

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 8 日現在

機関番号：54502

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26420328

研究課題名(和文) 液晶高分子複合体への液晶分子配向形成による自律分光制御型デバイス開発

研究課題名(英文) Development of spectral controllable optical device composed of liquid crystal and polymer phases

研究代表者

荻原 昭文(Ogiwara, Akifumi)

神戸市立工業高等専門学校・電子工学科・教授

研究者番号：00342569

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：液晶高分子複合体材料に対して光照射を行い、液晶配向形成に基づく微細周期構造を有する自律分光制御型の光デバイスの開発を行った。レーザ干渉露光によるサブミクロンオーダーの微細周期構造中には液晶配向に基づき、回折効率の光学異方性が発現されることが確認された。

また、液晶材料に光異性化材料とモノマーを加えて内部に螺旋ねじれ構造を形成し、紫外線照射を行うことで、赤外線領域に選択反射波長帯域を有する分光制御デバイスの開発も行うことが可能となった。作製したデバイスに対し光学特性評価や電子顕微鏡による観察を行い、異方性屈折率の三次元形状からなる自律分光制御型デバイスの光学性能を明らかにした。

研究成果の概要(英文)：The spectral controllable optical device was developed based on the molecular orientation of liquid crystal (LC) in LC and polymer phases by light illumination. The optical properties of anisotropic diffraction were induced by the distribution of submicrometer-scale LC droplet in the grating formation using interferometric laser exposure. The cholesteric phase composed of chiral and monomer materials was formed by ultra violet illumination. The cholesteric LC device showed the optical characteristics that reflect the light at the specific bandwidth in the infrared region. The optical evaluation and SEM observation demonstrated the optical performance and the internal structure for the spectral controllable optical device.

研究分野：光デバイス

キーワード：液晶 高分子 分光

1. 研究開始当初の背景

近年、エネルギー消費に伴う CO₂ 排出による地球温暖化問題が世界規模で深刻化しており、この根本原因であるエネルギー消費を抑制するための技術開発が緊急に求められている。産業界では、生産技術力を駆使してエネルギー使用を大幅に削減してきたが、民生・家庭分野では省エネ家電・電気自動車などに代表されるエネルギー消費の少ない機器の普及が緒に付いたばかりであるが、2050年までに世界全体の温室効果ガス排出量を半減した低炭素社会を実現するという大きな目標が掲げられている。

この目標実現のためには、従来から多くの研究開発が行われてきた太陽光発電や風力等の自然エネルギーを用いた発電方法に加えて、大規模な工事や新たな電源供給等を必要とせず、家庭単位で環境と調和しながら持続的に省エネルギーを促進可能な新規材料・デバイスに関する研究が重要となる。

2. 研究の目的

本研究では、太陽光から屋内へ入射する赤外線透過量制御を行うために、液晶高分子複合体への液晶分子配向を導入した自律分光制御型デバイス開発を行うことを目的とする。具体的には、30 付近に相転移温度を有する液晶材料の屈折率の温度変調効果を効率的に発揮させ、自律的な分光特性を発現させるために内部の液晶配向を制御した高分子ネットワーク構造を形成する。

3. 研究の方法

液晶分子配向を導入した自律分光制御型デバイス開発において重要となる以下の3つの項目に明確化して研究チームで分担・協調して効率的に実施した。以下に具体的な方法について記述する。

(1) 液晶分子配向形成用照射システム

光重合性液晶モノマーとネマティック液晶との複合体に対し、レーザー干渉による三次元構造を形成すると、温度増加と共に N-I 遷移に伴う屈折率変化を増加させることが、これまでの研究からわかってきている。このために、液晶・光重合性液晶モノマー複合体への照射を高い自由度で可能にする光学システムを構築する。

