

令和 5 年 5 月 11 日現在

機関番号：22604

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2022

課題番号：19H02802

研究課題名(和文) 光活性中心が高濃度凝集した高効率発光性シリカガラスの開発

研究課題名(英文) Development of high-efficiency photoluminescent silica glasses of dense aggregates of photoactive centers

研究代表者

梶原 浩一 (Kajihara, Koichi)

東京都立大学・都市環境科学研究科・教授

研究者番号：90293927

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,900,000円

研究成果の概要(和文)：一般に、希土類イオンなどの光活性中心は凝集すると発光効率が低下する。この現象は「濃度消光」として知られており、多くの固体発光材料で光活性中心の高濃度化を阻んできた。他方、もし消光中心が存在しなければ、光活性中心が高濃度凝集しても消光を抑制できる可能性がある。この構想に基づき、希土類イオンの高濃度凝集体を含むシリカガラスで、エネルギー移動を利用し、高効率な発光材料の開発を目指した。直径~5-10nmの希土類オルトリン酸塩ナノ結晶を含むシリカ-REPO4透明結晶化ガラスで、発光の内部量子効率がほぼ1で、濃度消光を示さず、自由なエネルギー移動と高効率発光が共存した可視・紫外発光材料の開発に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

「濃度消光」という表現は学術用語として広く使われており、光活性中心が凝集すると必ず発光効率が下がるような印象を与えている。これに対し、本研究では、「濃度」と「消光」は必然関係ではなく、消光中心をなくすることで濃度消光を回避できる場合があることを実証した。シリカガラスは優れた透明性、強い光・放射線・化学腐食に対する耐久性、光ファイバーなどへの自由な成形性を兼ね備えたガラスであることから、本研究で得られた知見は特に過酷環境下やエネルギー変換で使用できる堅牢な高効率透明発光材料の開発に有用であると期待される。

研究成果の概要(英文)：The aggregation of photoactive centers like rare-earth ions usually leads to a decrease in emission efficiency. This phenomenon is commonly known as "concentration quenching," and prevents to increase the concentration of photoactive centers in many solid-state phosphors. On the other hand, if quenching centers are absent, emission quenching may not occur even in the dense aggregates of photoactive centers. Based on this idea, silica glasses containing dense aggregates of rare-earth ions were employed in developing high-efficiency phosphors that utilize energy transfer. Silica-REPO4 transparent glass-ceramics that contain nanocrystals of rare-earth orthophosphates with diameters of ~5-10 nm provided unique opportunities to realize concentration-quenching-free visible or ultraviolet phosphors with internal quantum efficiencies close to unity, in which free energy migration and high efficiency emission coexist.

研究分野：無機材料科学

キーワード：シリカガラス 光活性中心凝集体 希土類イオン エネルギー移動 ナノ結晶

1. 研究開始当初の背景

固体発光材料の高効率化には、強い光吸収と励起状態の安定生成、発光中心への効率的なエネルギー伝達、発光中心での高効率光変換、が必要である。気体や液体と異なり、原子の固定された固体発光材料の高効率化には、エネルギー伝達効率の向上が必須である。

欠陥・不純物・表面準位などの消光中心は、エネルギー伝達を阻害する主因であり、発光せずに励起エネルギーを捕獲して発光効率の低下を招く。しかし、膨大な数の原子を含む固体から消光中心をなくすことは難しいため、従来は、消光中心にエネルギーを伝えないことが重視されていた。実用蛍光体やレーザー結晶などでは、いずれも、消光中心へのエネルギー移動経路を不活性原子やホスト原子で遮断する戦略がとられている。

このような系で、不活性原子を減らして光活性中心濃度を高めると発光効率が下がる。この現象は「濃度消光」とよばれるが、実際は、光活性中心同士が接近し、消光中心に至るエネルギー移動経路が形成された事例が多い。ゆえに、「濃度」と「消光」は必然の関係にはなく、消光中心がなければ、光活性中心が高濃度凝集しても消光が起きない可能性がある。このような問題提起は、筆者が知る限り、研究開始当初には明確になされていなかった。

2. 研究の目的

本研究では、光活性中心の高濃度ナノ凝集体を含むシリカガラスを用い、凝集体から消光中心を除くことで高効率発光材料を開発することを目的とした。光活性中心には主に希土類イオンを用いた。あわせて、試料の合成に用いたゾル-ゲル法に関する基礎研究を進めた。

