

論文内容の要旨

博士論文題目 Cooperative behaviors in optically pumped lasing from thiophene/phenylene co-oligomer single crystals
(チオフェン/フェニレン)コオリゴマー単結晶の光励起レーザー作用における協同的な振る舞い)

氏名 松尾 匠

(論文内容の要旨)

可視光領域における高い発光波長チューナビリティを有する有機半導体レーザーの実現が期待されている。レーザー発振は通常、励起子からの誘導放射に由来する現象であるが、これに対して励起子と光の強結合である励起子ポラリトンからより低エネルギーでレーザー発振が起こることが知られている。中でも、(チオフェン/フェニレン)コオリゴマー(TPCO)と呼ばれる分子群は、室温下において安定なレーザー作用を示す媒質として注目され、励起子ポラリトンや超蛍光に由来する分子間協同現象を示唆する挙動が報告されている。本研究ではTPCO類の一種であるBP3Tとその誘導体分子の結晶を用いて光励起レーザー発振特性を調べ、その協同的な振る舞いを励起子ポラリトン、超蛍光の観点から解釈した。

まず、BP3Tの分子末端にメトキシ基及びシアノ基を導入したBP3T-OMe及びBP3T-CNを合成し、それらの単結晶がBP3Tとは異なる結晶構造を有していることを明らかにした。BP3Tおよびその誘導体の薄板状結晶はいずれも光励起下でレーザー作用が得られ、結晶中での分子配向の違いによって面発光型レーザー発振素子や結晶を自己導波路共振器とするレーザー媒質に適した材料であることを示した。

次に、BP3T単結晶をターゲットとして、そのレーザー発振特性の閾値前後に見られるスペクトルの異常分裂に着目し、レーザー発振スペクトルのエネルギーvs波数プロットを行うことで、その起源を調べた。その結果、BP3T単結晶からのレーザー発振時のエネルギー分散特性は励起子ポラリトンに特徴づけられ、振電遷移の0-1帯、0-2帯に現れる異常分裂は分子振動をまとった励起子ポラリトンが関与していることを明らかにした。さらに、BP3T単結晶の発光増幅励起閾値の励起面積依存性ならびに閾値前後に見られる時間遅れを伴ったパルス型発光が通常の誘導放出に基づくレーザー発振とは異なる超蛍光な協同的発光増幅現象であると結論づけた。

(論文審査結果の要旨)

本論文は、可視光領域における高い発光波長チューナビリティを有する有機半導体レーザーの実現を目指して、(チオフェン/フェニレン) コオリゴマー (TPCO) を用いて、通常の励起子からの誘導放射に由来するレーザー発振とは異なり、励起子と光の強結合である励起子ポラリトンや超蛍光と呼ばれる協同的発光増幅現象に基づくレーザー作用の解明を目的としている。

第 1 章では、TPCO 単結晶からのレーザー発振に関する先行研究や分子間協同現象が関与した超蛍光、励起子ポラリトンについて概説した後、本研究の目的を述べている。

第 2 章では、根岸カップリング反応を用いて代表的な TPCO である BP3T の分子末端にメトキシ基及びシアノ基を導入した BP3T-OMe 及び BP3T-CN を新規に合成している。これらの誘導体分子を用いて昇華法により薄板状単結晶を作製し、X 線構造解析から BP3T とは異なる結晶構造を同定し、結晶中での分子配向制御により面発光型レーザー素子や結晶を自己導波路共振器とするレーザー媒質として有望な材料であることを示している。

第 3 章では、BP3T およびその誘導体を用いて新規に提案した溶液法により良質な単結晶を作製し、パルス光励起下において結晶の両端面をファブリ・ペロー (F-P) 共振器としたレーザー発振を得ている。また、レーザー発振スペクトルから算出した屈折率および共振器の Q 値はいずれも高く、単結晶状態で非常に優れたレーザー媒質であることを示している。

第 4 章では、BP3T 単結晶をターゲットとして、そのレーザー発振特性の閾値前後に見られるスペクトルの異常分裂に着目し、レーザー発振のエネルギー vs 波数プロットを行うことで、その起源を調べている。その結果、BP3T 単結晶からのレーザー発振時のエネルギー分散特性は励起子ポラリトンに特徴づけられ、振電遷移の 0-1 帯、0-2 帯に現れる異常分裂は分子振動をまとった励起子ポラリトンが関与していることを明らかにしている。さらに、BP3T 単結晶の発光増幅励起閾値の励起面積依存性ならびに閾値前後に見られる時間遅れを伴ったパルス型発光が通常の誘導放出に基づくレーザー発振とは異なる超蛍光な協同的発光増幅現象であると結論づけている。

第 5 章では、本研究の総括を述べている。

以上のように本論文では、TPCO 誘導体結晶が協同的発光増幅現象に基づく有機レーザーとして有望であることを示しており、学術的に意義がある。よって、審査委員一同は、本論文が博士 (理学) 論文として価値あるものと認めた。