

審査の結果の要旨

氏名 沈 鵬

「プラズマ CVD による蛍光シリコンナノ粒子の合成」と題した本論文は、低圧高周波プラズマ CVD での四臭化珪素ガス分解反応を用いることで、シリコンナノ粒子の合成や応用について、極めて安定な蛍光特性を示すシリコンナノ粒子を気相プラズマ中で製造する方法と水分散化のための表面修飾方法を確立し、粒子径の制御と細胞染色への応用を検討することを目的とした研究であり、5章から構成されている。

第1章は序論であり、研究背景および研究目的を述べている。冒頭では、将来期待されるナノテクノロジーの応用例を紹介し、特に光学特性を示す半導体ナノ粒子の合成と応用について総説を述べている。その中で、**CdSe** ナノ粒子は、生体に対する毒性が強く実際の応用は困難であると述べている。毒性低いシリコンナノ粒子は、他の半導体粒子に比べ、研究が十分進んでいるとは言えない。シリコンで量子サイズ効果を出現させるためには、**5nm** 以下の結晶を合成しなければならないが、容易に酸化されるため、その合成は難しい。また、シリコンナノ粒子で最重要課題の一つである水分散化に注目し、バイオイメージングへの展開を示し、本論文の具体的な研究目的を示している。

第2章では、シリコンナノ粒子の合成に関して述べている。安全性と反応性の観点から、新たな前駆体として **SiBr₄** を用いており、高周波プラズマ場でガス分解反応を用いることで、連続合成に成功している。得られたシリコンナノ粒子は粒径に応じた蛍光を示している。長時間経ても蛍光強度は **80%** 程度を維持し、長期安定性も持ち合わせている。粒子のサイズ、結晶性または光学特性などの基本物性をまとめている。

第3章では、プラズマが引き起こすシリコンナノ粒子の生成メカニズムを扱っている。プラズマパワーによる、プラズマ状態の変化を観察している。プラズマパワーの大小に応じて、プラズマ空間のモード変化が起こる。合成圧力による粒径の変化と蛍光スペクトルのシフトも観察されている。低い圧力の場合には、粒子径は大きくなる。滞留時間の明確な依存性が観察されなかったことから、古典的核発生理論を用いて原料分圧の粒径への依存性を説明している。ナノ粒子の発光メカニズムも検討し、量子サイズ効果による蛍光発現であるとしている。

第4章では、第2章で合成されたシリコンナノ粒子の水分散化のための表面修飾とバイオイメージングの応用に関して論じている。本論文では、二種類の表面修飾方法を用いており、水分散化やバイオ応用を確認している。まずは、既往の研究で開発されたアミン修飾方法を用いており、水分散できる粒子の光学特性が既往の研究と一致していることを確認している。さらに、両親媒性ブロックコポリマー (F127) を用いて、水分散化を施し、数十ナノメートルの凝集サイズを持ったシリコンナノ粒子水分散液を得ている。この粒子を用いて、例えば、生細胞内の小胞体を選択的に染色することを明らかにしている。また、励起光の照射時間に対する蛍光強度変化を測定し、表面修飾したシリコンナノ粒子の蛍光はほとんど褪色せず、従来の有機色素に比べて、優れた安定性を持つことを明らかにしている。

以上要するに、本論文は化学工学および材料化学の考え方に基づき、安定性に優れた蛍光特性、また可視光全域の蛍光色を発する示すシリコンナノ粒子の製造方法を開発およびその生成メカニズムを明らかにし、水分散化の表面修飾方法を開発し、細胞イメージング応用を狙っている。機能性ナノ材料の生成メカニズムから応用までを検討した本論文は、化学システム工学への貢献が大きいと考えられる。また、一般に学術的研究対象である材料合成と機能化の実例を示している点は工学への貢献が大きいものと考えられる。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。