3. 研究の方法

上記の目的を実現する手段として、主に、筆者らが開発した粒径 5-10nm の希土類オルトリン酸塩(REPO₄)ナノ結晶を含むシリカ-REPO₄透明結晶化ガラス[RSC Adv. 4, 26692 (2014), J. Mater. Chem. C3, 9894 (2015)]を用いた。このガラスは、ガラスの透明領域全域でレイリー散乱がほぼ無視できるほど小さく、従来の結晶化ガラスに比べ格段に透明性が高い。REPO₄結晶の例として、シリカ-TbPO₄透明結晶化ガラスに析出する単斜晶 TbPO₄結晶の構造を図 1 に示す。シリカ-REPO₄透明結晶化ガラスでは、RE = La-Tb のとき同様の単斜晶が単相で析出する。Tb³⁺イオンの配位環境は 1 種類であり、その配位多面体である TbO₉ ユニットは 6 個の隣接する TbPO₉ ユニットと稜共有している。Tb-Tb イオン間距離は~0.4 nm で臨界エネルギー移動距離(~0.5-0.6 nm) よりも小さいため、Tb³⁺イオン間では自由にエネルギー移動が起こる。

シリカ-REPO₄透明結晶化ガラスでの高い REPO₄結晶性、RE イオンの高濃度凝集(平均距離~0.4 nm)による RE イオン間での高速なエネルギー移動、99.99%(4N)クラスの汎用試薬でナノ結晶(RE イオン数 10³-10⁴ 個)中の金属不純物がほぼ除去可能、ホストであるシリカガラスが表面欠陥の不活性化に有効、という特徴は、高効率発光材料の実現に適していると予想された。

ガラスの合成には、筆者らの開発した無共溶媒ゾル-ゲル法[Chem. Commun. 2580 (2009); Bull. Chem. Soc. Jpn. 82, 1470 (2009); Chem. Lett. 39, 712 (2010)]を用いた。ケイ素源であるケイ素アルコキシドと水を主成分とし、アルコール等の共溶媒を用いず、従来の方法より短時間で乾燥や焼成の容易な多孔質ゲルが得られるため、試料の作製に適している。

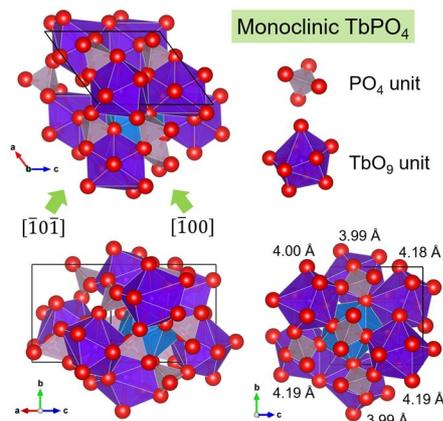
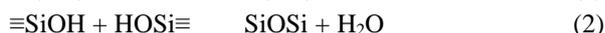


図 1 単斜晶 TbPO₄ の結晶構造の模式図。VESTA [K. Momma, F. Izumi, J. Appl. Crystallogr., 44, 1272 (2011)]を用いて描いた。

4. 研究成果

(1) 無共溶媒ゾル-ゲル法の反応評価およびシリカガラス合成法の改善、収率評価

無共溶媒法では、共溶媒であるアルコールを使用しない代わりに、ケイ素アルコキシドと水との混合を 2 回に分けて合成を行う。最初に、ケイ素アルコキシドを酸性条件下で部分加水分解する。この際の加水分解と重縮合反応は、それぞれ、以下の式(1)と(2)で表される。



式(1)と(2)を包含する全反応式は知られていなかったが、無共溶媒ゾル-ゲル反応を評価するため、本研究で、ケイ素アルコキシドの加水分解・重縮合の全反応の一般式を以下のように提案した。



式(3)は、生成したシリカオリゴマーの平均組成が単一の化学式で表せるとの仮定のもとで導出

されている。式(3)と液体 NMR を用い、部分加水分解時のテトラメトキシシラン(TMOS)およびテトラエトキシシラン(TEOS)の反応を調べた。反応後の平均架橋酸素数 $\langle m \rangle$ 、Si あたりの平均残留 SiOH 基数 $\langle n_{OH} \rangle$ 、残留アルコキシ基分率および残留 H₂O 分率 z (右軸)の水/アルコキシ比 x 依存性を図2に示す。反応後、H₂O は溶液中にほとんど残留していないこと($z \approx 0$)、TMOS から得られたシリカオリゴマーには SiOH 基がほとんど残留していないのに対し、TEOS から得られたシリカオリゴマーには不活性な(重縮合しにくい)SiOH 基が比較的多く残留していることが分かった。TEOS から得られたシリカオリゴマーは、SiOH 基の存在のため親水性基板上で良好な成膜性を示す一方で、SiOH 基同士の重縮合が遅いため、溶液を室温で1ヶ月間保存後も粘度がほとんど変わらないことが示された。また、無共溶媒ゾルゲル法では多孔質シリカゲルを $x \approx 1.8$ で作製するが、このときの残留エトキシ基分率が~20%であることが分かった。