(2) 異方性屈折率に基づく自律分光制御機能

有機複合体材料への照射により、光誘起相分離作用が生じ、異方性屈折率分布構造が形成される。このデバイス構造に対して生活環境温度付近 (30~35 程度) において、液晶と高分子材料との屈折率差が大きく変化することで回折または反射機能が優先的に生じる材料設計を行う。

(3) 液晶分子の螺旋構造による選択反射機能

太陽光中に含まれる日射エネルギーに基づく調光特性評価を効率的に行うために、小型の分光器を導入した評価系を構築する。サブミクロン周期を有する三次元構造を形成

するための高分子複合体材料系に加えて、螺旋形状に基づく多層膜構造の形成が可能な光異性化材料と、高分子材料とを含めた材料設計とデバイス作製を進める。

4. 研究成果

(1) レーザ照射制御系の開発

図1は、精密ステージ上に構成したレーザー干渉露光照射システムを示している。液晶高分子複合体材料に対し、コンピュータ制御で精密に光照射角度や照射エネルギーを制御できるように構築した。実際にレーザー干渉露光を行うと、液晶とモノマーの光誘起相分離反応の結果、レーザー照射パターンに対応した液晶層と高分子層からなる三次元微細格子構造の周期間隔や形成角度を高い自由度で制御することが可能となった。

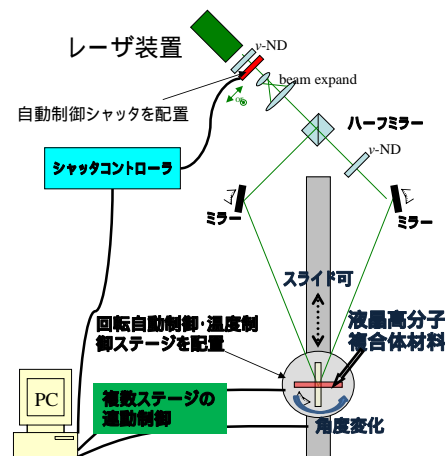


図1 レーザ干渉システムによる微細構造制御

(2) 高分子複合体材料中での微細格子形成

図2は、レーザー干渉露光照射によって形成される液晶と高分子層からなるデバイス構造を模式的に示したものである。レーザー強度の高い部分に形成される高分子層は、0.2 μm 程度まで微細化が可能であることが内部構造解析の結果から明らかとなった。液晶分子は、この高分子層間に存在する微細なドロプレット空間内に分布し、このドロプレットのサイズや形状が配向方向に影響を与えていると考えられた。さらに、液晶高分子複合体材料にコンピュータ制御に基づき照射位置や角度、照射エネルギーを制御することで、格子の形成方向についても角度を大きく変

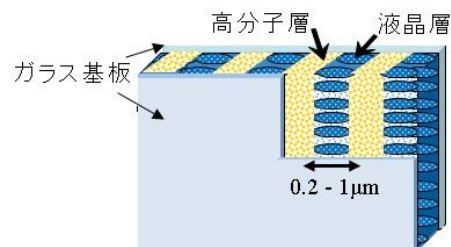
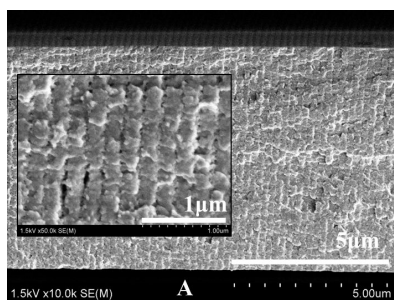


