有機フォトリフラクティブポリマーは、より優れた特性の実現のための材料設計の自由度の大きな材料であり、高い機能を持つフォトリフラクティブ素子を安価に作製できる可能性を持つ優れた材料である。特にPVKをベースとした材料は、大きな屈折率変化を示し、1994年のアリゾナ大学のグループによる報告以来、高い注目を集めている。

しかしながらこの材料は、微結晶化および相分離が起こりやすく、実用デバイスへの応用という点では非常に大きな問題を持つ。また応答速度も 100 ms 程度で、ビデオレートでの処理には遅すぎる。そこで本研究では、材料の分子設計により、大きな屈折率変化を維持したまま材料の安定性を高めつつ、応答速度の向上を実現する試みを行った。

本研究では、非線形分子に側鎖を付けることにより、材料全体のガラス転移温度を下げるとともに、構造的に回転のしやすさを高め、応答速度を向上させることを試みた。同時に電荷輸送剤をPVKからTPDに変えることにより、空間電荷の形成速度の向上を図った。さらに相分離と微結晶化の抑制も試み、素子の構成分子の構造設計による総合的なフォトリフラクティブ特性の向上を目的として研究を行った。

本論文は以下の7章からなる。以下に各章の内容を要約する。

第1章では、有機フォトリフラクティブポリマーに関するこれまでの研究の経緯、本研究の 背景について紹介し、これらを踏まえた上で本研究の目的を示し、さらに本論文の構成に ついて述べている。

第2章では、フォトリフラクティブ効果について述べている。まず、無機フォトリフラクティブ材料のバンド輸送モデルについて説明し、次いで一般的なフォトリフラクティブ材料の特性に関して述べ、さらに有機フォトリフラクティブ材料における効果の発現の仕組みについて述べている。有機フォトリフラクティブ材料にはいくつかの種類があり、これらに関する解説と、電荷の生成、移動、非線形光学効果、を発現する分子の種類と、そのメカニズムについて述べている。

第3章では、非線形光学分子の構造設計によるフォトリフラクティブ効果の高速化について述べている。非線形分子DMNPAAに側鎖を付加することにより、分子分極の大きさを減少させること無く、系のガラス転移温度を下げ、高速化を図った。分子の分散性、電場印加時の分子の回転速度、光伝導性について測定し、総合的にフォトリフラクティブ応答速度が向上したことを確認し、さらに性能向上に関する個々の要因についても検討を加えている。非線形分子の回転の速度の向上に比して、総合的なフォトリフラクティブ効果の応答速度の向上は大きくないことが明らかになったが、これは回転速度が十分速くなった結果、律速過程が空間電場の形成過程に移ったことを示している。

第4章では、第3章の結果を踏まえて、ニトロ基およびシアノ基を付加することの効果につ

いて検討した。分子の分散性、電場印加時の分子の回転速度、光伝導性について測定し、これらの付加に関しては、効果は限定的であることが明らかになった。

第5章では、空間電場の形成速度の向上を目指して、電荷輸送剤をPVKからTPDに変えた場合のフォトリフラクティブ効果の性能向上の検討を行った。光伝導度、非線形分子の回転速度、総合的なフォトリフラクティブ特性の検討を行った。屈折率変化の大きさは小さいものの、著しい速度の改善が実現されている。

第6章では安定性の向上のための一歩進んだアプローチに関して述べられている。微結晶化は材料の安定性を損なう大きな要因だが、微結晶化の起こりやすさと大きな関係のある核形成速度が、動作温度が系の融点に近づくにつれて小さくなることから、室温動作を前提として、系の融点を下げることにより安定性の向上を図った。ここでも非線形分子に付加する側鎖を変えることにより、融点を下げた。その結果、系の安定度は著しく向上し、数ヶ月から半年以上の保存寿命を持つ材料が実現された。また耐電圧性能も向上し、素子にかけられる電圧が大きくなったため、実効的な屈折率変化も大きくなった。

第7章では、本研究の結果がまとめられている。

以上のように、本研究は優れた性能を持ちながら、応答速度が遅い、保存寿命が短い、といった実用上致命的な欠陥を持つ PVK をベースとした有機ポリマー・フォトリフラクティブ材料に関して、主に非線形分子にさまざまな側鎖を付加することにより、分子設計による応答速度の向上と安定性の向上を実現した。本研究の特徴は、これまでの有機ポリマー・フォトリフラクティブ材料が、ガラス転移温度を上げることにより材料の安定性の向上を図っていたのに対し、逆にガラス転移温度を下げることにより、応答の高速化をはかり、その上で、分子設計により安定性の向上をはかるという、新たなアプローチを取ったことにある。本研究により、ガラス転移温度を下げても、十分に安定、かつ高性能なフォトリフラクティブポリマー材料が実現できることが示され、この材料の実用化に大きく踏み出すことができたといえる。本研究は今後の実用デバイス実現に向けてこれまでに無い方法論を示したという意味で重要な意義があり、物理工学の発展への寄与は大きい。よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。