

液相合成法によるリン酸塩蛍光体 $I_a\text{ZnPO}_4\text{:Mn}$ ($I_a=\text{Li,Na,K}$) の作製 $I_a\text{ZnPO}_4\text{:Mn}$ ($I_a=\text{Li,Na,K}$) phosphate phosphors synthesized by liquid-phase synthesis鳥取大学大学院工学研究科¹, TEDREC²○山科 憲司¹, 大観 光徳^{1,2}Graduate School of Engineering, Tottori University¹, TEDREC²○K.Yamashina¹ and K. Ohmi^{1,2}E-mail: ohmi@ele.tottori-u.ac.jp

【はじめに】

白色 LED への応用を目的として、可視光(300nm~470nm)に励起帯を持ち、高い外部量子効率を示す $I_a\text{ZnPO}_4\text{:Mn}$ ($I_a=\text{Li,Na}$)に着目した。この蛍光体は、他のリン酸化合物に比べ熱的・化学的に安定である。また Mn を高濃度に添加しても内部量子効率が低下せず、Zn-Zn 間の距離が長いこと濃度消光が生じにくいと報告されている。[1] 従って Ce^{3+} や Eu^{2+} 等の共添加なしでも 420nm 付近に非常に強い Mn^{2+} の直接励起帯を有し、希土類フリー白色 LED 用蛍光体として期待される。今回、液相合成法により $I_a\text{ZnPO}_4\text{:Mn}$ ($I_a=\text{Li,Na,K}$)の作製を試みた。

【実験方法】

原料として $\text{Zn}(\text{COOH})_2$, $\text{Mn}(\text{COOH})_2$, $I_a\text{OH}$ ($I_a=\text{Li,Na,K}$) を用い、これらの混合液を 70℃で 10 分攪拌し、さらに H_3PO_4 を加えて 70℃で 24 時間攪拌させた。Mn 濃度は全て 10%である。遠心分離により得られた溶液から沈殿物を取り出し、乾燥させることで前駆体を得た。この前駆体を還元雰囲気中 800℃, 2 時間焼成することにより蛍光体試料を得た。

【実験結果】

Fig.1 に焼成後の試料の X 線回折(XRD)パターンを示す。全ての試料において、 $I_a\text{ZnPO}_4$ ($I_a=\text{Li,Na,K}$) の ICSD と一致する回折パターンが得られた。不純物結晶相は全く見られず、目的とするリン酸塩単一相の生成が確認された。

Fig.2 に $\text{NaZnPO}_4\text{:Mn}$ と $\text{LiZnPO}_4\text{:Mn}$ のフォトルミネッセンス(PL), PL 励起(PLE)スペクトルを示す。それぞれ Mn^{2+} の $3d^5\text{-}3d^5$ 遷移に起因するブロードな発光が確認される。ピーク波長は $\text{NaZnPO}_4\text{:Mn}$ に比べ $\text{LiZnPO}_4\text{:Mn}$ は約 20 nm 長波長側にシフトしている。なお、 $\text{KZnPO}_4\text{:Mn}$ 試料においては、全く発光が確認されなかった。一方、励起スペクトルでは、紫外～青色波長域にかけて Mn^{2+} の強い直接励起帯が見られる。現時点ではまだ発光は実用レベルでないが、原料の選択、Mn 濃度や焼成条件を検討することにより、特性改善を目指す予定である。

[1] D.Haranath, et al., Appl. Phys. Lett., **101**, 221905 (2012).

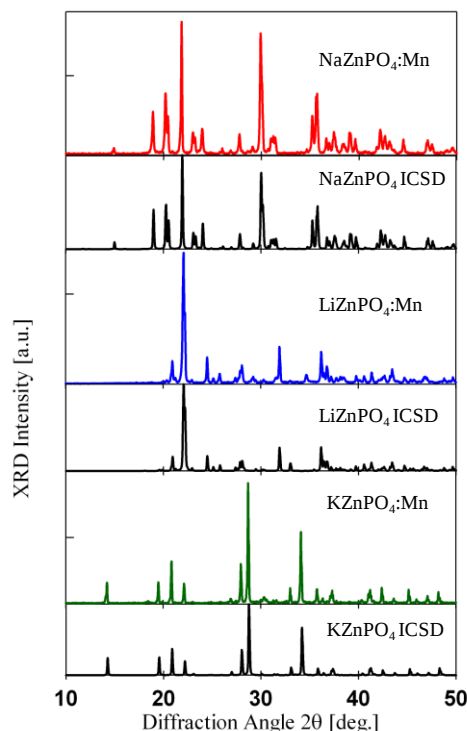


Fig.1 XRD patterns of synthesized phosphors

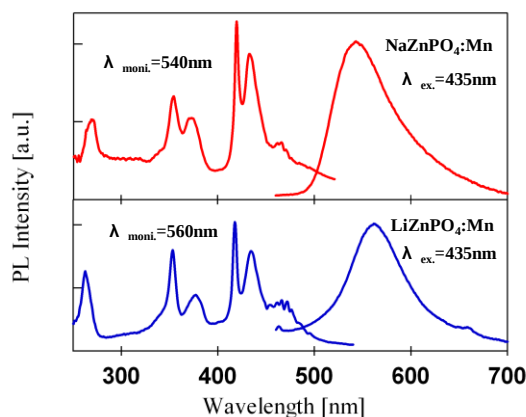


Fig.2 PL and PLE spectra of synthesized phosphor