

氏名	ふじかけ ひでお 藤掛英夫		
授与学位	博士(工学)		
学位授与年月日	平成15年3月14日		
学位授与の根拠法規	学位規則 第4条第2項		
最終学歴	昭和60年3月 東北大学大学院工学研究科電気及通信工学専攻前期課程修了		
論文題目	ポリマー分散技術を応用した光機能性液晶素子に関する研究		
審査委員	東北大学教授 内田龍男	東北大学教授 宮城光信	
	東北大学教授 伊藤弘昌	東北大学助教授 宮下哲哉	

論文内容の要旨

第1章 序論

放送・通信分野での高精細映像サービスや携帯通信機器の普及など著しい情報メディアの進展に伴って、視認性の高いヒューマンインターフェースが求められており、昨今、精細度が高く消費電力の小さな液晶ディスプレイが目覚ましい発展を遂げている。しかし、液晶ディスプレイを臨場感あふれる映像が享受できる次世代ディスプレイとして発展させていく上では、克服すべき課題が多く残されている。液晶ディスプレイは、光により画像情報を書き込んで液晶素子を駆動する方式と、電気信号により書き込む方式に大別され、臨場感が高い大画面の投写画像が得られる光書き込みディスプレイでは、光利用率の向上やメモリ化による高輝度化が求められる。その一方、直視型表示に主に用いられる電気書き込み駆動のディスプレイでは、動画表示に向けて高速な階調表示機能が待望されている。それらをクリアするには、ディスプレイシステムに組み込まれる液晶素子自体の光機能性を飛躍的に高めていかなければならない。

液晶素子の光機能性は、液晶の分子配向技術に負うところが多く、これまでガラス基板上の配向膜により液晶配向が定められてきたが、そのような二次元の配向技術では、基板から離れた部位の液晶配向を間接的にしか制御できず、配向設計の自由度が著しく制限される。そのブレイクスルーとして液晶内にポリマーの立体構造を形成し、ポリマー形態に応じた三次元の配向効果を活用することにより、液晶素子の光機能性を向上させる方法が考えられている。しかし、これまでのポリマー分散技術である光重合相分離法では、液晶とモノマーの均質混合液から、液晶とポリマーの複合膜に到る形成過程において、安定な分散構造を得ることに主眼が置かれるため、最終的なポリマー形態が極めて限定され、上記の課題を克服することが困難である。

そこで本研究の目的は、多様なポリマー形態が得られる新たな形態制御技術を開拓し、そこから得られる様々なポリマーの三次元配向効果を活かし、各種の液晶ディスプレイで求められてきた前記の光機能性、すなわち高透過率、メモリ、高速な階調表示を実現することにある。

第2章 光重合相分離の原理と構造評価

ポリマー形態のバリエーションを拓げるためには、光重合と相分離の複合効果である光重合相分離のメカニズムを探る必要があり、それには複合構造の詳細な観察が欠かせない。しかし、光学顕微鏡および走査電子顕微鏡を用いた従来の観察法では、それぞれ光多重散乱や金属蒸着に伴う変形・変質が支障となり、相分離過程の分散構造をはじめ、液状もしくは柔軟な複合構造を評価することが困難である。そこで本章では、低真空型2次電子顕微鏡を液晶観察に初めて導入し、光重合相分離の観察システムを提案した。同顕微鏡の内部で光重

合相分離を誘起させ、相分離過程の液晶とポリマーの直接観察を試みた結果、混合液表面に析出した液晶が数秒間で接合して凝集する様子が初めて捉えられた。この場合、接合途中で不安定な液晶小滴の構造（非平衡状態）さえも、ポリマー硬化のタイミングによっては固定されることが明らかになった。この結果は、非平衡状態の出現とその固定時期を制御することにより、ポリマーを小孔形態から大きく変化させることが可能であることを示唆するものである。

そこで基板に挟まれた液晶素子内で、液晶含有率の増減により液晶の凝集効果を制御すると共に、紫外光強度を変えて過渡的に生じるポリマー形態の固定化を試みた。形成後のポリマー形態を、上記の電子顕微鏡で直接観察した結果、強い紫外光照射の下で液晶量を増加させた場合、ポリマーは均一な小孔形態から、泡膜、繊維形態へと劇的に変化していくことが明らかになった。これにより、相分離の非平衡状態を活用したダイナミックな形態制御法が得られたことになる。

