

### Eu賦活ストロンチウムアルミネート系蛍光体の 発光機能性向上

Nakatsu, Yuki / 中津, 裕揮

---

(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. 理工学研究科編

(巻 / Volume)

64

(開始ページ / Start Page)

1

(終了ページ / End Page)

3

(発行年 / Year)

2023-03-24

(URL)

<https://doi.org/10.15002/00026364>

# Eu 賦活ストロンチウムアルミネート系 蛍光体の発光機能性向上

## IMPROVEMENT OF LUMINESCENT PROPERTIES FOR Eu-DOPED STRONTIUM ALUMINATE PHOSPHORS

中津裕揮

Yuki Nakatsu

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

This paper describes the preparation of Eu-doped strontium aluminate phosphors using a solid-state reaction method and the evaluation of their luminescence properties. The strontium aluminate phosphors co-doped with different rare earth ions were prepared, and photoluminescence (PL) measurements were performed. The results showed that Tb was more suitable than Tm as a photosensitizer for the three rare-earth-element-activated samples. The photoluminescence experiments showed that Eu and Dy, which are co-activated with two rare earth elements, were easily phosphorescence, and Eu, Dy, and Tb, which are co-activated with three rare earth elements, were also phosphorescence at similar temperatures. Considering the above two facts, it was confirmed that the combination of Eu, Dy, and Tb is the best material for luminescence intensity and phosphorescence.

**Key Words** : phosphor, Strontium aluminate, PL

### 1. はじめに

ストロンチウム系酸化物に希土類イオンをドーブした蛍光体は高効率蛍光や優れた化学的安定性を有する。中でも 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系蛍光体は高性能な緑色蓄光体<sup>1)2)</sup>として広く研究がおこなわれている。一方で、この系での青色蓄光体の報告例はなく、蛍光体としても発光特性改善の余地は大きい。そこで本研究では不活性ガス雰囲気下でのアニール処理によりストロンチウムアルミネート蛍光体および蓄光体を作製し、異種金属イオンの共添加によって、発光機能性向上を目指した。

### 2. 実験方法

原料粉末である  $\text{SrCO}_3$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Eu}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Dy}_2\text{O}_3$  と溶融剤である  $\text{H}_3\text{BO}_3$  粉末を混合した二種の希土類元素共賦活試料を試料 A、 $\text{SrCO}_3$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Eu}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Dy}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Tb}_4\text{O}_7$  と溶融剤である  $\text{H}_3\text{BO}_3$  粉末を混合した三種の希土類元素賦活をした試料を試料 B、 $\text{SrCO}_3$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Eu}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Dy}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Tm}_2\text{O}_3$  と溶融剤である  $\text{H}_3\text{BO}_3$  粉末を混合した三種の希土類元素賦活をした試料を試料 C とする。試料 A、B、C それぞれグラファイト管に封入し窒素雰囲気下で、 $1400^\circ\text{C}$ 、8 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。また、Eu の賦活量は Al イオンに対して 0.5% となるように Eu を使い、Dy、Tb、Tm の賦活量を 0.5 ~ 1.0% 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、フォトルミネッセンス(PL)測定、加熱蓄光観測実験(図 2)で評価を行った。

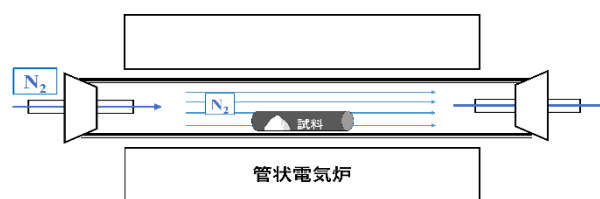


図 1 熱処理時の試料配置図

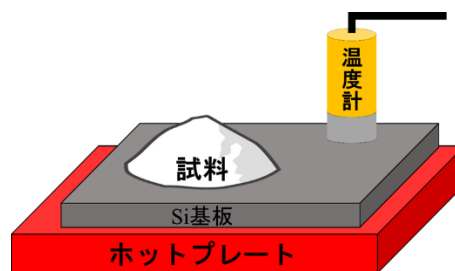


図 2 加熱蓄光観測実験配置図

### 3. 結果と考察

#### 3.1. 試料混合量

試料 A と試料 B の Eu、Dy、Tb、Tm の Al に対する賦活量[%]を以下表 1 に示す。Eu は 0.5% 固定、Dy、Tb、Tm を 0.5 ~ 1.0% の範囲で変化させた。

表 1 試料混合量

試料A		試料B			試料C		
Eu	Dy [%]	Eu	Dy [%]	Tb [%]	Eu	Dy [%]	Tm [%]
0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
	1.0		0.5	1.0		0.5	1.0
	1.0		0.5	0.5		1.0	0.5
	1.0		1.0	1.0		1.0	1.0

