

非指数関数的な発光減衰の解析

板東孝佳、越野和樹^A、篠塚雄三
和歌山大学大学院システム工学研究科
東京医科歯科大学一般物理^A

Analysis of non-exponential luminescence decay

Takayoshi Bando, Kazuki Koshino and Yuzo Shinozuka

Graduate school of System Engineering, Wakayama University, 930 Sakaedani, Wakayama 640-8510, Japan

Abstract

We have studied dynamics of luminescence decay in semiconductor after photoexcitation. An original model is proposed and simulated numerically. Non-exponential decay is observed and it changes depending on the ratio of the luminescence lifetime, the diffusion speed, and the annihilation radius.

1.はじめに

一般的に、光励起状態など不安定状態におかれた物理系は、有限の寿命の後に安定状態へと移行する。例えば、光を吸収して励起状態に遷移した励起原子は、いずれは吸収したエネルギーを放出して基底状態に遷移する。時刻 $t=0$ に不安定状態にある物理系が、時刻 t でも元の不安定状態に留まっている確率 $P(t)$ は一般に生存確率と呼ばれる。崩壊のダイナミクス ($P(t)$ の関数形や、寿命の長さなど) は対象とする系に依存して大きく異なる。例えば、励起原子の輻射崩壊であれば寿命はマイクロ秒のオーダーであるが、地震などの地球物理的現象では寿命は数百年や数千年といったオーダーとなる。生存確率の関数形に関しては、

$$P(t) = \exp(-\gamma t)$$

の指数関数型が一般的に知られている。例えば、励起原子の輻射崩壊など、量子不安定系に関しては、シュレーディンガー方程式を解くことにより近似的に指数関数的崩壊則が得られることが知られている。(この際の崩壊レートは、よく知られたフェルミの黄金律公式によって計算される。) この指数関数的減衰は、個々の崩壊事象が独立である場合に広く観測される。

しかしながら、3つ以上の準位が関わった崩壊過程や、個々の崩壊ダイナミクスが独立でない系の集団的な崩壊ダイナミクスに関しては、単純な指数関数則が成立しないことが多い。例として、光励起後の半導体中における電子—正孔再結合ダイナミクスを考えよう。原子・分子などの局在電子系であれば、電子と正孔とは原子から動くことができないため、常に特定の電子正孔ペアで崩壊が起こり、各々の崩壊ダイナミクスは独立であり崩壊は指数関数的となる。しかしながら、半導体などではサイト間励起移動が起こるために、電子は結晶中のどの正孔とも再結合する可能性があり、崩壊ダイナミクスはより複雑なものと

なる。

例として、 SrTiO_3 (以下STO) の紫外光照射後の挙動がある。STOは量子常誘電体としてよく知られた物質であり、光照射により誘電率が巨大上昇する現象 (光誘起巨大誘電応答) が見出され、その機構に関心が寄せられている。STO には紫外光励起によって可視領域に大きくストークスシフトしたブロードな発光が観測され、その発光ダイナミクスはサブマイクロ秒からミリ秒に亘る非指数関数的減衰を示すことも報告されている[1,2]。この事はバンド間励起によって作られた電子と正孔が様々な距離に離れて局在化し、低温域でそれらがトンネル再結合過程を経て発光している事を示唆している。本研究では、単純化されたトンネル再結合モデルを用い、この現象を数値シミュレーションによって解析する。

2. トンネル再結合確率

トンネル確率は Gamow の透過因子で近似的に与えられる。

$$T \sim \exp \left[-\frac{2}{\hbar} \int_{x_1}^{x_2} \sqrt{2m(V(x)-E)} dx \right]$$

この式は、トンネル確率が電子-正孔間距離 $r (=x_1-x_2)$ に強く依存している (指数関数的) ことを示している (図1 実線参照)。つまり、粒子間距離がある値 r_0 よりも小さくなった場合に、急激にトンネル再結合確率が大きくなるのである。本研究では、このトンネル確率の距離依存性を、図1 点線のような箱型関数

