为 $(Ca_{2.8}Zn_{0.2})(Sc_{1.99}Ce_{0.01})(Si_{2.8}Ge_{0.2})O_{9.6}N_{1.6}$ 的荧光粉。

[0045] 按摩尔比称取 2.8molCaCO₃,0.2molZnO,0.995molSc₂O₃,0.01molCeO₂,0.2molGeO₂,1.6molSiO₂,0.4molSi₃N₄ 混合研磨均匀后,置于高纯刚玉坩埚,在氢气还原气氛条件下,放入高温管式炉中焙烧,在 1300℃ 焙烧 4 个小时,即得 $(Ca_{2.8}Zn_{0.2})(Sc_{1.99}Ce_{0.01})(Si_{2.8}Ge_{0.2})O_{9.6}N_{1.6}$ 荧光粉。

[0046] 实施例 7

[0047] 一种氮氧化物荧光粉,材料化学式为 $M_3(Ln_{2-x}Ce_x)D_3O_{12-6n}N_{4n}$,其中当所述化学式中 $M = Ca$ 和 Zn ; $Ln = Sc$; $D = Si$ 和 Ge ; $x = 0.4$, $n = 0.4$ 时,制备分子式为 $(Ca_{2.8}Zn_{0.2})(Sc_{1.6}Ce_{0.4})(Si_{2.8}Ge_{0.2})O_{9.6}N_{1.6}$ 的荧光粉。

[0048] 按摩尔比称取 2.8molCaCO₃,0.2molZnO,0.8molSc₂O₃,0.4molCeO₂,0.2molGeO₂,1.6molSiO₂,0.4molSi₃N₄ 混合研磨均匀后,置于高纯刚玉坩埚,在氢气还原气氛条件下,放入高温管式炉中焙烧,在 1300℃ 焙烧 4 个小时,即得 $(Ca_{2.8}Zn_{0.2})(Sc_{1.6}Ce_{0.4})(Si_{2.8}Ge_{0.2})O_{9.6}N_{1.6}$ 荧光粉。

[0049] 实施例 8

[0050] 一种氮氧化物荧光粉,材料化学式为 $M_3(Ln_{2-x}Ce_x)D_3O_{12-6n}N_{4n}$,其中当所述化学式中 $M = Ca$ 和 Zn ; $Ln = Sc, Y$ 和 Lu ; $D = Si$ 和 Ge ; $x = 0.1$, $n = 0.4$ 时,制备分子式为 $(Ca_{2.8}Zn_{0.2})(Sc_{1.7}Y_{0.1}Lu_{0.1}Ce_{0.1})(Si_{2.8}Ge_{0.2})O_{9.6}N_{1.6}$ 的荧光粉。

[0051] 按摩尔比称取 2.8molCaCO₃,0.2molZnO,0.85molSc₂O₃,0.05molY₂O₃,0.05molLu₂O₃,0.1molCeO₂,0.2molGeO₂,1.6molSiO₂,0.4molSi₃N₄ 混合研磨均匀后,置于高纯刚玉坩埚,在氢气还原气氛条件下,放入高温管式炉中焙烧,在 1300℃ 焙烧 4 个小时,即得 $(Ca_{2.8}Zn_{0.2})(Sc_{1.7}Y_{0.1}Lu_{0.1}Ce_{0.1})(Si_{2.8}Ge_{0.2})O_{9.6}N_{1.6}$ 荧光粉。

[0052] 实施例 9

[0053] 一种氮氧化物荧光粉,材料化学式为 $M_3(Ln_{2-x}Ce_x)D_3O_{12-6n}N_{4n}$,其中当所述化学式中 $M = Ca$ 和 Zn ; $Ln = Sc, Y$ 和 La ; $D = Si$ 和 Ge ; $x = 0.1$, $n = 0.4$ 时,制备分子式为 $(Ca_{2.8}Zn_{0.2})(Sc_{1.7}Y_{0.1}La_{0.1}Ce_{0.1})(Si_{2.8}Ge_{0.2})O_{9.6}N_{1.6}$ 的荧光粉。

[0054] 按摩尔比称取 2.8molCaCO₃,0.2molZnO,0.85molSc₂O₃,0.05molY₂O₃,0.05molLa₂O₃,0.1molCeO₂,0.2molGeO₂,1.6molSiO₂,0.4molSi₃N₄ 混合研磨均匀后,置于高纯刚玉坩埚,在氢气还原气氛条件下,放入高温管式炉中焙烧,在 1300℃ 焙烧 4 个小时,即得 $(Ca_{2.8}Zn_{0.2})(Sc_{1.7}Y_{0.1}La_{0.1}Ce_{0.1})(Si_{2.8}Ge_{0.2})O_{9.6}N_{1.6}$ 荧光粉。

