



| | |
|--------------|---|
| Title | 有機材料の高速非線形光応答過程に関する研究 |
| Author(s) | 鎌田, 賢司 |
| Citation | 大阪大学, 1997, 博士論文 |
| Version Type | VoR |
| URL | https://doi.org/10.11501/3144128 |
| rights | |
| Note | |

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

| | |
|---------------|--|
| 氏 名 | 鎌 田 賢 司 |
| 博士の専攻分野の名称 | 博 士 (工 学) |
| 学 位 記 番 号 | 第 1 3 4 8 4 号 |
| 学 位 授 与 年 月 日 | 平 成 9 年 12 月 16 日 |
| 学 位 授 与 の 要 件 | 学位規則第 4 条第 2 項該当 |
| 学 位 論 文 名 | 有機材料の高速非線形光応答過程に関する研究 |
| 論 文 審 査 委 員 | (主査) 教 授 増 原 宏 (副査) 教 授 中 島 信 一 教 授 伊 東 一 良 教 授 萩 行 正 憲 |

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、有機材料における高速の非線形光応答過程について、その材料を構成する分子の電子状態との関係を研究した成果をまとめたものであり、序論、総括を含めて8章より構成されている。

第1章では、序論として本研究の背景、目的、意義と本論文の構成を述べている。

第2章では、本研究で用いる高速三次非線形光学応答の測定手法である光ヘテロダイン検出光カー効果 (OHD-OKE) 法について述べている。

第3章では、複素フーリエ変換解析により OHD-OKE 応答を電子および核成分に分離できることを示し、チオフェン同族体 (C_6H_4X) の電子成分から第二超分極率を求め、この第二超分極率がヘテロ原子 (X) の重原子置換に伴い2倍にまで増大することを見いだしている。また、第一原理分子軌道計算によっても第二超分極率を求め、計算結果と芳香族性に関する考察から、重原子置換による第二超分極率の増大は主にヘテロ原子に局在化している孤立電子対に起因していると結論している。

第4章では、重原子置換がチオフェン同族体の OHD-OKE 応答の核成分に与える影響を調べている。時間領域での解析の結果、配向緩和時間が重原子置換に伴い3倍にまで増加するとともに、粘度とよい相関を示すことを見いだしている。周波数領域での解析と低振動数ラマンスペクトルの測定から、この結果を分子揺動と衝突誘起効果に基づいて解釈している。

第5章では、チオフェン/四塩化炭素二成分系の OHD-OKE 応答の配向緩和時間が、両成分の間に形成された電荷移動錯体の影響により変化することを示している。

第6章では、色素ドープ微粒子のレーザー発振光の時間プロファイルを測定し、ピコ秒オーダーの短パルス発振を初めて示すとともに、発振光の減衰は色素の再吸収が主因であることを明らかにしている。これに基づき、さらに導入した第2の色素の過渡吸収によりレーザー発振の強度および減衰過程を光によって動的に制御する新しい非線形光応答過程を提案している。

7章では、色素の光分解の抑制が期待される有機修飾シリカを用いた微粒子を作成し、レーザー発振を確認すると

ともに、共振のQ値を左右する微細な構造があることを示し、新しい非線形光応答材料としての問題点を明らかにしている。

第8章では、本研究で得られた成果を総括し、将来の展望について述べている。

論文審査の結果の要旨

将来における高速光情報処理には光-光スイッチングが大きな役割を果たすと期待されており、この高速光-光スイッチングデバイスの実現のためには、高速の非線形光応答過程に関する微視的機構を明らかにすることが重要となっている。本論文は、有機材料を対象に、高速の非線形光応答過程である三次非線形光学応答と微粒子のレーザー発振について、材料を構成する分子の電子状態と関係づけて理解することを目的としたものであり、本論文で得られた主な成果を列挙すると次の通りである。

(1) 極短光パルスを用いて、ヘテロ原子を持つ有機化合物であるテオフィン同族体の高速三次非線形光学応答を実験的に調べ、その応答を複素フーリエ変換を用いた解析法により定量的に電子成分と核成分に分離することに成功している。

(2) 非線形光学応答の電子成分から、ヘテロ原子の重原子置換によって分子の第二超分極率が増加することを明らかにし、その増加が、主にヘテロ原子の孤立電子対による寄与が大きいこと、重原子置換に伴う分子の電子励起エネルギーの減少と相関があることを明らかにするとともに、第二超分極率の第一原理分子軌道計算を行い、実験値をよく説明している。

(3) 非線形光学応答の核成分が配向緩和、分子揺動、衝突誘起効果からなることを示し、ヘテロ原子の違いを分子間相互作用エネルギーの観点から論じ、問題解決の方向を示している。また、チオフィン分子の配向緩和が、錯体形成による溶媒-溶質間の電荷移動相互作用により、特異的に変化することを見いだしている。

(4) 色素ドーブポリマー微粒子のレーザー発振光の高速時間応答を調べ、ピコ秒オーダーの短パルス発振が起きていることを初めて示すとともに、発振光の時間減衰が色素分子の再吸収によるものであることを明らかにし、さらに、第2の色素の過渡吸収を用いてレーザー発振光の減衰過程が動的に制御可能であることを示している。また、色素ドーブ有機修飾シリカ微粒子の作製を行い、シリカ系では初めてレーザー発振を確認するとともに、レーザー発振と微粒子の内部構造との関係について知見を得ている。

以上のように本論文は、有機材料の高速非線形光応答過程について、その応答のメカニズムと材料を構成する分子の電子状態との関係について、多くの基本的な知見を与えており、応用物理学、特に有機材料のレーザー科学に寄与するところか大きい。よって、本論文は博士論文として価値あるものと認める。