

第一原理計算を用いた LaB_6 の熱線遮蔽特性解析

First-principle calculations of optical absorptions of LaB_6

住友金属鉱山株式会社, ○吉尾 里司, 楨 孝一郎, 足立 健治

Sumitomo Metal Mining Co., Ltd., ○Satoshi Yoshio, Koichiro Maki, Kenji Adachi

E-mail: satoshi_yoshio@ni.smm.co.jp

LaB_6 , $\text{In}_2\text{O}_3:\text{Sn}$, $\text{Cs}_{0.33}\text{WO}_3$ などのナノ微粒子は太陽光成分のうち、近赤外光を遮蔽し、可視光のみを選択的に透過する熱線遮蔽材料として自動車用ガラスなどに用いられている。その中でも LaB_6 のナノ微粒子は 800 nm~1200 nm の近赤外光における強い吸収と高い可視光透過率を併せ持つ有力な熱線遮蔽材料である。

LaB_6 の近赤外光における強い吸収メカニズムを微視的に明らかにすることは、より強い吸収を持つ熱線遮蔽特性を開発するために重要である。ナノ微粒子にした時の熱線遮蔽特性はバルクの誘電関数 $\epsilon_1(\omega)$, $\epsilon_2(\omega)$ を用いて、Mie 散乱理論によってよく記述できる^[1]。そのため、第一原理計算を用いてバルクの誘電関数を算出することで、ナノ微粒子の熱線遮蔽特性をバンド構造のレベルまで遡って理解することが可能になる。

LaB_6 の第一原理計算はいくつか報告例があるが、熱線遮蔽特性に着目し、誘電関数を高精度に計算する試みはなされてこなかった。誘電関数は、バンド間遷移による吸収から $\epsilon_2(\omega)$ を算出し、Kramers-Kronig の関係式から $\epsilon_1(\omega)$ を算出することで得られる。通常用いられている GGA-PBE などの汎関数では、 $\epsilon_2(\omega)$ が低エネルギー側にシフトし、実測値^[1]を定量的に再現できない。今回、sX(screened-exchange)法を用いてバンドギャップを高精度に計算することで、 $\epsilon_2(\omega)$ が実測値をよく再現することが明らかになった。

さらに、ナノ微粒子の熱線遮蔽特性にはバンド間遷移のみならず自由電子のプラズマ振動の寄与も重要である。プラズマ振動数を第一原理計算で求め、自由電子の寄与である Drude 項を、バンド間遷移から得られた誘電関数に加えることで、実測値を非常によく再現できることがわかった。 LaB_6 の誘電関数を高精度に計算できるようになり、熱線遮蔽特性をバンド間遷移による影響と自由電子の影響に分けて理解することが可能になったので、それらについて報告する。

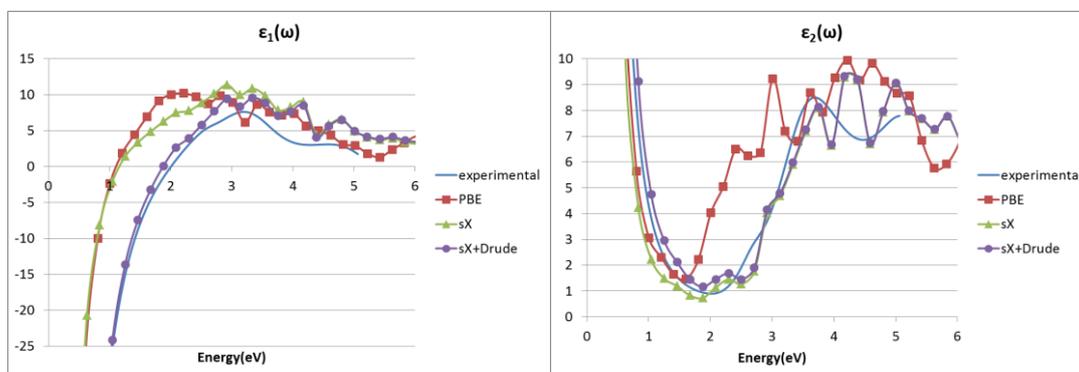


Fig.1: Calculated and experimental dielectric functions of LaB_6

[1] K. Adachi, M. Mirastu, T. Asahi, J. Mater. Res., 25, 510(2010)