

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2012 年 9 月 20 日(20.09.2012)



(10) 国際公開番号

WO 2012/124480 A1

- (51) 国際特許分類:
C09K 11/64 (2006.01) H01L 33/50 (2010.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2012/055120
- (22) 国際出願日: 2012 年 2 月 29 日(29.02.2012)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2011-059488 2011 年 3 月 17 日(17.03.2011) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 株式会社東芝(KABUSHIKI KAISHA TOSHIBA) [JP/JP]; 〒1058001 東京都港区芝浦一丁目 1 番 1 号 Tokyo (JP). 東芝マテリアル株式会社(TOSHIBA MATERIALS CO., LTD.) [JP/JP]; 〒2350032 神奈川県横浜市磯子区新杉田町 8 番地 Kanagawa (JP).
- (72) 発明者: および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 碓井 大地 (USUI, Daichi). 白川 康博 (SHIRAKAWA, Yasuhiro). 竹村 博文(TAKEMURA, Hirofumi).
- (74) 代理人: 特許業務法人 東京国際特許事務所 (TOKYO INTERNATIONAL PATENT FIRM); 〒1050003 東京都港区西新橋一丁目 1 7 番 1 6 号 宮田ビル 2 階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

(54) Title: FLUOROPHORE AND LIGHT-EMITTING DEVICE

(54) 発明の名称: 蛍光体および発光装置

(57) Abstract: A fluorophore obtained from a europium-activated sialon crystal having an elemental composition represented by formula (1) $(\text{Sr}_{1-x}, \text{Eu}_x)_a \text{Si}_\beta \text{Al}_\gamma \text{O}_\delta \text{N}_\omega$ (1) (in the formula, x is $0 < x < 1$, a is $0 < a \leq 4$, and β, γ, δ , and ω are numbers such that the converted numerical values when a is 3 satisfy $9 < \beta \leq 15$, $1 \leq \gamma \leq 5$, $0.5 \leq \delta \leq 3$, and $10 \leq \omega \leq 25$), and said sialon crystal comprises at least one kind of non-Eu rare earth element selected from among Sc, Y, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb and Lu in a proportion of 0.1 mass% to 10 mass%. The fluorophore emits green light when excited with ultraviolet light, violet light or blue light.

(57) 要約: 下記一般式 (1) [化 1] 一般式: $(\text{Sr}_{1-x}, \text{Eu}_x)_a \text{Si}_\beta \text{Al}_\gamma \text{O}_\delta \text{N}_\omega$ (1) (式中、 x は $0 < x < 1$ 、 a は $0 < a \leq 4$ であり、 β, γ, δ および ω は a が 3 のときに換算した数値が、 $9 < \beta \leq 15$ 、 $1 \leq \gamma \leq 5$ 、 $0.5 \leq \delta \leq 3$ 、 $10 \leq \omega \leq 25$ を満足する数である) で表される基本組成を有するユーロピウム付活サイアロン結晶体からなるとともに、このサイアロン結晶体中に、Sc、Y、La、Ce、Pr、Nd、Sm、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb および Lu から選ばれる非 Eu 希土類元素の少なくとも 1 種を 0.1 質量%以上 10 質量%以下の割合で含み、紫外光、紫色光または青色光で励起されることにより緑色発光する蛍光体。



WO 2012/124480 A1

明 細 書

発明の名称： 蛍光体および発光装置

技術分野

[0001] 本発明の実施形態は、蛍光体および発光装置に関する。

背景技術

[0002] 蛍光体粉末は、たとえば、発光ダイオード（LED：Light Emitting Diode）等の発光装置に用いられる。発光装置は、たとえば、基板上に配置され所定の色の光を出射する半導体発光素子と、この半導体発光素子から出射される紫外光、青色光等の光により励起されて可視光を発する蛍光体粉末を封止樹脂である透明樹脂硬化物中に含む発光部とを備える。

[0003] 発光装置の半導体発光素子としては、たとえば、GaN、InGaN、AlGaN、InGaAlP等が用いられる。また、蛍光体粉末の蛍光体としては、たとえば、半導体発光素子からの出射光により励起されてそれぞれ青色光、緑色光、黄色光、赤色光の光を出射する青色蛍光体、緑色蛍光体、黄色蛍光体、赤色蛍光体等が用いられる。

[0004] 発光装置は、封止樹脂中に赤色蛍光体等の各種の蛍光体粉末を含有させることにより、放射光の色を調整することができる。すなわち、半導体発光素子と、半導体発光素子から放射された光を吸収して所定波長域の光を発光する蛍光体粉末とを組み合わせる用いることにより、半導体発光素子から放射された光と蛍光体粉末から放射された光との作用で、可視光領域の光や白色光を発光させることが可能になる。

従来、蛍光体としては、ストロンチウムを含むユーロピウム付活サイアロン（Si-Al-O-N）構造の蛍光体（Srサイアロン蛍光体）が知られている。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：国際公開第2007／105631号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] しかし、近年、より発光効率の高いS rサイアロン蛍光体が要望されている。

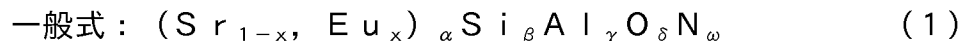
本発明は、上記事情に鑑みてなされたものであり、発光効率が高いS rサイアロン蛍光体および発光装置を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0007] 実施形態の蛍光体および発光装置は、特定組成のS rサイアロン蛍光体に特定の非E u希土類元素を特定の割合で含有させることにより、S rサイアロン蛍光体の発光効率が高くなることを見出して完成されたものである。

[0008] 実施形態の蛍光体は、上記問題点を解決するものであり、下記一般式（1）

[0009] [化1]



（式中、xは $0 < x < 1$ 、 α は $0 < \alpha \leq 4$ であり、 β 、 γ 、 δ および ω は α が3のときに換算した数値が、 $9 < \beta \leq 15$ 、 $1 \leq \gamma \leq 5$ 、 $0.5 \leq \delta \leq 3$ 、 $10 \leq \omega \leq 25$ を満足する数である）

[0010] で表される基本組成を有するユーロピウム付活サイアロン結晶体からなるとともに、このサイアロン結晶体中に、Sc、Y、La、Ce、Pr、Nd、Sm、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、YbおよびLuから選ばれる非E u希土類元素の少なくとも1種を0.1質量%以上10質量%以下の割合で含み、紫外光、紫色光または青色光で励起されることにより緑色発光することを特徴とする。

[0011] また、実施形態の蛍光体は、上記問題点を解決するものであり、下記一般式（2）

[0012] [化2]



(式中、 x は $0 < x < 1$ 、 α は $0 < \alpha \leq 3$ であり、 β 、 γ 、 δ および ω は α が2のときに換算した数値が、 $5 \leq \beta \leq 9$ 、 $1 \leq \gamma \leq 5$ 、 $0.5 \leq \delta \leq 2$ 、 $5 \leq \omega \leq 15$ を満足する数である)

[0013] で表される基本組成を有するユーロピウム付活サイアロン結晶体からなるとともに、このサイアロン結晶体中に、Sc、Y、La、Ce、Pr、Nd、Sm、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、YbおよびLuから選ばれる非Eu希土類元素の少なくとも1種を0.1質量%以上10質量%以下の割合で含み、紫外光、紫色光または青色光で励起されることにより赤色発光することを特徴とする。

[0014] さらに、実施形態の発光装置は、上記問題点を解決するものであり、基板と、この基板上に配置され、紫外光、紫色光または青色光を出射する半導体発光素子と、この半導体発光素子の発光面を覆うように形成され、前記半導体発光素子からの出射光により励起されて可視光を発する蛍光体を含む発光部と、を備え、前記蛍光体は、請求項1～6のいずれか1項の蛍光体を含むことを特徴とする。

発明の効果

[0015] 本発明の蛍光体および発光装置は、高い発光効率を示す。

図面の簡単な説明

[0016] [図1]発光装置の発光スペクトルの一例である。

[図2]発光装置の発光スペクトルの他の一例である。

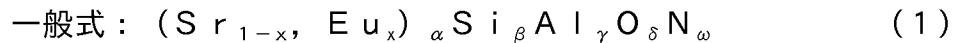
発明を実施するための形態

[0017] 実施形態の蛍光体および発光装置について説明する。実施形態の蛍光体には、紫外光、紫色光または青色光で励起されることにより緑色発光する緑色蛍光体と、紫外光、紫色光または青色光で励起されることにより赤色発光する赤色蛍光体とがある。

[0018] [緑色蛍光体]

緑色蛍光体は、下記一般式(1)

[0019] [化3]



(式中、 x は $0 < x < 1$ 、 α は $0 < \alpha \leq 4$ であり、 β 、 γ 、 δ および ω は α が3のときに換算した数値が、 $9 < \beta \leq 15$ 、 $1 \leq \gamma \leq 5$ 、 $0.5 \leq \delta \leq 3$ 、 $10 \leq \omega \leq 25$ を満足する数である)

[0020] で表される基本組成を有するユーロピウム付活サイアロン結晶体からなり、紫外光、紫色光または青色光で励起されることにより緑色発光する蛍光体である。この緑色発光する蛍光体を、以下、「Srサイアロン緑色蛍光体」ともいう。

[0021] Srサイアロン緑色蛍光体において、一般式(1)で表される基本組成を有するユーロピウム付活サイアロン結晶体は、一般式(1)で表される組成を有するとともに、一般式(1)で表されないSc、Y、La、Ce、Pr、Nd、Sm、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、YbおよびLuから選ばれる非Eu希土類元素の少なくとも1種をさらに含む。

[0022] ここで、一般式(1)で表される基本組成を有するユーロピウム付活サイアロン結晶体と、Srサイアロン緑色蛍光体との関係について説明する。

一般式(1)で表される基本組成を有するユーロピウム付活サイアロン結晶体は、斜方晶の単結晶である。ユーロピウム付活サイアロン結晶体中には、非Eu希土類元素が含まれる。

一方、Srサイアロン緑色蛍光体は、一般式(1)で表される基本組成を有するユーロピウム付活サイアロン結晶体の1個からなる結晶体、またはこのユーロピウム付活サイアロン結晶体の2個以上が凝集してなる結晶体の集合体である。

[0023] なお、非Eu希土類元素は、ユーロピウム付活サイアロン結晶体中に含まれるものであり、ユーロピウム付活サイアロン結晶体の表面には付着しない。このため、Srサイアロン緑色蛍光体が、多数のユーロピウム付活サイアロン結晶体が凝集してなる集合体である場合でも、Srサイアロン緑色蛍光体の非Eu希土類元素の含有量と、ユーロピウム付活サイアロン結晶体の非Eu希土類元素の含有量とは、実質的に同じである。しかし、通常、Srサ

イアロン緑色蛍光体は、単結晶粉末の形態をとる。

[0024] S_rサイアロン緑色蛍光体が、上記ユーロピウム付活サイアロン結晶体の2個以上が凝集してなる結晶体の集合体である場合は、解砕することにより、上記ユーロピウム付活サイアロン結晶体ごとに分離することが可能になっている。

