



研究 経過 ・ 終了 報告書

※ゴシック文字で記入下さい。

研究テーマ	ギガパスカル圧力領域での超高压力合成法を用いた高輝度窒化物蛍光体の創成
研究の結果	<p>本研究では、ギガパスカル (GPa) 圧力領域での白色LED用高輝度窒化物蛍光体の高压合成を行った。窒化物蛍光体は高温下での原料窒化物の分解が仕込みと生成物の組成のずれを引き起こし発光効率の低下につながることもある。高压高温は有用な反応場である他、高压力が体積増加反応である原料の分解を抑制し、目的物質を理想的な発光効率に近づけることが期待できる。窒化物蛍光体の高压合成にはDIA型マルチアンビルキュービックプレスを使用した。Ar雰囲気グローブボックス内で30分混合した原料混合粉末 (Ca_3N_2, AlN, Si_3N_4, Eu_2O_3およびNH_4Cl) をh-BN試料カプセルに充填し、高压高温合成用セルを組み立てた。目標圧力まで加圧した後、セル内に組み込んだグラフィットヒーターへの通電によって抵抗加熱し、所定の時間保持した後急冷した。減圧後に回収した試料はXRD (実験室系Cu-Kα線源および放射光) 及び蛍光測定装置を用いて評価を行った。</p> <p>商用窒化物蛍光体として知られる$\text{CaAlSiN}_3:\text{Eu}$の合成を目指し、高温高压実験を行った。$\text{NH}_4\text{Cl}$を加えずに4 GPa, 1200 °Cの条件で合成実験を行ったところ、CaAlSiN_3は生成せず、出発原料のCa_3N_2, AlNおよびSi_3N_4が未反応の状態で見られた。一方、NH_4Clを加えて、同様の4 GPa, 1200 °Cの条件で合成実験を行ったところ、CaAlSiN_3が主相として生成した。NH_4Clは常圧下では高温で分解するが、高温高压下では融解することが報告されている。CaAlSiN_3の合成においては、NH_4Clが融解した液相が出発原料間に存在し、カチオンの拡散が促進されることでCaAlSiN_3が生成したと推察される。回収した試料は、紫外線励起によって赤橙色の可視光発光を示した。励起蛍光スペクトルを測定したところ、Eu^{2+}のf-d遷移に起因した約620 nmにピークを持つブロードな蛍光スペクトルを示した。先行研究における$\text{CaAlSiN}_3:\text{Eu}^{2+}$も6290 nm付近に発光ピークを持つことから、高压力下でも$\text{CaAlSiN}_3:\text{Eu}^{2+}$が生成したことが明らかとなった。</p> <p>また、高压下での新規窒化物の合成を目指し、Ca_3N_2-Si_3N_4系において実験を行ったところ、Ca_3N_2に富んだ組成において、新規相の合成に成功した。XRD測定の結果、この新規相はガラス相であることが明らかとなり、本系において初めてのガラス相の合成に成功した。窒化物のガラス相の報告は非常に僅少であり、超高压力合成法が窒化物ガラスの合成に有用であることが明らかとなった。</p>
研究発表 (実績)	<p>日本セラミックス協会第31回秋季シンポジウム, 口頭発表, 2018年9月 日本高压力学会 第59回高压討論会, ポスター発表, 2018年11月 固体化学フォーラム, 第4回固体化学フォーラム研究会, ポスター発表, 2019年6月 日本金属学会 2019年秋期(第165回)講演大会, 口頭発表, 2019年9月</p>

提出期限: 研究期間終了後、すみやかに助成金の「必要経費使途明細書」「領収書(原本)」と合わせて提出下さい。
年度をまたぐ場合は毎年3月末日までに、途中経過をご記入の上、報告願います。