

## 審査の結果の要旨

氏名 福田 由美

本論文は、新規蛍光体の開発とその高性能白色発光ダイオード (LED) 照明への応用に関する研究の成果をまとめたものである。三種類のユーロピウム賦活ストロンチウム含有サイアロン蛍光体を新たに見出し、その特性を決定する微視的機構を明らかにして材料設計指針を与えると同時に、特性向上の道筋を明らかにした。また、それらの新規蛍光体を用いて実際に高性能白色 LED を実現している。

第1章は序論であり、地球温暖化の原因である CO<sub>2</sub> 削減及び省エネルギーの切り札である白色 LED、そのキーマテリアルである窒化物系蛍光体について概観し、本研究の目的と位置づけを述べている。

第2章は、新規に開発した三種の Eu<sup>2+</sup>賦活 Sr 含有サイアロン蛍光体の結晶構造、粉体特性、発光特性および温度特性を報告し、三種の蛍光体の比較から発光波長や温度特性の改善の方針を抽出している。新規青色蛍光体 (Sr,Eu)Si<sub>9</sub>Al<sub>19</sub>ON<sub>31</sub> は深紫外から近紫外までの幅広い励起帯を有し、青色発光を呈することから、近紫外 LED 励起の白色光源に特に好適であり、既存の青色蛍光体と同等以上の外部量子効率および温度特性を示すことを報告している。新規緑色蛍光体 (Sr,Eu)<sub>3</sub>Si<sub>13</sub>Al<sub>3</sub>O<sub>2</sub>N<sub>21</sub> は、青色 LED 励起白色光源に特に好適である上、既存の緑色蛍光体と同等以上の外部量子効率、温度特性を示し、一般照明用およびディスプレイ用いずれの白色 LED 用蛍光体としても優れていることを示している。新規赤色蛍光体 (Sr,Eu)<sub>2</sub>Si<sub>7</sub>Al<sub>3</sub>ON<sub>13</sub> は、青色領域を含む広範な励起帯を有し、既存の赤色蛍光体と同等の外部量子効率および温度特性を有することを示している。次いで、蛍光体の材料設計指針を得ることを目的として、これら三種の蛍光体の母体組成・結晶構造と発光特性を詳細に比較検討している。Eu イオンの局所環境の共有結合性を高めてサイトサイズを減少させることによって励起エネルギーを下げ励起帯幅を広くすることが可能であること、母体結晶全体の共有結合性・緻密性を高めてフォノン振動数を大きくすることによって温度消光を抑制して蛍光体としての温度特性を向上させられることを示している。後者の議論の過程では、温度消光の微視的議論に熱活性化クロス

オーバーの量子論モデルを初めて適用して成功を収めている。

第3章では、緑色蛍光体  $(\text{Sr},\text{Eu})_3\text{Si}_{13}\text{Al}_3\text{O}_2\text{N}_{21}$  の母体欠陥密度低減による効率向上、および赤色蛍光体  $(\text{Sr},\text{Eu})_2\text{Si}_7\text{Al}_3\text{ON}_{13}$  の母体組成制御による長波長域での特性改善に取り組んでいる。前者については、内部量子効率の低下要因となる母体吸収が窒素欠陥に電子が捕捉された色中心に起因することを明らかにするとともに、焼成時の低速冷却と還元雰囲気アニールによって窒素欠陥密度を低減できることを示している。従来、光励起蛍光体は電子線励起蛍光体と異なり、母体の結晶性がさほど重要でないと考えられてきたが、この研究結果はその常識を覆すものである。後者については、 $\text{N/O}$  比を高めることで励起帯および発光帯を長波長化させ、 $\text{Eu}$  高濃度化による長波長化と比較して外部量子効率および温度特性を顕著に改善している。これは、前章で述べた母体結晶の共有結合性増加に伴うフォノン振動数上昇を利用した温度特性改善の具体例の一つに他ならない。

第4章では、高性能白色LED用蛍光体としてのポテンシャルを確認するため、本研究で開発した緑色、および赤色蛍光体を用いて白色LEDを試作している。一般照明用白色LEDとしては、多様な相関色温度の高演色が実現でき、高パワー駆動においても効率低下および色ずれの少ない高効率白色LEDが作製できることを実証している。また、液晶ディスプレイバックライト用白色LEDを作製し、広範な色再現域および優れたパワー依存性が実現できることを示している。

第5章では、全体を総括した後に、白色LED技術および蛍光体技術に関する将来展望を述べている。

以上を要するに、本研究は、超高演色高効率白色LED用新規蛍光体を開発したばかりでなく、蛍光体の材料設計および特性向上指針に資する有益な知見を得たことに高い価値があり、マテリアル工学の観点からその意義は極めて大きい。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。