[0025] 一般式(1)において、 x は、 $0 < x < 1$ 、好ましくは $0.025 \leq x \leq 0.5$ 、さらに好ましくは $0.25 \leq x \leq 0.5$ を満足する数である。

x が0であると焼成工程で得られる焼成体が蛍光体にならず、 x が1であるとS_rサイアロン緑色蛍光体の発光効率が低くなる。

[0026] また、 x は $0 < x < 1$ の範囲内で小さい数になるほどS_rサイアロン緑色蛍光体の発光効率が低下しやすくなる。さらに、 x は $0 < x < 1$ の範囲内で大きい数になるほどE_u濃度の過剰のために濃度消光を起こしやすくなる。

このため、 x は $0 < x < 1$ のうちでも、 $0.025 \leq x \leq 0.5$ を満足する数が好ましく、 $0.25 \leq x \leq 0.5$ を満足する数がさらに好ましい。

[0027] 一般式(1)において、S_rの総合的な添え字 $(1-x)\alpha$ は $0 < (1-x)\alpha < 4$ を満足する数である。また、E_uの総合的な添え字 $x\alpha$ は $0 < x\alpha < 4$ を満足する数である。すなわち、一般式(1)において、S_rおよびE_uの総合的な添え字は、それぞれ0を超え4未満を満足する数である。

[0028] 一般式(1)において、S_rとE_uの合計量は α で表される。この合計量 α を一定値3とした場合における β 、 γ 、 δ および ω の数値を規定することにより、一般式(1)の α 、 β 、 γ 、 δ および ω の比率の特定は明確になっている。

[0029] 一般式(1)において、 β 、 γ 、 δ および ω は、 α が3のときに換算した数値である。

一般式(1)において、S_iの添え字である β は、 α が3のときに換算した数値が $9 < \beta \leq 15$ を満足する数である。

一般式(1)において、A_lの添え字である γ は、 α が3のときに換算した数値が $1 \leq \gamma \leq 5$ を満足する数である。

一般式（１）において、 O の添え字である δ は、 α が３のときに換算した数値が $0.5 \leq \delta \leq 3$ を満足する数である。

一般式（１）において、 N の添え字である ω は、 α が３のときに換算した数値が $10 \leq \omega \leq 25$ を満足する数である。

[0030] 一般式（１）において、添え字 β 、 γ 、 δ および ω が、それぞれ上記範囲外の数になると、焼成で得られる蛍光体の組成が、一般式（１）で表される斜方晶系の Sr サイアロン緑色蛍光体と異なるものになるおそれがある。

[0031] Sr サイアロン緑色蛍光体は、一般式（１）で表される基本組成を有するユーロピウム付活サイアロン結晶体中に、 Sc 、 Y 、 La 、 Ce 、 Pr 、 Nd 、 Sm 、 Gd 、 Tb 、 Dy 、 Ho 、 Er 、 Tm 、 Yb および Lu から選ばれる非 Eu 希土類元素の少なくとも１種を 0.1 質量％以上 10 質量％以下、好ましくは 0.5 質量％以上 5 質量％以下、さらに好ましくは 0.7 質量％以上 2 質量％以下の割合で含む。

[0032] ここで、非 Eu 希土類元素の含有量は、非 Eu 希土類元素を含むユーロピウム付活サイアロン結晶体全体の質量、に対する非 Eu 希土類元素の質量の割合である。

[0033] 非 Eu 希土類元素の含有量が上記範囲内にあると、非 Eu 希土類元素の含有量が上記範囲外にある場合に比較して、 Sr サイアロン緑色蛍光体の焼成時の結晶成長が促進されて Sr サイアロン緑色蛍光体の焼成時間の短縮が可能になるとともに、 Sr サイアロン緑色蛍光体の結晶性が良く結晶が緻密化するために Sr サイアロン緑色蛍光体の発光効率が高くなる。ここで、結晶性が良いとは、格子欠陥が少ないことを意味する。

[0034] 一方、非 Eu 希土類元素の含有量が 0.1 質量％未満の場合または 10 質量％を超える場合は、 Sr サイアロン緑色蛍光体の結晶性が悪くなって Sr サイアロン緑色蛍光体の発光効率が低くなるおそれがある。

[0035] Sr サイアロン緑色蛍光体は、ユーロピウム付活サイアロン結晶体中に、非 Eu 希土類元素として少なくとも Y を含むと、 Sr サイアロン緑色蛍光体の結晶性が良くなることから Sr サイアロン緑色蛍光体の発光効率が高くな

るため好ましい。

[0036] また、S r サイアロン緑色蛍光体は、ユーロピウム付活サイアロン結晶体中に、Y とともに、たとえば、S c、L a、C e、P r、N d、S m、G d、T b、D y、H o、E r、T m、Y b および L u 等の非 E u 希土類元素を含むと、S r サイアロン緑色蛍光体の結晶性がより良くなることから S r サイアロン緑色蛍光体の発光効率がより高くなるためさらに好ましい。

[0037] S r サイアロン緑色蛍光体は、通常、単結晶粉末、すなわち粉末を構成する各粒子が単結晶粒子の状態になっている。

この S r サイアロン緑色蛍光体の粉末は、平均粒径が、通常 $1\ \mu\text{m}$ 以上 $100\ \mu\text{m}$ 以下、好ましくは $5\ \mu\text{m}$ 以上 $80\ \mu\text{m}$ 以下、さらに好ましくは $8\ \mu\text{m}$ 以上 $80\ \mu\text{m}$ 以下、より好ましくは $8\ \mu\text{m}$ 以上 $40\ \mu\text{m}$ 以下である。ここで、平均粒径とは、コールターカウンター法による測定値であり、体積累積分布の中央値 D_{50} を意味する。

[0038] S r サイアロン緑色蛍光体の粉末の平均粒径が $1\ \mu\text{m}$ 未満であったり $100\ \mu\text{m}$ を超えたりすると、透明樹脂硬化物中に S r サイアロン緑色蛍光体の粉末や他の色の蛍光体粉末を分散させ、半導体発光素子からの紫外光、紫色光または青色光の照射により緑色光や他の色の光を出射させる構造の発光装置を作製した場合に、発光装置からの光の取り出し効率が低下するおそれがある。

一般式 (1) で表される S r サイアロン緑色蛍光体は、紫外光、紫色光または青色光が照射されると励起し、緑色光を出射する。

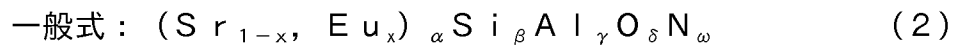
[0039] ここで、紫外光、紫色光または青色光とは、紫外光、紫色光または青色光の波長域内にピーク波長を有する光を意味する。紫外光、紫色光または青色光は、 $370\ \text{nm}$ 以上 $470\ \text{nm}$ 以下の範囲内にピーク波長を有する光であることが好ましい。

[0040] 紫外光、紫色光または青色光の受光により励起された一般式 (1) で表される S r サイアロン緑色蛍光体は、発光ピーク波長が $500\ \text{nm}$ 以上 $540\ \text{nm}$ 以下の範囲内の緑色光を発光する。

[0041] [赤色蛍光体]

赤色蛍光体は、下記一般式（2）

[0042] [化4]



（式中、 x は $0 < x < 1$ 、 α は $0 < \alpha \leq 3$ であり、 β 、 γ 、 δ および ω は α が2のときに換算した数値が、 $5 \leq \beta \leq 9$ 、 $1 \leq \gamma \leq 5$ 、 $0.5 \leq \delta \leq 2$ 、 $5 \leq \omega \leq 15$ を満足する数である）

[0043] で表される基本組成を有するユーロピウム付活サイアロン結晶体からなり、紫外光、紫色光または青色光で励起されることにより赤色発光する蛍光体である。この赤色発光する蛍光体を、以下、「Srサイアロン赤色蛍光体」ともいう。

[0044] Srサイアロン赤色蛍光体において、一般式（2）で表される基本組成を有するユーロピウム付活サイアロン結晶体は、一般式（2）で表される組成を有するとともに、一般式（2）で表されないSc、Y、La、Ce、Pr、Nd、Sm、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、YbおよびLuから選ばれる非Eu希土類元素の少なくとも1種をさらに含む。

[0045] ここで、一般式（2）で表される基本組成を有するユーロピウム付活サイアロン結晶体と、Srサイアロン赤色蛍光体との関係について説明する。

一般式（2）で表される基本組成を有するユーロピウム付活サイアロン結晶体は、斜方晶の単結晶である。ユーロピウム付活サイアロン結晶体中には、非Eu希土類元素が含まれる。

一方、Srサイアロン赤色蛍光体は、一般式（2）で表される基本組成を有するユーロピウム付活サイアロン結晶体の1個からなる結晶体、またはこのユーロピウム付活サイアロン結晶体の2個以上が凝集してなる結晶体の集合体である。

[0046] なお、非Eu希土類元素は、ユーロピウム付活サイアロン結晶体中に含まれるものであり、ユーロピウム付活サイアロン結晶体の表面には付着しない。このため、Srサイアロン赤色蛍光体が、多数のユーロピウム付活サイア

ロン結晶体が凝集してなる集合体である場合でも、S r サイアロン赤色蛍光体の非E u 希土類元素の含有量と、ユーロピウム付活サイアロン結晶体の非E u 希土類元素の含有量とは、実質的に同じである。しかし、通常、S r サイアロン赤色蛍光体は、単結晶粉末の形態をとる。

[0047] S r サイアロン赤色蛍光体が、上記ユーロピウム付活サイアロン結晶体の2個以上が凝集してなる結晶体の集合体である場合は、解砕することにより、上記ユーロピウム付活サイアロン結晶体ごとに分離することが可能になっている。

[0048] 一般式(2)において、 x は、 $0 < x < 1$ 、好ましくは $0.025 \leq x \leq 0.5$ 、さらに好ましくは $0.25 \leq x \leq 0.5$ を満足する数である。

x が0であると焼成工程で得られる焼成体が蛍光体にならず、 x が1であるとS r サイアロン赤色蛍光体の発光効率が低くなる。

[0049] また、 x は $0 < x < 1$ の範囲内で小さい数になるほどS r サイアロン赤色蛍光体の発光効率が低下しやすくなる。さらに、 x は $0 < x < 1$ の範囲内で大きい数になるほどE u 濃度の過剰のために濃度消光を起こしやすくなる。

このため、 x は $0 < x < 1$ のうちでも、 $0.025 \leq x \leq 0.5$ を満足する数が好ましく、 $0.25 \leq x \leq 0.5$ を満足する数がさらに好ましい。

[0050] 一般式(2)において、S r の総合的な添え字 $(1-x)\alpha$ は $0 < (1-x)\alpha < 3$ を満足する数である。また、E u の総合的な添え字 $x\alpha$ は $0 < x\alpha < 3$ を満足する数である。すなわち、一般式(2)において、S r およびE u の総合的な添え字は、それぞれ0を超え3未満を満足する数である。

[0051] 一般式(2)において、S r とE u の合計量は α で表される。この合計量 α を一定値2とした場合における β 、 γ 、 δ および ω の数値を規定することにより、一般式(2)の α 、 β 、 γ 、 δ および ω の比率の特定は明確になっている。

[0052] 一般式(2)において、 β 、 γ 、 δ および ω は、 α が2のときに換算した数値である。

一般式(2)において、S i の添え字である β は、 α が2のときに換算し

た数値が $5 \leq \beta \leq 9$ を満足する数である。

一般式 (2) において、A l の添え字である γ は、 α が 2 のときに換算した数値が $1 \leq \gamma \leq 5$ を満足する数である。

