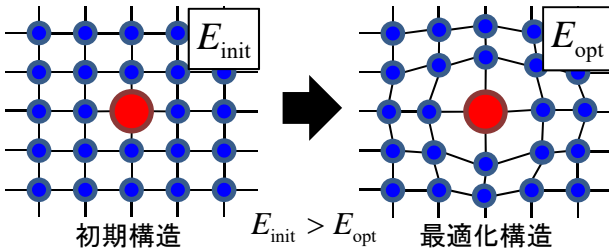


# 酸化物結晶中における不純物原子位置の計算科学による予測とXAFSを用いた実証

YAG:Ce蛍光体におけるCeの置換サイトについて、第一原理計算に基づく構造最適化及び形成エネルギー評価による予測と、FT-EXAFS解析を用いた実証により、Yサイト置換であることを明らかにした。本手法により、様々な結晶中の不純物原子の置換サイトを、高い信頼性をもって同定することが出来る。

## 1. 第一原理計算に基づく構造最適化

系の全エネルギー $E$ が極小となるように構造を緩和



## 第一原理計算

量子力学の波動方程式を、経験パラメータや近似を出来る限り用いずに解くことにより、物質の様々な性質を正確に予測する計算手法

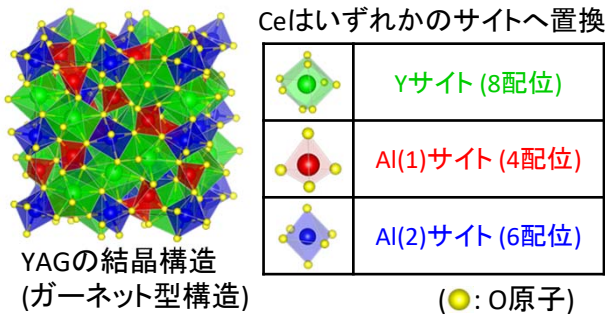
## 構造最適化から得られる情報

- 安定な原子配置、結合距離、格子定数等
- 系の全エネルギー、欠陥の形成エネルギー等

信頼性の高い構造情報の予測が可能

## 2. YAG:Ce蛍光体中のCe置換サイトの同定

- YAG:Ce蛍光体: YAG (Yttrium Aluminum Garnet:  $Y_3Al_5O_{12}$ )にCeを添加した酸化物蛍光体
- 高輝度白色LED開発のターゲット材料



## 3. YAG:Ce蛍光体の構造最適化

- Ce置換によって生じる構造緩和の影響を考察

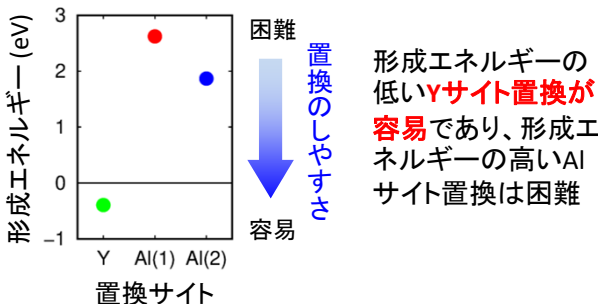
## 構造最適化後のCe近傍の構造

サイト	Oとの平均結合距離 (Å)		結合距離の変化率 (%)
	YAG単結晶	Ce置換	
Yサイト	2.39	2.47	+3.11
Al(1)サイト	1.79	2.19	+22.73
Al(2)サイト	1.94	2.31	+19.02

Yサイト置換は緩和が小さく、Ce周辺構造への影響は小さい。一方で、Alサイト置換では大きな緩和が生じ、Ce周辺の構造が大きく歪むため、構造的に不安定。

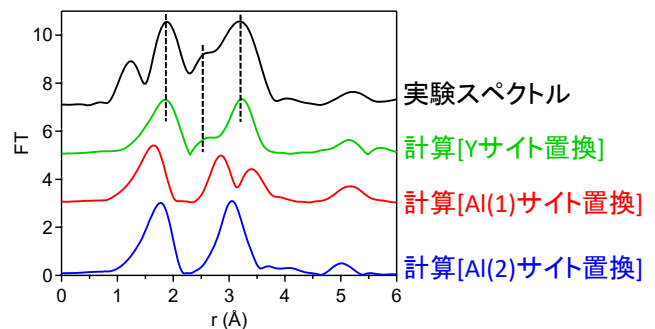
## 4. 各サイトへのCe置換の形成エネルギー評価

- 形成エネルギー: 不純物を含む結晶と完全結晶の構造最適化後の全エネルギー差に基づいて見積られる量。
- YAGの各サイト毎のCe置換のしやすさを定量的に評価でき、形成エネルギーが低い程、置換が生じ易い。



## 5. FT-EXAFS解析(Ce K端XAFS)による実証

- 計算で予測されたYサイト置換の容易性を実証するため、FT-EXAFSの実験スペクトルとの整合性を考察



破線部分のスペクトル形状、ピーク位置、強度比について、Yサイト置換が実験スペクトルと一致

構造最適化と形成エネルギー評価による予測とFT-EXAFS解析による実証から、Yサイト置換であることを同定

置換型不純物原子を含む様々な結晶についても、本手法は適用可能!!

東レリサーチセンターでは、実験と計算の両面から、より詳細な解析結果を提供します。