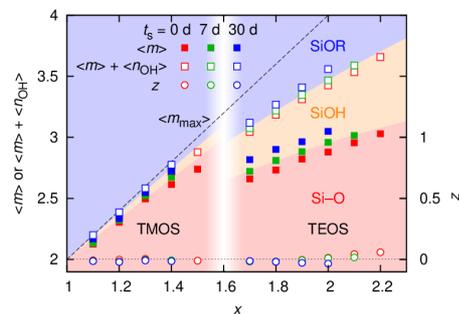


図2 平均架橋酸素数 $\langle m \rangle$ 、 $\langle m \rangle$ とSiあたりの平均 SiOH 基数の和 $\langle m \rangle + \langle n_{OH} \rangle$ 、および残留 H₂O 分率 z の水/アルコキシ比 x 依存性。

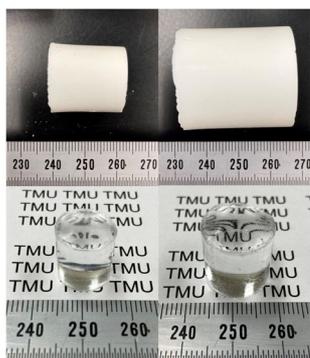


図3 (左)50 mmol (10.4 g)、(右)100 mmol (20.8 g)の TEOS から得られた多孔質シリカゲルとこれらを焼成して得られたシリカガラスの写真。

酸性条件下で TEOS を部分加水分解した溶液にイミダゾール($pK_a = 7.0$)などの中性付近の pK_a をもつ塩基の水溶液を加え、加水分解を抑制しつつ重縮合を進めた。これにより、ゲル化と並行して残留エトキシ基で修飾された疎水性シリカオリゴマーと水とエタノールからなる親水的な溶媒相とのマクロ相分離が誘起され、多孔質シリカゲルが得られる。50 および 100 mmol の TEOS から得られた多孔質乾燥シリカゲルとこれらを焼成して得たシリカガラスの写真を図3に示す。前者の乾燥時間は60°Cで30時間であり、乾燥時間を従来(2日間)のほぼ半分まで短縮できた。得られたシリカガラスの組成が SiO₂ であるとして求めたシリカガラスの収率はともに99%以上であり、本手法がほぼ定量的であることが示された。

(2) シリカ-(Tb,Ce)PO₄透明結晶化ガラスによる高效率緑色発光

Tb³⁺イオンは⁵D₄ → ⁷F_{*j*} (*j* = 0-6)遷移による明るい緑色発光を示し、Ce³⁺イオンはこの発光の増感剤として利用できる。以前の研究でシリカ-(Tb,Ce)PO₄透明結晶化ガラスを作製したが、その際の緑色発光の内部量子効率(IQE)は~0.76であり、蛍光灯用の実用緑色蛍光体である(La,Tb,Ce)PO₄粉末の発光効率に及ばなかった[RSC Adv. 4, 26692 (2014)]。

1より小さいIQEは消光中心の存在を示唆する。Ce⁴⁺イオンは、紫外域に光吸収を示すが発光しないため、消光中心の候補となる。これらはゲルの合成・乾燥時にCe³⁺イオンが酸化されて生じる可能性がある。また、以前のシリカ-(Tb,Ce)PO₄透明結晶化ガラスはP/RE比(z_P/z_{RE}) = 1で作製されていたが、REPO₄ナノ結晶は比表面積が大きいので、この条件では表面にPO₄³⁻イオンの配位不飽和なREイオンが存在しており、これらも消光中心となる可能性がある。