一般式 (2) において、O の添え字である δ は、 α が 2 のときに換算した数値が $0.5 \leq \delta \leq 2$ を満足する数である。

一般式 (2) において、N の添え字である ω は、 α が 2 のときに換算した数値が $5 \leq \omega \leq 15$ を満足する数である。

[0053] 一般式 (2) において、添え字 β 、 γ 、 δ および ω が、それぞれ上記範囲外の数になると、焼成で得られる蛍光体の組成が、一般式 (2) で表される斜方晶系の S r サイアロン赤色蛍光体と異なるものになるおそれがある。

[0054] S r サイアロン赤色蛍光体は、一般式 (2) で表される基本組成を有するユーロピウム付活サイアロン結晶体中に、S c、Y、L a、C e、P r、N d、S m、G d、T b、D y、H o、E r、T m、Y b および L u から選ばれる非 E u 希土類元素の少なくとも 1 種を 0.1 質量%以上 10 質量%以下、好ましくは 0.5 質量%以上 5 質量%以下、さらに好ましくは 0.7 質量%以上 2 質量%以下の割合で含む。

[0055] ここで、非 E u 希土類元素の含有量は、非 E u 希土類元素を含むユーロピウム付活サイアロン結晶体全体の質量、に対する非 E u 希土類元素の質量の割合である。

[0056] 非 E u 希土類元素の含有量が上記範囲内にあると、非 E u 希土類元素の含有量が上記範囲外にある場合に比較して、S r サイアロン赤色蛍光体の焼成時の結晶成長が促進されて S r サイアロン赤色蛍光体の焼成時間の短縮が可能になるとともに、S r サイアロン赤色蛍光体の結晶性が良いために S r サイアロン赤色蛍光体の発光効率が高くなる。ここで、結晶性が良いとは、格子欠陥が少ないことを意味する。

[0057] 一方、非 E u 希土類元素の含有量が 0.1 質量%未満の場合または 10 質量%を超える場合は、S r サイアロン赤色蛍光体の結晶性が悪くなって S r サイアロン赤色蛍光体の発光効率が低くなるおそれがある。

[0058] S r サイアロン赤色蛍光体は、ユーロピウム付活サイアロン結晶体中に、非 E u 希土類元素として少なくとも Y を含むと、S r サイアロン赤色蛍光体の結晶性が良くなることから S r サイアロン赤色蛍光体の発光効率が高くなるため好ましい。

[0059] また、S r サイアロン赤色蛍光体は、ユーロピウム付活サイアロン結晶体中に、Y とともに、たとえば、S c、L a、C e、P r、N d、S m、G d、T b、D y、H o、E r、T m、Y b および L u 等の非 E u 希土類元素を含むと、S r サイアロン赤色蛍光体の結晶性がより良くなることから S r サイアロン赤色蛍光体の発光効率がより高くなるためさらに好ましい。

[0060] S r サイアロン赤色蛍光体は、通常、単結晶粉末、すなわち粉末を構成する各粒子が単結晶粒子の状態になっている。

この S r サイアロン赤色蛍光体の粉末は、平均粒径が、好ましくは $1\ \mu\text{m}$ 以上 $100\ \mu\text{m}$ 以下、さらに好ましくは $5\ \mu\text{m}$ 以上 $50\ \mu\text{m}$ 以下、より好ましくは $10\ \mu\text{m}$ 以上 $35\ \mu\text{m}$ 以下である。ここで、平均粒径とは、コールターカウンター法による測定値であり、体積累積分布の中央値 D_{50} を意味する。

[0061] S r サイアロン赤色蛍光体の粉末の平均粒径が $1\ \mu\text{m}$ 未満であったり $100\ \mu\text{m}$ を超えたりすると、透明樹脂硬化物中に S r サイアロン赤色蛍光体の粉末や他の色の蛍光体粉末を分散させ、半導体発光素子からの紫外光、紫色光または青色光の照射により赤色光や他の色の光を出射させる構造の発光装置を作製した場合に、発光装置からの光の取り出し効率が低下するおそれがある。

一般式 (2) で表される S r サイアロン赤色蛍光体は、紫外光、紫色光または青色光を受光すると励起され、赤色光を出射する。

[0062] ここで、紫外光、紫色光または青色光とは、紫外光、紫色光または青色光の波長域内にピーク波長を有する光を意味する。紫外光、紫色光または青色光は、 $370\ \text{nm}$ 以上 $470\ \text{nm}$ 以下の範囲内にピーク波長を有する光であることが好ましい。

[0063] 紫外光、紫色光または青色光の受光により励起された一般式（２）で表されるＳｒサイアロン赤色蛍光体は、発光ピーク波長が５５０ｎｍ以上６５０ｎｍ以下の範囲内の赤色光を発光する。

[0064] [緑色蛍光体および赤色蛍光体の製造方法]

一般式（１）で表されるＳｒサイアロン緑色蛍光体、および一般式（２）で表されるＳｒサイアロン赤色蛍光体は、たとえば、炭酸ストロンチウム SrCO_3 、窒化アルミニウム AlN 、窒化珪素 Si_3N_4 、酸化ユーロピウム Eu_2O_3 、および非Ｅｕ希土類元素の酸化物等の各原料を乾式混合して蛍光体原料混合物を調製し、この蛍光体原料混合物を窒素雰囲気中で焼成することにより作製することができる。

[0065] なお、一般式（１）で表されるＳｒサイアロン緑色蛍光体は、一般式（２）で表されるＳｒサイアロン赤色蛍光体に比べて、窒素Ｎを多く含んでいる。このため、一般式（１）で表されるＳｒサイアロン緑色蛍光体と、一般式（２）で表されるＳｒサイアロン赤色蛍光体とは、蛍光体原料混合物中の SrCO_3 、 AlN 、 Si_3N_4 、 Eu_2O_3 、および非Ｅｕ希土類元素の酸化物等の各原料の配合比率を変えたり、焼成の際の炉内の窒素ガス量を変えたりすることにより作り分けることができる。たとえば、焼成の際の炉内の窒素ガスの圧力を１気圧程度の低めにするると一般式（２）で表されるＳｒサイアロン赤色蛍光体を得られやすく、７気圧程度の高めにするると一般式（１）で表されるＳｒサイアロン緑色蛍光体を得られやすい。

[0066] 蛍光体原料混合物は、さらにフラックス剤として、反応促進剤であるフッ化カリウム等のアルカリ金属またはアルカリ土類金属のフッ化物や、塩化ストロンチウム SrCl_2 等を含んでいてもよい。

蛍光体原料混合物は、耐火るつばに充填される。耐火るつばとしては、たとえば、窒化ホウ素るつば、カーボンるつば等が用いられる。

[0067] 耐火るつばに充填された蛍光体原料混合物は焼成される。焼成装置は、耐火るつばが配置される内部の焼成雰囲気組成および圧力、ならびに焼成温度および焼成時間が所定条件に保たれる装置が用いられる。このような焼成

装置としては、たとえば、電気炉が用いられる。

焼成雰囲気としては、不活性ガスが用いられる。不活性ガスとしては、たとえば、 N_2 ガス、Arガス、 N_2 と H_2 との混合ガス等が用いられる。

[0068] 一般的に、蛍光体原料混合物から蛍光体粉末を焼成するときは、蛍光体粉末に対して酸素Oを過剰に含む蛍光体原料混合物から適量の酸素Oが消失することにより、所定の組成の蛍光体粉末を得る。

[0069] 焼成雰囲気中の N_2 は、蛍光体原料混合物から蛍光体粉末を焼成する際に、蛍光体原料混合物から適量の酸素Oを消失させる作用を有する。

[0070] また、焼成雰囲気中のArは、蛍光体原料混合物から蛍光体粉末を焼成する際に、蛍光体原料混合物に余分な酸素Oを供給しない作用を有する。

[0071] また、焼成雰囲気中の H_2 は、蛍光体原料混合物から蛍光体粉末を焼成する際に、還元剤として作用し、 N_2 に比べて蛍光体原料混合物からより多くの酸素Oを消失させる。

[0072] このため、不活性ガス中に H_2 が含まれる場合は、不活性ガス中に H_2 が含まれない場合に比べて、焼成時間を短くすることができる。ただし、不活性ガス中の H_2 の含有量が多すぎると、得られる蛍光体粉末の組成が、一般式（1）で表されるSrサイアロン緑色蛍光体または一般式（2）で表されるSrサイアロン赤色蛍光体と異なりやすく、このために蛍光体粉末の発光強度が弱くなるおそれがある。

[0073] 不活性ガスが、 N_2 ガス、または N_2 と H_2 との混合ガスである場合、不活性ガス中の N_2 と H_2 とのモル比率は、 $N_2 : H_2$ が、通常10 : 0～1 : 9、好ましくは8 : 2～2 : 8、さらに好ましくは6 : 4～4 : 6である。

[0074] 不活性ガス中の N_2 と H_2 とのモル比率が、上記範囲内、すなわち通常10 : 0～1 : 9であると、短時間の焼成で、結晶構造の欠陥の少ない高品質な単結晶の蛍光体粉末を得ることができる。

[0075] 不活性ガス中の N_2 と H_2 とのモル比率は、焼成装置のチャンバー内に連続的に供給される N_2 と H_2 とを、 N_2 と H_2 との流量の比率が上記比率になるように供給するとともに、チャンバー内の混合ガスを連続的に排出することに

より、上記比率、すなわち通常 10 : 0 ~ 1 : 9 にすることができる。

[0076] 焼成雰囲気である不活性ガスは、焼成装置のチャンバー内で気流を形成させるように流通させると、焼成が均一に行われるため好ましい。

焼成雰囲気である不活性ガスの圧力は、通常 0.1 MPa (略 1 atm) ~ 1.0 MPa (略 10 atm)、好ましくは 0.4 MPa ~ 0.8 MPa である。

[0077] 焼成雰囲気の圧力が 0.1 MPa 未満であると、焼成前にるつぼに仕込んだ蛍光体原料混合物に比較して、焼成後に得られる蛍光体粉末の組成が一般式 (1) で表される Sr サイアロン緑色蛍光体または一般式 (2) で表される Sr サイアロン赤色蛍光体と異なりやすく、このために蛍光体粉末の発光強度が弱くなるおそれがある。

[0078] 焼成雰囲気の圧力が 1.0 MPa を超えると、圧力が 1.0 MPa 以下の場合と比較しても焼成条件に特に変化がなく、エネルギーの無駄遣いになるため好ましくない。

[0079] 焼成温度は、通常 1400℃ ~ 2000℃、好ましくは 1750℃ ~ 1950℃、さらに好ましくは 1800℃ ~ 1900℃ である。

焼成温度が 1400℃ ~ 2000℃ の範囲内にあると、短時間の焼成で、結晶構造の欠陥の少ない高品質な単結晶の蛍光体粉末を得ることができる。

[0080] 焼成温度が 1400℃ 未満であると、得られる蛍光体粉末が紫外光、紫色光または青色光により励起されて出射する光の色が、所望の色にならないおそれがある。すなわち、一般式 (1) で表される Sr サイアロン緑色蛍光体を製造したい場合に、紫外光、紫色光または青色光により励起されて出射する光の色が緑色以外の色になったり、一般式 (2) で表される Sr サイアロン赤色蛍光体を製造したい場合に、紫外光、紫色光または青色光により励起されて出射する光の色が赤色以外の色になったりするおそれがある。

