

低対称性イオン伝導体におけるイオン伝導機構の解明

Elucidation of the ion-conduction mechanism in the low symmetrical ion conductors

武田隆史¹⁾ 解栄軍¹⁾ 広崎尚登¹⁾ 井川直樹²⁾ 松下能孝¹⁾

Takashi TAKEDA¹⁾ Xie Rong-Jun¹⁾ Naoto HIROSAKI¹⁾ Naoki IGAWA²⁾ Yoshitaka MATSUSHITA¹⁾

¹⁾物質材料研究機構 ²⁾原子力機構

希土類イオン含有サイアロン蛍光体の中性子回折測定を行い、希土類イオン周りの構造変化を中心に調べた。7配位のうち最も短い結合距離を持つ位置の酸素/窒素存在比が発光特性に影響を与えていると考えられた。

キーワード：サイアロン、希土類、蛍光、配位構造

1. 目的

これまで耐熱構造材料として研究されてきたサイアロンが、現在蛍光体母体として盛んに研究されている¹⁾。酸窒化物固溶体であるサイアロンは、酸化物蛍光体より長波長側に励起帯を持つ。これは窒素を含むためと考えられ、これまで全体組成の酸素、窒素量を制御することによって発光波長を黄色から橙色まで連続的に変化させることができている。近年、実際は全体組成よりも含有する希土類イオン周りの配位状況が発光特性に大きく影響を及ぼすことが明らかになってきた。しかしながら、XRDでは酸素、窒素の区別ができないため、希土類イオンの配位環境の詳細は分かっていない。本研究では、高分解能の粉末中性子回折測定を行い、サイアロン蛍光体の希土類イオン周りの組成、構造を中心に調べた。加えて、本研究では、将来的な展開として、サイアロン母構造物質が耐高温性のある良イオン伝導体になる可能性がある為に本研究ではサイアロンの特徴を明らかにすることにも注目した。

2. 方法

希土類イオン含有サイアロン蛍光体のうち組成が少し異なり、それに伴い発光色が黄色と橙色である2種類の試料 $(\text{Ca, Eu})_{m/2}\text{Si}_{12-m}\text{Al}_m\text{O}_{16-n}\text{N}_n$ を用いた。測定には回折計HRPDを用い、10Φのパナジウムセルに試料を充填し、室温で行った。解析にはプログラムRIETAN-FPを用い、特に希土類イオン周りの組成、構造変化に注目して解析を行った。

3. 研究成果

解析の結果、両試料とも既存のサイアロンの構造モデルを用いて十分低いR値を得ることが出来た。サイアロン構造中で希土類イオンはアニオンの7配位構造をとり、短い1本と長い6本の結合距離に分けることができる。それらのアニオンの酸素、窒素の占有率を精密化したところ、短い原子間距離を持つアニオンにおいて、窒素含有量の割合が他のアニオンより増加していた。黄色発光、橙色発光を示すサイアロン間で短い原子間距離を持つアニオンの窒素含有量を調べると、橙色発光を示すサイアロン蛍光体で窒素含有量が多く、発光波長の長波長化と対応していた。

4. 結論・考察

サイアロン蛍光体において、発光特性は発光中心と短い結合距離を持つアニオンの組成変化に大きく左右されることが分かった。

5. 引用(参照)文献等

- 1) R.-J. Xie, N. Hiroasaki, M. Mitomo, Y. Yamamoto, T. Suehiro and K. Sakuma, J. Phys. Chem. B, 10207-12031, 108 (2004).