

## 審査の結果の要旨

論文提出者 堀井和由

本論文は「分子配向スペクトロスコピー法の開発と複雑流体における異方秩序形成過程の研究」と題し、3種類の外場を用いた複雑流体の局所的異方性秩序を制御・検出する測定法を開発し、異方性形成の分子素過程を研究することを目的としている。

液晶、高分子などのソフトマテリアルは外場に対して容易に応答し、その光学的物性や粘弾性などの力学物性に異方性が現れることが知られている。この外場応答性を利用したデバイス応用の面から、複雑流体における分子配向制御技術には現在大きな関心が集まっている。本研究では外場を用いた局所領域における分子配向スペクトロスコピー法の開発と、さまざまな複雑流体における異方的秩序形成過程の観察を行った。実験に用いた装置はすべて論文提出者が独自に開発したもので、従来は測定困難であった実験条件下でも分子配向ダイナミクスを観察できるという特徴がある。本論文は開発した測定手法に応じて章立てがなされており、それぞれ配向を誘起する外場として光電場、ずり流動、定在超音波を用いたシステムについて記述されている。

本論文は4章から構成されている。

第1章は「序論」であり、本研究の背景と目的、および本論文の構成について述べられている。

第2章は「光電場による配向制御」と題し、光吸収性試料にも適用できる光カー定数スペクトロスコピー法の開発と光カー効果増大現象の機構に関して記されている。色素・液晶混合系ではレーザー光照射に伴う熱的效果が不可避であり、パルス光を用いた従来の測定法では光カー効果と熱的效果を分離して観察することは不可能であった。そこで、これを解決するために方形パルス光と偏光変調を組み合わせた光複屈折法を開発し、熱的效果と分離して光カー効果の測定を行った。実験結果から色素は光カー効果を増大させる一方で、配向緩和には影響しないことが明らかとなった。この事実から液晶・色素間の相互作用についての考察を行い、その機構のモデルとして色素分子がブラウン運動モーターとして働いているという従来の仮説を支持する結果となった。

第3章「ずり流動場による配向制御」では、広帯域流動複屈折スペクトロスコピー法の開発、及びひも状ミセルやコロイド系において測定を行った結果について記している。これまでの測定法では周波数限界が1kHz程度と低く、また界面の影響を無視することができ

なかったため、新たに圧電素子により非圧縮ずり変形を印加する四重極流動複屈折法を開発した。液晶等方相において測定を行ったところ四重極法の周波数帯域は 1~100kHz となり、従来法より帯域を二桁広げることができた。この装置を用いて、ひも状ミセルではずり粘性緩和に伴う振動的配向現象を見出した。さらにタンパク質コロイド試料において測定を行ったところ、コロイドが周囲の水を引きずりながら回転している振る舞いが観察された。

第4章では「定在超音波による配向制御」と題し、定在超音波を用いたずり変形・配向結合現象を高周波領域で測定できる定在超音波複屈折スペクトロスコピー法について述べている。前章の四重極法では高周波領域ではずり変形領域と音波の波長が同程度になって日圧縮性が破れ、これが測定限界となった。そこで定在超音波によって高周波領域で結合現象を観察する手法を開発した。定在波による純ずり変形領域における複屈折量から配向状態を検出し、また変形による屈折率勾配による光偏向量から流体中の音波（変形量）を定量測定する。装置を用いて液晶等方相における配向状態の温度依存性の測定を行った結果、液晶等方相では相転移温度に近づくにつれて複屈折量が最大値を経てから減少する振る舞いが観察され、結合粘性に温度依存性を見出した。動的散乱測定から結合粘性は温度臨界性を持つことが報告されており、本実験の結果はこの臨界性を支持する結果になった。

第5章は「総論」と題し、本論文の内容を簡潔にまとめている。

以上のように、本研究では複雑流体における異方性形成過程に着目して独自の測定法を開発し、異方性の大きさ、形成速度を定量的に評価する手法を確立した。また光カー効果増大現象の機構に関する相互作用を明らかにし、ブラウン運動モーターが関係していることを示唆する結果を得た。さらに液晶、ミセル、コロイド系などの複雑流体においてずり変形・配向結合現象を広帯域、高周波領域で観察できる測定法を確立し、液晶の相転移近傍において結合粘性が減少することを明らかにした。このように本研究の成果は、複雑流体における異方性形成過程を観察する有力な測定法を確立し、光吸収性、並進自由度との結合が異方性形成に与える影響を評価したという点で物理工学への貢献が大きい。よって、本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。