

Title	光圧による溶液中ナノ粒子の集合ダイナミクスに関する研究
Author(s)	細川, 千絵
Citation	大阪大学, 2005, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/46842">https://hdl.handle.net/11094/46842</a>
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉</a> 大阪大学の博士論文について <a>〉</a> をご参照ください。

***Osaka University Knowledge Archive : OUKA***

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

氏名	ほそかわ えだ ち え 細川 (江田) 千 絵
博士の専攻分野の名称	博 士 (工 学)
学位記番号	第 19880 号
学位授与年月日	平成17年12月31日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 工学研究科応用物理学専攻
学位論文名	光圧による溶液中ナノ粒子の集合ダイナミクスに関する研究
論文審査委員	(主査) 教 授 増原 宏 (副査) 教 授 河田 聡 教 授 岩崎 裕 助教授 大中幸三郎

#### 論 文 内 容 の 要 旨

本論文では、集光レーザービームの光圧による溶液中ナノ粒子の光捕捉および光集合の時間発展や粒子の運動をレーザー光強度、粒径、粒子濃度の関数として測定、解析することにより、単一粒子レベルでのナノ粒子の光集合現象の機構解明を行った。以下に各章の要旨を記す。

第1章では、現在までの光捕捉に関する研究を概観した上で、本研究の目的と意義について述べた。

第2章では、本研究において構築した実験装置および試料について述べた。

第3章では、単一光子計数法により光圧ポテンシャル内へのナノ粒子の光集合初期過程を調べた結果について述べた。ナノ粒子からの二光子励起蛍光強度の時間発展を解析し、その集合過程を粒子サイズ、照射レーザー光強度、および粒子濃度の関数として比較した。光圧ポテンシャルが大きい場合には、ナノ粒子が集光スポット内に1個ずつ光捕捉される集合過程が観測され、光圧ポテンシャルを導入した拡散律速過程として説明することができた。一方、光圧ポテンシャルが熱運動エネルギー $kT$ 程度である場合、2-3個の粒子が光捕捉され、集光スポット内から脱離する過程を見出し、光捕捉によって促進されたクラスター形成に起因する現象であると考察した。

第4章では、蛍光相関分光法により光圧ポテンシャル内のナノ粒子集合体成長過程を調べた結果について述べた。ナノ粒子の集合初期過程において、蛍光強度の自己相関関数の減衰の時定数 $\tau$ はレーザー光の照射時間とともに増加した。これは光圧による局所的な粒子濃度の増加に伴い、ナノ粒子のクラスター形成が誘起されるためと考察した。一方、集光スポットが光捕捉されたナノ粒子で満たされるにつれ、 $\tau$ が減少に転じた。このことは、光圧ポテンシャル内でのナノ粒子の会合が進行した結果、ナノ粒子クラスターの運動が弱い光圧ポテンシャル内でのバイアスを受けた運動から、強い光圧ポテンシャル内に閉じ込められた粒子の集光位置を中心とする揺らぎへと変化したためと考察した。レーザー光照射直後よりナノ粒子の光捕捉とクラスター形成が同時に進行し、集光スポット内に閉じ込められたクラスターが成長するというナノ粒子の光集合体成長過程を実験的に初めて明らかにした。

第5章では、これまでの実験結果を説明するために提案した、粒子のクラスター形成過程を理論的に検証するため、光圧ポテンシャルおよび粒子間相互作用ポテンシャルを考慮した二次元モンテカルロシミュレーションを行った。粒子間距離が静電反発ポテンシャル障壁を超えた場合にクラスターが形成されるとみなし、ナノ粒子および粒子クラスターの運動を計算した。計算結果は単純な二次元シミュレーションであるにも関わらず、第3章で述べた実験結果を定性的に再現したことから、クラスター形成を伴う光集合モデルを支持するものである。