#### 3.2. フォトルミネッセンス(PL)測定

作製した試料の発光強度を見るためにフォトルミネッセンス(PL)測定を行った結果を図 3(a)、(b)に示す。

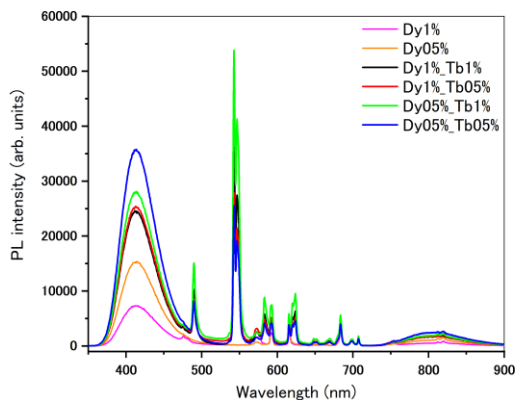


図 3(a) 試料 A(Eu, Dy)、試料 B(Eu, Dy, Tb)の発光スペクトル比較

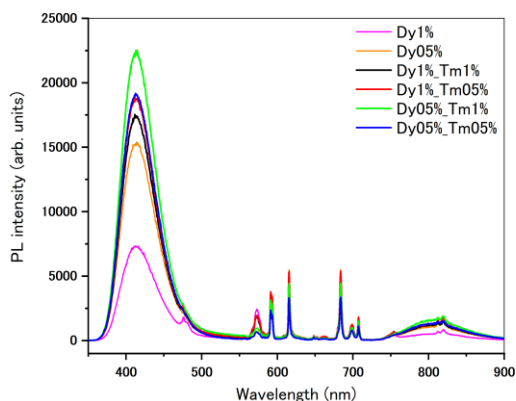


図 3(b) 試料 A(Eu, Dy)、試料 C(Eu, Dy, Tm)の発光スペクトル比較

図 3(a)では Dy0.5%、Tb0.5%の場合、410[nm]付近の  $\text{Eu}^{2+}$  による青色発光が他の試料より最大になっていることがわかる。Dy0.5%、Tb1.0%では 550~700[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 410[nm]付近の青色発光よりも大きくなっている。

図 3(b)から Dy0.5%、Tm1.0%の場合に 410[nm]付近の  $\text{Eu}^{2+}$  による発光が他の試料より最大となった。

また、試料 A、B、C の発光強度を比べると、試料 B が試料 A、C の組み合わせよりも大きくなっていることがわかる。このことから Tb が光増感剤として機能していることがわかる。

#### 3.3. 加熱蓄光観測実験

蓄光を確認するためにホットプレートによって試料を加熱し、目視にて観測した結果を試料 A、B、C をそれぞれ表 2、3、4 に示す。

表 2 試料 A(Eu,Dy)の蓄光観測実験結果

Dy	200	250	270	300	350	400	450	500
1.0	×	×	×	○	○	△	×	×
0.5	×	×	○	○	○	△	×	×

表 3 試料 B(Eu,Dy,Tb)の蓄光観測実験結果

Dy	Tb	200	250	300	350	400
1.0	1.0	×	×	×	○	○
1.0	0.5	×	×	×	○	○
0.5	1.0	×	×	○	○	○
0.5	0.5	×	×	×	○	○

表 4 試料 C(Eu,Dy,Tm)の蓄光観測実験結果

Dy	Tm	200	250	300	350	400
1.0	1.0	×	×	×	×	×
1.0	0.5	×	×	×	×	×
0.5	1.0	×	×	×	×	×
0.5	0.5	×	×	×	×	×

表 2、3、4 より試料 A の Dy0.5%が他の試料に比べて蓄光可能温度が低いため蓄光試料として有望なことがわかる。また、三種の希土類元素を賦活した試料 B と試料 C を比較すると、試料 C では蓄光することが難しくなっていることがわかる。

#### 4. 結論

二種の希土類元素共賦活試料と三種の希土類元素賦活試料を作製した結果、光増感剤として Tm より Tb が最適であることがわかった。また、蓄光観測実験から、試料 A が蓄光しやすかったが、試料 B も近い温度で蓄光できることがわかった。上記の二つのことを踏まえると、試料 B の Eu,Dy,Tb の組み合わせが発光強度、蓄光材料として最適であることが確認できた。

以上のように、本論文によってストロンチウムアルミネート系蛍光体の発光機能性向上に成功した。

#### 5. 謝辞

本研究にあたり、ご指導ご鞭撻を賜りました中村俊博教授に深く感謝いたします。また、同じ研究室の丸山慶人氏、尾崎辰吉氏、伊藤陽氏をはじめとした中村俊博研究室の皆様にも研究活動、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。お世話になりました。心より御礼申し上げます。ここに書ききれなかった方々含めまして、私の学生生活を支えくださったすべての方々から感謝の気持ちと御礼を申し上げまして、謝辞とさせていただきます。

#### 参考文献

- [1] T. Matsuzawa et al. : J. Electrochem. Soc. 143, 2670 (1996).
- [2] D. Dutczak et al. : Phys. Chem. Chem. Phys. 17, 15236 (2015).