



# 新規蛍光体酸化物の低温・短時間合成のための電気炉の改良と 発光特性向上に向けた取り組み

紙本小夏, 前田真志, 中野裕美  
豊橋技術科学大学

キーワード：蛍光体, 加圧ガス雰囲気炉, XAFS, 価数変化

## 1. 背景と研究目的

新規蛍光体材料の母体材料として、我々は独自の材料をデザインし、研究を進めてきた。中でも、Li-Ta-Ti-O (LTT) 系固溶体を母体材料とし、賦活剤として  $\text{Eu}^{3+}$  を添加した赤色蛍光体は、内部量子効率 98% を達成した<sup>[1]</sup>。これらの材料を固相法により合成する際、均質材料合成には何度も粉碎・混合・焼成を繰り返す必要があり、より簡便で低温・短時間で材料を合成するため、多様な焼成炉の開発が進んでいる。

今回の研究目的は、LTT を母体材料とし、 $\text{Eu}^{3+}$  と  $\text{Ce}^{3+}$  を共添加した新規蛍光体を、汎用電気炉や加圧ガス雰囲気炉、水素還元炉を用いて合成し、発光特性、結晶構造、Ce 価数について比較する。

## 2. 実験内容

$\text{Li}_{1.11}\text{Ta}_{0.89}\text{Ti}_{0.11}\text{O}_3$  の組成式に基づき秤量し、十分に粉碎・混合した後、プレス成型し、仮焼後に汎用電気炉や加圧ガス雰囲気炉、水素還元炉を用いて焼成した。得られた蛍光体は、X 線回折 (RINT-2500, Rigaku)、分光蛍光光度計 (F-7000, HITACHI)、シンクロトロン放射光 (BL11S2, あいちシンクロトロン光センター) を用いて結晶構造、発光特性、Ce 価数について評価・解析を行った。Ce の XANES 測定は、蛍光法で測定し、Ce 価数を評価するための標準試料は、 $\text{Ce}^{3+}$  として  $\text{Ce}_2(\text{CO}_3)_3 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$  を、 $\text{Ce}^{4+}$  として  $\text{CeO}_2$  を使用した。また、線形結合フィッティングには、Athena を用いた。

## 3. 結果および考察

LTT: $\text{Eu}^{3+}$ ,  $\text{Ce}^{3+}$  蛍光体を、電気炉を用いて 1423 K で 15 時間焼成することにより合成した。発光特性を調べた結果、 $\text{Ce}^{3+}$  による励起・発光スペクトルは得られなかった。この理由として、 $\text{Ce}^{3+}$  が空气中焼成により  $\text{Ce}^{4+}$  に酸化されていることが考えられた。Ce イオンは、3 価は発光し、4 価は発光しない。そこで、合成した蛍光体の Ce 価数を調べるために、Ce の XANES を測定した。Fig. 1 に、Ce の XANES 測定結果を示す。Athena による解析の結果、 $\text{Ce}^{3+}$  率が 18.0%、 $\text{Ce}^{4+}$  率が 82.0% であることがわかった。そのため、 $\text{Ce}^{3+}$  率を向上させるための合成プロセスを検討した。還元炉や加圧炉を用いて蛍光体を合成し、それぞれ Ce 価数を調べた。その結果、還元条件を工夫することにより、 $\text{Ce}^{3+}$  率の高い蛍光体の合成に成功した。

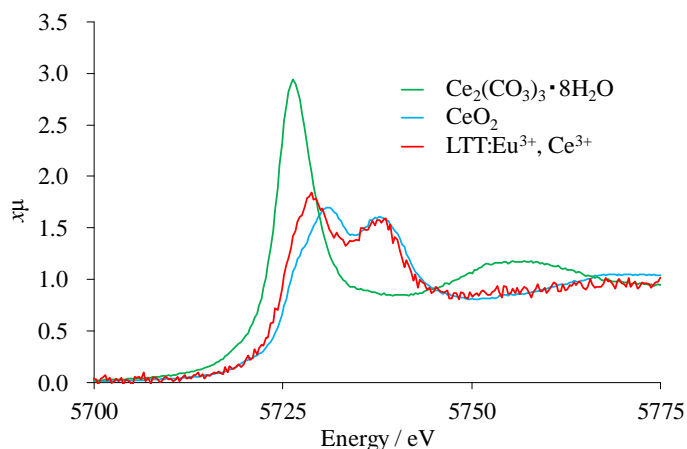


Fig.1  $\text{Ce}^{3+}$  および  $\text{Ce}^{4+}$  の標準試料と LTT: $\text{Eu}^{3+}$ ,  $\text{Ce}^{3+}$  蛍光体の Ce L-edge XANES スペクトル

## 4. 参考文献

[1] H. Nakano, S. Furuya, K. Fukuda, S. Yamada, *Mate. Res. Bull.* 60, (2014) 766-770.