Ce⁴⁺イオンを除く目的で、気泡の残留を避けるため焼成雰囲気を用いているHeに加えて少量のH₂をフローして還元焼成を行った。また、PO₄³⁻イオンの配位不飽和なREイオンを除くため、 z_P/z_{RE} を増大させて合成を行った。得られたガラスの写真と光吸収スペクトルを図4に示す。 z_P/z_{RE} を増大させるとCe³⁺イオンの5d_{*n*} (*n* = 1-3) ← 4f遷移による吸収帯が鋭くなった。この結果は、 z_P/z_{RE} の増大とともにPO₄³⁻イオンの配位不飽和なREイオンが減少し、REイオンの配位環境がREPO₄結晶での正規REサイトの環境に揃ったことを示唆する。Ce⁴⁺イオンによる紫外光吸収はHe-H₂還元焼成によって減少したが、この光吸収はP不足の $z_P/z_{RE} = 0.5$ で作製したガラスで最も顕著であった。

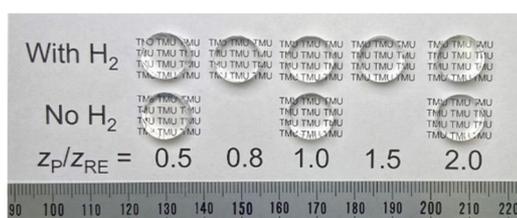
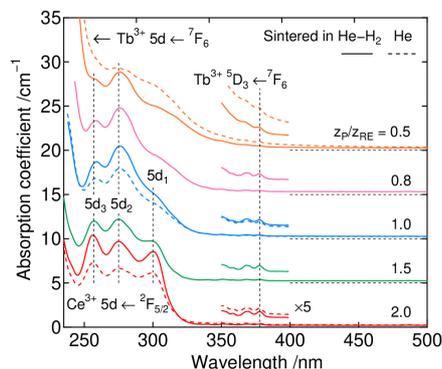


図4 Ce 分率(z_{Ce}/z_{RE}) = 0.02 で作製したシリカ-(Tb,Ce)PO₄透明結晶化ガラスの写真(左)と光吸収スペクトル(右)。



発光の IQE、外部量子効率(EQE)の z_P/z_{RE} と焼成雰囲気依存性、および $z_P/z_{RE} = 2$ で作製し、He-H₂還元焼成したガラスの発光スペクトルを図5に示す。IQEは z_P/z_{RE} の増大および He-H₂還元焼成によって増大した。 $z_P/z_{RE} = 2$ で作製し、He-H₂還元焼成したガラスはIQEがほぼ1の無濃度消光発光を示し、そのIQE(~0.99)とEQE(~0.95)は、ともに市販の(La,Tb,Ce)PO₄ 緑色蛍光体粉末の値(IQE ≈ 0.96, EQE ≈ 0.86)を上回った。また、このガラスではCe³⁺イオンによる紫外-青色発光は観察されず、Tb³⁺イオンへの完全エネルギー移動が実現された。これらのガラスはSiOH基を多量(10²⁰ cm⁻³以上)含んでいるにもかかわらず、SiOH基による消光が無視できるのは、発光のエネルギーがO-H伸縮振動のエネルギー(~3700 cm⁻¹)より十分大きいためであると考えられる。Tb³⁺イオンからの発光は、いずれの試料でも単指数型の発光減衰を示した。単指数型の発光減衰は励起状態の環境が分布をもたないことを意味しており、(Tb,Ce)PO₄ ナノ結晶内での高速なエネルギー移動によって励起状態の環境が均一化されていることを支持する。

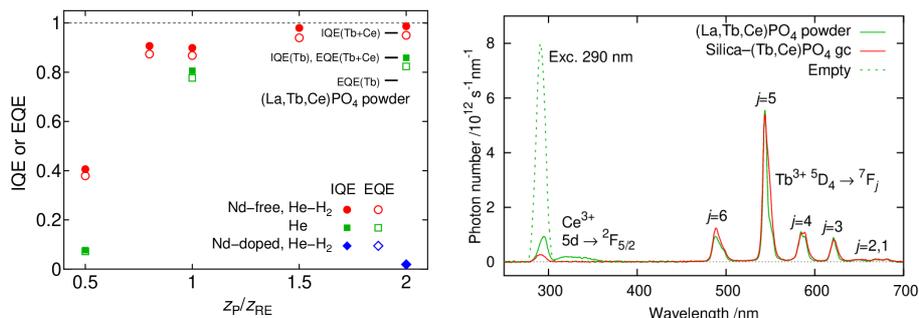


図5(左)シリカ-(Tb,Ce)PO₄透明結晶化ガラス、シリカ-(Tb,Ce,Nd)PO₄透明結晶化ガラス、および(La,Tb,Ce)PO₄ 緑色蛍光体粉末の発光の内部量子効率(IQE)および外部量子効率(EQE)、(右) $z_P/z_{RE} = 2$ で作製し、He-H₂還元焼成したシリカ-(Tb,Ce)PO₄透明結晶化ガラス、および(La,Tb,Ce)PO₄ 緑色蛍光体粉末の発光スペクトル。

