

Pr<sup>3+</sup>を添加した LaScO<sub>3</sub>における光学特性および Pr<sup>3+</sup>置換サイトの解析Analysis of Optical Properties and Substitution site for Pr<sup>3+</sup>-doped LaScO<sub>3</sub>関西学院大理工<sup>1</sup>, 名大工<sup>2</sup> ○渡邊 真太<sup>1</sup>, 小笠原 一禎<sup>1</sup>, 吉野 正人<sup>2</sup>,山田 智明<sup>2</sup>, 長崎 正雅<sup>2</sup>Kwansei Gakuin Univ.<sup>1</sup>, Nagoya Univ.<sup>2</sup> °Shinta Watanabe<sup>1</sup>, Kazuyoshi Ogasawara<sup>1</sup>,Masahito Yoshino<sup>2</sup>, Tomoaki Yamada<sup>2</sup>, Takanori Nagasaki<sup>2</sup>

E-mail: watanabeshinta@kwansei.ac.jp

結晶中に微量添加した希土類イオンの  $4f^n-4f^{n-1}5d^1$  遷移は、固体レーザーや蛍光体材料への応用の観点から注目されている。これらの遷移に起因する光物性は、希土類ドーパント近傍の局所構造に依存し、多体効果と相対論効果の共存という複雑な問題を有している。より精緻な光物性解析のためには、これらの問題を克服する必要がある。

本研究では、Pr<sup>3+</sup>を添加した LaScO<sub>3</sub>における光学特性および構造特性を理論計算と実験の両面から解析した。多結晶サンプルを固相反応法により合成し、発光・励起スペクトルの測定は、UVSOR BL1B および BL3B にて、液体ヘリウムを用いて 10 K 下で測定した。また粉末 XRD パターンのリートベルト解析から格子定数の精密化を行った。第一原理計算コード VASP を用いて添加した Pr<sup>3+</sup>近傍の局所構造および固溶エネルギーを見積もった。またさらに、多重項間遷移である Pr<sup>3+</sup>の  $4f^2-4f^15d^1$  遷移の解析には第一原理相対論配置間相互作用法(CI)を用いた。

Pr<sup>3+</sup>:LaScO<sub>3</sub>の発光スペクトルでは、260-300 nm, 320-360 nm にブロードな発光と、500-800 nm の間にいくつかのシャープな発光を観測した。これらの発光は、それぞれ、Pr<sup>3+</sup>の  $5d-4f$  遷移発光、ホスト結晶のバンド間遷移発光、Pr<sup>3+</sup>の  $4f-4f$  遷移発光に対応すると考えられる。また、励起スペクトルでは、195 nm 付近にホスト結晶のバンド間基礎吸収、200-250 nm 付近に Pr<sup>3+</sup>の  $4f-5d$  吸収を観測した。

理論、実験の両方の結果から、添加した Pr<sup>3+</sup>は、La サイトに選択的に置換していると考えられる。さらに、多電子計算によるスペクトル解析では、遷移エネルギーの絶対値を多少過大評価したものの、定性的なピーク位置、スペクトル形状については概ね実験を再現した。理論吸収スペクトルでは 4 つのピークが現れた。これらのピークについて、多電子波動関数の成分解析を行ったところ、メインピークの分裂は結晶場の効果を反映しており、メインピークとサブピークの分裂は Pr-4f 軌道のスピン-軌道相互作用の効果を反映していることが分かった。

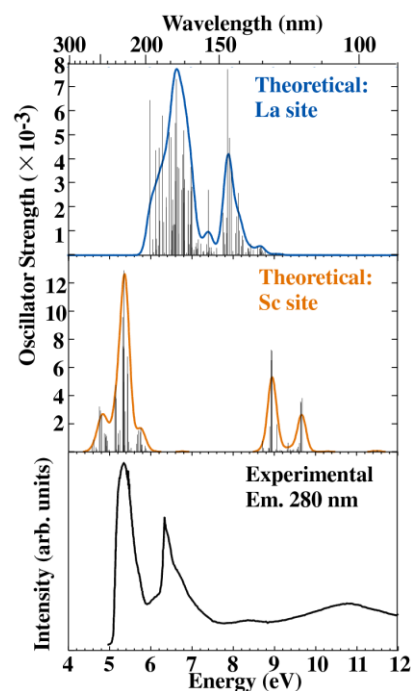


Fig. 1 Theoretical absorption spectra and experimental excitation spectrum.