[0081] 焼成温度が 2000℃ を超えると、焼成の際の N と O の消失度合いが大きくなることにより得られる蛍光体粉末の組成が一般式 (1) で表される Sr サイアロン緑色蛍光体または一般式 (2) で表される Sr サイアロン赤色蛍

光体と異なりやすく、このために蛍光体粉末の発光強度が弱くなるおそれがある。

焼成時間は、通常0.5時間～20時間、好ましくは1時間～10時間、さらに好ましくは1時間～5時間、より好ましくは1.5時間～2.5時間である。

[0082] 焼成時間が0.5時間未満である場合または20時間を超える場合は、得られる蛍光体粉末の組成が一般式(1)で表されるSrサイアロン緑色蛍光体または一般式(2)で表されるSrサイアロン赤色蛍光体と異なりやすく、このために蛍光体粉末の発光強度が弱くなるおそれがある。

[0083] 焼成時間は、焼成温度が高い場合は、0.5時間～20時間の範囲内で短い時間とすることが好ましく、焼成温度が低い場合は、0.5時間～20時間の範囲内で長い時間とすることが好ましい。

[0084] 焼成後の耐火るつぼ中には、蛍光体粉末からなる焼成体が生成される。焼成体は、通常、弱く固まった塊状になっている。焼成体を、乳棒等を用いて軽く解砕すると、蛍光体粉末が得られる。解砕で得られた蛍光体粉末は、一般式(1)で表されるSrサイアロン緑色蛍光体または一般式(2)で表されるSrサイアロン赤色蛍光体の粉末になる。

[0085] [発光装置]

発光装置は、上記の一般式(1)で表されるSrサイアロン緑色蛍光体または一般式(2)で表されるSrサイアロン赤色蛍光体を用いる発光装置である。

具体的には、発光装置は、基板と、この基板上に配置され、紫外光、紫色光または青色光を出射する半導体発光素子と、この半導体発光素子の発光面を覆うように形成され、半導体発光素子からの出射光により励起されて可視光を発する蛍光体を含む発光部とを備え、蛍光体は、一般式(1)で表されるSrサイアロン緑色蛍光体または一般式(2)で表されるSrサイアロン赤色蛍光体を含む発光装置である。

[0086] 蛍光体としては、一般式(1)で表されるSrサイアロン緑色蛍光体また

は一般式（２）で表されるＳｒサイアロン赤色蛍光体の少なくともいずれかを含んでいればよく、一般式（１）で表されるＳｒサイアロン緑色蛍光体および一般式（２）で表されるＳｒサイアロン赤色蛍光体の両方を含んでいてもよい。

[0087] 発光装置は、発光部中に含まれる蛍光体がＳｒサイアロン緑色蛍光体のみであれば発光装置の出射面から緑色光を出射し、発光部中に含まれる蛍光体がＳｒサイアロン赤色蛍光体のみであれば発光装置の出射面から赤色光を出射する。

[0088] また、発光装置は、発光部中に、Ｓｒサイアロン緑色蛍光体に加え、青色蛍光体、およびＳｒサイアロン赤色蛍光体等の赤色蛍光体等の蛍光体を含むようにしたり、Ｓｒサイアロン赤色蛍光体に加え、青色蛍光体、およびＳｒサイアロン緑色蛍光体等の緑色蛍光体等の蛍光体を含むようにしたりすると、各色の蛍光体から出射される赤色光、青色光および緑色光等の各色の光の混色により、発光装置の出射面から白色光を出射する白色光発光装置とすることもできる。

[0089] さらに、発光装置は、Ｓｒサイアロン緑色蛍光体に加え他の緑色蛍光体を含んでいたり、Ｓｒサイアロン赤色蛍光体に加え他の赤色蛍光体を含んでいたりしてもよい。

[0090] なお、発光装置は、蛍光体として、一般式（１）で表されるＳｒサイアロン緑色蛍光体と一般式（２）で表されるＳｒサイアロン赤色蛍光体とを含んでいてもよい。蛍光体として、Ｓｒサイアロン緑色蛍光体とＳｒサイアロン赤色蛍光体との両方が含まれる場合は、温度特性の良い発光装置が得られる。

[0091] （基板）

基板としては、たとえば、アルミナ、窒化アルミニウム（ＡｌＮ）等のセラミックス、ガラスエポキシ樹脂等が用いられる。基板がアルミナ板や窒化アルミニウム板であると、熱伝導性が高く、ＬＥＤ光源の温度上昇を抑制することができるため好ましい。

[0092] (半導体発光素子)

半導体発光素子は、基板上に配置される。

半導体発光素子としては、紫外光、紫色光または青色光を出射する半導体発光素子が用いられる。ここで、紫外光、紫色光または青色光とは、紫外光、紫色光または青色光の波長域内にピーク波長を有する光を意味する。紫外光、紫色光または青色光は、370nm以上470nm以下の範囲内にピーク波長を有する光であることが好ましい。

[0093] 紫外光、紫色光または青色光を出射する半導体発光素子としては、たとえば、紫外発光ダイオード、紫色発光ダイオード、青色発光ダイオード、紫外レーザダイオード、紫色レーザダイオードおよび青色レーザダイオード等が用いられる。なお、半導体発光素子がレーザダイオードの場合、上記ピーク波長とは、ピーク発振波長を意味する。

[0094] (発光部)

発光部は、半導体発光素子からの出射光である紫外光、紫色光または青色光により励起されて可視光を出射する蛍光体を透明樹脂硬化物中に含むものであり、半導体発光素子の発光面を被覆するように形成される。

[0095] 発光部に用いられる蛍光体は、少なくとも上記のSrサイアロン緑色蛍光体、またはSrサイアロン赤色蛍光体を含む。また、蛍光体は、Srサイアロン緑色蛍光体とSrサイアロン赤色蛍光体との両方を含んでいてもよい。

[0096] また、発光部に用いられる蛍光体は、上記のSrサイアロン緑色蛍光体またはSrサイアロン赤色蛍光体と、Srサイアロン緑色蛍光体またはSrサイアロン赤色蛍光体以外の蛍光体とを含むものであってもよい。Srサイアロン緑色蛍光体またはSrサイアロン赤色蛍光体以外の蛍光体としては、たとえば、赤色蛍光体、青色蛍光体、緑色蛍光体、黄色蛍光体、紫色蛍光体、橙色蛍光体等を用いることができる。蛍光体としては、通常、粉末状のものが用いられる。

発光部において、蛍光体は透明樹脂硬化物中に含まれる。通常、蛍光体は透明樹脂硬化物中に分散される。

[0097] 発光部に用いられる透明樹脂硬化物は、透明樹脂、すなわち透明性の高い樹脂を硬化させたものである。透明樹脂としては、たとえば、シリコーン樹脂、エポキシ樹脂等が用いられる。シリコーン樹脂は、エポキシ樹脂よりもUV耐性が高いため好ましい。また、シリコーン樹脂のうちでは、ジメチルシリコーン樹脂が、UV耐性が高いためさらに好ましい。

[0098] 発光部は、蛍光体100質量部に対して透明樹脂硬化物20～1000質量部の割合で構成されていることが好ましい。蛍光体に対する透明樹脂硬化物の割合がこの範囲内にあると、発光部の発光強度が高い。

[0099] 発光部の膜厚は、通常、80 μ m以上800 μ m以下、好ましくは150 μ m以上600 μ m以下である。発光部の膜厚が80 μ m以上800 μ m以下であると、半導体発光素子から出射される紫外光、紫色光または青色光の漏出量が少ない状態で実用的な明るさを確保することができる。発光部の膜厚を150 μ m以上600 μ m以下とすると、発光部からの発光をより明るくすることができる。

[0100] 発光部は、たとえば、はじめに透明樹脂と蛍光体とを混合して、蛍光体が透明樹脂中に分散した蛍光体スラリーを調製し、次に、蛍光体スラリーを半導体発光素子やグローブ内面に塗布し硬化させることにより得られる。

[0101] 蛍光体スラリーを半導体発光素子に塗布した場合には、発光部は半導体発光素子に接触して被覆する形態となる。また、蛍光体スラリーをグローブ内面に塗布した場合には、発光部は半導体発光素子と離間してグローブ内面に形成される形態となる。この発光部がグローブ内面に形成される形態の発光装置は、リモートフォスファー型LED発光装置と称される。

蛍光体スラリーは、たとえば、100℃～160℃に加熱することにより硬化させることができる。

[0102] 図1は、発光装置の発光スペクトルの一例である。

具体的には、半導体発光素子としてピーク波長が400nmの紫色光を出射する紫色LEDを用いるとともに、蛍光体として $\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_{13}\text{O}_{21}\text{N}_2$ で表される基本組成を有するとともにYが1質量%含有されたS

r サイアロン緑色蛍光体のみを用いた、25℃での緑色発光装置の発光スペクトルである。

なお、紫色LEDは、順方向降下電圧 V_f が3.199V、順方向電流 I_f が20mAである。

[0103] 図1に示すように、蛍光体として一般式(1)で表されるSrサイアロン緑色蛍光体を用いた緑色発光装置は、紫色光等の短波長の励起光を用いた場合でも発光強度が高い。

[0104] 図2は、発光装置の発光スペクトルの他の一例である。

具体的には、半導体発光素子としてピーク波長が400nmの紫色光を射出する紫色LEDを用いるとともに、蛍光体として $Sr_{1.6}Eu_{0.4}Si_7Al_3ON_{13}$ で表される基本組成を有するとともにYが1質量%含有されたSrサイアロン赤色蛍光体のみを用いた、25℃での赤色発光装置の発光スペクトルである。

なお、紫色LEDは、順方向降下電圧 V_f が3.190V、順方向電流 I_f が20mAである。

[0105] 図2に示すように、蛍光体として一般式(2)で表されるSrサイアロン赤色蛍光体を用いた赤色発光装置は、紫色光等の短波長の励起光を用いた場合でも発光強度が高い。

実施例

[0106] 以下に実施例を示すが、本発明はこれらに限定されて解釈されるものではない。

[0107] (緑色蛍光体の作製)

はじめに、 $SrCO_3$ を337g、 AlN を104g、 Si_3N_4 を514g、 Eu_2O_3 を44g、および非Eu希土類元素として Sc_2O_3 を2g秤量し、これらにフラックス剤を適量加え、乾式混合して蛍光体原料混合物を調製した(試料No. 2)。その後、この蛍光体原料混合物を窒化ホウ素るつぼに充填した。蛍光体原料混合物の原料の配合量を表1に示す。

蛍光体原料混合物が充填された窒化ホウ素るつぼを、電気炉内で、0.7

MPa（略7気圧）の窒素雰囲気中、1850℃で2時間焼成したところ、ろつぼ中に焼成粉末の塊が得られた。

この塊を解砕した後、焼成粉末に焼成粉末の質量の10倍量の純水を加えて10分間攪拌し、ろ過して焼成粉末を得た。この焼成粉末の洗浄操作をさらに4回繰り返し、合計5回洗浄した。洗浄後の焼成粉末をろ過し、乾燥した後、目開き45ミクロンのナイロンメッシュで篩ったところ、焼成粉末が得られた（試料No. 2）。

