

## 1E09 Photo-excited Non-adiabatic Dynamics in Nano Materials

(京大院理<sup>1</sup>, University of Washington<sup>2</sup>, University of Rochester<sup>3</sup>)

○金賢得<sup>1</sup>, Madrid Angie B.<sup>2</sup>, Prezhdo Oleg V.<sup>3</sup>

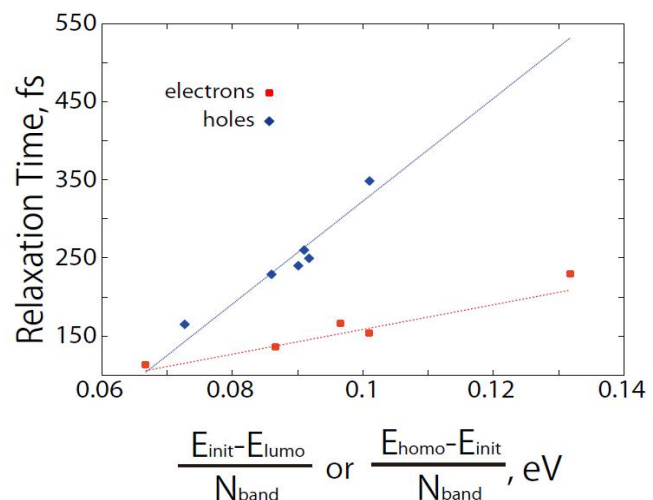
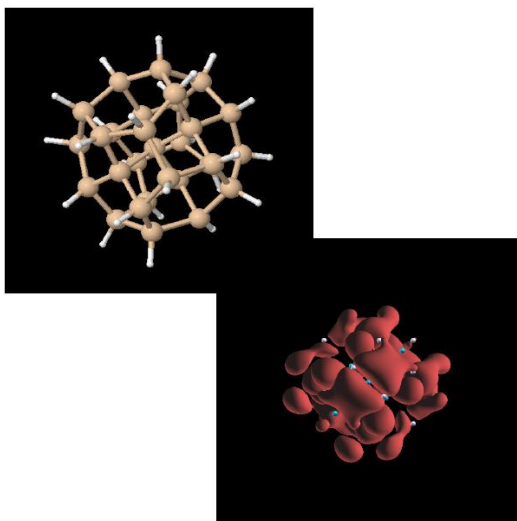
### 【Symmetric Band Structures and Asymmetric Electron and Hole Nonadiabatic Dynamics in Si and Ge Quantum Dots】

ナノスケールの半導体素子である量子ドットに閉じ込められた電子-正孔ペアは、従来のバルク半導体を示さなかった新しい物性を示すと期待されており、現在も多くの基礎的・応用的研究がおこなわれている。量子ドットの次世代光デバイスとしての可能性は、電子・正孔とフォノンの相互作用による励起エネルギーの散逸過程で決まるといってよい。本研究では、太陽電池素子として圧倒的シェアを誇るSiとGe量子ドットについて、光励起後の電子・正孔とフォノンとの相互作用によるエネルギー散逸過程を時間依存第一原理シミュレーションにより初めて考察した。

[1]

その結果、量子ドット内の状態密度がバルクのそれとは定性的に異なり、価電帯と電導帯でほぼ等しくなることを示し、しかもその対称な状態密度にも関わらず電子が正孔よりずっと高速で緩和することを発見した。このような状態密度からは計れない非自明な緩和過程は、時間依存第一原理計算によってその緩和ダイナミクスに注目したからこそ発見することができたと言える。我々は、この非対称な緩和が量子ドットとその表面を覆う水素原子との結合振動モードが電子とより強くカップリングしやすいことに起因することも突きとめた。さらに、励起エネルギー半減期から見積もられた電子・正孔の緩和速度がフォノン結合強度の二乗ときれいな比例関係にあることを見出し、新しいタイプのフェルミの黄金則が満たされていることを示した。

本研究によって、量子ドットの産業化へ向けて、従来のサイズ・形・組成の変更によってだけでなく、表面原子の操作によっても電子・正孔緩和ダイナミクスをコントロールできる可能性があることが示された。

