

氏名	アルダス アビシカ ARUL DHAS ABISHAKA
学位(専攻分野)	博士(学術)
学位記番号	博 1 2 0 2 号
学位授与の日付	令和 8 年 3 月 23 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研究科・専攻	工芸科学研究科 物質・材料化学専攻
学位論文題目	Development of Rewritable Photochromic Materials for Dynamic Holographic Applications (動的ホログラフィー応用に向けた書き換え型フォトクロミック材料の開発)
審査委員	(主査) 准教授 木梨 憲司 教授 坂井 亙 教授 小堀 哲生 准教授 浅岡 定幸

論文内容の要旨

ホログラフィー記録材料は、大別して一度のみ記録可能な一次書き込み型材料と、消去・再書き込みが可能なリライタブル材料に分類される。一次書き込み型材料は恒久的なホログラムを形成でき、一方、これに対し、リライタブル材料は繰り返しホログラムの書き換えが可能であり、3Dディスプレイや次世代光情報記録技術として注目されている。初期の動的ホログラフィーはフトリフラクティブポリマーを中心に発展してきたが、記録時に外部電場を必要とする点が実用化の障壁となっていた。一方、アゾベンゼン誘導体は、可逆的なトランス-シス光異性化に基づく偏光選択的応答を示すことから、有望なリライタブルホログラフィー材料として広く研究されてきた。しかしながら、青色域での強い吸収や記録ホログラムの保持安定性の不足といった課題が残されている。近年の材料研究では、単なる分子設計に留まらず、フィルムの多層化や分子間相互作用制御を活用した新たな機能発現が重視されており、高効率化と長期安定性の両立が可能になりつつある。

本研究では、書き換え可能ホログラフィー材料の性能向上を目的として、DNA-界面活性剤複合体とアゾ系光応答性高分子を組み合わせた多層膜構造の導入、および新規アゾメチン-カルバゾール色素の分子設計に基づくスペクトル特性の制御を行った。これにより、ホログラム保持特性の向上と可視光全域に対応したフルカラー動的ホログラフィーの実現を目指し、光学機能材料としての新たな設計指針を確立することを目的とした。

本論文は全六章で構成され、各章の内容は以下のとおりである。

第 1 章では、動的ホログラフィー材料の研究背景と課題を概説し、本研究の目的および全体構成について述べた。とくに、アゾ系光応答材料における保持安定性と分光応答制御の重要性を示し、多層構造設計および分子設計による解決方針を提示した。

第 2 章では、ホログラフィーの基本原則、回折理論、記録材料の分類について体系的に整理し、一次書き込み型およびリライタブルホログラフィー材料に関する先行研究を総括した。特に、アゾベンゼン系材料を中心とした光応答機構とその限界について詳述した。

第 3 章では、DNA-界面活性剤複合体とアゾカルバゾール系共重合体からなる多層膜構造を作

製し、その光学特性およびホログラム記録特性を評価した。界面での静電相互作用による分子拘束効果により、回折効率およびホログラムの保持特性が顕著に向上することを明らかにした。

第4章では、短波長応答を示す新規アゾメチン-カルバゾール色素を合成し、アクリル樹脂マトリックス中に分散させた光応答性薄膜を作製した。これにより、従来困難であった青色域でのホログラム再生が可能であることを実証した。

第5章では、アゾメチン-カルバゾール誘導体およびカルバゾール修飾ベンゾチアゾリウム色素について、分子構造と光学特性の相関を系統的に解析した。分子内電荷移動効果による π 共役系の拡張が吸収特性およびホログラム応答に及ぼす影響を明らかにし、新しい分子設計指針を提示した。

最終章では、本研究で得られた成果を総括するとともに、提案した多層構造設計および分子設計戦略の意義を論じ、今後の動的・フルカラーホログラフィー材料への展開可能性について述べ、本論文を締めくくった。

論文審査の結果の要旨

動的かつ高機能な光情報記録材料として、書き換え可能ホログラフィー材料が注目されている。とくにアゾベンゼン系光応答性材料は、可逆的な光異性化に基づく偏光選択的記録が可能であり、電場を必要としない全光学的書き換え材料として有望である。一方で、従来材料ではホログラムの保持安定性や可視光全域での光学的透明性に課題があった。申請者はこれらを解決するため、分子設計に加えて構造設計の観点を導入し、DNA-界面活性剤複合体とアゾカルバゾール系光応答性高分子からなる多層膜構造を提案した。その結果、単層膜に比べて回折効率および保持安定性が向上し、それは界面での静電相互作用を介した分子拘束効果であると結論付けた。さらに、短波長応答を示す新規アゾメチン-カルバゾール色素を設計・合成し、アクリル樹脂中に分散させることで、青色域でのホログラム再生を可能とした。分光評価および回折効率測定により動的記録挙動を定量評価し、加えて各種誘導体やカルバゾール修飾ベンゾチアゾリウム色素の系統的検討から、色素発色団や助色団が光学特性に及ぼす影響を整理した。多層構造設計と分子設計を組み合わせることで、記録効率、保持安定性、分光制御性を同時に向上できることを実証した点は高く評価される。

これらの成果により、申請者は書き換え可能ホログラフィー材料における長期安定化とフルカラー化という重要課題を解決し、次世代光情報記録や表示・セキュリティ応用への展開に資する有用な知見を提供したものと認められる。

本学位論文の基礎となった学術論文2編は、査読制度の確立した学術雑誌に掲載されており、いずれも申請者が筆頭著者である。また、参考論文として共著論文1編があり、本論文に関連した内容が記述されている。

[主論文]

1. Abishaka Arul Dhas, Kenji Kinashi, Wataru Sakai, Naoto Tsutsumi, Boaz Jessie Jackin, “Photoresponsive azomethine-carbazole PMMA film for full-color holography”, *Chemistry*

Letters, 54(9), upaf168 (2025).

2. Abishaka Arul Dhas, Diaan Hamed Abdelshafy Abdelsalam, Kenji Kinashi, Wataru Sakai, Naoto Tsutsumi, Boaz Jessie Jackin, "Multilayered DNA-Complex/Azo-Carbazole Films for enhanced holographic recording", *Photonics*, 13(1), 1 (2026).

[参考論文]

3. Diaan Hamed Abdelshafy Abdelsalam, Abishaka Arul Dhas, Ikuma Yamazaki, Kenji Kinashi, Naoto Tsutsumi, Boaz Jessie Jackin, "Carbazole-modified benzothiazolium dye composites for holographic application", *Journal of Photochemistry & Photobiology, A: Chemistry*, 474, 116960 (2026).