励起状態が自由にエネルギー移動できる系に消光中心が微量でも存在すれば、発光は著しく消光されることが予想される。図5に示したシリカ-(Tb,Ce)PO₄透明結晶化ガラス、およびTb³⁺イオンの発光を効果的に消光するが、Ce³⁺イオンの発光の消光能は強くないNd³⁺イオンを全REイオンに対し1at%の割合で添加したシリカ-(Tb,Ce,Nd)PO₄透明結晶化ガラスを発光波長290nmの深紫外LEDで励起した写真を図6に示す。Nd³⁺イオンの微量添加によってIQEが~0.99から~0.02に激減したことから、(Tb,Ce)PO₄ナノ結晶中での励起状態の自由な回遊が実証された。

図6には、Pのかわりに等物質量のAlを加えた(Tb,Ce)-Al共ドープシリカガラスおよび(Tb,Ce,Nd)-Al共ドープシリカガラスの写真もあわせて示した。AlはPと異なり、REイオンを凝集させずに分散させてシリカガラスに溶解させることが知られている。ただし、今回のガラスのAl/RE比は2であるため、REイオンは完全には分散せず、一部凝集していることがTEM-EDS観察によって確認されている。(Tb,Ce)-Al共ドープシリカガラスの発光のIQEは、シリカ-(Tb,Ce)PO₄透明結晶化ガラスより低い~0.55(Tb+Ce)および~0.39(Tbのみ)であった。また、Ce³⁺イオンによる紫外-青色発光が観察された。他方、(Tb,Ce,Nd)-Al共ドープシリカガラスの発光のIQEは~0.41(Tb+Ce)および~0.24(Tbのみ)であり、Nd³⁺イオンの添加による消光は限定的であった。さらに、(Tb,Ce)-Al共ドープシリカガラスおよび(Tb,Ce,Nd)-Al共ドープシリカガラスの発光減衰は単指数型ではなく緩和時定数に分布がみられた。以上の結果はすべて、(Tb,Ce)-Al共ドープシリカガラスでは、シリカ-(Tb,Ce)PO₄透明結晶化ガラスとは異なり、REイオン間でのエネルギー移動が抑制されていることを示している。また、両ガラスの対照性は、REイオンが消光中心を含まずに高濃度凝集しているシリカ-REPO₄透明結晶化ガラスの発光挙動の特異性を裏付けている。

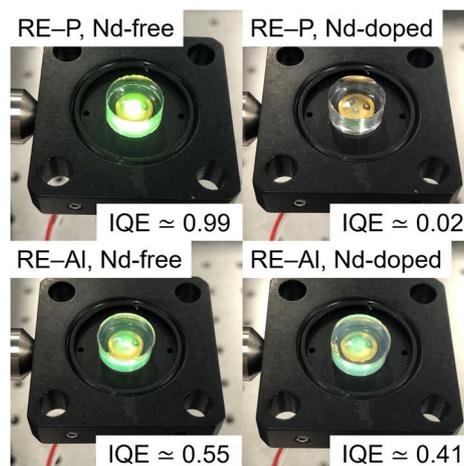


図6 波長290nmの紫外LEDで励起したシリカ-(Tb,Ce)PO₄透明結晶化ガラス(左上)、シリカ-(Tb,Ce,Nd)PO₄透明結晶化ガラス(右上)、(Tb,Ce)-Al共ドープシリカガラス(左下)、(Tb,Ce,Nd)-Al共ドープシリカガラス(右下)の写真。

(3) シリカ-(Gd,Pr)PO₄透明結晶化ガラスの狭帯域UVB発光の温度特性

研究開始前年に、Pr分率(z_{Pr}/z_{RE}) ≤ 0.1、 $z_P/z_{RE} = 1$ で作製したシリカ-(Gd,Pr)PO₄透明結晶化ガラスは、波長220nmでPr³⁺イオンを光励起することでGd³⁺イオンからの波長~313nmの狭帯域UVB発光のIQEがほぼ1の無濃度消光発光を示すことが判明していた[Dalton Trans. 47, 12085

