

蛍光体キャリア移動パスに対する構造欠陥の影響の解明

○大沼宏彰¹, 鈴木 愛², Riadh Sahnoun¹, 古山通久¹, 坪井秀行¹, 畠山 望¹, 遠藤 明¹,
高羽洋充¹, Carlos Del Carpio¹, Ramesh C. Deka², 久保百司³, 宮本 明^{1,2}

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)

³東北大学大学院工学研究科附属エネルギー安全科学国際研究センター
(〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-11-701)

【緒言】蛍光体はその発光機構から、直接遷移型と電荷移動遷移型のものの2つに分類することが出来る。後者のものにおいては、エネルギーの吸収、励起エネルギーの移動、発光中心での電子/ホール再結合による発光、の3段階に分けることが出来る。これら素過程の効率が発光効率を左右するが2段階目の励起エネルギー移動過程は実験で捉えることが困難である。よって本研究では、量子化学(QC)計算に基づいてこの励起エネルギー移動過程の解明することを試みた。

【方法】QC計算は当研究室独自のTight-binding量子分子動力学計算プログラム“Colors”により行った。得られた分子軌道(MO)毎の電子密度の情報を空間メッシュ化し、その電子密度に従い仮想キャリアを移動させることで、キャリアの伝達パスを予測した(図1)。可能な試行は、MO間遷移と空間位置の移動の2種類とした。また、本研究ではプラズマディスプレイ用青色希土類蛍光体であるBaMgAl₁₀O₁₇:Eu²⁺(BAM:Eu²⁺)を対象として、電子の伝達経路について検討した。

【結果および考察】はじめに完全結晶および酸素欠損(V_O)を有するBAM:Eu²⁺モデル電子状態計算を行った。BAM:Eu²⁺の電子状態の概略図を図2に示す。V_Oの存在により、その周辺のAl間の相互作用による局在準位が形成された(図2A, B)。また、Eu 5d/Ba 5d軌道からなる伝導帯下端のエネルギーレベルが低エネルギー側へシフトした。これはV_O形成によりEu 5d/Ba 5d軌道間に新たに結合性相互作用が生じるようになったためである(図2C)。続いて、各モデルでの電子移動シミュレーションを行った。シミュレーション中で得られた各MOでの電子の存在割合を表1に示す。完全結晶においてはEu 5d軌道からなるMO(図2D)での多く存在確率が最大であった。これは図2Eに示すようにBa 5d軌道からなる伝導層に非局在化したMO中を電子が円滑に伝達したためである。それに対し、V_OモデルにおいてはV_O準位での存在割合が大となり、Eu 5d準位での存在割合が低下した。このように、V_Oなどの構造欠陥が形成されることにより、キャリアである電子は局在準位に一時的にトラップされ、Euへの伝達が乱されることが示された。

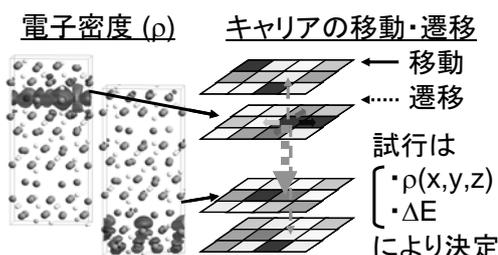


図1 キャリア伝達経路予測方法の概要

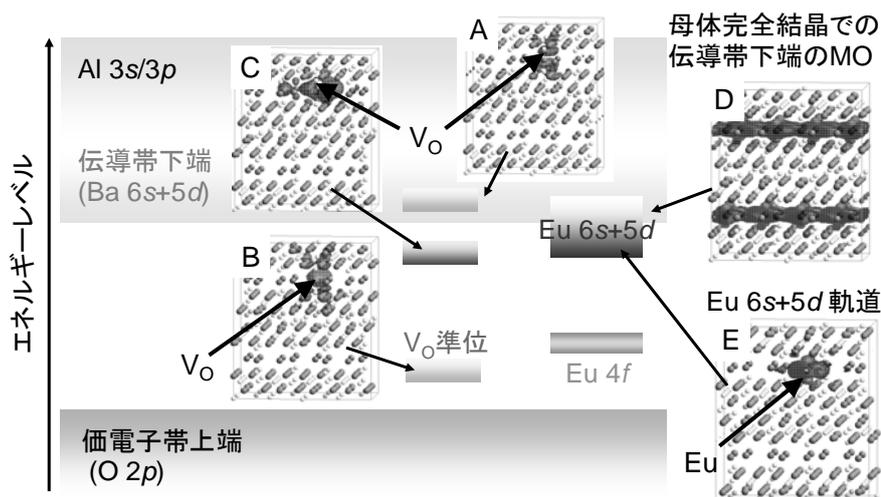


図2 BAMの電子状態の概略

表1 各MOでの電子の存在割合(%)

	完全結晶	Eu近傍V _O	Eu遠方V _O
Eu 5d軌道	33.1	26.4	20.4
V _O 準位	-	20.2	33.4
その他	66.9	53.4	46.2