

マイクロエマルジョンを用いたポリオール法による YVO₄:Bi ナノ蛍光体の作製

Synthesis of YVO₄:Eu nanophosphor by microemulsion-mediated polyol method

長岡技術科学大学 電気系

池口 明良, 磯前 厚, 加藤 有行

Akira Ikeguchi, Atsushi Isomae, Ariyuki Kato

Department of Electrical Engineering, Nagaoka University of Technology

1. はじめに

近年、ナノ蛍光体は無機 EL 材料や生体標識など様々な分野で応用されている^[1]。ナノ蛍光体の作製にはソルボサーマル法が広く使われている。またソルボサーマル法を簡便にした方法としてポリオール法が提案されている^[2]。ポリオール法とは、OH 基を持つ溶媒を使用してナノ粒子を作製する方法で、配向能力の高い基を持つ溶媒分子がキレート剤として働き、粒子の成長を抑制する事が出来る。これらの方法の欠点の一つに作製した粒子は凝集が多い事があげられるが、ソルボサーマル法においてはマイクロエマルジョンを用いる事で凝集が抑えられるという報告がある^[3]。マイクロエマルジョンとは水や油などの混ざり合わない液体同士に界面活性剤を用いる事でミセルを生成している分散系のことで、ミセルにより反応領域を抑制し、粒子の凝集を防ぐことができる。今回はポリオール法にマイクロエマルジョンを用い高い量子効率を示すことが知られている黄色蛍光体 YVO₄:Bi_[4]の合成を試みた。

2. 実験方法

ポリオール法の合成において、まず化学量論量の Y₂O₃,V₂O₅,ドーパントとして Bi₂O₃をそれぞれ酢酸で溶解し、それらを 50ml のジエチレングリコール(SP 値:12.9)に投入した。その後、油として n-ドデカン(SP 値:7.9)を 50ml、共界面活性剤として 1-ブタノールを 50ml、界面活性剤として span60 を HLB 値 4.7 がとなるように加え乳化させ、得られたエマルジョンは 80~180°Cでオイルバスで 3 時間加熱還流した。(SP 値とは溶液同士の混ざりやすさを示す値で、SP 値が離れている溶液同士ほど混ざりづらいとされておりジエチレングリコールのミセルを作りやすいように n-ドデカンを採用した。)その後、沈殿物を遠心分離で取り出し、エタノールで洗浄し、表面の OH 基を取り除くため電気炉 650°C,30 分で熱処理した。また比較のためにソルボサーマル法にマイクロエマルジョンを用いた方法でも作製を行った。まず化学量論量の Y₂O₃,NH₄VO₃,ドーパントとして Bi₂O₃をそれぞれ酢酸で溶解し 20ml の純水(SP 値:23.4)に投入した。界面活性剤として span60 を HLB 値 4.7 となるように加え 80°Cで 30 分攪拌、次に共界面活性剤としてエタノールを 20ml 加え 80°Cで 1 時間攪拌、最後に油としてオレイン酸(SP 値:8.5)を 20ml 加え、80°Cで 1 時間攪拌した。その後、オートクレーブで 280°C、3 時間加熱した。その後、沈殿物を遠心分離で取り出し、エタノールで洗浄した後、電気炉 1000°C、2 時間で熱処理した。これらの方法で作製したナノ蛍光体を XRD,SEM,PL によって特性評価した。

3. 実験結果

Fig.1(a),(b),(c)に 80~180°Cの温度でポリオール法にて作製された試料、(d)に 280°Cでソルボサーマル法で作製された試料の SEM 画像を示す。粒径は合成温度(a)180°C, (b)100°C, (c)80°Cでそれぞれ 40nm,70nm,100nm となり、合成温度が高いほど粒径が小さくなる事が分かった。またソルボサーマル法で 280°Cで作製した場合(d)、粒径は 100nm となり、ポリオール法の方がより低い温度で小さく粒子を合成できている事が分かった。またマイクロエマルジョンの効果によりすべての粒子において凝集が抑えられていた。

