

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 23 日現在

機関番号：13903

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23540367

研究課題名(和文) オージェ過程の電子相関強度クロスオーバー

研究課題名(英文) Correlation Strength Crossover of Auger Recombination Process

研究代表者

高橋 聡 (Takahashi, Akira)

名古屋工業大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：80212009

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円、(間接経費) 1,050,000円

研究成果の概要(和文)：1次元モット絶縁体において、パルス光で励起した後の時間変化を数値的に計算し、ダイナミクスがクーロン強度にどのように依存するかを調べた。強相関領域では、二つのホロン-ダブルロン対が一つのホロン-ダブルロン対に崩壊するオージェ過程が、緩和を支配していることがわかった。中間相関領域においても、荷電キャリアの対消滅が緩和を支配するが、対消滅に寄与する荷電キャリアはホロンやダブルロンとみなすことはできないことがわかった。中間相関領域と強相関領域の間のクロスオーバー領域では、荷電キャリアの緩和が著しく速くなり、実験的に観測された光励起状態の超高速緩和が説明できることが明らかになった。

研究成果の概要(英文)：We theoretically investigate the dynamics of photoexcited states in one-dimensional Mott insulators. We adopt the Pariser-Parr-Pople model, and numerically calculate the time development of the nonequilibrium state excited by a light pulse. We investigate the dependence of the dynamics on the Coulomb correlation strength. In the strong correlation region, the Auger recombination where two bound holon-doublon pairs decay into one unbound holon-doublon pair, dominates the decay dynamics. From the strong correlation region to the intermediate correlation region, the Auger recombination process is always dominant, but the charge carries involved in the process cannot be described by a holon and a doublon in the intermediate correlation region. In the crossover region between these two regions, the decay time constant and the Auger coefficient are strongly enhanced, and the decay time constant is consistent with the experimentally obtained value in one-dimensional Mott insulators.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物性

キーワード：オージェ緩和 強相関電子系 1次元モット絶縁体 超高速緩和

1. 研究開始当初の背景

本研究では、光励起により作られた二つのエキシトンが一つの高エネルギーエキシトンに崩壊するオージェ過程を考察する。多くの物質の光励起状態の緩和はオージェ過程が支配している。また、オージェ緩和により、発光源であるエキシトンの数が減るため、これにより発光効率が著しく低下する。近年、「光る材料」として注目されている半導体ナノ粒子や、カーボンナノチューブにおいても、そうであると考えられており、光る材料の開発にはオージェ過程をどのように抑えるかが決定的に重要となる。また、1光子励起によりふたつ以上のエキシトンが生成されるオージェ過程の逆過程は、太陽電池の高効率化に関連して注目を集めている。オージェ過程はこのように極めて重要な物理現象であるにもかかわらず、その理解は不十分なままである。電子相関効果が弱い場合のオージェ過程はよく理解されているが、この記述法が電子相関が強い物質でのオージェ過程にも、その限界が考慮されることなく用いられているのが現状である。

2. 研究の目的

電子相関が強い場合も含めたオージェ過程の物理的描像を確立し、より一般的見地からオージェ過程を根本から再検討することを最終目標とする。そのために、電子相関効果が強い極限である1次元強相関電子系でのオージェ過程を記述する枠組みを確立することを試みる。さらに、電子相関強度を変化させた場合のオージェ過程のクロスオーバーを調べ、強相関極限での描像がどのように崩壊するのか、もしくは、強相関極限での描像が従来広く用いられてきた弱相関極限での描像へどのようにつながっていくのか、を明らかにする。このクロスオーバーの解析から、異なる物理的描像で記述されるオージェ過程を比較検討し、より一般的な視点からオージェ過程を再検討することが可能になると期待される。ここで得られた知見をもとに、1次元強相関物質に共通してみられる光励起状態の超高速緩和現象がオージェ過程によって説明できるかを調べる。

3. 研究の方法

1次元強相関電子系の荷電キャリアは、ホロン(空サイト)とダブロン(2重占有サイト)であると考えられている。強相関電子系の標準的モデルである Pariser-Parr-Pople モデル (PPP モデル) を用いて、光吸収スペクトルの最大ピークを光励起した場合の時間依存シュレディンガー方程式を大規模数値計算によって厳密に解き、ホロン、ダブロン数の時間変化を計算する。これを解析することにより、現実の強相関物質に適切なパラメーターでの光励起状態の緩和が、ホロン-ダブロン対のオージェ緩和により説明できるかどうかを考察する。同様な計算を、幅広

