



Title	伝搬型表面プラズモン共鳴により増強されたラマン散乱スペクトルの定量評価
Author(s)	本多, 巧一
Citation	大阪大学, 2023, 博士論文
Version Type	VoR
URL	<a href="https://doi.org/10.18910/92124">https://doi.org/10.18910/92124</a>
rights	Reproduced in part with permission from Honda K., Ishitobi H., Inouye Y.. Incident Angle Dependence of Raman Scattering for Distinct Vibrational Modes Enhanced by Surface Plasmon Resonance Excited on a Silver Thin Film. <i>Journal of Physical Chemistry C</i> 125, 27678 (2021); <a href="https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.1c09119">https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.1c09119</a> . Copyright 2021 American Chemical Society.
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 ( 本多巧一 )	
論文題名	伝搬型表面プラズモン共鳴により増強されたラマン散乱スペクトルの定量評価 (Quantitative evaluation of Raman scattering spectra enhanced by propagating surface plasmon resonance)
論文内容の要旨	

表面増強ラマン散乱 (surface-enhanced Raman scattering, SERS) は、金属ナノ構造体に励起される局在型表面プラズモン共鳴 (localized surface plasmon resonance, LSPR) により、金属表面近傍に存在する分子のラマン散乱光強度が増大する現象である。SERSはラマン散乱光の高感度検出を実現するが、表面プラズモン共鳴増強度 (Surface plasmon resonance enhancement factor, SPR-EF) が金属の微細な構造に敏感に依存することから、解析的な予測が難しい。ラマン散乱光は金属薄膜上に励起される伝搬型表面プラズモン共鳴 (propagating surface plasmon resonance, PSPR) によっても増強することができる。PSPRはナノ構造がない平坦な金属薄膜上に励起されることから、この増強ラマン散乱現象は、電磁界的に解析することができる。

本論文では、減衰全反射光学系とラマン分光計測光学系を組み合わせた光学実験装置を作製し、銀薄膜表面に励起したPSPRにより増強されたローダミン6G (R6G) の複数のバンド (618, 780, 1190, 1364, 1653 cm<sup>-1</sup>) のラマン散乱光強度の入射角度依存性を定量評価した。この研究により、5つのバンドのラマン散乱光強度の入射角度依存性は、入射光と各ラマン散乱光の波長の光のSPR-EFの積と一致することを見出した。さらに、バンド間のラマン散乱光の強度比と各ラマン散乱の分子振動モードを解析することにより、R6Gの共鳴ラマン散乱現象を定量的に評価することができた。以上のことから、この研究により銀薄膜表面に励起したPSPRによるR6Gの増強ラマン散乱現象を、SPR-EFと共にラマン効果により定量的に評価することに成功した。

さらに本論文では、高開口数対物レンズを用いたPSPR顕微光計測系とラマン分光計測光学系を組み合わせた顕微ラマン分光計測装置を作製し、金属薄膜に励起したPSPRによる増強ラマン散乱の分光計測を、対物レンズを用いた顕微光学配置で実現する研究を行った。対物レンズを介して銀薄膜へ入射する光の角度と偏光を制御して、銀薄膜上にPSPRを励起したときに、R6Gの増強ラマン散乱光が検出された。また、このラマン散乱光強度の入射角度依存性は、入射光のSPR-EFにより評価できることを確認した。この研究により、PSPRにより励起される表面増強ラマン散乱現象を高感度顕微ラマンイメージングに応用できる可能性を示した。

## 論文審査の結果の要旨及び担当者

氏名 ( 本多巧一 )		
	(職)	氏名
論文審査担当者	主査 教授	井上 康志
	副査 教授	木村 真一
	副査 教授	石島 秋彦
	副査 教授	上田 昌宏

## 論文審査の結果の要旨

本論文は、伝搬型表面プラズモン共鳴により増強されたラマン散乱光の励起および散乱特性を定量的に解析・評価した研究成果をまとめたものである。伝搬型表面プラズモン共鳴により増強されたラマン散乱光を分光計測する実験システムを構築し、ローダミン6G分子の複数の振動モードに対する表面増強ラマン散乱光強度を同時計測することで、入射角度依存性を測定した。電磁界解析と比較した結果、励起光による表面プラズモン共鳴およびラマン散乱光による表面プラズモン共鳴の電場増強効果が乗算的に増強に寄与していることを見出すとともに、分子特性に由来する共鳴ラマン効果を組み込むことで、各振動モードに対するラマン散乱光の検出強度比が互いに一致することも明らかにした。さらに、高開口数対物レンズを用いることで、伝搬型表面プラズモンによる表面増強ラマン散乱現象を、回折限界レベルで実現する光学系を設計・構築し、高感度顕微ラマンイメージング法に応用できる可能性を示した。これらの結果は、生命機能学、とくにバイオフォトニクス学の発展に貢献するところが大きい。よって本論文は、博士の学位を授与するに値するものと認める。なお、チェックツール“iThenticate”を使用し、剽窃、引用漏れ、二重投稿等のチェックを終えていることを申し添えます。