

### Eu賦活ストロンチウムアルミネート系蛍光体の発光特性評価

OHGUSHI, Masamori / 大串, 叡壮

---

(出版者 / Publisher)

法政大学大学院理工学研究科

(雑誌名 / Journal or Publication Title)

法政大学大学院紀要. 理工学・工学研究科編

(巻 / Volume)

61

(開始ページ / Start Page)

1

(終了ページ / End Page)

2

(発行年 / Year)

2020-03-24

(URL)

<https://doi.org/10.15002/00022819>

# Eu 賦活ストロンチウムアルミネート系 蛍光体の発光特性評価

LUMINESCENCE PROPERTIES OF EUROPIUM DOPED STRONTIUM ALUMINATE PHOSPHORS

大串叡壮

Masamori OHGUSHI

指導教員 中村俊博

法政大学大学院理工学研究科電気電子工学専攻修士前期課程

In this thesis, we describe the preparation of  $\text{Eu}^{3+}$  doped strontium aluminate phosphors using the solid state reaction method and the evaluation of their luminescence properties. We systematically changed the composition ration between Sr and Al in the phosphor and measured their photoluminescence (PL) and PL excitation (PLE) spectra. We found that the phosphor exhibited the maximum intensity of red luminescence attributed to  $^5\text{D}_0 \rightarrow ^7\text{F}_2$  electronic transition of  $\text{Eu}^{3+}$  at the composition of  $\text{SrAl}_{12}\text{O}_{19}$ . Moreover, Eu doped  $\text{SrAl}_{12}\text{O}_{19}$  phosphor has a unique excitation band in an ultraviolet region ( $\sim 300$  nm) due to transitions of CTS (charge transfer states) which appears in deep ultraviolet region ( $\sim 240$  nm) in usual oxide phosphors.

**Key Words** : phosphor, PL, PLE spectra,

## 1. はじめに

2 価の Eu を賦活した  $\text{SrAl}_2\text{O}_4$  等のストロンチウムアルミネート蛍光体は高性能な緑色蓄光体[1]として有望な材料で広く研究が行われている。一方で、3 価の状態 Eu が賦活されたストロンチウムアルミネートは赤色発光を示す蛍光体材料としての利用が可能[2]であるが研究例は少ない。本研究では Eu 賦活ストロンチウムアルミネートの赤色蛍光体の可能性を探るため、本論文では、種々の組成比を持つ Eu 賦活ストロンチウムアルミネート結晶を大気雰囲気下の熱焼成固相合成法により作製し、その赤色発光特性について詳細に調べた結果を報告する。

## 2. 実験方法

原料粉末である  $\text{SrCO}_3$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Eu}_2\text{O}_3$ 、溶剤である  $\text{H}_3\text{BO}_3$  粉末をメノウ乳鉢で混合し、アルミナボート上で大気雰囲気下  $1400^\circ\text{C}$  にて 3 時間熱処理を固相合成法で行い、Eu 賦活ストロンチウムアルミネートを作製した。今回、元素モル比が  $\text{Sr} : \text{Al} = 1 : x$  ( $x = 0.7 \sim 12$ ) となるような比率で原料粉末を混合した。また、Eu の賦活量は  $0.01 \sim 30\%$  で変化させた。作製した試料をメノウ乳鉢で粉末状に粉砕し、粉末 X 線回折(XRD)測定、フォトルミネセンス(PL)測定、発光励起(PLE)測定、発光寿命測定等で評価を行った。

## 3. 結果と考察

原料混合比率  $x = 0.7, 2, 12$  における条件で作製した試料に対して XRD 測定を行った結果を図 1 に示す。

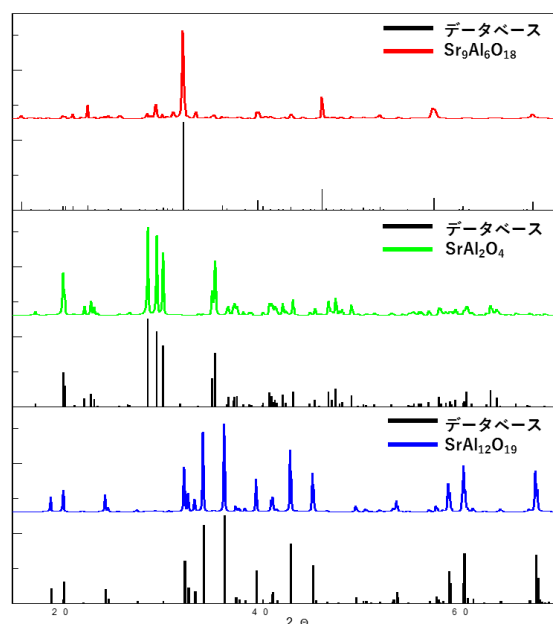


図 1 3 種類の試料の XRD 測定結果

グラフに示すように原料の混合比を変化させる事

で  $\text{Sr}_9\text{Al}_6\text{O}_{18}$ ,  $\text{SrAl}_2\text{O}_4$ ,  $\text{SrAl}_{12}\text{O}_{19}$  結晶が主に形成されている事が分かった。また、これらの試料(Eu 賦活量 2%)に対する PL(ex:325nm), PLE 測定の結果を図 2 に示す。

