

C06 RE³⁺添加 Li-(Nb, Ta)-Ti-O (RE: Eu, Tb, Tm, Dy) 蛍光体の組成制御による発光強度向上

(豊橋技術科学大学¹・名古屋工業大学²) ○齋藤源生¹・坂本隼規¹・中野裕美¹

・坂野広樹²・福田功一郎²

E-mail: hiromi@crfc.tut.ac.jp

【緒言】

著者らは、Li-Nb-Ti-O (LNT) 系および Li-Ta-Ti-O (LTT) 系の固溶体を母体とし、賦活剤として種々の希土類イオン (Eu³⁺, Er³⁺, Tm³⁺, Dy³⁺) を添加することにより、同一母体で赤、緑、青、黄色に発光する蛍光体の作製に取り組んできた[1]。LTT:Eu³⁺では LNT:Eu³⁺に比べて高く、内部量子効率は 84%を示した。しかし、Tm³⁺, Dy³⁺添加蛍光体は、LNT 系母体の方が高い発光強度を示した[2]。そこで、これらの蛍光体の発光強度の最適値を検討するために、Li-Nb-Ta-Ti-O (LNTT) 固溶体に Eu³⁺, Tb³⁺, Tm³⁺, Dy³⁺を添加した蛍光体を合成し、発光強度を比較した。その結果、希土類種により最適母体組成が異なり、LTT:Eu³⁺については 97%の理論値に近い内部量子効率が得られた。

【実験方法】

出発物質は、Li₂CO₃, Nb₂O₅, Ta₂O₅, TiO₂, RE₂O₃ (RE: Eu, Tb, Tm, Dy) (> 99.0%) を用い、所定の組成比で秤量後、遊星型ボールミル (P-6, Fritsch) でエタノールにより湿式混合を行った。この粉末試料を乾燥後、プレス成形し、1273 K で 3 時間仮焼後、引き続き 1423 K で 15 時間焼成を行った。得られた焼結体は、分光蛍光光度計 (F-7000, HITACHI), 走査型電子顕微鏡 (SU3500, HITACHI), X 線回折 (RINT-2500, Rigaku), XAFS 測定 (BL5S1, あいちシンクロトロン光センター) を用い、発光特性、組織、構造について評価・解析を行った。

【結果と考察】

Eu³⁺, Tb³⁺, Tm³⁺, Dy³⁺添加蛍光体については母体組成 Li_{1+x}(Nb_zTa_{1-z})_{1-x}Ti_xO₃ の z 値、希土類イオン (Eu³⁺, Tb³⁺, Tm³⁺, Dy³⁺) の添加量, x 値について、蛍光体の最適組成を求めた。Table 1 に各蛍光体の最適母体組成と色度の結果を示す。各添加剤により、最適組成が異なることが分かった。次に、高い内部量子効率を示した LTT:Eu³⁺蛍光体について、リートベルト解析により結晶構造解析を行った。Fig. 2(a) に LiTaO₃:Eu³⁺蛍光体, Fig. 2(b) に内部量子効率が最も高い Eu³⁺添加蛍光体の結晶構造の比較図を示す。この結果、両者で、Eu³⁺イオンが置換する Li⁺イオンサイトの偏心距離の差が大きいことが分かった。XANES により発光中心イオンの配位環境、価数変化についても測定を行った。これらの結果より、強い発光強度を示した LTT:Eu³⁺蛍光体は、Eu³⁺イオンサイトの配位環境が変化し、非輻射遷移が抑制された結果、高い発光強度を示した。

Table 1. Optimal compositions and chromaticity of LNT phosphors.

Compositions	Chromaticity	
	x	y
Li _{1.11} Ta _{0.89} Ti _{0.11} O ₃ :Eu ³⁺ ,Sm ³⁺	0.675	0.325
Li _{1.05} Ta _{0.95} Ti _{0.05} O ₃ :Tb ³⁺	0.358	0.628
Li _{1.08} (Nb _{0.6} Ta _{0.4}) _{0.92} Ti _{0.08} O ₃ :Tm ³⁺	0.146	0.053
Li _{1.14} (Nb _{0.4} Ta _{0.6}) _{0.86} Ti _{0.14} O ₃ :Dy ³⁺	0.409	0.385

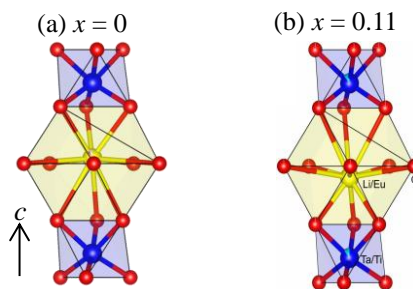


Figure 2. Crystal structure of Li_{1+x}Ta_{1-x}Ti_xO₃:Eu³⁺ viewed along [110].

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

[2] T. Uchida, S. Suehiro, T. Asaka, H. Nakano, K. Fukuda, *Powder Diffr. Journal*, 28 (3) (2013) 178-183.

謝辞 本研究の一部は、科学研究費 (基盤 (c) No. 16K06721) により遂行した。記して謝意を表す。