

1. はじめに

現在、蛍光体は画像表示装置など幅広い用途に利用されている。しかし、一般的な蛍光体材料に含まれる希土類金属は、資源問題の観点より多用することが困難であり、新たな蛍光体の開発が求められている。私の所属する研究室では、銅添加ヒドロニウムアルナイトに着目している。この蛍光体は、水素・酸素・アルミニウム・硫黄および銅から構成され、希少な元素を含まない。これまでに、室温にて波長約420nmの青紫色発光を示すことを報告してきた[1]。しかし、一般的な蛍光体に比べて発光強度が低く、応用するためには発光強度の増大が必要である。本研究では低温におけるスペクトル形状の変化を実験的に解明することで、発光強度の増大に寄与する新知見の導出を目指した。

2. 実験方法

2.1 銅添加ヒドロニウムアルナイトの水熱合成

原料として、硫酸アルミニウム十五水和物、硫酸銅五水和物を用いて、仕込み組成のイオン濃度が、アルミニウム(Al):0.25、銅(Cu):0.083x mol/L (Al : Cu = 3 : x)となるように秤量した(x=0.00, 0.25, 0.50, 0.75, 1.00, 2.00, 3.00)。それぞれの硫酸銅を精製水に溶解後、石英製容器に注入した。これをオートクレーブ内に設置し、昇温速度 1.5°C/min で240°Cまで加熱し1時間保持した後、炉冷することにより試料を得た。

2.2 試料の発光スペクトル測定

得られた粉末試料の発光特性を確認するために、まずは室温での PL 測定を行った。PL 測定における励起光としてヘリウム・カドミウム(He-Cd)レーザーの325nm線を使用した。レーザーからの自然放出光を除去する目的で325nmの干渉フィルターを用いた。励起光を平凸レンズで集光して試料に照射した。試料からの発光をレンズにより集光し、分光器に導入した。

2.3 試料の低温発光スペクトル測定

粉末試料の低温発光特性を確認するために、窓付きクライオスタットを用いて低温状態でのPL測定を行った。温度を室温(295K)から低温(11K)まで変化させて発光スペクトルを測定した。

3. 結果と考察

図1にx=1.00のサンプルの室温および低温における発光スペクトルを示す。室温では423nmに1つのピークが観測されたのに対し、低温では

422nmと492nmの2つのピークを確認した。室温のピークと低温の短波長側のピーク波長は、ほぼ同じであった。

これまでの報告[1]と図1の結果より、エネルギー準位図を作成した(図2)。ここから以下のような電子遷移による発光を考察した。Cu⁺の基底準位①より電子が励起され、エネルギー準位⑤および④に遷移する。エネルギー準位④、⑤に吸収されたエネルギーは、③の準位まで熱的に緩和する。さらに、③から①に緩和する際に422nmの発光が観測されたものと考えられる。一方、低温では②の準位が新たに観測された。④および⑤の準位に励起された電子は③だけでなく②の準位にも緩和し、②→①の遷移で492nmの発光を示したものと考えられる。現時点では、②の準位の起源は不明であるが、今後さらに詳細にエネルギー準位を解析することで、発光強度の増大や発光波長のチューニングに必要な知見が得られるものと期待している。

4. まとめ

銅添加ヒドロニウムアルナイトの低温における発光特性を調査した。この結果、室温では見られなかった新しい発光を観測し、そのエネルギー準位モデルを提案した。

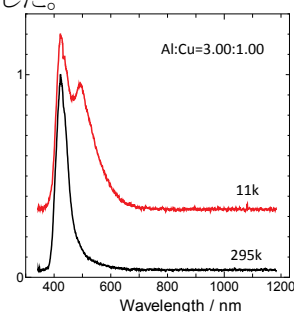


図1. 銅添加ヒドロニウムアルナイトの発光スペクトル

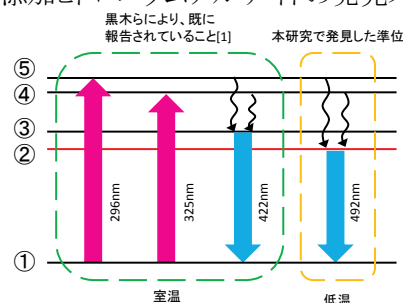


図2. 銅添加ヒドロニウムアルナイトのエネルギー準位図

文献

- [1] Y. Kuroki, N. Iwata, T. Hatsuse, T. Okamoto, M. Takata, IOP Conf. Ser. : Mater. Sci. Eng. , 21(2011), 012004