くクーロン相互作用の強度を変化させ、中間相関弱あるいは弱相関極限にわたって行う。異なるクーロン強度でのダイナミクスを比較することにより、強相関領域におけるオージェ過程の描像が、クーロン相互作用強度の変化とともにどのようにして崩壊するのか、もしくはよく知られた弱相関におけるオージェ緩和の描像につながっていくのかを調べる。ここで得られた知見を基に、オージェ過程を、従来の弱相関極限での描像を越え、より広い視点から再検討する。さらに、ここで得られた知見を基に、クロスオーバー領域でのオージェ過程におけるエキシトンの増殖などの特異な現象、さらに、この現象と光誘起相転移との関連について研究する。また、1次元強相関物質の超高速緩和の実験結果と比較し、これをオージェ緩和で説明することを試みる。

4. 研究成果

PPP モデルを用いて、1次元モット絶縁体の、光吸収スペクトルの最大ピークを光励起した場合の時間依存シュレディンガー方程式を大規模数値計算によって数値的に厳密に解き、ホロン、ダブロン数の時間変化を計算した。図1に、様々な U における、ホロン-ダブロン対の数が n 個である状態の量子重み W_n の時間変化を示す。ここで、 U は同一サイト上にある電子のクーロン相互作用エネルギーであり、エネルギーおよび時間の単位は、最近接サイト間の遷移積分の絶対値が1となるものを用いている。光が消失したあとの時間帯を考察しており、ここで見られるのは緩和過程のみである。またこの図で表したのは弱励起の場合である。

最初に、現実の強相関物質に適切なパラメーター ($U=10$) を用いた場合の結果について述べる。弱励起時には、光生成される荷電キャリア数の時間変化が、光の強度の2乗に比例しており、光励起状態の緩和において、荷電キャリアの対消滅が支配的であることがわかる。さらに、図1(a)からわかるように、時間の経過とともに、 W_2 および W_3 が減少し、 W_1 が増大している。さらに、 W_0 はほとんど時間変化していないこともわかる。このことは、ホロンやダブロンは単独で消滅することはなく、ホロンとダブロン対の二組が一組に崩壊するオージェ緩和が、ダイナミクスを支配していることを示している。 W_3 の減少は荷電揺らぎによるものであると考えられる。これまでのオージェ過程の理論的な記述は、クーロン相互作用項の一部を緩和を引き起こす摂動項とすることによりなされ、弱相関の極限でのみ正当化される。しかし、本研究により明らかになった1次元モット絶縁体のオージェ緩和は、ホロンやダブロン対のトランスファー項を緩和を引き起こす摂動項とすることによって、記述可能であり、

従来のオージェ緩和とは全く異なるものである。

最大光励起密度が 18% を超える強励起の場合においては、このような関係は成立せず、この場合の光生成された荷電キャリアはホロンやダブロンとみなすことができないことがわかった。