[0055] 实施例 10

[0056] 一种氮氧化物荧光粉,材料化学式为 $M_3(Ln_{2-x}Ce_x)D_3O_{12-6n}N_{4n}$,其中当所述化学式中 $M = Ca$ 和 Zn ; $Ln = Sc, Y$ 和 La ; $D = Si, Ge$ 和 Ti ; $x = 0.1$, $n = 0.4$ 时,制备分子式为 $(Ca_{2.8}Zn_{0.2})(Sc_{1.7}Y_{0.1}La_{0.1}Ce_{0.1})(Si_{2.8}Ge_{0.1}Ti_{0.1})O_{9.6}N_{1.6}$ 的荧光粉。

[0057] 按摩尔比称取 2.8molCaCO₃,0.2molZnO,0.85molSc₂O₃,0.05molY₂O₃,0.05molLa₂O₃,0.1molCeO₂,0.1molGeO₂,0.1molTiO₂,1.6molSiO₂,0.4molSi₃N₄ 混合研磨均匀后,置于高纯刚玉坩埚,在氢气还原气氛条件下,放入高温管式炉中焙烧,在 1300℃ 焙烧 4 个小时,即得

$(\text{Ca}_{2.8}\text{Zn}_{0.2})(\text{Sc}_{1.7}\text{Y}_{0.1}\text{La}_{0.1}\text{Ce}_{0.1})(\text{Si}_{2.8}\text{Ge}_{0.1}\text{Ti}_{0.1})\text{O}_{9.6}\text{N}_{1.6}$ 荧光粉。

[0058] 由以上实施例可以看出,本发明提出的一种氮氧化物荧光粉很好地改善了白光 LED 的色彩品质,扩展了白光 LED 在低色温、暖白光照明和显示领域中的应用。图 3 为本发明实施例 4 提供的氮氧化物荧光粉和蓝光芯片结合制作的白光 LED 光谱图,其显色指数 $R_a = 87$,色温 $\text{CCT} = 4500\text{K}$,色坐标 $(x, y) = (0.3525, 0.3502)$ 。

[0059] 本发明提出的一种氮氧化物荧光粉中 M、Ln 和 D 的组合并不局限于以上实施例。以上实施例给出的荧光粉中 M、Ln 和 D 的组合只是一个举例说明。