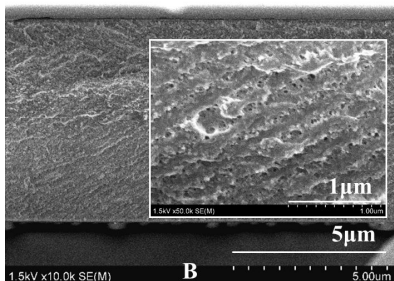
図2 液晶高分子複合体材料による微細デバイス構造

化させての形成が可能となった。

図3は、図1に示したレーザ干渉露光により作製したデバイス内部の格子構造断面を電子顕微鏡で観察した結果である。図1(a)は、2光束ビームをサンプルに対して対称に照射した場合であり、図2(b)は、サンプルの角度を回転ステージにより回転させてスラント角を設定した場合である。モノマーが光硬化して形成された高分子の柱状構造の層と、液晶滴が結合して形成された液晶層からなる周期構造が、それぞれ基板面に対して垂直方向と、斜め45°付近の方向に明瞭に観察されているのがわかる。この格子の形成角度は、デバイスへの入射光が出射する時の変調方向を規定し、調光制御性能にとって重要なファクターとなることが明らかとなった。



(a) 垂直方向に形成された格子構造



(b) 斜め方向に形成された格子構造

図3 デバイス内部の微細構造形成制御

(3) 赤外領域における分光制御機能開発

液晶・高分子材料を用いた回折光学素子の分光制御特性を応用して、入射光における特定の波長領域を回折して変調することが可能となった。さらに液晶分子による螺旋配列を形成して反射型のデバイスへと展開するため、液晶分子にカイラル剤と呼ばれる光異性化材料を添加することに着目した。光異性化材料の種類や添加量を設計することで、内部に特定の周期間隔を有する多層膜構造を形成することが可能となった。

図4に螺旋構造を有する光学デバイスの分光透過率スペクトルを示す。900-1100nm付近の波長帯域のスペクトルが反射され、透過率が50%程度まで低下していることがわかる。さらに、高分子材料の添加量を増加すると、先の赤外領域の反射波長帯域が広がる傾向を示した。これは内部の高分子ネットワークが、液晶分子により形成された螺旋ピッチ長や螺旋軸の方位角を変調する作用が生じる

ためではないかと考えられる。

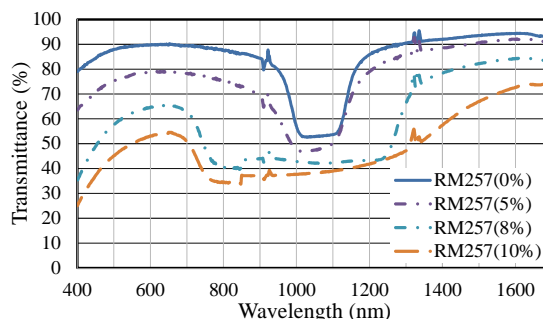


図4 高分子材料の添加による波長帯域制御

図5は、温度依存性の異なる2種類の光異性化材料を選択し、液晶分子に加えて作製したデバイスの分光透過率の温度依存性を示す。およそその生活環境温度範囲に対応する25-45°Cにおいて、赤外域における選択反射波長帯域の中心が1100nmから800nm程度まで短波長シフトしていることがわかる。この結果は温度増加により、太陽光の赤外域での日射エネルギーの変調率が大きくなったことを示す。さらに、添加するモノマー材料を選択し、紫外線等の光照射によって、内部にポリマーネットワークを形成すると、内部の螺旋形状が温度変動に対応して変化するこ

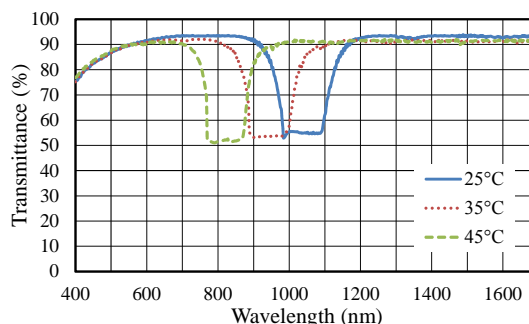


図5 赤外域における分光透過率の温度依存性制御

とが判明した。

以上のように温度依存性の異なる光異性化材料と、液晶・高分子材料からなる有機複合体材料設計技術を応用し、生活環境温度範囲における赤外線領域の選択反射波長シフトと帯域幅の制御に成功した。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 18件)

