

ナノ金属配列における局在モードとプラズモン-電子正孔対相互作用の協奏によるホットキャリア生成増大機構

Enhancement of hot carrier generation due to synergetic effect by localized modes and interaction between plasmons and electron-hole pairs in nano metal arrays

阪大院基礎工¹, 北大電子研², 陽明交通大³

井上漱春¹, 横山知大¹, 笹木敬司², 三澤弘明^{2,3}, 石原一¹

Grad. Sch. Eng. Sci., Osaka Univ.¹, RIES, Hokkaido Univ.², National Yang Ming Chiao Tung Univ.³

S. Inoue¹, T. Yokoyama¹, K. Sasaki², H. Misawa^{2,3} and H. Ishihara¹

E-mail: inoue.s@opt.mp.es.osaka-u.ac.jp

金属ナノ構造に光を照射すると局在表面プラズモンの励起を通じてホットキャリアが生成される。その機構は太陽電池[1]など、種々の応用において期待されている。近年、共振器効果によって輻射場を制御することによりキャリア生成効率の増強が実現された[2]。ホットキャリアの生成機構は主にプラズモン励起の緩和過程として理解されてきたが、上記実験では図1のような金属基板とTiO₂層で形成された光共振器効果による光子吸収量の増大がそれを増強する役割を果たしている。一方、我々は、集団励起であるプラズモンと個別励起である電子正孔対の間の輻射場を介した双方向的相互作用を議論し[3]、プラズモンからホットキャリアへのコヒーレントなエネルギー移動によるキャリア生成機構があることを示唆した。この場合も、輻射場の空間構造の変調次第でその効果が大きく現れる可能性がある。そこで我々は、[2]と同様の共振器構造にナノ金属配列系を組み合わせた系(図1)に注目し、その可能性を調べた。図1のような共振器構造ではプラズモン間のコヒーレンスが強められ、一種のアンテナ効果でホットキャリアを生成しやすいサイト(ホットスポット)へのエネルギー集中が起きると考えられる。一方、各ナノ金属で励起したプラズモンは、輻射的な相互作用により空間的に広がったモードを形成するが、配列構造のデザインによっては局在モードが生じることが知られている[4]。そこで、本研究では図2に示すような点欠陥のある配列構造で、局在モードによるホットスポットを意図的に導入し、プラズモンと電子正孔対の相互作用によるホットキャリア生成が上述したアンテナ効果により増大するかを理論的に考察した。具体的には、プラズモンを生成する配列金属微粒子や共振器場が各種相互作用で結合したモデルを設定し、量子マスター方程式を解いて解析を行った。その結果、共振器存在下では、プラズモン間コヒーレンスとプラズモン-電子正孔対相互作用の協奏により、ホットキャリア生成効率が金属微粒子の密度上昇に伴って増強する結果が得られた。

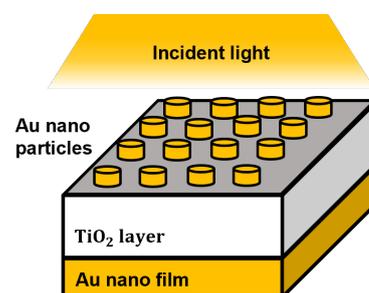


図1: 構造の模式図

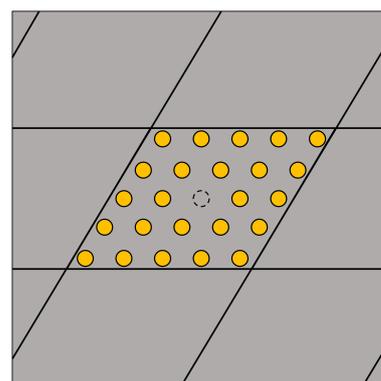


図2: 点欠陥のある配列の模式図

[1] Y. H. Jang, *et al.*, Chem. Rev. **116**, 14982 (2016)

[2] X. Shi, *et al.*, Nat. Nanotech. **13**, 953 (2018)

[3] T. Yokoyama, *et al.*, Phys. Rev. B **105**, 165408 (2022)

[4] Y. Moritake, *et al.*, Nanophotonics **11**, 2183 (2022)