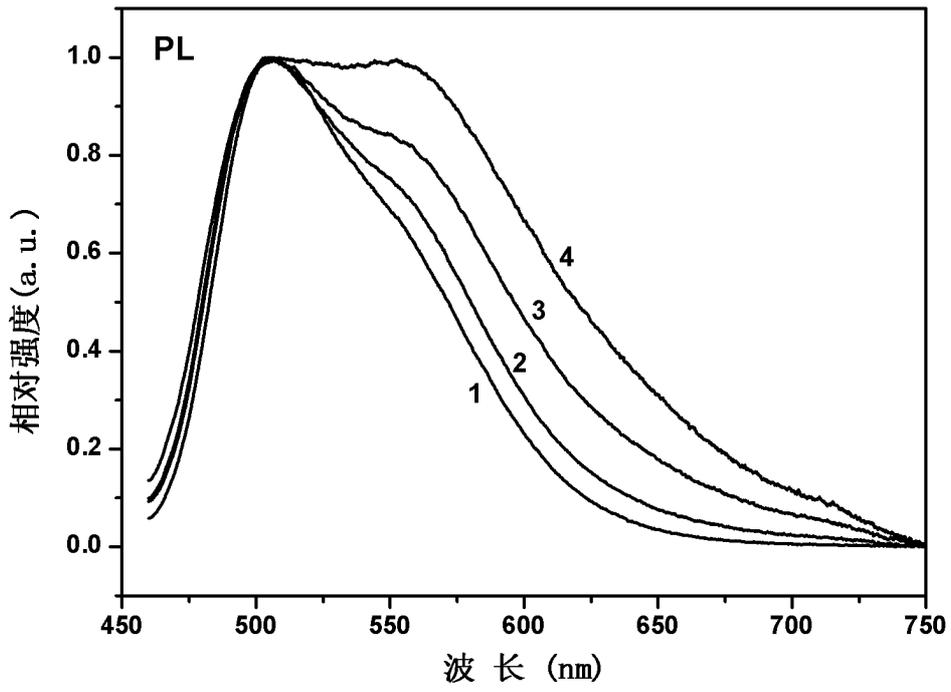


图 1

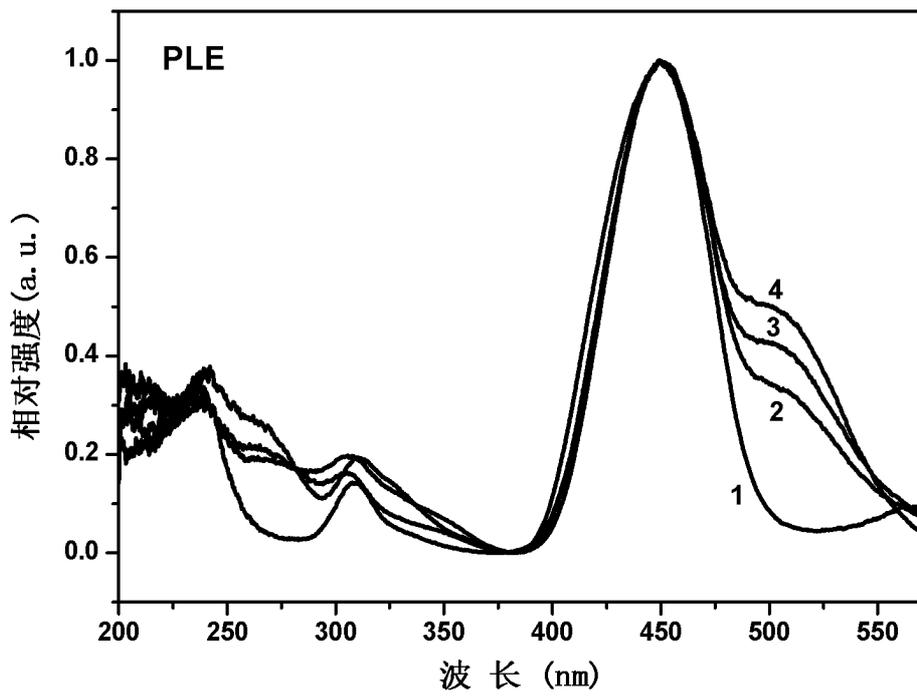


图 2

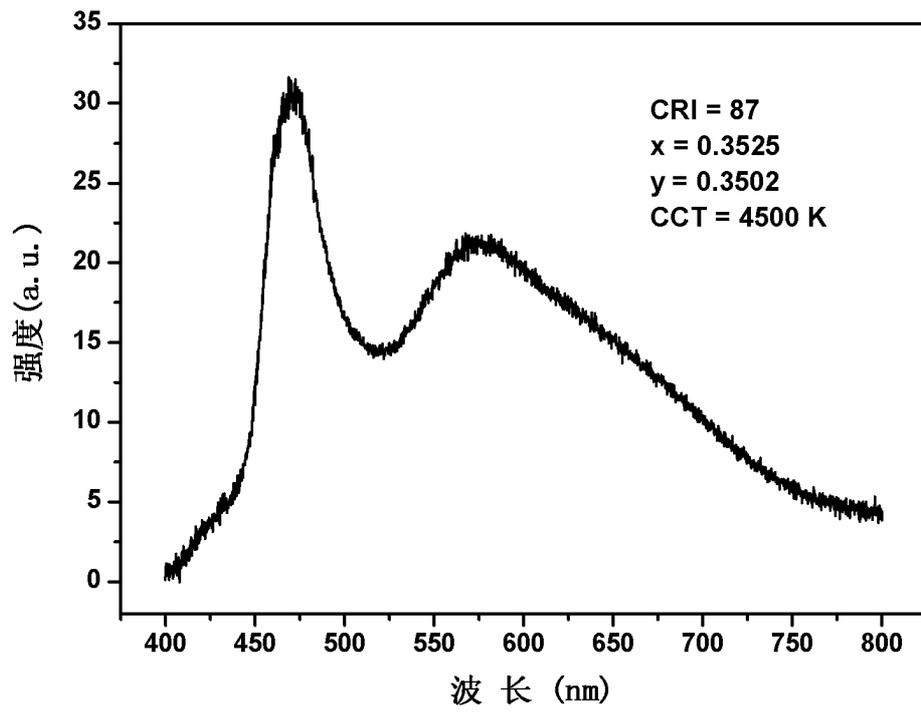


图 3