

Title	Studies on Properties and Applications of Sol-Gel Derived Composites Doped with Lanthanide Complexes
Author(s)	李, 慧惠
Citation	大阪大学, 2001, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/42292
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉 大阪大学の博士論文について 〈/a〉 をご参照ください。

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

氏名	李 慧 惠
博士の専攻分野の名称	博士(工学)
学位記番号	第 16189 号
学位授与年月日	平成13年3月23日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 工学研究科物質化学専攻
学位論文名	Studies on Properties and Applications of Sol-Gel Derived Composites Doped with Lanthanide Complexes (ゾルーゲル法により作製した希土類錯体含有複合体の特性と応用に関する研究)
論文審査委員	(主査) 教授 足立 吟也 (副査) 教授 甲斐 泰 教授 大島 巧 教授 野島 正朋 教授 小松 満男 教授 城田 靖彦 教授 平尾 俊一 教授 新原 皓一 教授 田川 精一 教授 町田 憲一

論文内容の要旨

本論文では、透明で、多量の希土類錯体を含有し、高い発光強度を示す複合体の合成並びにこれらの複合体を用いる素子の創製を目的とし、Organically Modified Silicate (ORMOSIL) 及び複合酸化物 $\text{SiO}_2\text{-M}_2\text{O}_3$ ($\text{M}=\text{Ta}, \text{Zr}$) をマトリックスとする希土類錯体含有複合体の合成、特性評価、およびその応用に関する研究であり、序論、本論4章、および総括から構成されている。

序論では、希土類錯体含有複合体のこれまでの作製と応用例を紹介するとともに、本研究の目的と意義、およびその背景について述べている。

第一章では、ゾルーゲル法により希土類錯体 ($[\text{Eu}(\text{phen})_2]\text{Cl}_3$ 及び $[\text{Tb}(\text{bpy})_2]\text{Cl}_3$) を様々な組成の ORMOSIL マトリックスに導入し、希土類錯体含有 ORMOSIL 複合体の合成について検討している。その結果、マトリックスの組成が $\text{TEOS}:\text{DEDPS}=7:3-3:7$ において、透明なバルクが得られることを明らかにしている。また、マトリックスの有機成分が増加するに伴い、錯体周囲の環境がより疎水的になり、錯体が無水物として存在する傾向が強くなることを明らかにすると共に、複合体における希土類錯体の導入モデルを提案している。

第二章では、Eu(III) β -ジケトン錯体を導入した ORMOSIL 複合体を作製し、その蛍光特性を検討している。条件を最適化することで透明で、強い発光を示すバルク複合体の作製に成功している。また、 β -ジケトン配位子の転位により複合体の蛍光特性が大きく影響を受け、ヘキサメチルジシラザンにより処理することで蛍光特性が改善できることを明らかにしている。

第三章では、 $[\text{Eu}(\text{phen})_2]\text{Cl}_3$ 及び $[\text{Tb}(\text{bpy})_2]\text{Cl}_3$ 錯体を新規な $\text{SiO}_2\text{-M}_2\text{O}_3$ ($\text{M}=\text{Zr}, \text{Ta}$) マトリックスに導入し、得られた複合体の特性を検討している。複合体の蛍光強度は $\text{Si}:\text{M}=9:1$ の組成で最大となること、及び金属アルコキシドの高い反応性により錯体の導入量を増やすことが可能となり、その結果、高い発光強度を示す蛍光体を得られることを明らかにしている。

第四章では、前章までに得られた ORMOSIL 及び $\text{SiO}_2\text{-M}_2\text{O}_3$ 複合体の薄膜を作製し、これらを用いた導波路型集光体 (LSC) の設計を検討している。そこで、ORMOSIL:Eu(phen) $_2^{3+}$ 薄膜を用いた LSC を利用することで単結晶シリコン太陽電池の出力を10-15%向上させることに成功し、LSC として有用であることを明らかにしている。

総括では、以上の研究結果を体系的に述べている。

論文審査の結果の要旨

本論文は、ゾルゲル法により高い発光強度を示す透明な複合体の合成と物性の解明、及びこれらの複合体薄膜を用いた素子の創製を目的としたものであり、主な結果を要約すると以下のとおりである。

- 1) ゾルゲル法により様々な ORMOSIL マトリックスに希土類錯体を導入し、TEOS : DEDPS = 7 : 3 - 3 : 7 において、高い発光強度を示す透明なバルクが得られることを明らかにしている。
- 2) 得られた複合体はマトリックスの有機成分が増加するに伴い、導入された錯体周囲の環境がより疎水的になり、錯体が無水物として存在する傾向が強くなることを明らかにしている。さらに、複合体における希土類錯体の導入モデルを提案している。
- 3) Eu (III) β -ジケトン錯体を導入した ORMOSIL 複合体の作製及びその蛍光特性を検討し、最適化した条件で強い発光をしめす透明なバルク複合体の作製が可能であることを明らかにしている。
- 4) β -ジケトン配位子の転位により Eu (III) β -ジケトン錯体含有 ORMOSIL 複合体の蛍光特性が大きな影響を受け、ヘキサメチルジシラザンにより処理することで蛍光特性が改善できることを見いだしている。
- 5) [Eu (phen)₂] Cl₃ / [Tb (bpy)₂] Cl₃ 錯体を新規な SiO₂-M_xO_y (M=Zr, Ta) マトリックスに導入し、得られた複合体の特性を検討し、複合体の蛍光強度が Si : M = 9 : 1 の組成で最大になることを明らかにした。これは O-H と格子振動、マトリックスの UV 吸収、錯体間のエネルギー移動などによる総合的な影響の結果であることを解明している。
- 6) 金属アルコキシドの高い反応性により、SiO₂-M_xO_y (M=Zr, Ta) マトリックスにおいて錯体の導入量を増やすことが可能となり、高い発光強度を有する透明な蛍光体得られることを明らかにしている。
- 7) ディップコーティング法により、透明で、優れた物性を有する [Eu (phen)₂] Cl₃ 含有 ORMOSIL 及び SiO₂-M_xO_y 複合体薄膜の作製に成功している。
- 8) 得られた複合体の薄膜を用いて導波路型集光体 (LSC) を設計し、単結晶シリコン太陽電池の出力を向上させることが可能であることを明らかにしている。特に、ORMOSIL : Eu (phen)₂³⁺ 薄膜を用いた LSC を利用することで出力の向上が 10-15% にも達成している。これらの複合体薄膜は LSC として有用であることを明らかにしている。

以上のように、本論文は、透明で、高い発光強度を示す蛍光複合体の合成と物性の解明、及びこれらの複合体薄膜を用いた導波路型集光体の創製に成功している。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。