

審査の結果の要旨

氏名 堀越 理子

金ナノ粒子は、プラズモン共鳴(Localized Surface Plasmon Resonance, LSPR)と呼ばれる性質を示すことから、バイオセンサー、SERS(surface enhanced Raman scattering)、太陽電池、LED などへの応用が期待されている。またナノ粒子が呈色することから、カラーフィルター、カラーコーティングなどへの用途も期待されている。これまでは、Dewetting 現象を利用して金薄膜から電子線照射などにより金ナノ粒子を得る方法が主流であったが、本研究では成膜初期過程で生成するナノ粒子を対象として、その生成およびプラズモン特性に関して、実験的・理論的に研究を行った。特に、理論解析において、新たに粒子間相互作用を導入してプラズモン特性の予測を行い、実験結果とよく一致する結果を得ており、このことは、プラズモン現象の工業的応用に幅広く道を開くものである。

本論文は、6章より構成されている。

「第1章 序論」では、金ナノ粒子の生成プロセスおよびそれが示すプラズモン共鳴現象に関して、研究の背景・歴史、また期待されている応用について示している。これらを背景として、以下の3点を本研究の目的に設定した。

1. スパッタ法を用いた成膜の初期におけるナノ粒子の成長過程を明らかにする。
2. ナノ粒子の形状とプラズモン吸収波長シフトとの関係を明らかにする。
3. ランダムに配置された任意形状の粒子について、粒子間相互作用及び基板との相互作用を考慮して、吸収効率を算出する手法を確立する。

「第2章 スパッタリングによるナノ粒子の成長過程および光学特性」では、まず、スパッタリング法による金ナノ粒子生成のプロセスを電子顕微鏡によって詳細に観察し、ナノ粒子の数密度、平均半径、形状などの変化を定量的に計測した。そして、ナノ粒子生成に伴うプラズモン吸収スペクトルの変化を測定し、これがナノ粒子の形状変化に深く関係することを明らかにした。

「第3章 ナノ粒子のプラズモン吸収に関する理論計算」では、プラズモン吸収に関する理論を展開した。まず、電子の運動方程式より比誘電率を算出し、誘電率のサイズ効果、粒子の形状を考慮して、粒子の分極率を算出し、その後吸収効率を求めるプロセスを誘導した。ナノ粒子の形状とプラズモン吸収波長との関係の明確化に重点を置き、楕円体の吸収効率に関する理論計算を実施した。そして、基板に平行な回転軸を持つ扁長楕円体の方が、基板

に垂直な軸を持つ扁平楕円体よりも、波長シフト・吸収効率ともに増大することを示した。

「第4章 ナノ粒子の実測形状でのプラズモン吸収」では、第2章のSEM画像データを用いて、ナノ粒子をモデル化し、これに数値解析手法(Finite-difference time-domain method、FDTD)を適用して吸収効率を求め、プラズモンピーク波長を実測結果と比較した。単純な Spheroid model、カプセル形状を取り入れた Capsule-shaped model、さらに基板との面接触を考慮した Truncated-capsule-shaped model の3種類のモデルを示し、これらの計算結果と実験結果とを比較した。そして、徐々に計算結果が改善されたものの、まだ定量的な一致には不十分であることを示した。

「第5章 粒子間相互作用の導入」では、粒子間相互作用を考慮した新しい解析方法を提案した。まず、この計算を用いて、球・回転楕円体のような単純な粒子の相互作用現象を解析し、これと従来の2粒子相互作用解析手法とを比較して定量的に一致することを示し、新しい解析方法の妥当性を検証した。そして、本手法を Truncated-capsule-shaped model に適用し、その結果が実験結果とよく一致することを示し、すなわちプラズモン解析においては粒子間相互作用を導入することの重要性を示した。

「第6章 結論」では、本論文の総括と将来への展望を述べている。

以上まとめると、本研究においては、ナノ粒子の成長過程とプラズモン吸収スペクトルの関係を実験的に明らかにし、また、粒子間相互作用を導入することの重要性を示した。さらに、本解析手法は任意形状のナノ粒子の光学特性予測への応用が可能であることを示し、次世代の表面機能化技術として活用されていることが期待できる。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。