$$T(r) = \begin{cases} T_0 & (r < r_0) \\ 0 & (r > r_0) \end{cases}$$

で近似する。つまり、電子-正孔間距離 r が r_0 よりも小さくなる場合にのみ再結合し、それ以上の距離にある場合には自由に運動すると仮定する。

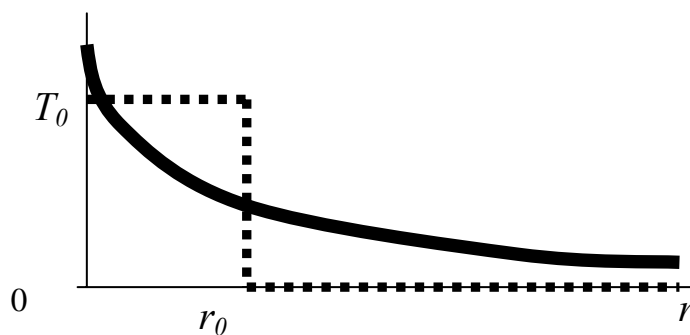


図1：トンネル再結合モデル。現実には、再結合確率は粒子間距離 r の減少関数(実線、典型的には指数関数)である。本研究では、箱型関数(点線)で近似する。

3. 理論モデル

本研究ではさらに二つの単純化を行う。(図2のシミュレーションモデル参照)

- (1) 現実の系では、電子・正孔という2種類の異なる粒子が存在し、異なる粒子が接近した場合にのみ再結合が起こる。本研究では粒子は1種類のみとし、それらが近接

した場合に再結合による消滅が起こるものとする。

(2) 本来、電子・正孔系は3次元空間を運動するが、ここでは2次元空間を動くものとする。

このモデルを用いて、次の状況を考察する。

- (A) シミュレーション開始時刻 ($t=0$) では、 N 個の粒子が、ランダム (平均間隔: D) に分布している。
- (B) 時間刻み ($dt=1$) の間に、各粒子は、平均拡散距離 σ のランダムウォークをする。
- (C) 2粒子間距離が消滅半径 r_0 よりも小さくなった場合に、その2粒子は確率 T_0 で消滅する。

注目する物理量は、生存粒子の個数 $n(t)$ の時間変化である。(或いは、生存確率 $P(t)=n(t)/N$ の時間変化である。) これは時間 t の単調減少関数であるが、この関数形が如何に指数型崩壊則から異なっているかに興味がある。

本シミュレーションで与えるパラメータは、次の通りである。

- 初期時刻での不安定粒子の個数: N
- 初期時刻での不安定粒子間の間隔: D
- 不安定粒子の平均拡散距離: σ
- 不安定粒子の消滅半径: r_0

これらのパラメータを様々に変化させて、シミュレーションを実行する。

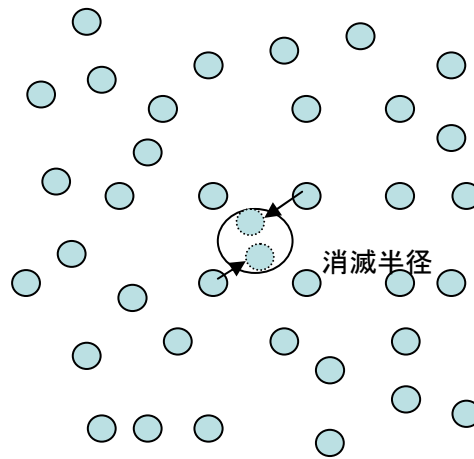


図2: 2次元シミュレーションモデル

4.シミュレーション結果

4.1 初期粒子数 N による依存性

図3,4に初期粒子数 N に対する時間依存性のシミュレーション結果を示す。図4は粒子の生存確率 $P(t)$ の対数表示のグラフである。その結果、 N の大きさに対する依存性はないことから大数の法則が確認でき、理想的なシミュレーションが実現されていることがわかる。

