

## リンゴ酸と APTES による有機-無機ハイブリッド蛍光体の合成とその評価

### Synthesis and Characterization of Organic-Inorganic Hybrid Phosphor made from Malic Acid and APTES

長岡技術科学大学 ○川瀬 琢也, 小松 啓志, 加藤 有行

Nagaoka University of Technology ○Takuya Kawase, Keiji Komatsu, Ariyuki Kato

E-mail: arikato@vos.nagaokaut.ac.jp

#### 【はじめに】

希土類元素を使用しない蛍光体として、有機-無機ハイブリッド蛍光体が近年注目されている。その一つとして、カルボン酸とアルコキシシラン化合物を用いたものはゾル-ゲル法により低温で焼成することで容易に作製できることが知られている。<sup>1)</sup>しかしその発光特性はカルボン酸とアルコキシシラン化合物の組み合わせに強く依存し、未だに不明な点が多い。<sup>2)</sup>我々はこの有機-無機ハイブリッド蛍光体の発光特性を調査すべく、種々のカルボン酸とアルコキシシラン化合物の組み合わせにおいて試料の作製と評価を行っており、リンゴ酸と APTES の組み合わせにおいて強い発光を見出した。<sup>3)</sup>今回はこの試料の発光特性と発光過程について報告する。

#### 【実験方法】

試料は全てゾル-ゲル法により作製した。リンゴ酸をエタノールに溶解させた後に APTES を投入し、リンゴ酸/APTES のモル比を 5/1, 3/1, 1/1 となるようにして混合して 15 分間の攪拌を行った。この工程は窒素雰囲気中と空気中の 2 つの条件下で実行した。その後試料が空気に触れない状態で三日間保存し加水分解を進めた。その後空気中で数日間乾燥させることにより前駆体を得た。得られた前駆体を 125~250°C の範囲において 25°C 刻みで 6 時間の焼成を行うことで蛍光体を作製し、PL-PLE 測定、ATR-FTIR 測定、DSC 測定を行うことにより評価を行った。

#### 【実験結果】

Fig.1 に 125~250°C の範囲において 25°C 刻みで焼成した試料の PL-PLE 測定の結果を示す。PL-PLE の励起および観測波長はいずれもそれぞれに対応するピーク波長に設定している。この結果から焼成温度が上昇するに伴い発光強度は増大し、150°C をピークに減少することが分かった。また PL-PLE のピークが長波長側にシフトすることが分かった。これらの依存性はリンゴ酸/APTES のモル比や、前駆体の作製雰囲気に関わらず同様に見られた。これらの蛍光体の PLE のバンドが存在する範囲は UV-LED の波長に対応するため、希土類元素を用いない白色 LED 等に応用できる可能性がある。Fig.2 に 125°C~200°C まで 25°C 刻みで焼成した試料のそ

れぞれの ATR-FTIR の結果を示す。この結果から 865  $\text{cm}^{-1}$  付近に現れる  $\text{SiCH}_3$  のピークが 150°C 焼成時に最も大きくなることが分かった。この  $\text{SiCH}_3$  の存在が  $\text{SiO}_2$  のバンドギャップを小さくし発光を長波長側にシフトさせることで緑色発光の起源となっていることが予測される。<sup>2)</sup>当日は DSC 測定等の結果を踏まえたさらなる詳細な議論を行う予定である。

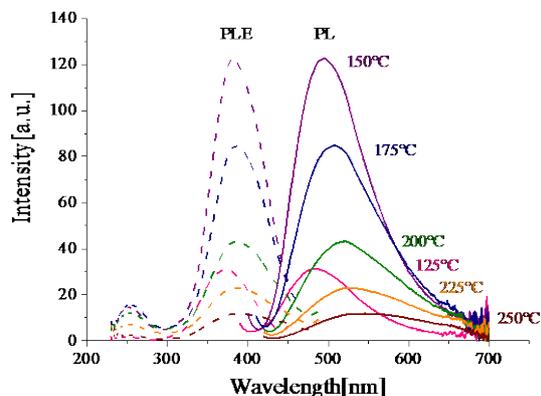


Fig.1 PL-PLE spectra of samples annealed at different temperatures.

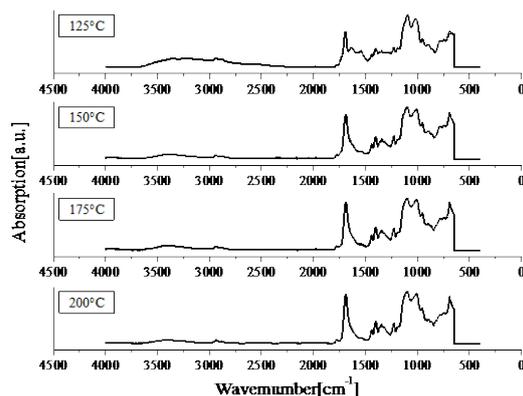


Fig.2 ATR-FTIR spectra of samples annealed at different temperatures.

#### 【参考文献】

- 1) W. H. Green *et al.*: Science **276** (1997) 1826-1828.
- 2) V. Bekiari, and P. Lianos: Chemistry of Materials **10** (1998) 3777-3779.
- 3) T. Kawase and A. Kato: presented at 2nd International GIGAKU Conference in Nagaoka (2013) MP-7.