この焼成粉末を分析したところ、表2に示す組成からなる単結晶のSrサイアロン緑色蛍光体であった。また、焼成粉末を構成する蛍光体粒子中には、表2に示す種類および量の非Eu希土類元素が含まれていた。試料No. 2では、非Eu希土類元素はScである。

非Eu希土類元素の含有量（質量％）は、非Eu希土類元素を含めた焼成粉末全体の質量に対する非Eu希土類元素の質量の割合である。非Eu希土類元素は、蛍光体粉末（焼成粉末）を構成する各粒子の内部に存在していた。

焼成粉末の基本組成、および焼成粉末に含まれる非Eu希土類元素の含有量の測定結果を表2に示す。

[0108] 得られたSrサイアロン蛍光体について発光ピーク波長、発光効率、および平均粒径を測定した。

発光効率は、室温（25℃）で測定したものであり、後述する比較例（試料No. 1）の室温での発光効率（lm/W）を100とする相対値（％）として示す。

平均粒径は、コールターカウンター法による測定値であり、体積累積分布の中央値D₅₀の値である。

発光ピーク波長、発光強度、および平均粒径の測定結果を表3に示す。

[0109]（他の緑色蛍光体の作製）

蛍光体原料混合物の原料の配合量を表1または表4に示すように変えた以外は試料No. 2と同様にして、緑色蛍光体を作製した（試料No. 1、N

o. 3～54、No. 61～75)。

なお、試料No. 1は非Eu希土類元素を実質的に含まない比較例である。また、試料No. 2～52は非Eu希土類元素の種類と含有量を変えた実施例である。さらに、試料No. 53および54は一般式(1)で表される基本組成を変えた実施例である。また、No. 61～75は非Eu希土類元素の含有量が非常に多い比較例である。

得られた緑色蛍光体(試料No. 1、No. 3～54、No. 61～75)に対し、試料No. 2と同様にして、焼成粉末の基本組成、焼成粉末に含まれる非Eu希土類元素の含有量、発光ピーク波長、発光強度、および平均粒径を測定した。

焼成粉末の基本組成、および焼成粉末に含まれる非Eu希土類元素の含有量の測定結果を表2または表5に示す。

発光ピーク波長、発光強度、および平均粒径の測定結果を表3または表6に示す。

[0110]

[表1]

	試料 No.	原料の種類と配合量							
		SrCO ₃	AlN	Si ₃ N ₄	Eu ₂ O ₃	非Eu希土類元素 の酸化物		非Eu希土類元素 の酸化物	
		配合量 (g)	配合量 (g)	配合量 (g)	配合量 (g)	種類	配合量 (g)	種類	配合量 (g)
比較例	1	337	104	514	44	—	—	—	—
実施例	2	337	104	514	44	Sc ₂ O ₃	2	—	—
実施例	3	337	104	514	44	Sc ₂ O ₃	15	—	—
実施例	4	337	104	514	44	Sc ₂ O ₃	153	—	—
実施例	5	337	104	514	44	Y ₂ O ₃	1	—	—
実施例	6	337	104	514	44	Y ₂ O ₃	13	—	—
実施例	7	337	104	514	44	Y ₂ O ₃	127	—	—
実施例	8	337	104	514	44	La ₂ O ₃	1	—	—
実施例	9	337	104	514	44	La ₂ O ₃	12	—	—
実施例	10	337	104	514	44	La ₂ O ₃	117	—	—
実施例	11	337	104	514	44	CeO ₂	1	—	—
実施例	12	337	104	514	44	CeO ₂	12	—	—
実施例	13	337	104	514	44	CeO ₂	123	—	—
実施例	14	337	104	514	44	Pr ₆ O ₁₁	1	—	—
実施例	15	337	104	514	44	Pr ₆ O ₁₁	12	—	—
実施例	16	337	104	514	44	Pr ₆ O ₁₁	121	—	—
実施例	17	337	104	514	44	Nd ₂ O ₃	1	—	—
実施例	18	337	104	514	44	Nd ₂ O ₃	12	—	—
実施例	19	337	104	514	44	Nd ₂ O ₃	117	—	—
実施例	20	337	104	514	44	Sm ₂ O ₃	1	—	—
実施例	21	337	104	514	44	Sm ₂ O ₃	12	—	—
実施例	22	337	104	514	44	Sm ₂ O ₃	116	—	—
実施例	23	337	104	514	44	Gd ₂ O ₃	1	—	—
実施例	24	337	104	514	44	Gd ₂ O ₃	12	—	—
実施例	25	337	104	514	44	Gd ₂ O ₃	116	—	—
実施例	26	337	104	514	44	Tb ₄ O ₇	1	—	—
実施例	27	337	104	514	44	Tb ₄ O ₇	12	—	—
実施例	28	337	104	514	44	Tb ₄ O ₇	118	—	—
実施例	29	337	104	514	44	Dy ₂ O ₃	1	—	—
実施例	30	337	104	514	44	Dy ₂ O ₃	11	—	—
実施例	31	337	104	514	44	Dy ₂ O ₃	115	—	—
実施例	32	337	104	514	44	Ho ₂ O ₃	1	—	—
実施例	33	337	104	514	44	Ho ₂ O ₃	11	—	—
実施例	34	337	104	514	44	Ho ₂ O ₃	115	—	—

[表2]

	試料 No.	焼成粉末の基本組成	焼成粉末に含まれる非Eu希 土類元素		焼成粉末に含まれる非Eu希 土類元素	
			種類	(質量%)	種類	(質量%)
比較例	1	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	—	—	—	—
実施例	2	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Sc	0.1	—	—
実施例	3	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Sc	1	—	—
実施例	4	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Sc	10	—	—
実施例	5	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Y	0.1	—	—
実施例	6	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Y	1	—	—
実施例	7	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Y	10	—	—
実施例	8	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	La	0.1	—	—
実施例	9	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	La	1	—	—
実施例	10	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	La	10	—	—
実施例	11	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Ce	0.1	—	—
実施例	12	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Ce	1	—	—
実施例	13	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Ce	10	—	—
実施例	14	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Pr	0.1	—	—
実施例	15	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Pr	1	—	—
実施例	16	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Pr	10	—	—
実施例	17	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Nd	0.1	—	—
実施例	18	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Nd	1	—	—
実施例	19	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Nd	10	—	—
実施例	20	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Sm	0.1	—	—
実施例	21	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Sm	1	—	—
実施例	22	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Sm	10	—	—
実施例	23	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Gd	0.1	—	—
実施例	24	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Gd	1	—	—
実施例	25	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Gd	10	—	—
実施例	26	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Tb	0.1	—	—
実施例	27	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Tb	1	—	—
実施例	28	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Tb	10	—	—
実施例	29	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Dy	0.1	—	—
実施例	30	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Dy	1	—	—
実施例	31	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Dy	10	—	—
実施例	32	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Ho	0.1	—	—
実施例	33	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Ho	1	—	—
実施例	34	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Ho	10	—	—

[0112] [表3]

	試料 No.	発光 ピーク 波長 (nm)	発光 効率 (%)	平均 粒径 D ₅₀ (μm)	備考
比較例	1	520	100	10	非Eu希土類元素添加なし。
実施例	2	521	100	12	粒子成長促進効果あり。発光効率に変化なし。
実施例	3	521	105	15	粒子成長促進効果あり。発光効率が向上。
実施例	4	520	104	16	粒子成長促進効果あり。発光効率が向上。
実施例	5	520	105	20	強い粒子成長促進効果あり。発光効率が向上。
実施例	6	520	110	30	強い粒子成長促進効果あり。発光効率が向上。
実施例	7	520	120	80	強い粒子成長促進効果あり。発光効率が向上。
実施例	8	520	102	10	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	9	520	102	13	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	10	520	102	13	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	11	520	103	14	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	12	520	104	14	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	13	520	103	14	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	14	520	101	9	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	15	520	102	9	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	16	520	103	8	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	17	521	100	15	粒子成長促進効果あり。発光効率に変化なし。
実施例	18	521	102	18	粒子成長促進効果あり。発光効率が向上。
実施例	19	521	104	23	粒子成長促進効果あり。発光効率が向上。
実施例	20	520	101	12	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	21	520	102	11	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	22	520	103	13	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	23	520	104	13	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	24	520	104	13	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	25	520	102	13	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	26	520	103	10	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	27	520	103	11	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	28	520	103	11	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	29	520	103	9	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	30	520	103	11	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	31	520	102	9	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	32	520	105	13	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	33	520	103	12	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	34	520	105	11	結晶性改善効果により発光効率が向上。

[0113]

[表4]

	試料 No.	原料の種類と配合量							
		SrCO ₃	AlN	Si ₃ N ₄	Eu ₂ O ₃	非Eu希土類元素 の酸化物		非Eu希土類元素 の酸化物	
		配合量 (g)	配合量 (g)	配合量 (g)	配合量 (g)	種類	配合量 (g)	種類	配合量 (g)
実施例	35	337	104	514	44	Er ₂ O ₃	1	—	—
実施例	36	337	104	514	44	Er ₂ O ₃	11	—	—
実施例	37	337	104	514	44	Er ₂ O ₃	114	—	—
実施例	38	337	104	514	44	Tm ₂ O ₃	1	—	—
実施例	39	337	104	514	44	Tm ₂ O ₃	11	—	—
実施例	40	337	104	514	44	Tm ₂ O ₃	114	—	—
実施例	41	337	104	514	44	Yb ₂ O ₃	1	—	—
実施例	42	337	104	514	44	Yb ₂ O ₃	11	—	—
実施例	43	337	104	514	44	Yb ₂ O ₃	114	—	—
実施例	44	337	104	514	44	Lu ₂ O ₃	1	—	—
実施例	45	337	104	514	44	Lu ₂ O ₃	11	—	—
実施例	46	337	104	514	44	Lu ₂ O ₃	114	—	—
実施例	47	337	104	514	44	Y ₂ O ₃	13	La ₂ O ₃	12
実施例	48	337	104	514	44	Y ₂ O ₃	13	CeO ₂	12
実施例	49	337	104	514	44	Y ₂ O ₃	13	Pr ₆ O ₁₁	12
実施例	50	337	104	514	44	Y ₂ O ₃	13	Nd ₂ O ₃	12
実施例	51	337	104	514	44	Y ₂ O ₃	13	Gd ₂ O ₃	12
実施例	52	337	104	514	44	Y ₂ O ₃	13	Lu ₂ O ₃	11
実施例	53	316	146	500	38	Y ₂ O ₃	13	—	—
実施例	54	332	110	501	57	Y ₂ O ₃	13	—	—
比較例	61	337	104	514	44	Sc ₂ O ₃	230	—	—
比較例	62	337	104	514	44	Y ₂ O ₃	190	—	—
比較例	63	337	104	514	44	La ₂ O ₃	176	—	—
比較例	64	337	104	514	44	CeO ₂	184	—	—
比較例	65	337	104	514	44	Pr ₆ O ₁₁	181	—	—
比較例	66	337	104	514	44	Nd ₂ O ₃	175	—	—
比較例	67	337	104	514	44	Sm ₂ O ₃	174	—	—
比較例	68	337	104	514	44	Gd ₂ O ₃	173	—	—
比較例	69	337	104	514	44	Tb ₄ O ₇	176	—	—
比較例	70	337	104	514	44	Dy ₂ O ₃	172	—	—
比較例	71	337	104	514	44	Ho ₂ O ₃	172	—	—
比較例	72	337	104	514	44	Er ₂ O ₃	172	—	—
比較例	73	337	104	514	44	Tm ₂ O ₃	171	—	—
比較例	74	337	104	514	44	Yb ₂ O ₃	171	—	—
比較例	75	337	104	514	44	Lu ₂ O ₃	171	—	—