(2018)]. このガラスの励起光源は現在のところエキシマランプが最適であるが、エキシマランプ照射は発熱を伴うため、温度上昇による発光効率低下の恐れがある。

温度上昇が発光強度に影響を調べるため、シリカ-(Gd,Pr)PO₄ 透明結晶化ガラスの発光強度の温度依存性を調べた結果を図 7 に示す。図 7 には最近報告された(La,Gd,Pr)PO₄ 蛍光体粉末の文献値もあわせて示した。発光強度は 300K 以下ではほぼ一定であり、400K、500K での発光強度は 300K での値のそれぞれ~86%、~62%であった。他方、文献で報告されている(La,Gd,Pr)PO₄ 蛍光体粉末の発光強度は 100K 以上で単調に減少し、減少率もシリカ-(Gd,Pr)PO₄ 透明結晶化ガラスより大きかった。シリカ-(Gd,Pr)PO₄ 透明結晶化ガラスは消光中心をほとんど含まないため、良好な温度特性を示したことが示唆される。

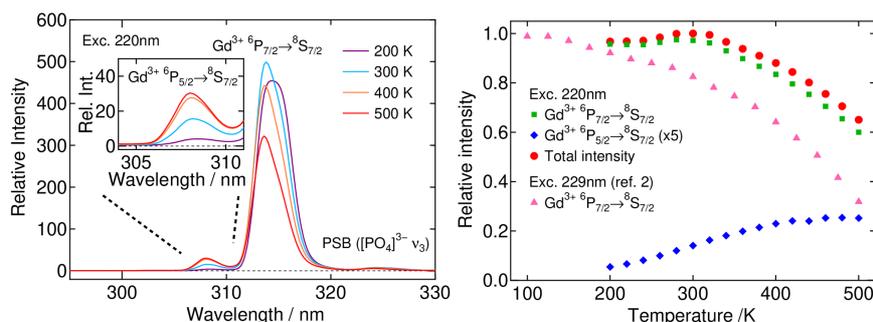


図 7 波長 220 nm で励起したシリカ-(Gd,Pr)PO₄ 透明結晶化ガラスの Gd³⁺イオンの発光スペクトル(左)および発光強度(右)の温度依存性。右図には(La,Gd,Pr)PO₄ 蛍光体粉末の文献値[J. Kappelhoff et al., *J. Lumin.* **240**, 118418 (2021)]もあわせて示した。

(4) シリカ-(La,Ce)PO₄ 透明結晶化ガラスの高効率紫外発光

LaPO₄ ナノ結晶中に Ce³⁺イオンを少量添加したシリカ-(La,Ce)PO₄ 透明結晶化ガラスを関連材料として合成した。Ce³⁺イオンによる紫外発光の IQE は z_p/z_{RE} の増大および He-H₂ 還元焼成によって増大し、 $z_p/z_{RE} = 2$ で合成し、He-H₂ 還元焼成したガラスで IQE をほぼ 1 まで向上させることに成功した。Ce³⁺イオンが発光中心であるガラスでの IQE ≈ 1 の高効率発光は例が少なく、今後の応用が期待される。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 5件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 2件）

| | |
|---|---------------------------------|
| 1. 著者名 Kajihara Koichi、Kanamori Kazuyoshi、Shimajima Atsushi | 4. 巻 130 |
| 2. 論文標題 Current status of sol-gel processing of glasses, ceramics, and organic-inorganic hybrids: a brief review | 5. 発行年 2022年 |
| 3. 雑誌名 Journal of the Ceramic Society of Japan | 6. 最初と最後の頁 575-583 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.2109/jcersj2.22078 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である） | 国際共著 - |
| 1. 著者名 Kajihara Koichi、Goto Mioko | 4. 巻 104 |
| 2. 論文標題 Cosolvent-free synthesis of macroporous silica gels and monolithic silica glasses from tetraalkoxysilane-water binary systems: comparison between tetramethoxysilane and tetraethoxysilane | 5. 発行年 2022年 |
| 3. 雑誌名 Journal of Sol-Gel Science and Technology | 6. 最初と最後の頁 497-502 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s10971-022-05799-9 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |
| 1. 著者名 梶原浩一 | 4. 巻 37 |
| 2. 論文標題 ゾル-ゲル法によるシリカ-REPO4透明結晶化ガラスの無濃度消光緑色・紫外発光 | 5. 発行年 2023年 |
| 3. 雑誌名 NEW GLASS | 6. 最初と最後の頁 N/A |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし | 査読の有無 無 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |
| 1. 著者名 Kajihara Koichi、Nakagawa Shingo、Iwasaki Rena | 4. 巻 219 |
| 2. 論文標題 Energy Transfer and Quenching in Sol-Gel Derived Silica Glass Green Phosphors Doped with Tb ³⁺ and Ce ³⁺ Ions: Distinct Difference between P and Al Codoped Glasses | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 physica status solidi (a) | 6. 最初と最後の頁 2100494 ~ 2100494 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1002/pssa.202100494 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

