

白色 LED 用蛍光体の光伝導度測定による消光機構の解明

Analysis of Luminescence Quenching Mechanism in Phosphors for White-LEDs by Photoconductivity Measurement

京大人環¹, 京大地環², 上田 純平^{1,2}, 田部 勢津久¹Kyoto Univ.¹, Jumpei Ueda¹, Setsuhisa Tanabe¹

E-mail: ueda.jumpei.5r@kyoto-u.ac.jp

近年、白色 LED(Light Emitting Diode)は、その長期安定性、省エネルギー、高い発光量子効率などの特長から、固体照明デバイスとして、白熱電球はもちろん蛍光管を置き換えつつある。一般的に普及している白色 LED は、青色 LED と黄色蛍光体または赤+緑色蛍光体で構成されており、これら白色 LED 用蛍光体には、4f-5d 許容遷移を有する Ce^{3+} や Eu^{2+} を添加した酸化物や窒化物蛍光体が良く使用されている。しかしながら、近年の LED チップの高出力化による発熱により、これら蛍光体の温度消光が無視できなくなり、より温度特性の良い蛍光体の開発が望まれている。これら温度消光の原因については、5d 励起準位のポテンシャルカーブから 4f 基底準位のポテンシャルカーブへの熱緩和により、定性的に説明されるが、熱緩和による消光では説明できない蛍光体も多く存在する。我々は励起 5d 準位から伝導帯への電子移動（光イオン化）に着目し、光伝導度測定を行うことによって、 $\text{Ce}^{3+}/\text{Eu}^{2+}$ 添加蛍光体の光イオン化による消光の寄与を調査した¹⁻³。

Ce^{3+} 添加ガーネット蛍光体、 Eu^{2+} 添加アルカリ土類シリケート/アルミネート蛍光体を固相反応により作製した。得られた試料は、XRD 測定により、結晶相を同定した。また、発光(Photoluminescence, PL)・励起(PL excitation, PLE)スペクトルとその温度依存性を Xe 白色光源、分光器、Si フォトディテクター、クライオスタットを組み合わせた実験系により測定した。光電流励起(Photocurrent excitation, PCE)スペクトルは、PLE 測定と同様に Xe ランプと分光器を組み合わせ単色光をクライオスタット内部の試料に照射し、各照射波長での光電流値をデジタルエレクトロメータで測定した。

例として、 Ce^{3+} 添加ガーネット蛍光体の結果を示すと、 Ce^{3+} 添加 $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ (YAG)- $\text{Y}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ (YGG) 固溶体において、Ga 濃度増加に従い、 Ce^{3+} の 5d-4f 発光強度の低下を観測し、Ce:YGG の室温での完全な消光を確認した。また、Ga 濃度増加につれて Ce^{3+} 発光の温度特性が悪くなり、消光温度の低下が観測された。これら蛍光体において、光伝導度測定を行ったところ、Ce:YAG において、300~500nm 励起では、光電流が観測されなかったが、PL 測定において全く発光を示さなかった Ce:YGG において、4f-5d₁ と 4f-5d₂ に対応する強い光電流励起バンドを示した。これは、 Ce^{3+} の 5d₁ と 5d₂ 準位の光励起により、電子が伝導帯へ移動したことを示している。以上より、Ga 置換のガーネット蛍光体においては、発光の消光原因が電子移動（光イオン化）であると結論付けた。

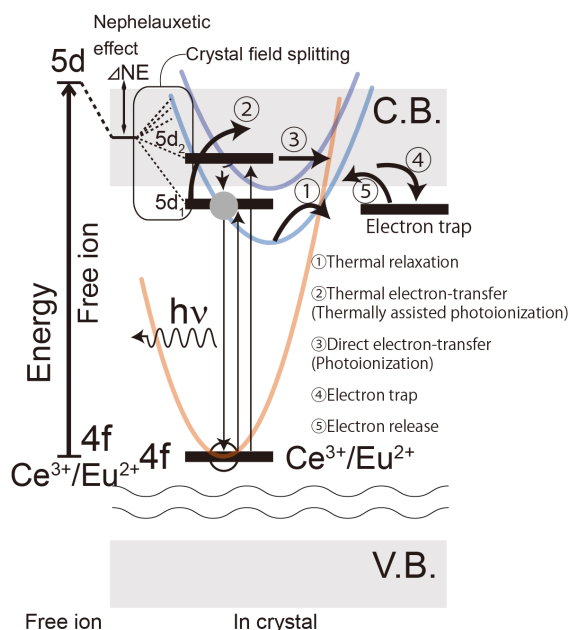


Fig. 1. Schematic model of quenching process in $\text{Ce}^{3+}/\text{Eu}^{2+}$ -doped phosphors

- 1 J. Ueda, S. Tanabe, and T. Nakanishi, *J. Appl. Phys.* **110**, 053102 (2011).
- 2 J. Ueda, T. Nakanishi, Y. Katayama, and S. Tanabe, *Phys. Stat. Sol.(C)* **9**, 2322 (2012).
- 3 J. Ueda, K. Aishima, and S. Tanabe, *Opt. Mater.*, in press (2013).