[0114] [表5]

	試料 No.	焼成粉末の基本組成	焼成粉末に含まれる非Eu希 土類元素		焼成粉末に含まれる非Eu希 土類元素	
			種類	(質量%)	種類	(質量%)
実施例	35	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Er	0.1	—	—
実施例	36	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Er	1	—	—
実施例	37	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Er	10	—	—
実施例	38	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Tm	0.1	—	—
実施例	39	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Tm	1	—	—
実施例	40	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Tm	10	—	—
実施例	41	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Yb	0.1	—	—
実施例	42	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Yb	1	—	—
実施例	43	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Yb	10	—	—
実施例	44	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Lu	0.1	—	—
実施例	45	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Lu	1	—	—
実施例	46	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Lu	10	—	—
実施例	47	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Y	1	La	1
実施例	48	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Y	1	Ce	1
実施例	49	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Y	1	Pr	1
実施例	50	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Y	1	Nd	1
実施例	51	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Y	1	Gd	1
実施例	52	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Y	1	Lu	1
実施例	53	$\text{Sr}_{3.0}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{15}\text{Al}_5\text{O}_2\text{N}_{21}$	Y	1	—	—
実施例	54	$\text{Sr}_{2.1}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{10}\text{Al}_{2.5}\text{O}_2\text{N}_{21}$	Y	1	—	—
比較例	61	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Sc	15	—	—
比較例	62	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Y	15	—	—
比較例	63	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	La	15	—	—
比較例	64	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Ce	15	—	—
比較例	65	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Pr	15	—	—
比較例	66	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Nd	15	—	—
比較例	67	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Sm	15	—	—
比較例	68	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Gd	15	—	—
比較例	69	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Tb	15	—	—
比較例	70	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Dy	15	—	—
比較例	71	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Ho	15	—	—
比較例	72	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Er	15	—	—
比較例	73	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Tm	15	—	—
比較例	74	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Yb	15	—	—
比較例	75	$\text{Sr}_{2.7}\text{Eu}_{0.3}\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$	Lu	15	—	—

[0115] [表6]

	試料 No.	発光 ピーク 波長 (nm)	発光 効率 (%)	平均 粒径 D ₅₀ (μ m)	備考
実施例	35	520	103	10	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	36	520	103	10	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	37	520	103	10	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	38	520	104	13	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	39	520	103	12	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	40	520	104	11	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	41	520	103	13	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	42	520	106	15	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	43	520	106	15	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	44	520	102	16	粒子成長促進効果あり。発光効率が向上。
実施例	45	520	105	25	粒子成長促進効果あり。発光効率が向上。
実施例	46	520	109	30	粒子成長促進効果あり。発光効率が向上。
実施例	47	520	110	35	強い粒子成長促進効果あり。発光効率が向上。
実施例	48	520	112	25	強い粒子成長促進効果あり。発光効率が向上。
実施例	49	520	115	25	強い粒子成長促進効果あり。発光効率が向上。
実施例	50	520	110	30	強い粒子成長促進効果あり。発光効率が向上。
実施例	51	520	110	33	強い粒子成長促進効果あり。発光効率が向上。
実施例	52	520	118	40	強い粒子成長促進効果あり。発光効率が向上。
実施例	53	520	111	25	強い粒子成長促進効果あり。発光効率が向上。
実施例	54	520	110	30	強い粒子成長促進効果あり。発光効率が向上。
比較例	61	520	90	10	不純物効果により発光効率が低下。
比較例	62	520	95	150	粒子過剰成長。粒子を含む樹脂のLEDへの塗布困難。
比較例	63	520	90	12	不純物効果により発光効率が低下。
比較例	64	520	82	12	不純物効果により発光効率が低下。
比較例	65	520	81	13	不純物効果により発光効率が低下。
比較例	66	520	80	11	不純物効果により発光効率が低下。
比較例	67	520	75	14	不純物効果により発光効率が低下。
比較例	68	520	80	10	不純物効果により発光効率が低下。
比較例	69	520	85	13	不純物効果により発光効率が低下。
比較例	70	520	86	13	不純物効果により発光効率が低下。
比較例	71	520	89	14	不純物効果により発光効率が低下。
比較例	72	520	70	14	不純物効果により発光効率が低下。
比較例	73	520	72	12	不純物効果により発光効率が低下。
比較例	74	520	90	16	不純物効果により発光効率が低下。
比較例	75	520	91	18	不純物効果により発光効率が低下。

[0116] (赤色蛍光体の作製)

蛍光体原料混合物の原料の配合量を表7または表10に示すように変えた以外は試料No. 2と同様にしたところ、焼成粉末が得られた(試料No. 101~154、No. 161~175)。

これらの焼成粉末を分析したところ、表8または表11に示す組成からなる単結晶のSrサイアロン赤色蛍光体であった。また、焼成粉末を構成する蛍光体粒子中には、表8または表11に示す種類および量の非Eu希土類元

素が含まれていた。非Eu希土類元素は、蛍光体粉末（焼成粉末）を構成する各粒子の内部に存在していた。

なお、試料No. 101は非Eu希土類元素を実質的に含まない比較例である。また、試料No. 102～152は非Eu希土類元素の種類と含有量を変えた実施例である。さらに、試料No. 153および154は一般式（2）で表される基本組成を変えた実施例である。また、No. 161～175は非Eu希土類元素の含有量が非常に多い比較例である。

得られた赤色蛍光体（試料No. 101～154、No. 161～175）に対し、緑色蛍光体の試料No. 2と同様にして、焼成粉末の基本組成、焼成粉末に含まれる非Eu希土類元素の含有量、発光ピーク波長、発光強度、および平均粒径を測定した。

焼成粉末の基本組成、および焼成粉末に含まれる非Eu希土類元素の含有量の測定結果を表8または表11に示す。

発光ピーク波長、発光強度、および平均粒径の測定結果を表9または表12に示す。

[0117]

[表7]

	試料 No.	原料の種類と配合量							
		SrCO ₃	AlN	Si ₃ N ₄	Eu ₂ O ₃	非Eu希土類元素 の酸化物		非Eu希土類元素 の酸化物	
		配合量 (g)	配合量 (g)	配合量 (g)	配合量 (g)	種類	配合量 (g)	種類	配合量 (g)
比較例	101	312	162	432	93	—	—	—	—
実施例	102	312	162	432	93	Sc ₂ O ₃	2	—	—
実施例	103	312	162	432	93	Sc ₂ O ₃	15	—	—
実施例	104	312	162	432	93	Sc ₂ O ₃	153	—	—
実施例	105	312	162	432	93	Y ₂ O ₃	1	—	—
実施例	106	312	162	432	93	Y ₂ O ₃	13	—	—
実施例	107	312	162	432	93	Y ₂ O ₃	127	—	—
実施例	108	312	162	432	93	La ₂ O ₃	1	—	—
実施例	109	312	162	432	93	La ₂ O ₃	12	—	—
実施例	110	312	162	432	93	La ₂ O ₃	117	—	—
実施例	111	312	162	432	93	CeO ₂	1	—	—
実施例	112	312	162	432	93	CeO ₂	12	—	—
実施例	113	312	162	432	93	CeO ₂	123	—	—
実施例	114	312	162	432	93	Pr ₆ O ₁₁	1	—	—
実施例	115	312	162	432	93	Pr ₆ O ₁₁	12	—	—
実施例	116	312	162	432	93	Pr ₆ O ₁₁	121	—	—
実施例	117	312	162	432	93	Nd ₂ O ₃	1	—	—
実施例	118	312	162	432	93	Nd ₂ O ₃	12	—	—
実施例	119	312	162	432	93	Nd ₂ O ₃	117	—	—
実施例	120	312	162	432	93	Sm ₂ O ₃	1	—	—
実施例	121	312	162	432	93	Sm ₂ O ₃	12	—	—
実施例	122	312	162	432	93	Sm ₂ O ₃	116	—	—
実施例	123	312	162	432	93	Gd ₂ O ₃	1	—	—
実施例	124	312	162	432	93	Gd ₂ O ₃	12	—	—
実施例	125	312	162	432	93	Gd ₂ O ₃	116	—	—
実施例	126	312	162	432	93	Tb ₄ O ₇	1	—	—
実施例	127	312	162	432	93	Tb ₄ O ₇	12	—	—
実施例	128	312	162	432	93	Tb ₄ O ₇	118	—	—
実施例	129	312	162	432	93	Dy ₂ O ₃	1	—	—
実施例	130	312	162	432	93	Dy ₂ O ₃	11	—	—
実施例	131	312	162	432	93	Dy ₂ O ₃	115	—	—
実施例	132	312	162	432	93	Ho ₂ O ₃	1	—	—
実施例	133	312	162	432	93	Ho ₂ O ₃	11	—	—
実施例	134	312	162	432	93	Ho ₂ O ₃	115	—	—

[表8]

	試料 No.	焼成粉末の基本組成	焼成粉末に含まれる非Eu希 土類元素		焼成粉末に含まれる非Eu希 土類元素	
			種類	(質量%)	種類	(質量%)
比較例	101	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	—	—	—	—
実施例	102	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Sc	0.1	—	—
実施例	103	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Sc	1	—	—
実施例	104	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Sc	10	—	—
実施例	105	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Y	0.1	—	—
実施例	106	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Y	1	—	—
実施例	107	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Y	10	—	—
実施例	108	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	La	0.1	—	—
実施例	109	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	La	1	—	—
実施例	110	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	La	10	—	—
実施例	111	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Ce	0.1	—	—
実施例	112	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Ce	1	—	—
実施例	113	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Ce	10	—	—
実施例	114	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Pr	0.1	—	—
実施例	115	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Pr	1	—	—
実施例	116	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Pr	10	—	—
実施例	117	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Nd	0.1	—	—
実施例	118	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Nd	1	—	—
実施例	119	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Nd	10	—	—
実施例	120	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Sm	0.1	—	—
実施例	121	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Sm	1	—	—
実施例	122	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Sm	10	—	—
実施例	123	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Gd	0.1	—	—
実施例	124	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Gd	1	—	—
実施例	125	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Gd	10	—	—
実施例	126	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Tb	0.1	—	—
実施例	127	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Tb	1	—	—
実施例	128	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Tb	10	—	—
実施例	129	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Dy	0.1	—	—
実施例	130	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Dy	1	—	—
実施例	131	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Dy	10	—	—
実施例	132	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Ho	0.1	—	—
実施例	133	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Ho	1	—	—
実施例	134	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Ho	10	—	—

[表9]

