

C09 ポリマープレカーサー法による β -SiAlON:Eu²⁺の合成と PL 発光特性

(名古屋工業大学) ○飯濱準也、濱名大樹、大幸裕介、本多沢雄、岩本雄二

O.J. Iihama, D. Hamana, Y. Daiko, S. Honda, Y. Iwamoto

E-mail: iwamoto.yuji@nitech.ac.jp

【緒言】

酸窒化物結晶である SiAlON は、優れた化学安定性や耐熱性を有することから、蛍光体のホスト化合物としての応用が進められている。本研究室では、Al(OiPr)₃ および EuCl₂ で perhydropolysilazane (PHPS) を化学改質して得られる多元素系シングルソースプレカーサーを熱処理することで、 β -SiAlON:Eu²⁺ 単相を合成することに成功している[1]。この合成手法では、原子・分子スケールレベルで化学組成の制御が可能となるため、生成物の高純度化や新規組成を有する材料の創製が期待できる。本研究では、新たな多元素系シングルソースプレカーサーの合成ルートとして、金属塩化物と金属アルコキシドとの間の非水ゾルゲル反応を介した PHPS の化学改質を検討し、最終的に得られる β -SiAlON:Eu²⁺ における発光特性を低下させる因子の 1 つである残存炭素量の低減化や、新たな化学組成の β -SiAlON:Eu²⁺ の合成検討を行った。

【実験方法】

出発原料として市販の PHPS のキシレン溶液 (20 wt%), Al(OiPr)₃, AlCl₃, EuCl₂ を Si⁴⁺:Al³⁺:Eu²⁺=1:0.09:0.01 (Al(Oi-Pr)₃:AlCl₃=0.06:0.03 (ORCL63), 0.03:0.06 (ORCL36)) となるように当量関係を調製し、Ar 雰囲気下、約 140°C で 1 時間還流して室温まで冷却した。その後、減圧下で溶媒除去して得られたポリマープレカーサーを N₂ 気流下 (0.1MPa)、1000°C で 1 時間熱分解を行った後、N₂ 加圧下 (1.0MPa)、1800°C で 1 時間熱処理した。PHPS の化学改質反応は GC で、熱分解過程は TG-MS でその場解析した。また、得られた試料の炭素・窒素・酸素の元素分析を行うとともに、PL 測定により蛍光特性の評価を行った。

【結果と考察】

Al(Oi-Pr)₃ および AlCl₃ と PHPS との化学改質が、ポリマープレカーサーの熱分解挙動に及ぼす影響を調べた結果、GC-MS 分析により 25-140°C 付近にイソプロパノール (C₃H₇OH) の発生を確認した。その後、TG-MS 測定により 50-200°C 付近にジメチルクメンを検出した (Fig. 1)。また、200-400°C 付近ではプロペン (C₃H₆) やプロパン (C₃H₈) などの低分子量のガス種を検出したことから、非水ゾルゲル反応を介した PHPS の化学改質反応が進行していることが強く示唆された。当日の発表では、GC-MS および TG-MS などを用いたより詳細な解析結果をもとにした残留炭素量の低減機構についての考察結果と新たな化学組成の PL 発光特性を報告する。

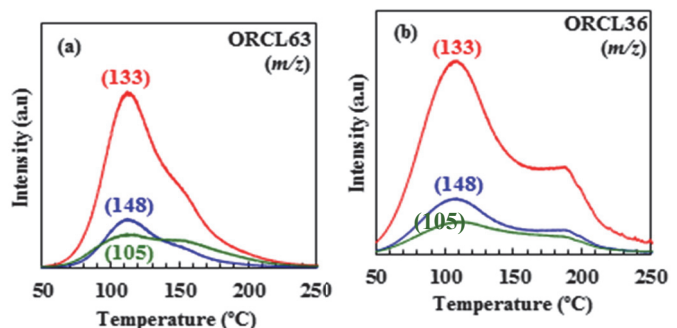


Fig.1 Thermal behavior of (a) ORCL63 and (b) ORCL36. Continuous *in-situ* monitoring of gaseous species with $m/z=105$ (C₆H₃Me₂⁺), 133 (C₆H₃i-C₃H₇Me⁺) and 148 (C₆H₃i-C₃H₇Me₂⁺) by mass spectrometry

参考文献：[1]岩崎ら，第 29 回秋季シンポジウム講演予稿集，1K27，公益社団法人日本セラミックス協会 (2016)。