



# HOKKAIDO UNIVERSITY

|                     |                                                                                                                                                       |
|---------------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| Title               | Shape-dependent Surface-Enhanced Raman Scattering under Modal Ultrastrong Coupling between Self-Assembled Gold Nanoparticles and Fabry-Pérot Cavities |
| Author(s)           | 何, 芷毓                                                                                                                                                 |
| Degree Grantor      | 北海道大学                                                                                                                                                 |
| Degree Name         | 博士(ソフトマター科学)                                                                                                                                          |
| Dissertation Number | 甲第16794号                                                                                                                                              |
| Issue Date          | 2026-03-25                                                                                                                                            |
| DOI                 | <a href="https://doi.org/10.14943/doctoral.k16794">https://doi.org/10.14943/doctoral.k16794</a>                                                       |
| Doc URL             | <a href="https://hdl.handle.net/2115/99639">https://hdl.handle.net/2115/99639</a>                                                                     |
| Type                | doctoral thesis                                                                                                                                       |
| File Information    | Zhiyu_He_review.pdf, 審査の要旨 <a href="https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/">https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/</a>                    |



## 学 位 論 文 審 査 の 要 旨

博士の専攻分野の名称: 博士 (ソフトマター科学) 氏 名 HE Zhuyu

|       |    |     |               |
|-------|----|-----|---------------|
| 審査担当者 | 主査 | 教 授 | 居城 邦治         |
|       | 副査 | 教 授 | 比能 洋          |
|       | 副査 | 准教授 | 野々山 貴行        |
|       | 副査 | 准教授 | 三友 秀之         |
|       | 副査 | 准教授 | 石 旭 (電子科学研究所) |

## 学 位 論 文 題 名

Shape-dependent Surface-Enhanced Raman Scattering under Modal Ultrastrong Coupling  
between Self-Assembled Gold Nanoparticles and Fabry-Pérot Cavities  
(自己組織化金ナノ粒子とファブリ・ペロー共振器間のモード超強結合による形状依存表面増強  
ラマン散乱)

## 博士学位論文審査等の結果について (報告)

分子検出における高感度分析技術は、環境分析や生体診断など幅広い応用にとって重要であり、その中でも表面増強ラマン散乱 (SERS) は、金属ナノ構造に誘起される局在表面プラズモン共鳴によって微量分子のシグナルを増強する有力な手法として注目されている。しかしながら、SERS 感度や再現性はナノスケールの電磁場強度 (いわゆるホットスポット) に強く依存し、特にナノ粒子の形状や配列構造によって大きく変化することから、形状依存性の体系的理解が求められている。また、Fabry-Pérot (FP) 共振器などの光共振構造とナノ粒子の相互作用がプラズモンモードとどのように結合し、SERS 特性に影響を与えるかについての基礎的知見も十分ではない。

本論文では、自己組織化によって形成された金ナノ粒子薄膜として、三角形形状の金ナノプレート (AuNT) と等方的な球状ナノ粒子 (AuNS) を比較し、これらを半開放型 Fabry-Pérot 共振器上に配置することで、形状依存性と光・物質相互作用の観点から SERS 特性を系統的に解析した。FP 共振器は、金薄膜と誘電体薄膜 (TiO<sub>2</sub>) から構成され、これにナノ粒子薄膜を接合することで、局在表面プラズモンモードとキャビティモードとのモーダル超強結合が実現し、局所的な電磁場分布や吸収特徴がナノ粒子形状に応じて大きく変調されることが明らかになった。

本研究では、TiO<sub>2</sub> 層の厚さを系統的に変えることで FP 共振器と局在表面プラズモンモードとの結合状態を調整し、反射分光測定と有限差分時間領域 (FDTD) シミュレーションを用いてそのエネルギー分裂や場分布の変化を定量的に評価した。これにより、特に AuNT 薄膜では、ナノ粒子の三角形形状がもたらす頂点部での強いホットスポットと広いバンド幅のモーダル結合が特徴的な SERS 増強を示すことが明かにされた。一方、等方的な AuNS 薄膜では、狭い共鳴ピークと高い SERS 強度との関係が確認され、形状に依存した近接電磁場強度や分子アクセス性が SERS 応答に重要な役割を果たすことが明らかになった。さらに、AuNT および AuNS 薄膜上での SERS 計測において、アクセス性が低い条件下 (分析対象分子が希薄な条件) で形状依存 SERS 信号が特に顕著であることが示され、その背景には三角形粒子の鋭い頂点とエッジにおける局所電場の極大化が寄与していることが示唆された。これらの実験的知見は、SERS プラットフォームを設計する際に、ナノ粒子の形状とキャビティ共振との相互作用を意識することで高感度かつ安定した検出性能を達成できることを示している。

これらの成果は、ナノ粒子形状の物理化学的制御が SERS 感度と電磁場分布を根本的に左右するという基礎的な理解を提供するとともに、実用的な SERS センシングデバイスの設計指針として重要な示唆を与えるものである。

これを要するに、著者は、三角形プレート状金ナノ粒子の形状依存性に着目した **SERS** 特性の体系的解析と、Fabry-Pérot 共振器とのモーダル超強結合によるプラズモン場制御の基礎的理解に関して顕著な貢献をなすところ大なるものがある。

よって著者は、北海道大学博士（ソフトマター科学）の学位を授与される資格あるものと認める。