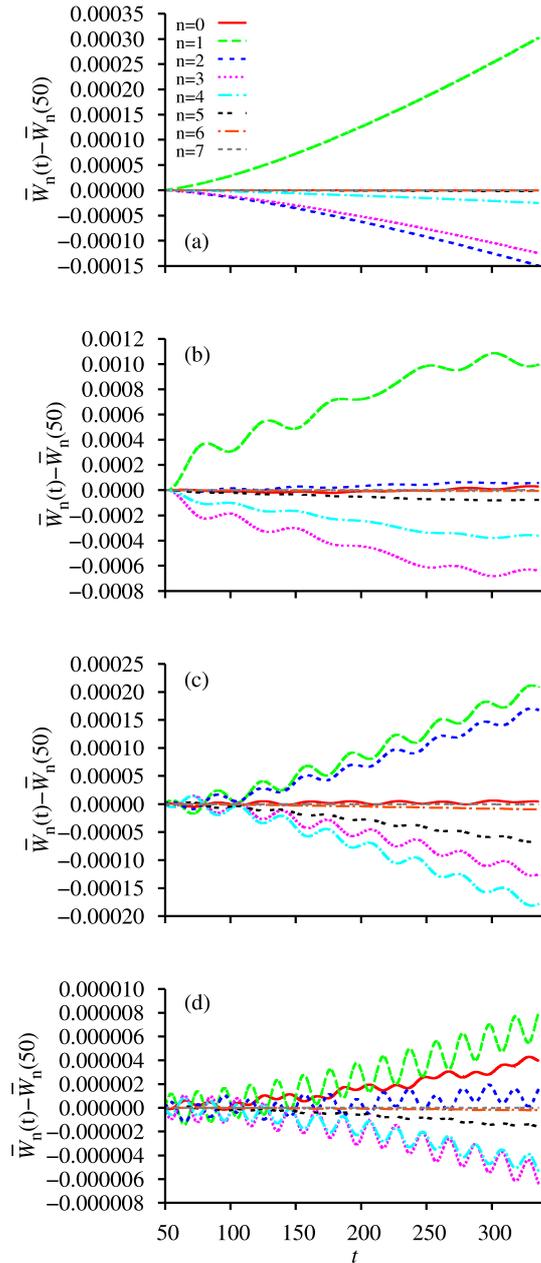


図 1 (a) $U=10$, (b) $U=7$, (c) $U=5$, (a) $U=4$, における $W_n(t)$ 。

次に、クーロン相互作用強度 U を減少させるにつれて、光励起状態の緩和のダイナミクスがどのように変化するかについて示す。考察した $U=7, 5, 4$ いずれの場合にも、弱励起時には、 W_n の時間変化の大きさが、光の強度の 2 乗に比例しており、荷電キャリアの対消滅が支配的緩和であることがわかる。しかし、 $U=5$ においては、時

間の経過とともに、 W_i が増大しており、 $U=4$ においては、 W_0 も時間変化している。これらの結果は、これらの中間相関領域での荷電キャリアの緩和は、単純なホロン-ダブロン対のオージェ緩和過程で記述することができないことを示している。 $U=7$, における W_n の時間変化は、強相関領域と中間相関領域の中間的振る舞いを示していることがわかる。このようにして、オージェ緩和過程の相関強度に対するクロスオーバーを見ることに成功した。

図 2 に、様々な U における、ホロン-ダブロン対の平均数 $N_{\text{HDP}}(t)$ の時間変化を示す。その傾きが、(a) は緩和時間に対応するように、(b) はオージェ係数に対応するよう

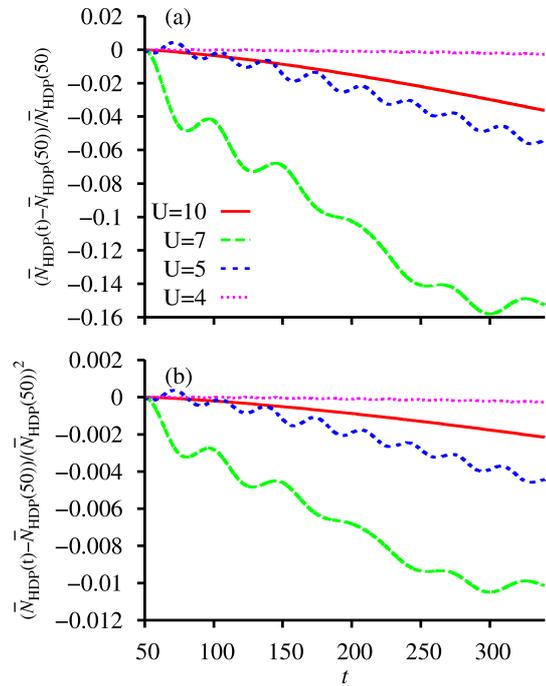


図 2 $N_{\text{HDP}}(t)$ の時間変化。

に、規格化してある。この図からわかるように、電荷揺らぎが増し、ホロン-ダブロン対のオージェ緩和過程により、光励起状態のダイナミクスを記述することができなくなり始める強相関-中間相関クロスオーバー領域において、荷電キャリアの緩和が著しく速くなっていることがわかる。このことから、電荷揺らぎがホロン-ダブロン対のオージェ緩和を早めることがわかった。また、ここで得られた緩和速度は、実験において見いだされているモット絶縁体の光生成された荷電キャリアの緩和の速度と矛盾しない値になっており、現実的なパラメータを用いて、モット絶縁体の光生成された荷電キャリアの超高速緩和を説明することに初めて成功した。

5. 主な発表論文等
(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 1 件)
M. SEGAWA, A. TAKAHASHI, H. GOMI,
and M. AIHARA,
"Auger Recombination of Photogenerated
Charges in One-Dimensional Mott
Insulators",
Journal of the Physical Society of Japan 80
(2011) 084721.
DOI: 10.1143/JPSJ.80.084721
査読有

〔学会発表〕(計 2 件)
波多野尚、五味広喜、高橋聡
「オージェ緩和過程のクーロン強度クロス
オーバーII」
日本物理学会 2014 年 3 月
波多野尚、五味広喜、高橋聡
「オージェ緩和過程のクーロン強度クロス
オーバー」
日本物理学会 2013 年 3 月

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕
出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

〔その他〕
ホームページ等
<http://thphys.web.nitech.ac.jp/JPN/photoinduced.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

高橋 聡 (Takahashi Akira)
名古屋工業大学・工学研究科・教授
研究者番号：80212009

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：