

不規則構造を持つ $\text{Ba}(\text{Si},\text{Al})_6(\text{O},\text{N})_{8+x}:\text{Eu}^{2+}$ の発光特性

Structural Disorder and Luminescence Property of the $\text{Ba}(\text{Si},\text{Al})_6(\text{O},\text{N})_{8+x}:\text{Eu}^{2+}$

物材機構¹ ○舟橋 司朗¹, 広崎 尚登¹, 武田 隆史¹, 解 榮軍¹

NIMS¹ ○Shiro Funahashi¹, Naoto Hirosaki¹, Takashi Takeda¹, Rong-Jun Xie¹

E-mail: FUNAHASHI.Shiro@nims.go.jp

〔諸言〕 単粒子診断法 (Single-Particle-Diagnosis approach)^[1]を用いた Ba-Si-Al-N 系物質探索において、 BaSi_6N_8 ^[2]: Eu^{2+} と $\text{BaSi}_6\text{N}_8\text{O}$ ^[3]: Eu^{2+} 二つの蛍光体の特徴を併せ持つ青緑色蛍光体を見出した。

結晶構造中に複数の発光中心ホストサイトを有する蛍光体であっても、室温で Eu^{2+} により複数の発光ピークを示すものは珍しい。本発表で紹介する蛍光体は一つの結晶で $\text{BaSi}_6\text{N}_8:\text{Eu}^{2+}$ と $\text{BaSi}_6\text{N}_8\text{O}:\text{Eu}^{2+}$ それぞれに固有の発光スペクトルを同時に示す。このような物質は、粉末試料のみの評価では2つの物質の混合相と判断されやすいが、単粒子診断法では単結晶一粒の結晶構造と発光特性を1対1に評価できるため、判別が容易となる。

〔実験〕 Ba_3N_2 , $\alpha\text{-Si}_3\text{N}_4$, AlN, EuN の原料粉末を窒素ガス雰囲気グローブボックス内で混合し、1MPa の窒素ガス雰囲気にて 1900℃で焼成して粉末試料を合成した。それらを UV-LED 照射下での顕微鏡観察と、結晶構造データベースを用いた単結晶 X 線回折法による相同定を行った。その結果、格子定数は既知のものに近かったが、顕微鏡観察において発光色に報告例がなかったものについて、顕微分光測定と精密結晶構造解析を行った。

〔結果〕 幾つかの粉末試料中から採取された青緑色発光の結晶は BaSi_6N_8 または $\text{BaSi}_6\text{N}_8\text{O}$ に類似する格子定数であったが、精密単結晶 X 線構造解析の結果、組成式： $\text{Ba}(\text{Si},\text{Al})_6(\text{O},\text{N})_{8+x}$ ($Z=2$), 直方晶系/空間群 *Imm2* に属し、 BaSi_6N_8 型構造に特徴的な Si(Al)-Si(Al)結合と $\text{BaSi}_6\text{N}_8\text{O}$ 型構造に特徴的な Si(Al)-O-Si(Al)結合とが結晶中で共存している様子が確認でき、二つの構造がある割合で組み合わせられて構造を成していることが明らかとなった。(Fig.1 参照)

発光スペクトル測定の結果、Fig.2 の様にそれぞれの構造への Eu 賦活に由来すると見られる 465nm(BaSi_6N_8 型)と 510nm($\text{BaSi}_6\text{N}_8\text{O}$ 型)に極大値を示した。

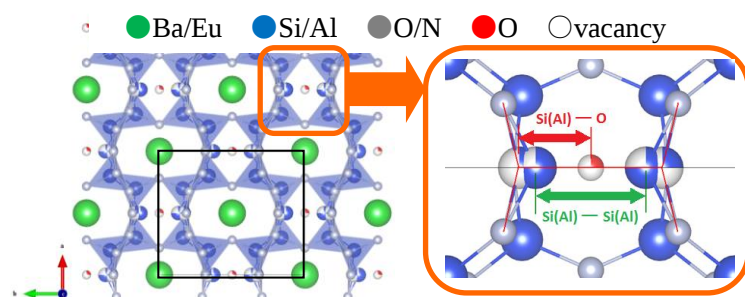


Fig.1 Crystal structure of the $\text{Ba}(\text{Si},\text{Al})_6(\text{O},\text{N})_{8+x}$

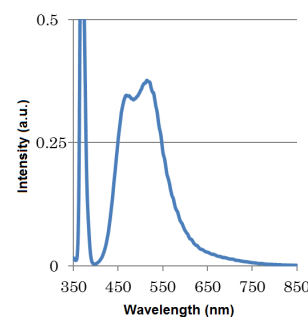


Fig.2 Emission Spectra ($\lambda_{\text{ex}}=365\text{nm}$)

[1] N. Hirosaki, T. Takeda, S. Funahashi, and R-J. Xie, *Chem. Mater.* (2014) **26**, 4280–4288

[2] F. Stadler and W. Schnick, *Z. Anorg. Allg. Chem.* **2007**, 633, 589_592

[3] F. Stadler, R. Kraut, O. Oeckler, S. Schmid and W. Schnick, *Z. Anorg. Allg. Chem.* **2005**, 631, 1773_1778