| | |
|---|-------------------------|
| 1. 著者名 KAJIHARA Koichi、HIRUTA Keiichi、KANAMURA Kiyoshi | 4. 巻 128 |
| 2. 論文標題 Cosolvent-free sol-gel dip-coating of silica films from tetraalkoxysilane/water binary systems: precursor solutions of long pot life and their characterization by nuclear magnetic resonance spectroscopy | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 Journal of the Ceramic Society of Japan | 6. 最初と最後の頁 772 ~ 782 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2109/jcersj2.20150 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である) | 国際共著 - |

| | |
|---|---------------------------|
| 1. 著者名 Iwasaki Rena、Kajihara Koichi | 4. 巻 9 |
| 2. 論文標題 Negligible concentration quenching in photoluminescent nanocrystals with high photoactive rare-earth concentrations: silica/(Tb,Ce)PO ₄ transparent glass-ceramic green phosphors | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Journal of Materials Chemistry C | 6. 最初と最後の頁 2701 ~ 2705 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d0tc06043g | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

〔学会発表〕 計21件 (うち招待講演 6件 / うち国際学会 6件)

| |
|--|
| 1. 発表者名 梶原 浩一 |
| 2. 発表標題 ゾル-ゲル法を用いた機能性ガラス合成 |
| 3. 学会等名 日本ゾル-ゲル学会第19回セミナー(オンライン) (招待講演) |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 梶原 浩一 |
| 2. 発表標題 シリカ-希土類リン酸塩透明結晶化ガラスの無濃度消光緑色・紫外発光 |
| 3. 学会等名 2022年度東京工業大学フロンティア材料研究所 先端無機材料共同研究拠点成果報告会(オンライン) (招待講演) |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 梶原 浩一、後藤 美桜子 |
| 2. 発表標題 四官能ケイ素アルコキシド-水二成分系からのマクロ多孔質シリカゲルとシリカガラスの無共溶媒合成 |
| 3. 学会等名 第83回応用物理学会秋季学術講演会(東北大学川内北キャンパス+オンライン) |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 中川 慎牙, 石島 政直, 梶原 浩一 |
| 2. 発表標題 シリカ - (Gd,Pr)P04 透明結晶化ガラスの狭帯域 UVB 発光の温度依存性 |
| 3. 学会等名 第83回応用物理学会秋季学術講演会(東北大学川内北キャンパス+オンライン) |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 梶原 浩一 |
| 2. 発表標題 シリカ-希土類リン酸塩透明結晶化ガラスの液相合成と無濃度消光緑色・紫外発光 |
| 3. 学会等名 日本材料学会ナノ材料部門委員会 2022年度第2回研究会(京都大学桂キャンパス)(招待講演) |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 梶原 浩一 |
| 2. 発表標題 ゾル-ゲル法によるガラス合成 |
| 3. 学会等名 日本セラミックス協会2023年年会基礎セミナー(神奈川大学みなとみらいキャンパス+オンライン)(招待講演) |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 是枝 洸佳、石島 政直、梶原 浩一 |
| 2. 発表標題 TMOS-TEOS 混合溶液からの多孔質シリカゲルの無共溶媒ゾル-ゲル合成 |
| 3. 学会等名 日本セラミックス協会2023年年会(神奈川大学みなとみらいキャンパス+オンライン) |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 高須 圭祐、石島 政直、梶原 浩一 |
| 2. 発表標題 無共溶媒ゾル-ゲル法によるシリカ-(M,Ce)P04(M = La, Y, Lu)透明結晶化ガラスの合成と発光特性 |
| 3. 学会等名 日本セラミックス協会2023年年会(神奈川大学みなとみらいキャンパス+オンライン) |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 Koichi Kajihara, Shingo Nakagawa, Masanao Ishijima |
| 2. 発表標題 Temperature dependence of narrow-band UVB photoluminescence of silica-(Gd,Pr)P04 transparent glass-ceramics |
| 3. 学会等名 The 14th international conference on SiO ₂ , advanced dielectrics and related devices (SiO ₂ 2023, Palermo, Italy) (国際学会) |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 K. Kajihara, R. Iwasaki |
| 2. 発表標題 Negligible concentration quenching in sol-gel-derived silica-(Tb,Ce)P04 transparent glass-ceramic green phosphors |
