

希土類蛍光体材料の理論設計を支援する大規模電子状態計算手法の開発

○遠藤 明¹・大沼宏彰¹・呂 晨¹・Agalya Govindasamy¹・坪井秀行¹・古山通久¹・久保百司^{1,2}・Carlos A. Del Carpio¹・宮本 明^{3,1}

¹ 東北大学大学院工学研究科応用化学専攻 (〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-11-1302)

² 科学技術振興機構さきがけ (〒332-0012 埼玉県川口市本町 4-1-8)

³ 東北大学未来科学技術共同研究センター (〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-10)

【緒言】

プラズマディスプレイパネル(PDP)などに用いられる希土類蛍光体はさらなる性能向上が求められている。その実現には電子・原子レベルの知見に基づいた理論設計が重要になると考えられるが、実際の蛍光体粒子における欠陥や構造の乱れなどを考慮できるよう母体材料も含めた現実的大規模モデルを用いたシミュレーションが必要になる。しかし、このような大規模モデルに対して従来の第一原理計算などの計算化学的手法はまったく適用不可能であった。本研究では、大規模で複雑な希土類蛍光体モデルの電子状態計算を可能とする手法の開発を行い、応用計算も行った。

【計算方法】

本研究で開発した電子状態計算手法は、当研究室で開発してきた Tight-binding 量子分子動力学法プログラム Colors [1]をベースとした。本プログラムに、第一原理計算によって得た希土類蛍光体における希土類元素の f 軌道の縮退状態を再現するように分子軌道の変換を行うアルゴリズムを実装した。本計算手法では Tight-binding 近似を用いるため、必要なパラメータは第一原理計算の結果を参考に決定した。第一原理計算には SCM 社の ADF プログラム、Accelrys 社の DMol³ プログラム、CASTEP プログラムを用いた。計算結果の可視化には当研究室で開発した NEW-RYUGA プログラムを用いた。

【結果および考察】

実際に PDP で使用されている青色蛍光体 BaMgAl₁₀O₁₇:Eu²⁺(BAM:Eu²⁺)の理想結晶について、116 原子より構成されるモデル (図 1(a)) を作成し第一原理計算および本手法を用いて電子状態計算を行った。本手法で得た Eu²⁺の電子配置は(4f)⁷ となり、f 軌道の Eu²⁺への局在化も再現された (図 1(b))。これより、本手法に実装したアルゴリズムが正常に動作していることが確認された。表 1 に示された各手法で得た電荷の比較から、本手法により得た電荷分布が第一原理計算で得たそれをよく再現していることも確認された。また、本手法の応用により 464 原子モデルの電子状態計算にも成功した。このような大規模モデルの電子状態計算が PC でも可能になったことは、小さなクラスターモデルや完全結晶モデルのみでは表現困難な、欠陥や構造の乱れを考慮したより現実的なモデルの電子状態計算が可能になったことを意味する。欠陥を含む現実的大規模モデルの作成は古典分子動力学法などを活用することで容易に可能であり、作成したモデルに本手法を適用することで、希土類蛍光体の理論設計に貢献できるものと期待される。

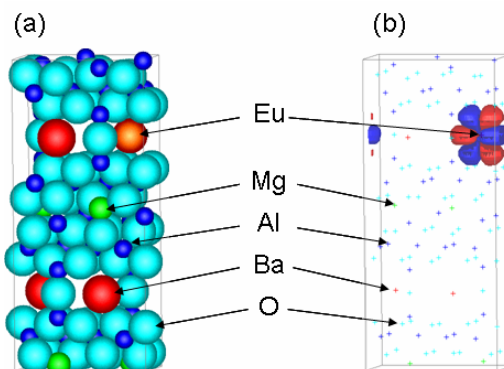


図 1 BAM:Eu²⁺理想結晶の(a)計算モデル, (b) Eu²⁺の f 軌道

表 1 各手法で得た電荷分布

原子	本手法	第一原理
Eu	0.68	0.70
O	-0.46 ~ -0.33	-0.37 ~ -0.27
Mg	0.53	0.39
Ba	0.78 ~ 0.80	0.64
Al	0.50 ~ 0.57	0.38 ~ 0.60

参考文献

[1] M. Elanany et al., *J. Phys. Chem. B*, **107**, 1518 (2003).