

リンゴ酸由来カーボン・ナノコンポジット蛍光体の発光特性に対する窒素含有量依存性 Nitrogen content dependence on luminescence properties from malic acid derived carbon nanocomposite phosphors

長岡技科大工 ○瀧澤 央基, 小川 駿哉, 中川 惟道, 加藤 有行

Nagaoka Univ. of Tech., °Takizawa Hiroki, Shunya Ogawa, Tadamichi Nakagawa, Ariyuki Kato

E-mail: °s171049@stn.nagaokaut.ac.jp, arikato@vos.nagaokaut.ac.jp

1. はじめに

近年, 新しい種類の蛍光ナノ材料としてカーボン・ナノドット (CDs) 蛍光体が注目されている。しかし, 長波長領域での高量子収率な発光の例は少数で, 長波長化させる指針もいまだ分かっていない。

我々は先述の CDs 蛍光体の発光特性の向上, 容易な合成方法, 安定性を研究目的として, シリカ中にカーボン・ナノドットを埋め込むことで, ハンドリングが容易なカーボン・ナノコンポジット (CNC) 蛍光体の合成に成功した^[1-3]。CNC 蛍光体の合成には種々の組み合わせがあるが, その中でも, ゴル-ゲル法を用いてアルコキシシラン化合物の APTES とカルボン酸のリンゴ酸の組み合わせが最適であることが分かった。

また, 上記の組み合わせに更に窒素源として, アミン類を添加することで発光強度が向上し, 長波長化した^[3]。しかし, いずれも白色 LED を実現する長波長領域での発光は得られていない。そこで本報告では, さらに窒素を添加すべく, アミノ基数が異なる種々のアミンを添加することで, 発光の長波長化及び量子収率の評価を試みた。

2. 作製方法

全ての蛍光体は, ゴル-ゲル法で作製を行った^[1-3]。最初に種々のアミンをエタノール 6 ml に溶解し, 密閉状態で攪拌を約 15 分間行った。得られた溶液にリンゴ酸を溶解し, 密閉状態で攪拌を約 15 分間行った。APTES を添加し, 攪拌した状態で 3 日間加水分解を進めた。その後 90°C で 5 日間の加熱を行い, 得られた前駆体を 150°C で 6 時間の焼成を経て蛍光体を作製した。APTES とリンゴ酸と種々のアミンのモル比は 1:1:0.5 とした。添加したアミンの一覧を表 1 に示す。

表 1 添加したアミンの一覧

アミン名称	略称	アミノ基数
ジエチルアミン	DEN	1
ジエタノールアミン	DEA	1
トリエタノールアミン	TEA	1
エチレンジアミン	EDA	2
ジエチレントリアミン	DETA	3
トリエチレンテトラミン	TETA	4
テトラエチレンペンタミン	TEPA	5

3. 結果と考察

図 1 に作製した蛍光体を 325 nm で励起した時の発光スペクトルの添加アミノ基数依存性を示す。アミン無添加のものと比較して, 添加した全てのアミンで長波長化が確認できた。また, 発光強度の違いはあるが, アミノ基数が 1 つのアミンを添加した場合はピーク波長に大きな差異はないことが分かる。アミノ基数が 2 つ, 3 つと増加するとそれに伴い長波長化するが, 4 つ以上では長波長化が確認できなかった。

図 2 に作製した蛍光体を 405 nm で励起した時の量子収率を示す。405 nm はアミン無しの励起スペクトルのピーク波長に相当する。全体の傾向として, アミノ基数が増加するに伴い量子収率が減少していることが分かる。

図 3 に CNC 蛍光体に含まれる窒素組成比とピーク波長との関係を示す。窒素含有割合が増加するに伴い, ピーク波長が大きくなることが分かった。

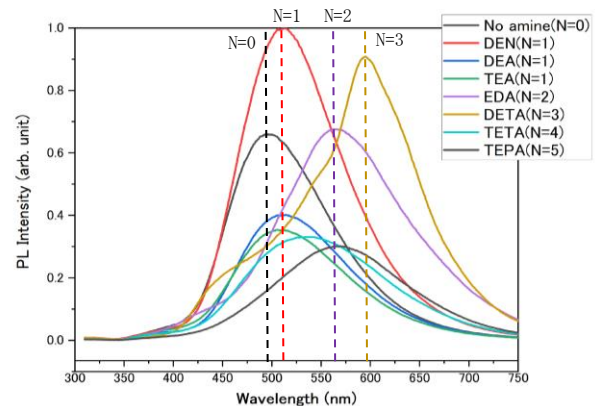


図 1 種々のアミンを添加した CNC 蛍光体の PL スペクトル (励起波長 325 nm)

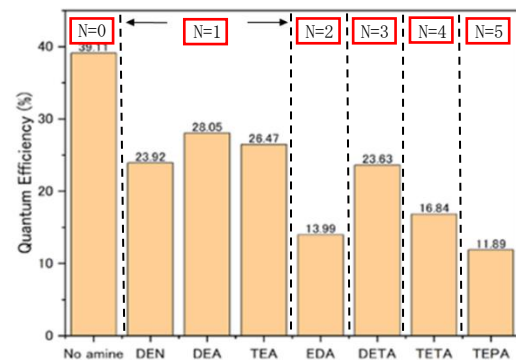


図 2 種々のアミンを添加した CNC 蛍光体の量子収率 (励起波長 405 nm)

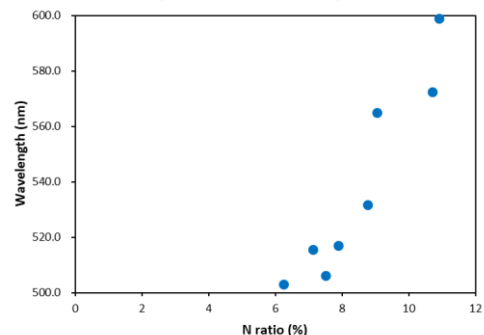


図 3 窒素組成比とピーク波長 (励起光 405 nm)

【参考文献】

- 川瀬 他: 第 61 回応用物理学会春季学術講演会 18a-PG6-18 (2014).
- 長谷川 他: 第 76 回応用物理学会秋季学術講演会 13p-PA6-13 (2015).
- 小川 他: 第 80 回応用物理学会秋季学術講演会 19a-PB3-12 (2019).