1. Akifumi Ogiwara and Minoru Watanabe, "Effects of multi-context information recorded at different regions in holographic polymer-dispersed liquid crystal on optical reconfiguration," Jpn. J. Appl. Phys. 55, pp. 08RG04-1 - 08RG04-6

- (2016). (査読有)
2. Akifumi Ogiwara and Hiroshi Kakiuchida, "Thermally tunable light filter composed of cholesteric liquid crystals with different temperature dependence," *Sol. Energy Mater. Sol. Cells*, 157, pp. 250–258 (2016). (査読有)
 3. Akifumi Ogiwara and Hiroshi Kakiuchida, "Effects of anisotropic diffraction on micro-periodic structure composed of polymer and liquid crystal phases," *Trans. Mat. Res. Soc. Japan*, 40, pp. 421-424 (2015). (査読有)
 4. Akifumi Ogiwara and Hiroshi Kakiuchida, "Effects of anisotropic diffraction on micro-periodic structure composed of polymer and liquid crystal phases," *Trans. Mat. Res. Soc. Japan*, 40, pp. 421-424 (2015). (査読有)
 5. Akifumi Ogiwara and Hiroshi Kakiuchida, "Thermal modulation of selective transmittance spectra by combination of cholesteric liquid crystal cells," *Proc. of SPIE 9940*, pp. 99401I-1-99401I-8, San Diego, USA, Aug.29 (2016). doi:10.1117/12.2237090 (査読有)
 6. Yoshizumi Ito, Minoru Watanabe, and Akifumi Ogiwara, "Demonstrating a holographic memory having 100 Mrad total-ionizing-dose tolerance," 2016 The 7th International Conference on Mechanical and Aerospace Engineering (ICMAE 2016), M0194, pp. 377-380, London, UK, July 19,(2016). DOI: 10.1109/ICMAE.2016.7549569 (査読有)
 7. Akifumi Ogiwara, Yuta Maeda, and Minoru Watanabe, "Angle-multiplexing recording of circuit information in volume hologram using liquid crystal composites," *Advanced Photonics Congress 2016, JTu4A.38*, Vancouver, Canada, July 19, (2016). (査読有)
 8. Akifumi Ogiwara and Hiroshi Kakiuchida, "Effect of Polymer Concentration on Selective Reflection Spectra in Cholesteric Liquid Crystals," *Micro Optics Conference 15 Technical Digest*, pp. 148-149, Fukuoka, Japan, (2015). (査読有)
 9. Akifumi Ogiwara and Minoru Watanabe, "Effect of Laser Exposure Condition on Formation of Holographic Memory by Angle-multiplexing Recording using Liquid Crystal composites," *Micro Optics Conference 15 Technical Digest*, pp. 144-145, Fukuoka, Japan, (2015). (査読有)
 10. Akifumi Ogiwara and Minoru Watanabe, "Formation of Holographic Memory by Angle-multiplexing Recording in Liquid Crystal Composites," *Proc. of CLEO-PR2015*, 27P-96, Busan, Korea, Aug. (2015). (査読有)
 11. Akifumi Ogiwara and Hiroshi Kakiuchida, "Analysis of selective reflection spectrum in cholesteric liquid crystal cells for solar-ray controller," *Proc. of SPIE 9565*, pp.956517-1 - 956517-7, San Diego, USA, Aug. (2015). doi:10.1117/12.2187172 (査読有)
 12. R. Moriwaki, H. Ito, K. Akagi, M. Watanabe, A. Ogiwara, H. Maekawa, "Total ionizing dose effects of optical components on an optically reconfigurable gate array," *International Workshop on Applied Reconfigurable Computing*, pp.393-400, Bochum, Germany, April, 2015. Doi 10.1007/978-3-319-16214-0_35 (査読有)
 13. R. Moriwaki, H. Ito, M. Watanabe, A. Ogiwara, H. Maekawa, "Radiation tolerance of optically reconfigurable gate arrays," *International Symposium Toward the Future of Advanced Researches in Shizuoka University*, Shizuoka, Japan, Jan., 2015. (査読有)
 14. Hiroshi Kakiuchida and Akifumi Ogiwara, "ANISOTROPY-DESIGNED HOLOGRAPHIC DIFFRACTORS FORMED BY LIQUID CRYSTAL/POLYMER PHASE SEPARATION IN INHOMOGENEOUS PHOTO-POLYMERIZATION," 3rd European Symposium of Photopolymer Science (ESPS 2014), Vienna, Austria, PO-42, Sep. (2014). (査読有)
 15. Hiroshi Kakiuchida, Kazuki Yoshimura, Masato Tazawa, and Akifumi Ogiwara, "MESO-SCALE PHASE SEPARATION OF SELF-ASSEMBLY ORIENTED LIQUID CRYSTAL AND POLYMER THROUGH INHOMOGENEOUS PHOTO-POLYMERIZATION, AND APPLICATION TO THERMOOPERATED OPTICAL ATTENUATORS," 3rd European Symposium of Photopolymer Science (ESPS 2014), Vienna, Austria, OP-2, Sep. (2014). (査読有)
 16. Hiroshi Kakiuchida, Kazuki Yoshimura, Masato Tazawa and Akifumi Ogiwara, "STUDY OF