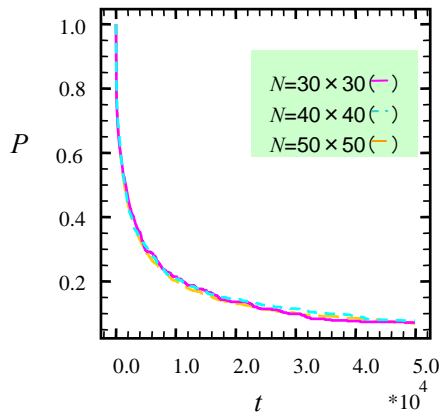


図3: 生存確率 $P(t)$ の時間変化

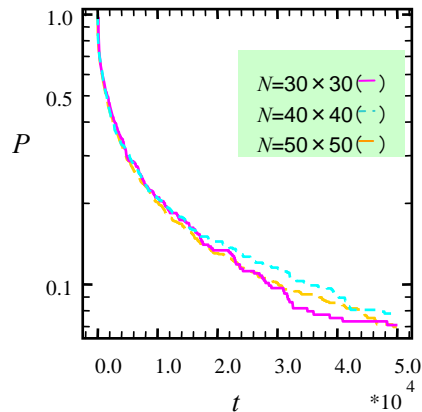


図4: 生存確率 $P(t)$ の対数表示

$D = 10$
 $\sigma = 0.1$
 $r_0 = 2$
 $T_0 = 0.03$

4.2 $(\sigma/r_0)/a$ の依存性

今、粒子の拡散がないとすると、発光寿命は $P(t) = \exp(-T_0 t)$ となり、発光寿命時間は $\tau = 1/T_0$ で与えられる。一方、粒子の拡散があると減衰は指数則からずれてくると予想される。つまり、半径 r_0 の領域を考えると、時間 Δt の間に $a = T_0 \Delta t$ の割合で粒子は対消滅し、 $\sigma/r_0 = v \Delta t / r_0$ の割合で領域外へ去っていく。そこで a 項と σ/r_0 の比によって $P(t)$ がどのように変化を起こすか調べた。その結果を図5に示す。

$\sigma/r_0 \ll a$ では指数関数の項が関数系をほとんど支配していることが確認できる。

$\sigma/r_0 \gg a$ では非指数関数の項が関数系をほとんど支配していることが確認できる。

図5の結果から $\sigma/r_0 \ll a$ のシミュレーション結果ではほぼ指数関数的だが $\sigma/r_0 \gg a$ の時には、シミュレーション開始直後に粒子が一気に崩壊し、時間経過とともに粒子が拡散されるために崩壊レートが減少していくことがわかる。

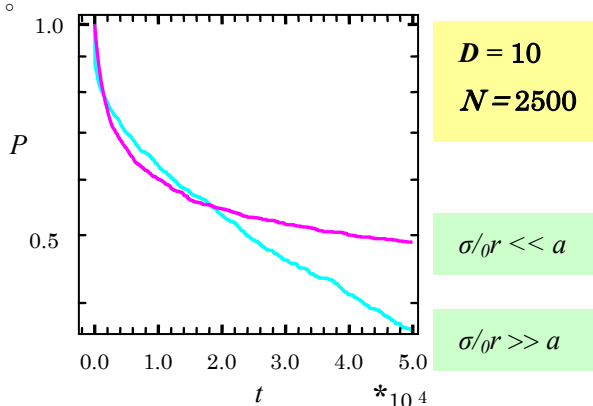


図5： $(\sigma/r_0)/a$ の依存性

次に、 a, r_0 を固定し σ を変化させてシミュレーションを行った。図6, 図7の結果から σ が大きいほど関数がStretched exponential ($P(t) = \exp[-(T_0 t)^\beta]$: $[0 < \beta < 1]$ β が小さくなる) になることがわかった。

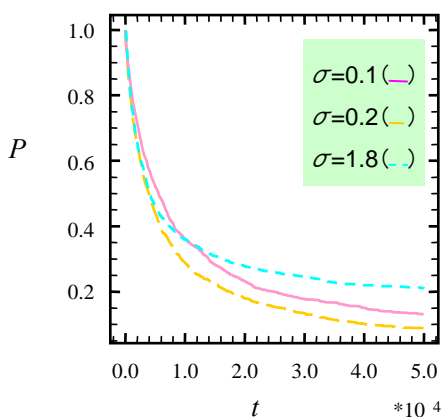


図6：生存確率 $P(t)$ の時間変化

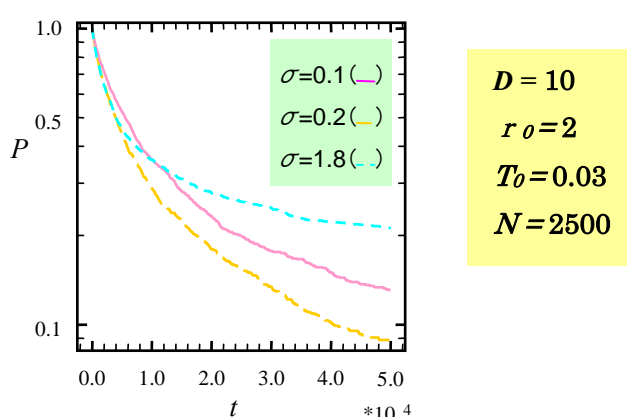


図7：生存確率 $P(t)$ の対数表示

5. 今後の予定

現在のシミュレーションモデルを3次元に拡張し、粒子を電子と正孔の区別をつけて計算を行っていき、現実の系に近づけていく予定である。

参考文献

[1]Chihiro Itoh and Akio Wada , Phys.stat.sol.(c)2,No.1,629-632(2005)

[2]T.Hasegawa,M.shirai,and K.Tanaka, Journal of Luminescence 87-89 (2000) 1217-1219.