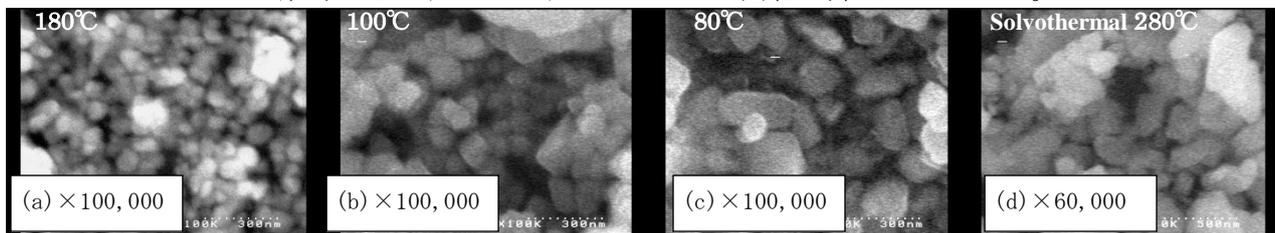


Fig. 1 SEM images of $\text{YVO}_4:\text{Bi}$ synthesized at (a)180°C, (b)110°C,(c)80°C by polyol method and (d) 280°C by solvothermal method.

次に Fig.2に PL スペクトルを示す。すべての試料から発光ピークが560nm の黄色発光が得られた。ポリオール法では80°Cの合成時に発光強度が一番強かった。合成温度の低下に伴って発光強度が強くなっているのは粒子サイズの増加に伴う表面欠陥の減少によるものと考えられる。ソルボサーマル法のは粒子サイズが近いポリオールの80°Cのものと同程度であった。発表当日にはマイクロエマルジョンの有無や溶媒比の影響等についても報告をしたい。

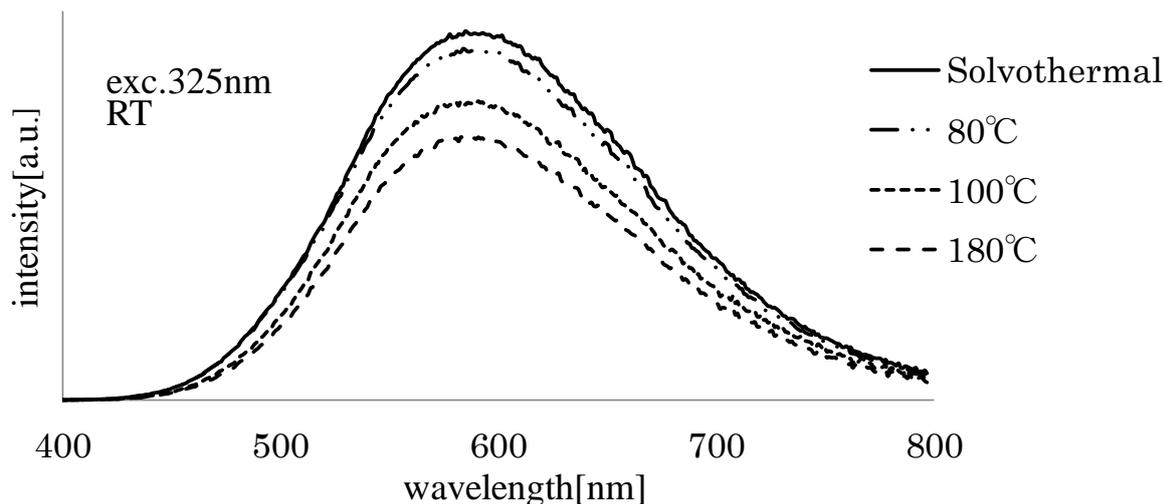


Fig. 2 PL spectra of $\text{YVO}_4:\text{Bi}$.

参考文献

- 1) R. Asakura, *et al.* Jpn. J. Appl. Phys. **46** (2007) 5193.
- 2) C. Feldmann, *et al.* Adv. Funct. Mater. **2** (2003) 13.
- 3) 磯前 他, 第59回応用物理学会関係連合講演会,(2012)17p-E2-17.
- 4) 八木 他, 第72回応用物理学会学術講演会, (2011)31a-P5-3.