| 3. 学会等名 13th International Symposium on SiO ₂ , Advanced Dielectrics and Related Devices (Online/Lille, France) (国際学会) |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 中川慎冨、岩崎 玲奈、梶原浩一 |
| 2. 発表標題 Tb,Ceドープシリカガラスの発光とエネルギー移動に共添加元素が及ぼす影響: PとAlの相違 |
| 3. 学会等名 日本セラミックス協会 第34回秋季シンポジウム(オンライン・山梨大学) |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 梶原 浩一、岩崎 玲奈 |
| 2. 発表標題 シリカ-(Tb,Ce)P04透明結晶化ガラスにおける無濃度消光緑色発光と高効率エネルギー移動 |
| 3. 学会等名 第62回ガラスおよびフォトニクス材料討論会(オンライン) |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 梶原浩一 |
| 2. 発表標題 シリカ系材料の無共溶媒ゾル-ゲル合成 |
| 3. 学会等名 高分子学会 第40回無機高分子研究討論会(オンライン)(招待講演) |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 K. Kajihara, K. Hiruta, K. Kanamura |
| 2. 発表標題 Acid-catalyzed tetraalkoxysilane-water binary solutions: liquid-state NMR characterization and silica thin film processing |
| 3. 学会等名 14th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology (PACRIM 14) (Online/Vancouver, Canada)(招待講演)(国際学会) |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 眞田理子、梶原浩一 |
| 2. 発表標題 ゾル-ゲル法によるシリカ - EuP04透明結晶化ガラスの赤色発光 |
| 3. 学会等名 日本セラミックス協会2022年年会(オンライン・東京理科大学葛飾キャンパス) |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 岩崎玲奈、梶原浩一 |
| 2. 発表標題 シリカ-(Tb,Ce)P04透明結晶化ガラスにおける無濃度消光緑色発光 |
| 3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 梶原浩一、蛭田圭一、金村聖志 |
| 2. 発表標題 無共溶媒ゾル-ゲル法による長可使時間シリカ成膜溶液の液体NMR による評価 |
| 3. 学会等名 日本セラミックス協会2021年年会 |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 後藤美桜子、梶原浩一 |
| 2. 発表標題 エステル交換によるゾル-ゲル法合成したシリカガラスのSiOH基濃度低減 |
| 3. 学会等名 日本セラミックス協会2021年年会 |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 K. Kajihara, M. Suda, R. Nakagawa, K. Kajihara |
| 2. 発表標題 Highly-transparent efficient sol-gel-derived silica-(Gd,Pr)P04 glass-ceramic narrow-band UVB phosphors |
| 3. 学会等名 The 8th International Workshop on Photoluminescence in Rare Earths: Photonic Materials and Devices (PRE19), Nice, France (国際学会) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 R. Iwasaki, K. Kajihara |
| 2. 発表標題 Photoluminescence of sol-gel-derived transparent silica-(Tb,Ce)P04 glass- ceramics |
| 3. 学会等名 The 13th Pacific Rim Conference of Ceramic Societies (PACRIM13), Okinawa, Japan (国際学会) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 R. Nakagawa, K. Kajihara |
| 2. 発表標題 Photoluminescence of sol-gel-derived transparent silica-(Gd,Pr)P04 glass-ceramics under excitation with a KrCl excimer lamp |
| 3. 学会等名 The 13th Pacific Rim Conference of Ceramic Societies (PACRIM13), Okinawa, Japan (国際学会) |
| 4. 発表年 2019年 |

〔図書〕 計1件

| | |
|---------------------------------|-----------------|
| 1. 著者名 梶原浩一 | 4. 発行年 2023年 |
| 2. 出版社 シーエムシー出版 | 5. 総ページ数 - |
| 3. 書名 ゾル-ゲル法技術の最新動向, 中西和樹(編) | |

〔産業財産権〕

〔その他〕

梶原研究室ホームページ
<https://www.comp.tmu.ac.jp/kajiharalab/>

6. 研究組織

| | 氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号) | 所属研究機関・部局・職 (機関番号) | 備考 |
|--|---------------------------|-----------------------|----|
|--|---------------------------|-----------------------|----|

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 |
|---------|---------|
|---------|---------|