	試料 No.	発光 ピーク 波長 (nm)	発光 効率 (%)	平均 粒径 D ₅₀ (μ m)	備考
比較例	101	620	100	15	非Eu希土類元素添加なし。
実施例	102	620	100	18	粒子成長促進効果あり。発光効率に変化なし。
実施例	103	620	102	18	粒子成長促進効果あり。発光効率が向上。
実施例	104	620	102	17	粒子成長促進効果あり。発光効率が向上。
実施例	105	620	100	20	強い粒子成長促進効果あり。発光効率が向上。
実施例	106	620	110	28	強い粒子成長促進効果あり。発光効率が向上。
実施例	107	620	110	29	強い粒子成長促進効果あり。発光効率が向上。
実施例	108	620	102	16	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	109	620	102	16	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	110	620	102	16	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	111	620	102	17	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	112	620	102	18	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	113	620	102	17	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	114	620	101	13	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	115	620	101	15	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	116	620	101	12	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	117	620	101	15	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	118	620	101	15	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	119	620	101	15	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	120	620	102	15	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	121	620	103	15	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	122	620	103	15	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	123	620	103	17	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	124	620	102	17	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	125	620	104	17	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	126	620	101	15	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	127	620	101	14	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	128	620	101	15	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	129	620	104	17	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	130	620	104	17	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	131	620	104	17	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	132	620	101	15	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	133	620	104	13	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	134	620	103	13	結晶性改善効果により発光効率が向上。

[0120]

[表10]

	試料 No.	原料の種類と配合量							
		SrCO ₃	AlN	Si ₃ N ₄	Eu ₂ O ₃	非Eu希土類元素 の酸化物		非Eu希土類元素 の酸化物	
		配合量 (g)	配合量 (g)	配合量 (g)	配合量 (g)	種類	配合量 (g)	種類	配合量 (g)
実施例	135	312	162	432	93	Er ₂ O ₃	1	—	—
実施例	136	312	162	432	93	Er ₂ O ₃	11	—	—
実施例	137	312	162	432	93	Er ₂ O ₃	114	—	—
実施例	138	312	162	432	93	Tm ₂ O ₃	1	—	—
実施例	139	312	162	432	93	Tm ₂ O ₃	11	—	—
実施例	140	312	162	432	93	Tm ₂ O ₃	114	—	—
実施例	141	312	162	432	93	Yb ₂ O ₃	1	—	—
実施例	142	312	162	432	93	Yb ₂ O ₃	11	—	—
実施例	143	312	162	432	93	Yb ₂ O ₃	114	—	—
実施例	144	312	162	432	93	Lu ₂ O ₃	1	—	—
実施例	145	312	162	432	93	Lu ₂ O ₃	11	—	—
実施例	146	312	162	432	93	Lu ₂ O ₃	114	—	—
実施例	147	312	162	432	93	Y ₂ O ₃	13	La ₂ O ₃	12
実施例	148	312	162	432	93	Y ₂ O ₃	13	CeO ₂	12
実施例	149	312	162	432	93	Y ₂ O ₃	13	Pr ₆ O ₁₁	12
実施例	150	312	162	432	93	Y ₂ O ₃	13	Nd ₂ O ₃	12
実施例	151	312	162	432	93	Y ₂ O ₃	13	Gd ₂ O ₃	12
実施例	152	312	162	432	93	Y ₂ O ₃	13	Lu ₂ O ₃	11
実施例	153	387	150	391	74	Y ₂ O ₃	13	—	—
実施例	154	264	166	456	114	Y ₂ O ₃	13	—	—
比較例	161	312	162	432	93	Sc ₂ O ₃	230	—	—
比較例	162	312	162	432	93	Y ₂ O ₃	190	—	—
比較例	163	312	162	432	93	La ₂ O ₃	176	—	—
比較例	164	312	162	432	93	CeO ₂	184	—	—
比較例	165	312	162	432	93	Pr ₆ O ₁₁	181	—	—
比較例	166	312	162	432	93	Nd ₂ O ₃	175	—	—
比較例	167	312	162	432	93	Sm ₂ O ₃	174	—	—
比較例	168	312	162	432	93	Gd ₂ O ₃	173	—	—
比較例	169	312	162	432	93	Tb ₄ O ₇	176	—	—
比較例	170	312	162	432	93	Dy ₂ O ₃	172	—	—
比較例	171	312	162	432	93	Ho ₂ O ₃	172	—	—
比較例	172	312	162	432	93	Er ₂ O ₃	172	—	—
比較例	173	312	162	432	93	Tm ₂ O ₃	171	—	—
比較例	174	312	162	432	93	Yb ₂ O ₃	171	—	—
比較例	175	312	162	432	93	Lu ₂ O ₃	171	—	—

[表11]

	試料 No.	焼成粉末の基本組成	焼成粉末に含まれる非Eu希 土類元素		焼成粉末に含まれる非Eu希 土類元素	
			種類	(質量%)	種類	(質量%)
実施例	135	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Er	0.1	—	—
実施例	136	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Er	1	—	—
実施例	137	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Er	10	—	—
実施例	138	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Tm	0.1	—	—
実施例	139	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Tm	1	—	—
実施例	140	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Tm	10	—	—
実施例	141	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Yb	0.1	—	—
実施例	142	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Yb	1	—	—
実施例	143	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Yb	10	—	—
実施例	144	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Lu	0.1	—	—
実施例	145	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Lu	1	—	—
実施例	146	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Lu	10	—	—
実施例	147	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Y	1	La	1
実施例	148	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Y	1	Ce	1
実施例	149	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Y	1	Pr	1
実施例	150	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Y	1	Nd	1
実施例	151	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Y	1	Gd	1
実施例	152	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Y	1	Lu	1
実施例	153	$\text{Sr}_{2.5}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_8\text{Al}_{3.5}\text{ON}_{13}$	Y	1	—	—
実施例	154	$\text{Sr}_{1.1}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_6\text{Al}_{2.5}\text{ON}_{13}$	Y	1	—	—
比較例	161	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Sc	15	—	—
比較例	162	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Y	15	—	—
比較例	163	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	La	15	—	—
比較例	164	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Ce	15	—	—
比較例	165	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Pr	15	—	—
比較例	166	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Nd	15	—	—
比較例	167	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Sm	15	—	—
比較例	168	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Gd	15	—	—
比較例	169	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Tb	15	—	—
比較例	170	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Dy	15	—	—
比較例	171	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Ho	15	—	—
比較例	172	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Er	15	—	—
比較例	173	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Tm	15	—	—
比較例	174	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Yb	15	—	—
比較例	175	$\text{Sr}_{1.6}\text{Eu}_{0.4}\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$	Lu	15	—	—

[0122] [表12]

	試料 No.	発光 ピーク 波長 (nm)	発光 効率 (%)	平均 粒径 D ₅₀ (μm)	備考
実施例	135	620	103	15	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	136	620	103	15	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	137	620	103	15	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	138	620	101	16	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	139	620	101	16	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	140	620	101	15	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	141	620	102	17	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	142	620	102	18	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	143	620	101	19	結晶性改善効果により発光効率が向上。
実施例	144	620	104	17	粒子成長促進効果あり。発光効率が向上。
実施例	145	620	106	22	粒子成長促進効果あり。発光効率が向上。
実施例	146	620	106	24	粒子成長促進効果あり。発光効率が向上。
実施例	147	620	110	30	強い粒子成長促進効果あり。発光効率が向上。
実施例	148	620	112	31	強い粒子成長促進効果あり。発光効率が向上。
実施例	149	620	113	32	強い粒子成長促進効果あり。発光効率が向上。
実施例	150	620	115	30	強い粒子成長促進効果あり。発光効率が向上。
実施例	151	620	110	28	強い粒子成長促進効果あり。発光効率が向上。
実施例	152	620	113	30	強い粒子成長促進効果あり。発光効率が向上。
実施例	153	620	112	26	強い粒子成長促進効果あり。発光効率が向上。
実施例	154	620	110	32	強い粒子成長促進効果あり。発光効率が向上。
比較例	161	620	80	17	不純物効果により発光効率が低下。
比較例	162	620	90	30	不純物効果により発光効率が低下。
比較例	163	620	76	20	不純物効果により発光効率が低下。
比較例	164	620	78	20	不純物効果により発光効率が低下。
比較例	165	620	65	20	不純物効果により発光効率が低下。
比較例	166	620	67	25	不純物効果により発光効率が低下。
比較例	167	620	67	14	不純物効果により発光効率が低下。
比較例	168	620	60	16	不純物効果により発光効率が低下。
比較例	169	620	70	16	不純物効果により発光効率が低下。
比較例	170	620	72	16	不純物効果により発光効率が低下。
比較例	171	620	74	16	不純物効果により発光効率が低下。
比較例	172	620	70	16	不純物効果により発光効率が低下。
比較例	173	620	70	16	不純物効果により発光効率が低下。
比較例	174	620	69	15	不純物効果により発光効率が低下。
比較例	175	620	82	16	不純物効果により発光効率が低下。

[0123] 表1～表12より、蛍光体の非Eu希土類元素の含有量が特定範囲内にある場合は、非Eu希土類元素を含まない蛍光体または非Eu希土類元素を過剰に含む蛍光体に比較して、発光効率が向上することが分かる。

[0124] なお、本発明のいくつかの実施形態を説明したが、これらの実施形態は例として提示したものであり、発明の範囲を限定することは意図していない。これら新規な実施形態は、その他の様々な形態で実施し得るものであり、発明の要旨を逸脱しない範囲で、種々の省略、置き換え、変更を行うことがで

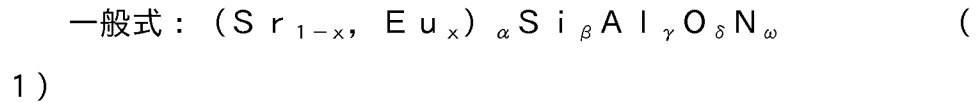
きる。これら実施形態やその変形は、発明の範囲や要旨に含まれると共に、特許請求の範囲に記載された発明とその均等の範囲に含まれる。

[0125] 以上説明した実施例によれば、発光効率が高い蛍光体および発光装置が得られる。

請求の範囲

[請求項1] 下記一般式 (1)

[化1]



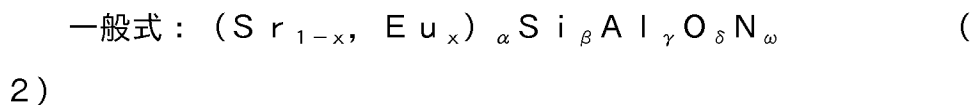
(式中、 x は $0 < x < 1$ 、 α は $0 < \alpha \leq 4$ であり、 β 、 γ 、 δ および ω は α が3のときに換算した数値が、 $9 < \beta \leq 15$ 、 $1 \leq \gamma \leq 5$ 、 $0.5 \leq \delta \leq 3$ 、 $10 \leq \omega \leq 25$ を満足する数である)

で表される基本組成を有するユーロピウム付活サイアロン結晶体からなるとともに、このサイアロン結晶体中に、Sc、Y、La、Ce、Pr、Nd、Sm、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、YbおよびLuから選ばれる非Eu希土類元素の少なくとも1種を0.1質量%以上10質量%以下の割合で含み、

紫外光、紫色光または青色光で励起されることにより緑色発光することを特徴とする蛍光体。

[請求項2] 下記一般式 (2)

[化2]