第3章 光機能性の発現と表示素子への応用

前章でのポリマー形態の制御指針に基づき、本章では3種類の新しい素子を提案・試作することにより、各種表示方式の液晶ディスプレイが抱える課題の克服を図った。

光書き込み方式のディスプレイでは、マトリクス電極による開口率の制限がないため、強い光束により大画面投写が可能となるが、従来の光書き込みディスプレイに用いられているネマティック液晶素子は偏光板を要し、高出力放電ランプからの無偏光の放射光を効率よく変調できない。そこで、ポリマー分散技術の第1の応用として、ネマティック液晶小滴を包含して、無偏光の入射光を散乱・変調できるポリマー分散ネマティック液晶素子を光書き込みディスプレイに応用することを試みた。

この場合、書き込み光画像の高い解像度を維持するため、液晶/ポリマー複合膜にも優れた微小画像表示能力が求められる。まず、複合構造の高解像度設計とその試作技術を構築するため、複合膜中で微小な動作ユニットとなる液晶小滴の微細・均一化を図った。前章での知見に基づき、小滴サイズの不均一化の要因となる液晶小滴の接合・凝集を抑制するため、比較的少ない液晶含有率（50wt%）の混合液を強い紫外光により硬化させた。その際、基板接触部での相分離ゆらぎを抑制するため、基板表面にアンダーコート処理を施して液晶小滴の微細形成を促進した。

試作した複合構造素子は、電気光学特性の測定から10ms以下の高速応答と、高コントラスト比を有した。また、その急峻なしきい値特性は、有限要素法による内部電界のシミュレーションから高解像度化に有用であることが示された。実際にこの複合膜を微細な透明電極パターンで電圧駆動した結果、液晶小滴（2 μ m径）の2倍の大きさに相当する高い解像力が確認され、それを用いた光書き込み表示素子の最高解像度は64 line pairs/mmに達し、高精細な画像表示能力を有することが明らかになった。さらに、本表示素子に小型液晶パネルからの光画像を並列的に書き込み、キセノンランプからの強い光で読み出して投写したところ、明るい室内でも鑑賞可能な高輝度な投写画像が得られた。本素子は、特に強い光束が求められる業務用途の大画面表示に応用が可能と思われる。

さらに光書き込み方式を民生用途の小型ディスプレイに応用・展開するには、書き込み光学系のコンパクト化が不可欠であり、それには小型ブラウン管を用いた光画像の走査書き込みが有用である。その場合、光ビームの走査期間中にネマティック液晶の分子配向が緩和して輝度が低下するため、液晶素子自体にメモリ機能を付加しなければならない。しかし、電圧誘起のコレステリック・ネマティック相転移によりメモリ機能（双安定性）を有する既存のコレステリック液晶素子は、中間調表示、メモリの安定性および光散乱能に課題を抱える。そこで、ポリマー分散技術の第2の応用として、コレステリック液晶中に泡膜状ポリマーを分散したポリマー分割化コレステリック液晶素子を提案した。

液晶小滴の複合膜に比べてポリマー含有率を減らし（20wt%）、液晶の抜け落ちた泡膜状のポリマーを強い紫外光照射により急速に固定し、液晶を分割してドメイン化する隔壁構造を形成した。微細なコレステリック相の液晶ドメインほど、ポリマー表面の影響を受けてしきい値電圧が増加し、その相転移はポリマー隔壁の影響により個別に誘起された。その結果、適度なバイアス電圧の下で、微細なコレステリックおよびネマティック

ドメインが共存し、空間的かつ時間的に安定な中間調メモリ機能が初めて実現された。その中間調の画像表示能力を評価するため、光書き込み表示素子を試作した結果、階調画像が2値の微小ドメインにより再現できることが確認された。さらに本素子では、ポリマー壁面の強い拘束力により微細なフォーカルコニック配向組織が誘起されるため、100:1以上の高いコントラスト比と、従来のネマティックおよびコレステリック液晶では得られなかった1ms以下の高速応答が達成された。

一方、直視型ディスプレイに主に用いられる電気書き込み駆動方式のディスプレイでは、これまでのツイストネマティック液晶素子の応答時間がテレビ映像のフレーム期間を超えるため、動画表示が困難である。また、高速液晶として知られる従来の表面安定化強誘電性液晶素子は、双安定性のため階調表示ができず、フルカラー化が困難である。そのため、電気書き込みディスプレイでは、高速な階調表示機能を有する液晶素子が求められている。そこで本章では、ポリマー分散技術の第3の応用として、強誘電性液晶素子内に繊維状ポリマーを分散することにより、階調表示機能が得られるポリマー安定化強誘電性液晶素子を提案した。

