



|              |                                                                                                                                                                       |
|--------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| Title        | Photothermal Responses of Noble Metal Nanoparticles under Laser Irradiation : Direct Observation of Nanoscale Heat Dissipation and Its Application to Photoprocessing |
| Author(s)    | 瀬戸浦, 健仁                                                                                                                                                               |
| Citation     | 大阪大学, 2017, 博士論文                                                                                                                                                      |
| Version Type | VoR                                                                                                                                                                   |
| URL          | <a href="https://doi.org/10.18910/61820">https://doi.org/10.18910/61820</a>                                                                                           |
| rights       |                                                                                                                                                                       |
| Note         |                                                                                                                                                                       |

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

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

The University of Osaka

論 文 内 容 の 要 旨

|                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                       |                                                                                                                                                                                                                            |
|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| 氏 名 ( 瀬戸浦 健仁 )                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                        |                                                                                                                                                                                                                            |
| 論文題名                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                  | Photothermal Responses of Noble Metal Nanoparticles under Laser Irradiation: Direct Observation of Nanoscale Heat Dissipation and Its Application to Photoprocessing (レーザー照射による貴金属ナノ粒子の光熱効果：ナノスケール熱移動の直接観測とその光プロセッシングへの応用) |
| <p>論文内容の要旨</p> <p>貴金属ナノ粒子・ナノ構造体の電子励起状態は、一般的には数ピコ秒以内に失活し非平衡的に高温状態を形成する。さらに、光照射条件によってはナノ粒子の融解やナノ粒子周囲の媒体への熱伝導などにより、周囲媒体の沸騰(気化)なども誘起される。これらの迅速な光熱変換特性は、ナノ空間における局所熱源への応用的観点から注目されており、局所加熱により誘起される周囲媒体を含めた非平衡下における微小領域のダイナミクスの定量的評価法の確立は、これらの応用的展開に対して必須な基礎的知見である。本博士論文では、単一微粒子顕微分光法および超高速時間分解分光法などの手法を開発・応用し、レーザー照射下における金ナノ粒子の時間空間分解測定を行った。加えて、周囲媒体やナノ粒子の支持基板への熱伝導を取り入れたMie理論に基づく数値計算手法を構築し、これらの光熱変換関連諸過程の定量的な解明を行った。</p> <p>本論文では、まず、これまでの金属ナノ粒子に対する研究の歴史、現在における研究の課題を述べた。次にレーザー照射によるナノ粒子の温度上昇を定量的に評価するために、光学顕微鏡下における分光計測装置を構築し単一金ナノ粒子の可視波長域のプラズモン共鳴スペクトルを測定した。加えて周囲媒体や基板への熱伝導を取り入れたMie理論に基づいて、プラズモン共鳴スペクトルの温度依存性に対する数値計算手法について言及した。これらの測定・解析の結果、600K 程度までのナノ粒子の温度上昇を±20Kの精度で決定できること、また熱伝導率の異なる周囲媒体や基板を用いた測定結果を定量的に説明できることを示した。金ナノ粒子が水中で高温までレーザー加熱された場合に水が爆発的に沸騰することによって生成するナノバブルについて、ピコ秒パルスレーザーを用いたナノバブルの生成・消滅過程のダイナミクスを直接観測し、さらに数値計算モデルを拡張・応用することで、定量的にバブルサイズの時間依存性が決定できることを示した。一方で、連続発振レーザー照射下においては、金属ナノ粒子の周囲にナノ・マイクロスケールの定常バブルが生成し、その周囲に高速な熱対流が駆動されることを見出した。定常バブルを対象として、数値計算手法に基づく詳細な解析を行うことにより、バブル表面に生じる数Kの温度差によってマランゴニ対流が駆動されていることを定量的に示した。最終章では、これらの研究結果を総括した。</p> |                                                                                                                                                                                                                            |

論文審査の結果の要旨及び担当者

|                |     |       |       |
|----------------|-----|-------|-------|
| 氏 名 ( 瀬戸浦 健仁 ) |     |       |       |
| 論文審査担当者        | (職) | 氏 名   |       |
|                | 主 査 | 教 授   | 宮坂 博  |
|                | 副 査 | 教 授   | 戸部 義人 |
|                | 副 査 | 教 授   | 芦田 昌明 |
|                | 副 査 | 准 教 授 | 伊都 将司 |

論文審査の結果の要旨

光を効率よく吸収し高速に熱への変換を行う金属ナノ粒子は、ナノ空間の微小熱源としての応用が期待されている。申請者はこれらの光熱変換過程の空間時間分解計測および数値解析手法を開発・応用し、光照射下における周囲媒体を含めた金属ナノ粒子の温度上昇に伴う基礎諸過程の定量的解明を行った。

まず、レーザー照射によるナノ粒子の温度上昇を定量的に評価するために、顕微鏡下における分光計測装置を構築し単一金ナノ粒子の可視波長域のプラズモン共鳴スペクトル測定を行い、周囲媒体や基板への熱伝導を取り入れたMie理論に基づいて、プラズモン共鳴スペクトルの温度依存性に対する数値計算手法を構築した。これを用いて測定結果を解析することにより、600K 程度までのナノ粒子の温度上昇を±20Kの精度で決定できることを示し、また熱伝導率の異なる周囲媒体や基板を用いた測定結果を定量的に説明できることを示した。

金ナノ粒子が水中で高温までレーザー加熱された場合、水が爆発的に沸騰することによってナノバブルが生成する。申請者はピコ秒パルスレーザーを用いてこのナノバブルの生成・消滅過程のダイナミクスを直接検出し、その結果の解析に対して上記の数値計算モデルを拡張・応用し、定量的にバブルサイズの時間依存性を決定した。パルスレーザー照射のみならず連続発振レーザー照射下においても、その強度を制御することによって、金属ナノ粒子の周囲にナノ・マイクロスケールのバブルを定常的に生成することが可能である。この定常ナノバブルの周囲には対流を誘起できるので、微小領域における物質輸送などへの応用も可能となる。申請者は、これらの定常バブル周囲の対流を実験的に検出し、数値計算手法に基づく詳細な解析を行うことにより、バブル表面に生じる数Kの温度差によって誘起されるマランゴニ対流の寄与が支配的であることを定量的に示すとともに、その対流速度も合理的に説明できることを示した。

以上の研究結果は、光照射下における金属ナノ粒子の周囲媒体を含めた光熱変換諸過程の定量的解明としての重要性のみならず、金属ナノ粒子・ナノ構造体のナノサイエンス、テクノロジーへの応用研究に対しても極めて重要な基礎的知見や解析手法を与えるものであり、博士（工学）の学位論文として価値のあるものと認められた。