WASSR 法による酸化物蛍光体の合成

Synthesis of Oxide Phosphors using the WASSR method

新潟大院 [1]　○戸田 健司 [1]，兼子　達朗 [1]，渋田　裕介 [1]

Niigata Univ.[1] ○Kenji Toda[1], Tatsuro Kaneko[1], Yusuke Shibuta[1]

E-mail: ktoda@eng.niigata-u.ac.jp

一般的に、セラミックス材料は高温固相反応と呼ばれる 1000℃以上の高温で加熱する方法により合成される。高温処理が必要な理由は、界面での拡散律速の克服また格子の組み替えにエネルギーを要するためと考えられているが、この仮説に対する具体的な実験的な証拠はない。これに対し当研究室では、WASSR（Water-assisted Solid State Reaction）法と呼ばれる新規低温合成法を開発した [1-4]。この合成法では、原料混合物に少量の水を添加して混合する、もしくは原料混合物を主として低温の水蒸気雰囲気中で保持するだけで、ナノオーダーのセラミックスを合成することが可能である。本研究では、本法による酸化物蛍光体合成のメカニズムと問題点について考察した。

実用の LED 蛍光体である $Ba_2SiO_4:Eu^{2+}$の WASSR 法による合成および評価を行った。原料に用いる Ba および Si 各原料の固体酸・塩基強度についてハメット指示薬を用いて測定し、反応が進行する組み合わせを予測し、$Ba(OH)_2$・$8H_2O$ と非晶質 SiO_2 の組み合わせが最も適しているといった結果が得られた。WASSR 法の進行には、原料の固体酸-塩基強度の差が大きいことが重要である。

これまで、Ba_2SiO_4 相が得られる温度は 750℃ 以上の高温であったが、WASSR 法により 220℃という極めて低温での合成に成功し、得られた粒子径は透過型電子顕微鏡 (TEM) を用いた観察から 15-20 nm であった。Ba_2SiO_4 相は水に弱いため、水熱法では合成できない。また、得られた試料は 360 nm の紫外光を吸収し、Eu^{2+}由来の 5d→4f 遷移に起因する緑色発光を示した。

一般的に、Eu^{2+}を賦活した蛍光体を合成する際には還元ガス中での焼成が必要であるが、本合成法では還元ガスを用いずに Eu^{2+}の発光を実現した。以上のことから、WASSR 法は極めて有望なナノ蛍光体の合成手法であると言え、他の蛍光体材料への展開も期待できる。

謝辞

本研究の一部は、科研費基盤研究(B)（一般）「水により加速する固相反応のメカニズム解明にむけた水の役割の解明」として実施された。

1) T. Kaneko *et al.*, *Sci. Adv. Mater.*, **7**, 1502 (2015).
2) K. Toda *et al.*, *Key Eng. Mater.*, **690**, 268 (2016).
3) T. Hasegawa *et al.*, *RSC Advances*, **7,** 25089 (2017).
4) M. Watanabe *et al.*, *J. Ceram. Soc. Jpn.*, **125**, 472 (2017).