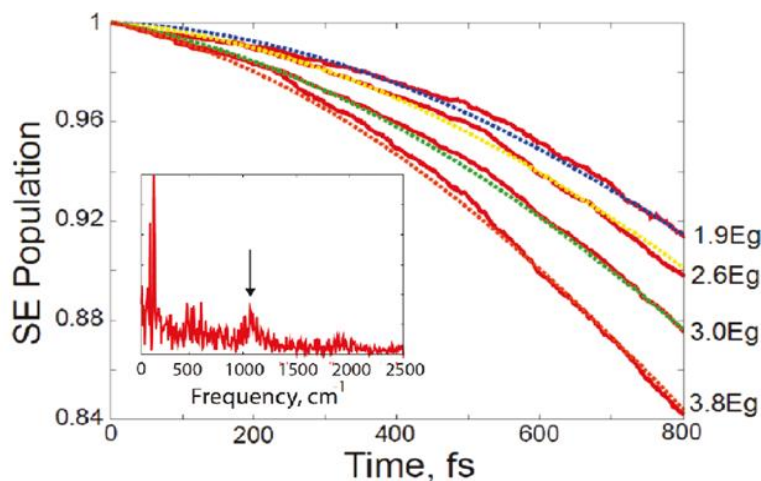
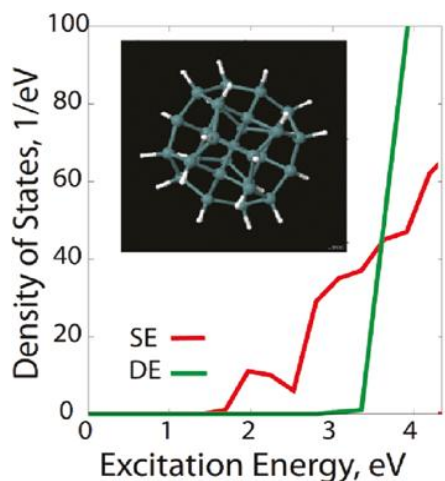
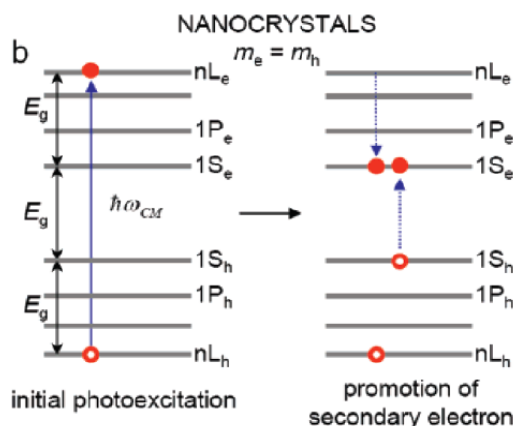


## 【Multi Exciton Generation and Recombination Dynamics in Ge Quantum Dot】

量子ドット内に高エネルギー励起子が生成されると、フォノンとの相互作用によって励起エネルギーの大部分は熱として散逸される。[1] しかし、右図のように高エネルギー励起子がその余剰エネルギーを使ってまた別の励起子を生みだすことができれば、エネルギー熱散逸は回避され、また同時に複数のキャリアを生みだすことができる。(MEG過程) 反対に複数の励起子が合体し1つの高エネルギー励起子が形成される

MEG過程はフォノンによる熱散逸を増大させる。この様にMEG/MER過程は量子ドットにおける励起ダイナミクスを支配し、エネルギー効率を大きく左右する重要な現象であり、現在盛んな研究が行なわれているが、未だにそのメカニズムや効率については議論が続いている。

発表者は、多励起子基底で展開した時間依存シュレディンガー方程式を直接効率的に解くアルゴリズムを開発することで、MEG/MER過程の数値実験を行なうことに初めて成功した。[2] 我々の数値実験手法は、Nonadiabaticカップリングを非摂動的に扱いながら、MEG/MER過程をリアルタイムで追うことができ、しかも両方の過程を同時に記述することができる。詳細な解析の結果、Ge量子ドットにおいて、MEG過程の効率が初期エネルギーに比例する事、MEG過程は主にMulti Excitonの最低エネルギー状態がゲートウェイとなって発生している事を見出した。またバンドギャップ以下の励起でも、フォノンエネルギーにアシストされてMEG過程が起こりえることを発見した。現在はSiやdefect付加など他の様々な種類の量子ドットやナノチューブなど他のナノ半導体素子におけるMEG/MER過程を追究している。(投稿済、及び投稿準備中)



### 【参考文献】

[1] [Kim Hyeon-Deuk](#) and Oleg V. Prezhdo, *Nano Lett.* **11** 1845(2011)

[2] [Kim Hyeon-Deuk](#), Angeline B. Madrid and Oleg V. Prezhdo, *Dalton Trans.* **45** 10069 (2009); selected as Special Issue “Solar Energy Conversion”; Dalton Transactions' Most Highly Rated Articles