

第一原理計算を用いた Ce^{3+} および Eu^{2+} を添加した窒化物蛍光体のスペクトル解析

First-principles Calculations of Absorption Spectra for Nitride Phosphors Doped with Ce^{3+} and Eu^{2+} .

関西学院大理工¹, °田村光¹, 渡邊真太¹, 小笠原一禎¹

Kwansei Gakuin Univ.¹, °Hikaru Tamura¹, Shinta Watanabe¹, Kazuyoshi Ogasawara¹

E-mail: bnb84918@kwansei.ac.jp

[緒言]

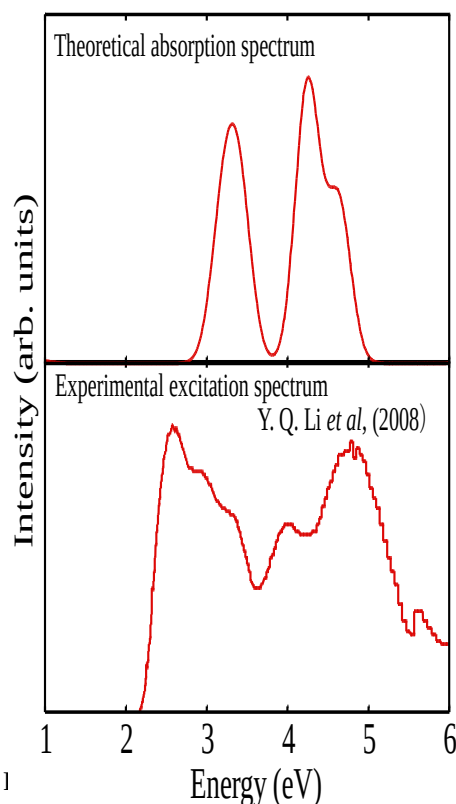
白色 LED はその効率のよさと寿命の長さなどの理由からイルミネーションや照明などの発光材料として注目され実用化されている。近年では希土類を添加した窒化物蛍光体が白色 LED の材料として注目されている。希土類イオンを微量添加した窒化物蛍光体は、近紫外の光を効率よく吸収し、それらの吸収に対して効率のよい発光バンドを持つといった理由から白色 LED の発光材料として注目されている。本研究では窒化物蛍光体ホスト結晶に希土類イオン(Ce^{3+} , Eu^{2+})を添加した蛍光体について第一原理計算である相対論 DV-X α 法及び相対論 DVME 法を用いて解析を行った。

[計算手法および結果]

α, β -SiAlON 及び CaAlSiN_3 等をホスト結晶とする窒化物蛍光体について、結晶構造データより中心希土類イオンと第一近接アニオンからなるモデルクラスターを構築した。理論吸収スペクトルの計算には相対論 DV-X α 法及び相対論 DVME 法を用いた。計算の際に、モデルクラスターの周囲に点電荷を配置することで有効マデリングポテンシャルを考慮した。また、CASTEP を用いてそれぞれの構造についての安定性及び全エネルギー計算も行った。 CaAlSiN_3 中の Ce^{3+} における理論吸収スペクトルと実験スペクトル[1]を図 1 に示す。実験スペクトルでは Ce^{3+} の 4f-5d 遷移に対応する 5 本のピークが観測されている。しかし、計算した理論吸収スペクトルでは 3 本のピークのみが現れた。

CaAlSiN_3 では Al と Si が等価なサイトを 50% ずつ占有するため、平均的な結晶構造データしか得られない。この構造に基づくモデルによる計算であることから、 Ce^{3+} 近傍の局所構造が再現されていないためであると考えられる。そこで Al 及び Si を区別した構造モデルを構築し、吸収スペクトルと構造の関係性を調べたところ実験結果をより再現する結果が得られた。

[1] Y. Q. Li, *Chem. Mater.* **20** (2008) 6704.



$\text{CaAlSiN}_3:\text{Ce}^{3+}$ compared to the experimental excitation spectra observed by Y.Q.Li.