

題 目: 希土類フリーカーボン系発光材料の合成と機能評価

(Synthesis of rare-earth-free carbon based luminescent materials and their characterization)

氏 名 岩崎 秀治

本論文では、希土類を用いないカーボン系発光材料である BCNO 蛍光体に着目し、製造プロセスの改良、量子効率の向上、各種の分析による構造解析、他金属の添加による影響について評価した。さらに、樹脂との混合等を目的として、カーボン系発光材料のナノ粒子、特に、BCNO 蛍光体ナノ粒子およびカーボンドットの合成について検討した。本論文の構成は、以下の通りである。

第 1 章では、地政学的・経済的・地球的環境と希土類元素の関係から蛍光体に求められる希土類フリー化の流れと蛍光体の必要性、株式会社クラレにおける蛍光体の研究開発・実用化の経緯を述べ、希土類フリー(且つ重金属フリー)蛍光体である BCNO およびカーボンドットの有用性と工業化への課題を概説し、本論文の目的と構成について述べた。

第 2 章では、BCNO 蛍光体の実用的観点から、製造プロセスの改良と発光斑、黒点、 B_2O_3 生成の抑制による発光効率の向上について検討した。これまで BCNO 蛍光体は、液相法にて製造されていたが、量産性の高い固相法での製造について検討した。また蛍光体では、目視での均質性は重要な商品イメージであり、炭素質を原料とする本法では、黑色化物が、また自己縮合性の高いホウ素を原料とするため無水ホウ酸が生成している。これらは蛍光体中では蛍光に寄与しない不純物であり、蛍光収率を下げることに繋がるため、これら不純物の生成抑制について検討した。その結果、ホウ酸メラミン等を原料に用いることにより、 B_2O_3 の生成を抑制し、量子効率を向上できることが明らかとなった。さらに、BCNO 蛍光体の熱的安定性、機械強度(衝撃強度)に関し検証した結果、製造方法を通じ、また得られた蛍光体の詳細分析による BCNO 蛍光体の構造について評価した。

第 3 章では、近紫外励起で白色発光する希土類フリー蛍光体 AIBCNO の合成と発光特性について検討を行った。近年冷陰極管に代わり、照明分野で目覚ましい発展を続ける白色 LED 蛍光体には、現在、青色 LED と黄色蛍光体の組み合わせで白色発光を実現しているが、よりエネルギー効率が高く省エネルギー化に繋がる紫外 LED と白色蛍光体の組み合わせによる白色発光が求められている。そこで、希土類を使用しない黄色発光 BCNO 蛍光体と青色発光する $Al_2O_3:C$ 蛍光体に着目し、両者の原料を組み合わせることによって、白色発光する AIBCNO 蛍光体(量子効率 14.1%)が合成できることを明らかにした。

第 4 章では、カーボン系発光材料のナノ粒子の合成を目的として、マイクロ波加熱法による BCNO 蛍光体の合成と水熱合成法によるカーボンドットの合成について検討した。マイクロ波加熱法によりホウ酸、尿素、クエン酸の原料から BCNO 蛍光体ナノ粒子の合成を検討した結果、従来の電気加熱炉を用いた合成法と比較して、低温かつ短時間で色斑のない BCNO 蛍光体ナノ粒子が合成出来ることを見出した。さらに水熱合成法によって、クエン酸と尿素よりカーボンドットを合成した結果、高い発光効率を持つ最適な反応時間があることを見出し、NMR、FTIR、TEM などの分析によって、発光物質の構造を明らかにした。さらに合成された BCNO 蛍光体およびカーボンドットは、水、有機溶媒に溶解することから、両親媒性であることが明らかとなり、この特性を利用し、有機溶媒可溶性 BCNO およびカーボンドット蛍光体存在下のポリマー合成(重合)により、ポリマー中への均一分散が可能となり、発光ポリマーおよび紫外線吸収フィルムなどへの応用可能性が示唆された。

第 5 章では、本研究で得られた成果を総括した。