

局在発光中心型酸化物蛍光体における光音響信号と PL の関係

Photoacoustic Signal and Photoluminescence in Oxide Phosphors with Localized Luminescent Center

○古川 恵大, 深田 晴己, 山口 敦史 (金沢工大 O. E. D. S. R&D センター)

○Keita Furukawa, Haruki Fukada, Atsushi A. Yamaguchi (Kanazawa Institute of Technology)

E-mail: h-fukada@neptune.kanazawa-it.ac.jp

【はじめに】現在, 国内外の研究機関において白色 LED や紫外ランプなどへの応用を目指した各種蛍光体材料の開発が行われている。一般的に蛍光体材料の高発光効率化のためには, 光励起後の無輻射遷移緩和を低減させることが極めて重要であるが, 欠陥や非発光中心を介した無輻射遷移緩和過程の詳細についてまだ明確にされていないことが多い。そこで本研究では, 無輻射遷移に伴う局所発熱エネルギーを直接計測できる光音響 (PA) 法に着目し, 局在発光中心型酸化物蛍光体における PA 信号を測定し, 光励起後の輻射遷移と無輻射遷移の対応関係について検討した。

【実験方法】酸化物蛍光体試料は, 均一沈殿法や固相反応法などにより作製された。ここでは一例として, 均一沈殿法による $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$ (YAG:Ce) 蛍光体の場合について述べる。YAG:Ce 蛍光体は, 原料として $\text{Y}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$, および $\text{Ce}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ を用い, これらの硝酸塩を超純水に溶解した後に, 尿素などを適量添加して加熱攪拌することで生成された沈殿物を大気中約 $1100[^\circ\text{C}]$ の温度条件下で約 1 時間の焼成を施すことにより作製された。蛍光体からの PA 信号は, 一般的なマイクロフォン法を用いて測定された。光源には 500W の高圧水銀ランプもしくは 300W のキセノンランプを用い, これらの光源から光学フィルタもしくは分光器により単色化された光をメカニカルチョッパーで断続光に変調し, PA セル内の粉体試料に照射させた。光吸収により発生した PA 信号は, コンデンサマイクロフォンで検出し, プリアンプで前段増幅された後にロックインアンプへ入力してメカニカルチョッパーからの参照信号と同期させた。

【結果と考察】図 1 に Ce 濃度が異なる 3 種類の YAG:Ce 蛍光体における PA 信号の光変調周波数依存性を示す。なお, 本測定は波長約 436[nm]の断続光を照射して実施された。同図より明らかなように, いずれの蛍光体においても得られた PA 信号の周波数依存性は周波数の逆数にほぼ比例しており, よく知られている Rosencwaig-Gersho 理論に近い結果が得られた。しかし, 同じ周波数条件下における各試料の PA 信号の強度は, 試料中の Ce 濃度に著しく依存し, 特に Ce 濃度が低い約 0.3[at%]の場合で最も小さいことも明らかとなった。一方, 図 2 に同試料に波長約 456[nm]の励起光を照射した場合の PL スペクトルを示す。同図より明らかなように, それぞれの試料は YAG 結晶中の Ce^{3+} の 5d-4f 遷移を起因とする波長約 540[nm]を主ピークとする典型的なスペクトルを有していた。しかし, 試料間の発光強度は Ce 濃度に依存し, Ce 濃度が約 0.3[at%]の試料において最も高い PL が得られたことがわかった。以上の結果より, PA 信号の減少と PL 強度の増加が相補的な関係にあることが明らかとなった。

【謝辞】本研究の一部は, 科研費基盤 C(24560426)及び文科省私大戦略的研究基盤形成支援事業の助成により実施された。

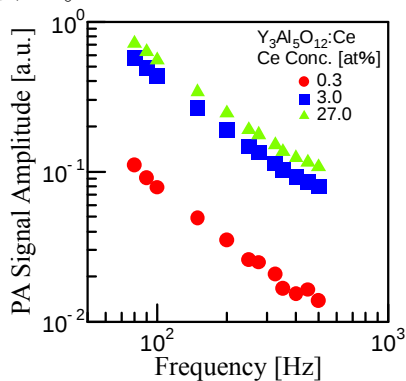


図 1 光音響信号の光変調周波数依存性

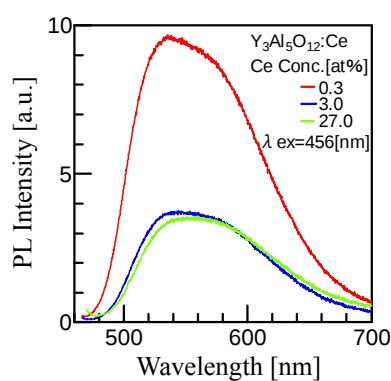


図 2 PL スペクトル