POLYMER DISPERSED LIQUID CRYSTALS TOWARD SEASONALLY RESPONSIVE WINDOWPANELS," GRAND RENEWABLE ENERGY 2014 (GRE 2014) INTERNATIONAL CONFERENCE, Tokyo, Japan, P-At-12, July, (2014). (査読有)

17. A. Ogiwara, H. Kakiuchida, "Anisotropic diffraction in micro-periodic structure composed of polymer and liquid crystal phases," The 15th IUMRS-International Conference in Asia (IUMRS-ICA 2014), Fukuoka, Japan, D3-P28-060, Aug. (2014). (査読有)
18. R. Moriwaki, H. Maekawa, A. Ogiwara, M. Watanabe, "An optically reconfigurable gate array with an angle-multiplexed holographic memory," IEEE/ACM Great Lake Symposium on Very Large Scale Integrated circuits, 24, pp. 341-346, Texas, USA, May, 2014. doi>10.1145/2591513.2591597 (査読有)

[学会発表](計 15件)

1. 荻原昭文, 伊藤芳純, 渡邊 実「液晶ホログラムメモリへの放射線照射による光学特性の影響」第64回応用物理学会春季学術講演会 パシフィコ横浜 2017年3月17日, 17a-P1-2, pp.03-581.
2. 伊藤芳純, 渡邊 実, 荻原昭文「ホログラムメモリの放射線耐性試験」第15回情報科学技術フォーラム, 富山大学 2016年9月9日, C-017, pp.265-266.
3. 垣内田 洋, 荻原 昭文「液晶材料を使った次世代型建築窓材」2016年日本液晶学会討論会, **招待講演** 現地企画講演会 テーマ名『液晶応用の新しい展開』, 大阪工業大学 大宮キャンパス 2016年9月5日, SP03, pp.12.
4. Hiroshi Kakiuchida, Akihiko Matsuyama, and Akifumi Ogiwara, "Various polarized Bragg diffractive devices with holographic polymer dispersed liquid crystals produced by onestep interferential exposure," ILCC2016, 329, Kent State Univ., OH. USA, Aug. 5, (2016).
5. Hiroshi Kakiuchida, Kazuki Yoshimura, Eiichi Kobayashi, and Akifumi Ogiwara, "Thermo-Operated Optical Attenuators Using Polymer Dispersed Liquid Crystals for Smart Windows," ILCC2016, 332, Kent State Univ., OH. USA, Aug. 1, (2016).
6. Hiroshi Kakiuchida, Eiichi Kobayashi, and Akifumi Ogiwara, "Orientation (dis)ordering of liquid crystal/reactive mesogen mixture in photo-polymerization induced phase separation," JILCW 2016, P40, pp.90, Kyoto, Japan, July 6, (2016).