(式中、 x は $0 < x < 1$ 、 α は $0 < \alpha \leq 3$ であり、 β 、 γ 、 δ および ω は α が2のときに換算した数値が、 $5 \leq \beta \leq 9$ 、 $1 \leq \gamma \leq 5$ 、 $0.5 \leq \delta \leq 2$ 、 $5 \leq \omega \leq 15$ を満足する数である)

で表される基本組成を有するユーロピウム付活サイアロン結晶体からなるとともに、このサイアロン結晶体中に、Sc、Y、La、Ce、Pr、Nd、Sm、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、YbおよびLuから選ばれる非Eu希土類元素の少なくとも1種を0.1質量%以上10質量%以下の割合で含み、

紫外光、紫色光または青色光で励起されることにより赤色発光する

ことを特徴とする蛍光体。

[請求項3] 前記紫外光、紫色光または青色光は、370nm以上470nm以下の範囲内にピーク波長を有する光であることを特徴とする請求項1または2に記載の蛍光体。

[請求項4] 平均粒径が1μm以上100μm以下であることを特徴とする請求項1～3のいずれか1項に記載の蛍光体。

[請求項5] 発光ピーク波長が500nm以上540nm以下であることを特徴とする請求項1、3および4のいずれか1項に記載の緑色発光する蛍光体。

[請求項6] 発光ピーク波長が550nm以上650nm以下であることを特徴とする請求項2～4のいずれか1項に記載の黄色乃至赤色発光する蛍光体。

[請求項7] 基板と、

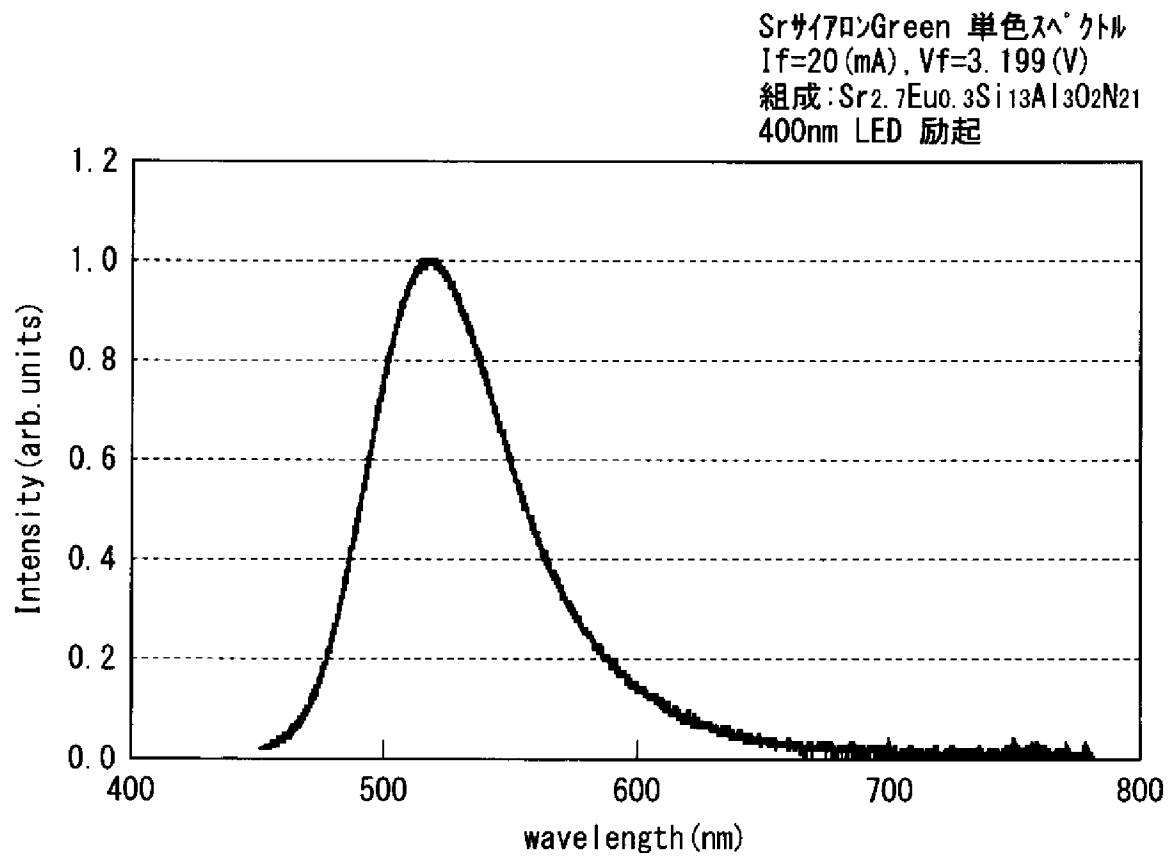
この基板上に配置され、紫外光、紫色光または青色光を出射する半導体発光素子と、

この半導体発光素子の発光面を覆うように形成され、前記半導体発光素子からの出射光により励起されて可視光を発する蛍光体を含む発光部と、を備え、

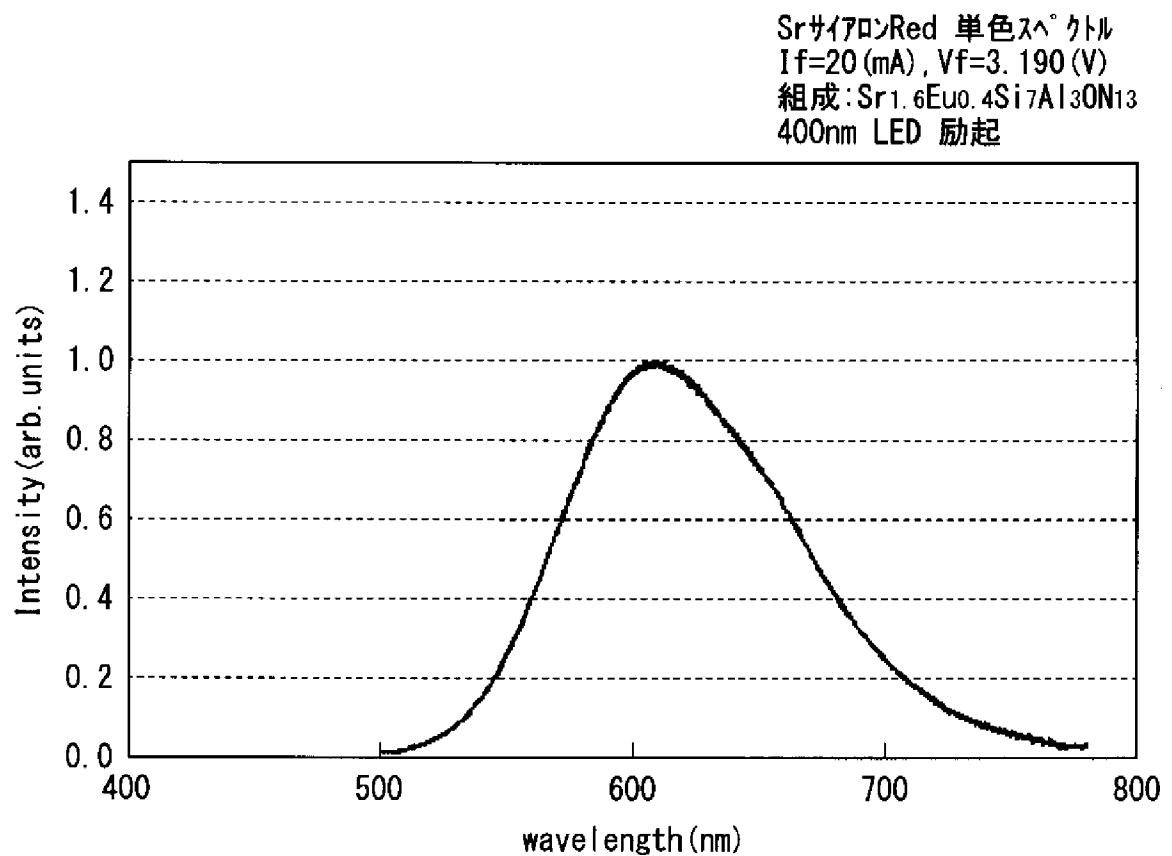
前記蛍光体は、請求項1～6のいずれか1項の蛍光体を含むことを特徴とする発光装置。

[請求項8] 前記半導体発光素子は370nm以上470nm以下の範囲内にピーク波長を有する光を出射する発光ダイオードまたはレーザダイオードであることを特徴とする請求項7に記載の発光装置。

[図1]



[図2]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/055120

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C09K11/64 (2006.01) i, H01L33/50 (2010.01) n

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C09K11/64, H01L33/50

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2012
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2012	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2012

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

CA/REGISTRY (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2010-268004 A (Toshiba Corp.), 25 November 2010 (25.11.2010), claims; examples (Family: none)	1-8
Y	JP 2010-106127 A (Toshiba Corp.), 13 May 2010 (13.05.2010), claims; examples & US 2010/0102707 A1	1-8
Y	WO 2007/037059 A1 (Dowa Mining Co., Ltd.), 05 April 2007 (05.04.2007), claims; examples & US 2009/0267485 A1 & EP 1930393 A1	1-8

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
30 May, 2012 (30.05.12)

Date of mailing of the international search report
12 June, 2012 (12.06.12)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/055120

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 2006/093298 A1 (Dowa Mining Co., Ltd.), 08 September 2006 (08.09.2006), claims; examples; fig. 6 to 11 & US 2009/0236963 A1 & EP 1867697 A1	1-8
Y	JP 2004-182781 A (Nichia Chemical Industries, Ltd.), 02 July 2004 (02.07.2004), claims; paragraph [0044] & US 2004/0135504 A1 & EP 1433831 A1	1-8
Y	JP 2006-213910 A (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.), 17 August 2006 (17.08.2006), claims; paragraphs [0032] to [0035] & US 2008/0081011 A1	1-8

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））
Int.Cl. C09K11/64(2006.01)i, H01L33/50(2010.01)n

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C09K11/64, H01L33/50

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 2 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 2 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 2 年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

CA/REGISTRY (STN)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	JP 2010-268004 A（株式会社東芝）2010.11.25, 特許請求の範囲、 実施例等（ファミリーなし）	1-8
Y	JP 2010-106127 A（株式会社東芝）2010.05.13, 特許請求の範囲、 実施例等 & US 2010/0102707 A1	1-8
Y	WO 2007/037059 A1（同和鉱業株式会社）2007.04.05, 特許請求の範 囲、実施例等 & US 2009/0267485 A1 & EP 1930393 A1	1-8

☒ C 欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

3 0 . 0 5 . 2 0 1 2

国際調査報告の発送日

1 2 . 0 6 . 2 0 1 2

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / J P）

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

馬籠 朋広

4 V

4 5 1 0

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 8 3

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	WO 2006/093298 A1 (同和鉱業株式会社) 2006.09.08, 特許請求の範囲、実施例、図6-11等 & US 2009/0236963 A1 & EP 1867697 A1	1-8
Y	JP 2004-182781 A (日亜化学工業株式会社) 2004.07.02, 特許請求の範囲、【0044】 & US 2004/0135504 A1 & EP 1433831 A1	1-8
Y	JP 2006-213910 A (松下電器産業株式会社) 2006.08.17, 特許請求の範囲、【0032】-【0035】等 & US 2008/0081011 A1	1-8