

論文内容の要旨

論文題目 非破壊再生型光記録を目指した
光応答性希土類錯体の開発に関する研究
氏名 中川 哲也

希土類錯体は 4f-4f 遷移に基づく色純度の高い強発光を示すことから、ディスプレイ、レーザー発振媒体、有機 EL 素子を始めとする有機材料科学分野から、バイオイメージングといった生命科学分野において広く研究されている。この希土類錯体の発光を光によって制御できれば光記録や光スイッチといった新しい研究領域の開拓が期待されるが、希土類錯体の発光を光制御するための方法論はこれまでに開拓されていなかった。本論文では、このような背景のもとに進められた希土類錯体の光で制御する新たな方法に関する研究成果がまとめられている。希土類錯体の発光特性は希土類イオンを取り巻く配位子場に対して敏感に応答することに着目し、希土類錯体の配位子場をフォトクロミック反応によって制御するために新規に設計され合成された光応答性希土類錯体について検討されている。光応答性希土類錯体において初めて見出された紫外光-可視光照射に伴う可逆な発光特性変化が本論文において報告されている。その発光特性変化の機構解明を行うために、低温発光スペクトル測定によるシュタルク分裂解析、発光の速度論解析および DFT 計算による配位子の電荷分布計算を行い、フォトクロミック配位子の光異性化に伴う電荷分布変化が希土類錯体の発光特性に影響を与えることが明らかにされている。さらに光応答性希土類錯体の分子構造を精密設計・合成することにより、フォトクロミック反応に伴う発光の非破壊読み出しに初めて成功し、高密度光記録材料への展開が可能であることが示された。また、光応答性希土類錯体の 4f-4f 直接遷移に起因する吸収バンドの光制御についても成功している。

以上、本論文では光応答性希土類錯体の合成と光物性に関する研究を通して、希土類錯体化学における新研究領域の開拓に成功した研究成果がまとめられており、その内容は関連分野の研究に多大な影響を与えるものと期待される。

氏名	中川 哲也
----	-------

(論文審査結果の要旨)

希土類錯体は 4f-4f 遷移に基づく色純度の高い強発光を示すことから、ディスプレイ、レーザー発振媒体、有機 EL 素子を始めとする有機材料科学分野から、バイオイメージングといった生命科学分野において広く研究されている。この希土類錯体の発光を光によって制御できれば光記録や光スイッチといった新しい研究領域の開拓が期待されるが、希土類錯体の発光を光制御するための方法論はこれまでに開拓されていなかった。このような背景のもと、本論文提出者は希土類錯体の発光特性が希土類イオン周りの配位子場に敏感に応答することに着目し、希土類錯体の配位子場を光によって制御する研究課題に取り組んだ。具体的には、光によって分子構造が可逆に変化する「フォトクロミック分子」を光応答性配位子として希土類錯体に導入した光応答性希土類錯体の開発を検討した。検討の結果、紫外光-可視光照射に伴う希土類錯体の可逆な発光特性変化が本研究において初めて見出された。その発光特性変化の機構解明を行うために、低温発光スペクトル測定によるシュタルク分裂解析、発光の速度論解析および DFT 計算による配位子の電荷分布計算を行い、フォトクロミック配位子の光異性化に伴う電荷分布変化が希土類錯体の発光特性に影響を与えることを明らかにした。さらに光応答性希土類錯体の分子構造を精密設計・合成することにより、フォトクロミック反応に伴う発光の非破壊読み出しに初めて成功し、高密度光記録材料への展開が可能であることを立証した。また、光応答性希土類錯体の 4f-4f 直接遷移に起因する吸収バンドの光制御も達成した。

以上、本論文では光応答性希土類錯体の合成と光物性に関する研究を通して、希土類錯体化学における新研究領域の開拓に成功した。本研究で得られた知見は、希土類錯体の光物性の基礎科学のみならず、光記録物質などの材料開発に大きな指針を与えるものである。よって審査員一同は本論文が博士（工学）の学位論文として価値あるものと認めた。