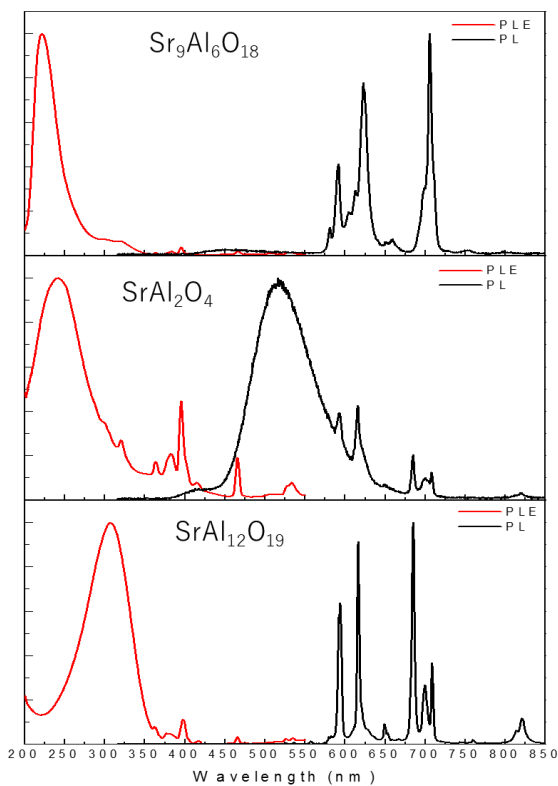


図 2 3 種類の PL&PLE スペクトル

すべての試料で、600~700 nm 付近に  $\text{Eu}^{3+}$  の 4f 電子の遷移に対応するシャープな赤色発光が観測できた。一方、 $\text{SrAl}_2\text{O}_4$  では、500 nm 付近に  $\text{Eu}^{2+}$  からの緑色発光も見られた。また、母体に  $\text{SrAl}_{12}\text{O}_{19}$  を用いたとき、吸収バンドがより可視域に近い事が示されたため、白色 LED への応用を考えると赤色発光蛍光体の母体としてはこの組成比を持つストロンチウムアルミネートが最適であることが分かる。

次に  $\text{SrAl}_{12}\text{O}_{19}:\text{Eu}$  の発光強度のドーピング依存性を図 3 に示す。

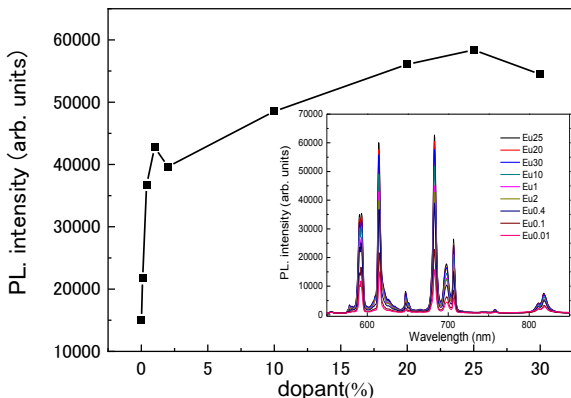


図 3  $\text{SrAl}_{12}\text{O}_{19}:\text{Eu}$  のドーピング依存性

図からドーピング量 2% 付近から急激な強度飽和が起きている事が分かる。また、 $\text{SrAl}_{12}\text{O}_{19}$  の Eu 賦活量の異なる発光寿命測定の結果を図 4 に示す。

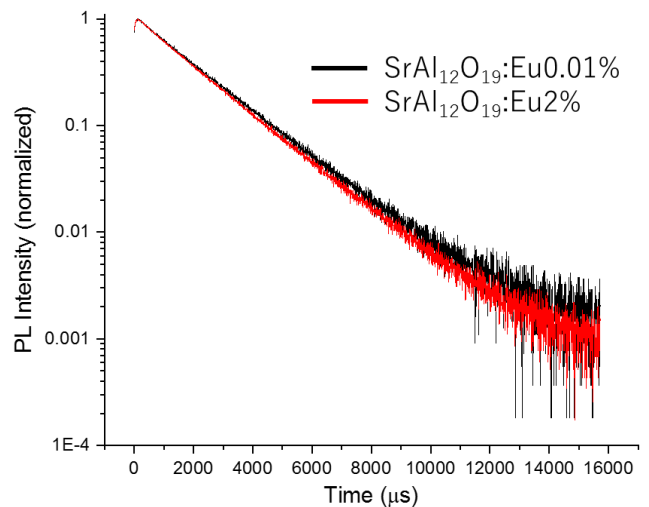


図 4 賦活量の違いによる発光寿命測定結果

図から Eu の賦活量が増えることで発光寿命が短くなっている。これは濃度消光による非発光遷移確率の増大に起因していると考えられる。

#### 4. 結論

組成比の異なる 3 種類のストロンチウムアルミネート系蛍光体を作製した結果、300nm 付近の紫外域の励起帯に対して  $\text{SrAl}_{12}\text{O}_{19}$  が Eu 賦活の赤色発光蛍光体の母体として最適であることが分かった。また、 $\text{SrAl}_{12}\text{O}_{19}$  の Eu ドーピング依存性を詳細に評価した結果、2% 付近から強度飽和を起し、この母体は Eu に対しての固溶度が低いことを見いだした。一方で、Eu 賦活による濃度消光は 25% というかなり高い値で生じる事が分かった。以上のように、本論文によって白色 LED への応用に向けてのストロンチウムアルミネート系赤色蛍光体の最適な条件を見出すことに成功した。

#### 5. 謝辞

今回研究を進める上で大変お世話になりました中村俊博准教授に深く感謝いたします。また、同じ研究テーマの佐々木健氏、井上應理氏、山崎勇武氏をはじめとした中村俊博研究室のメンバー皆様にも研究活動、私生活の両面に渡り大変お世話になりました。心よりお礼申し上げます。

#### 参考文献

- [1] T. Matuszawa *et al.*: J. Electrochem. Soc, **143**, 2670 (1996)
- [2] S. Chawla *et al.*: Chem. Phys. **122** (2010) 582–587.