第6章では、これまで用いてきた光捕捉のための近赤外レーザー光に加え、ナノ粒子中の色素が吸収する共鳴レーザー光を同時に照射し、単一ナノ粒子の光捕捉過程の変化を調べた結果について述べた。ナノ粒子を光捕捉する時間は共鳴レーザー光照射により高々数ミリ秒程度増加したのに対して、近赤外レーザー光を同時照射した場合には捕捉時間が数秒間にも増大することを見出した。この共鳴レーザー効果の増強は、二つのレーザー光により生み出される光圧ポテンシャルが各々の総和で表されるのに対し、ナノ粒子を光捕捉する時間は指数関数的に増加するためであると考察した。

第7章では本研究で得られた成果を総括し、今後の展望について述べた。

### 論文審査の結果の要旨

分子やナノ粒子の分散溶液にレーザー光を集光すると、光圧（光放射圧）が誘起され、その光圧特有の構造や光学特性をもつ集合体が集光スポット内に形成されることが知られている。この集合現象は、分子やナノ粒子の熱運動エネルギーや分子間、粒子間の相互作用エネルギーと光圧との相関で決まる現象であり、新しいダイナミクスの課題を提供している。その解明のためには、集合過程を光圧の強さ、粒子のサイズや濃度の関数として定量的に測定、解析する必要がある。本論文では、粒子サイズが均一であり、粒子間相互作用も取り扱い容易なポリスチレンナノ粒子を試料とし、単一粒子レベルでのナノ粒子の光集合現象を明らかにしている。以下に本研究の主な成果をまとめる。

(1) 単一光子計数法により単一ナノ粒子からの二光子励起蛍光強度の時間発展を測定し、ナノ粒子光集合の初期過程について考察している。光圧ポテンシャルが深い場合には光圧ポテンシャルを考慮した拡散律速過程として説明できるのに対し、光圧ポテンシャルが熱運動エネルギー程度の場合には光捕捉により促進されたクラスター形成に起因する現象として説明できることを明らかにしている。さらに、クラスター形成過程を理論的に検証するために、光圧および粒子間相互作用を考慮した数値シミュレーションを行い、クラスター形成を伴う光集合モデルが適用できることを証明している。

(2) 光圧ポテンシャル内のナノ粒子集合体成長過程を調べる新たな手法として蛍光相関分光法を導入し、光集合体成長の機構解明を行っている。集光スポットが光捕捉されたナノ粒子で満たされ、粒子の会合が進行するにつれて、ナノ粒子クラスターの運動が浅い光圧ポテンシャルのバイアスを受けた運動から、深い光圧ポテンシャル内に閉じ込められた粒子の集光位置を中心とする揺らぎへと変化することを見出している。すなわち、ナノ粒子の光捕捉とクラスター形成が同時に進行し、集光スポット内に閉じ込められたクラスターが成長するという新しい光集合体成長機構を実験的に初めて明らかにしている。

(3) 光捕捉のための近赤外レーザー光に加え、ナノ粒子中の色素が吸収する共鳴レーザー光を同時に照射し、単一ナノ粒子の光捕捉過程が変化することを見出している。共鳴レーザー光照射のみでナノ粒子を捕捉できる時間は高々数ミリ秒程であるのに対して、近赤外レーザー光を同時に照射した場合には捕捉時間が数秒間にも増大することを明らかにしている。これまでの光捕捉・光集合に関する研究はほとんどが非共鳴光によるものであったが、本研究においてナノ粒子の光捕捉に共鳴光を併用することにより新たな光操作の可能性が生まれることを示している。

以上のように、本論文では、集光レーザービームの下でのナノ粒子の光捕捉および光集合の時間発展や粒子の運動を解析することにより、単一粒子レベルでのナノ粒子の光集合機構を明らかにしている。本論文で得られた成果は、高分子、超分子、蛋白質などの結晶化や自己組織化、さらに相転移等の集団系ナノダイナミクスの理解につながるものであり、応用物理学、特にナノコロイドのレーザー科学に寄与するところが大きい。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。