HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	Extending Plasmon Dephasing Time toward Nonlinear Photochemical Reaction Fields
Author(s)	武内, 浩輝
Description	この博士論文の全文は利用可能日以降に公開されます。
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(理学)
Dissertation Number	甲第16864号
Issue Date	2026-03-25
DOI	https://doi.org/10.14943/doctoral.k16864
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/99709
Type	doctoral thesis
File Information	TAKEUCHI_Hiroki_review.pdf, 審査の要旨 https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

学 位 論 文 審 査 の 要 旨

博士の専攻分野の名称　博士（理学）　氏名　武内　浩輝

審査担当者

主査　教授　村越 敬
副査　教授　佐田 和己
副査　教授　長谷川 靖哉
副査　助教　今枝 佳祐
副査　教授　上野 貢生

学 位 論 文 題 名

Extending Plasmon Dephasing Time toward Nonlinear Photochemical Reaction Fields
（非線形光化学反応場の実現に向けたプラズモン位相緩和時間の延長）

近年，金属ナノ構造における局在表面プラズモン共鳴を利用した光電場増強と，それを基盤とする光化学反応制御に関する研究が盛んに行われている。しかし，その多くは線形光学応答に基づく反応促進を主眼としたものであり，非線形光化学反応，とくに局所電場の時間的持続性が支配的となる反応場設計に関する研究は未だ十分に開拓されていない。とりわけ，プラズモンの位相緩和時間という時間軸の自由度を積極的に設計指針へ取り込んだ研究は限られており，今後の発展が強く期待される分野である。

本論文は，このような研究背景のもと，結合系プラズモニックナノ構造における位相緩和時間の能動的制御に着目し，光電場増強の高効率化と非線形光化学反応場への応用を体系的に検討したものである。著者は，金属／誘電体／金属ナノ構造および励起子－プラズモン強結合系を研究対象とし，近接場分光，時間分解測定，電磁界シミュレーションを組み合わせることで，位相緩和時間と光電場増強の相関を定量的に明らかにした。

第 2 章では，金属／誘電体／金属ナノ構造において誘電体層厚を制御することで，逆位相双極子結合による放射損失抑制が生じ，プラズモン位相緩和時間が系統的に延長されることを実験的・理論的に示した。さらに，位相緩和時間の増大が近接場励起強度の増強に直接的に寄与することを明確にし，時間軸を含む光電場設計の重要性を示した点は高く評価される。

第 3 章では，位相緩和時間の長いポルフィリン J 会合体と金ナノブロック構造を用いた励起子－プラズモン強結合系を構築し，形成されるハイブリッドモードにおいて位相緩和時間が延長されることを示した。反交差構造やラビ分裂の観測に加え，ハイブリッド準位における光電場増強を実証した点は，結合系プラズモニック構造の有効性を明確に裏付ける成果である。

第 4 章は本論文の中核を成す章であり，励起子－プラズモン強結合系を単なる局所電場増強場としてではなく，逐次二光子吸収を介した非線形光反応場として機能させることに成功している点が特筆される。著者は，ハイブリッド構造を増強場として用い，逐次二光子吸収によりポルフィリン J 会合体の高励起状態（S_2）を効率的に励起し，そこからのエネルギー移動を介してメロシアニンの励起状態を形成する反応系を精密に設計・構築した。その結果，メロシアニンを直接プラズモン構造上に配置する場合と比較して，より弱いレーザー光強度で，かつ広い空間領域において光異性化反応を誘起できることを実証した。この成果は，同時二光子吸収に依存する従来型非線形反応場とは異なり，位相緩和時間の延長と逐次二光子吸収を組み合わせることで，エネルギー移動損失を含めても反応効率と反応領域の双方を拡張できることを示した点で，非線形光化学反応場設計に新たな概念を導入するものである。

これを要するに，著者は，結合系プラズモニックナノ構造における位相緩和時間制御という新たな視点から，非線形光化学反応場の構築と高効率化に関する重要な新知見を得たものであり，光化学およびナノフォトニクス分野の発展に対して学術的に貢献するところ大なるものがある。

よって著者は，北海道大学博士（理学）の学位を授与される資格あるものと認める。