7. Akifumi Ogiwara and Minoru Watanabe, "Formation of holographic polymer dispersed liquid crystal memory by 4 angle-multiplexing recording," JILCW 2016, P38, pp.88, Kyoto, Japan, July 6, (2016).
8. Akifumi Ogiwara and Hiroshi Kakiuchida, "Effect of liquid crystal diacrylate monomer on selective wavelength property in cholesteric liquid crystals," JILCW 2016, P37, pp.87, Kyoto, Japan, July 6, (2016).
9. 荻原 昭文, 垣内田 洋「コレステリック液晶へのモノマー添加による選択反射波長の温度依存性」第63回応用物理学会春季学術講演会 東京工業大学 大岡山キャンパス 2016年3月22日, 22a-P3-4, pp.03-652.
10. 前田 雄大, 荻原 昭文, 渡邊 実「液晶ホログラムメモリへの角度多重記録におけるレーザ露光条件の改善」第63回応用物理学会春季学術講演会 東京工業大学 大岡山キャンパス 2016年3月22日, 22a-P3-3, pp.03-651.
11. 垣内田 洋, 荻原 昭文「一回のホログラフィック露光で作製した高分子分散液晶による偏光制御型の波長切換え素子」第63回応用物理学会春季学術講演会 東京工業大学 大岡山キャンパス 2016年3月21日, 21a-W351-6, pp.10-469.
12. Hiroshi Kakiuchida, Kazuki Yoshimura, and Akifumi Ogiwara, "PHOTO-POLYMERIZATION INDUCED PHASE SEPARATION AND ORIENTATION ORDERING OF LIQUID CRYSTAL/REACTIVE MESOGEN: TOWARD THERMO-OPERATED OPTICAL ATTENUATORS," Photopolymerization Fundamentals 2015, University of Colorado at Boulder, USA, Sep. 16th 2015.
13. 垣内田 洋, 吉村 和記, 荻原 昭文「液晶/高分子の光重合メゾ相分離および配向秩序形成と熱応答型調光素子への展開」2015年日本液晶学会討論会 東京工業大学 2015年9月9日, 3C03.
14. 垣内田 洋, 吉村 和記, 荻原 昭文, 「高分子分散液晶のメゾ相分離形成の制御とサーモトロピック特性のデザイン」電気化学会第82回大会 横浜国立大学 2015年3月17日, 3D29.
15. 垣内田 洋, 吉村 和記, 荻原 昭文「高分子/液晶のメゾ相分離と配向秩序形成の制御および熱応答型調光素子の開発」第62回応用物理学会春季学術講演会 東海大学 湘南キャンパス 2015年3月12日, 12a-D2-8, pp.11-183.

〔特許登録〕(計 1 件)

1. 特許第 6058706 号, 荻原昭文、「調光素子の製造方法、積層調光素子の製造方法、調光方法」(2016 年 12 月 16 日)

〔その他〕

ホームページ等

ホームページ等

http://www.kobe-kosen.ac.jp/kyoudou/seeds/pdf/D/D_ogiwara.pdf

<http://www.kobe-kosen.ac.jp/department/staff/denshi/ogiwara.html>

6 . 研究組織

(1)研究代表者

荻原 昭文 (OGIWARA AKIFUMI)

神戸市立工業高等専門学校 電子工学科
教授

研究者番号 : 00342569

(2)研究分担者

小野 博司 (ONO HIROSHI)

長岡技術科学大学・電気系 教授

研究者番号 : 10283029

垣内田 洋 (KAKIUCHIDA HIROSHI)

国立研究開発法人産業技術総合研究所

光熱制御グループ 主任研究員

研究者番号 : 40343660