極めて微量なモノマー（4wt%）とカイラルスメクティックC相の強誘電性液晶の混合液を、ラビング方向に配向させた状態で強力な紫外光照射によりポリマー成分を凝集させることにより、配向した繊維状ポリマーの形成を図った。試作した複合膜を偏光顕微鏡観察およびX線回折測定により評価した結果、基板面および厚み方向の分子配向構造の屈曲が、紫外光強度の増加により緩和されると共に、液晶分子のスイッチ角が減少することが分かった。これらの現象は、液晶内に微細に入り込んだポリマー繊維が液晶分子をポリマー方向に引き付ける構造モデルにより理解できる。

分散されるポリマーの分布には空間的な偏りが少なからず生じると推察され、その配向力は液晶分子のスイッチング挙動に少なからず影響を与えると考えられる。実際に分子スイッチングのしきい値電圧が面内で不均一になることが確認され、本素子に数Vの電圧を印加することにより、 μm オーダーの微細なスイッチングドメインが生じた。その結果、面積階調に基づく良好な中間調動作が実現された。その応答時間は $200\mu\text{s}$ であり、従来の表面安定化強誘電性液晶と同等の高速性が確保された。

第4章 結論

光重合相分離の非平衡状態を活用して多様な形態が得られるポリマー形成法を見出し、新たな液晶/ポリマー複合素子を提案することにより、光書き込みおよび電気書き込み方式の液晶素子の高機能化を図った。すなわち、小孔、泡膜および繊維形態のポリマーが生み出す三次元配向効果を、ネマティック、コレステリックおよび強誘電性液晶に適用することにより、液晶ディスプレイに求められてきた高透過率、メモリ、高速な階調表示機能を実現することができた。

本研究の成果は、実用的な構成材料を用いての提案と実証であり、得られた液晶素子の光機能性は、様々なディスプレイに応用が可能であるため、高輝度・大画面の動画ディスプレイを目指した今後の液晶表示技術に活かされていくものと考えられる。

論文審査結果の要旨及び学力確認結果の要旨

論文提出者氏名	藤掛 英夫		
論文題目	ポリマー分散技術を応用した光機能性液晶素子に関する研究		
論文審査及び 学力確認担当者	主査 教授 教授 助教授	内田 龍男 宮城 光信 宮下 哲哉	教授 伊藤 弘昌

論文審査結果の要旨

液晶ディスプレイの高性能化が要求されているが、従来の液晶ディスプレイでは液晶材料や分子配向に制約があり、特性の飛躍的向上には限界があった。本論文は、液晶にモノマーを混合し、紫外線照射によってモノマーの光重合と相分離を起こさせて液晶/ポリマー複合膜を形成させ、液晶の新しい電気光学特性を引き出すことによって高性能な液晶ディスプレイの実現の可能性を示したものであり、全編4章よりなる。

第1章は序論であり、本研究の背景と目的について述べている。

第2章では、低真空型2次電子顕微鏡を用いた光重合相分離現象のその場観察システムを構築し、液晶小滴の過渡的形成過程やポリマー形態の立体構造を明らかにしている。また、これによって非平衡なポリマー形態の急速固定という新たな発想の形態制御法を見出し、紫外光強度と液晶含有率を任意に組み合わせることによって小孔形態、泡膜形態および繊維状形態など多様な複合膜の形状を制御できることを明らかにしている。これらの結果は液晶ディスプレイに新たな性能を付与するための重要な知見を与えるものである。

第3章では、第2章の結果を応用した高性能な液晶ディスプレイについて述べている。まず、第1の応用として、液晶/ポリマー複合膜にネマティック液晶を用いた高透過率・高精細の光書き込み型ディスプレイについて検討している。すなわち、液晶含有量および紫外線強度、基板表面処理等の最適化により液晶小滴の微細化・均一化をはかり、平均小滴サイズ3 μm でばらつき幅20%を達成している。これによって解像度120lp/mmを実現し、投射型ディスプレイシステムを試作して高輝度・大画面・高精細テレビとして十分な性能が得られることを実証している。第2の応用として、液晶/ポリマー複合膜にコレスリック・ネマティック相転移液晶を用い、ポリマーを泡膜状形態とすることによって中間調メモリを有する新しい光書き込み型ディスプレイを実現している。一般にメモリ性と中間調表示は相反するものであるが、泡膜状に形成したポリマーの隔壁で双安定性のコレスリック液晶を微細に分割・ドメイン化することにより安定な中間調メモリ、高い光散乱能および高速応答が得られることを明らかにしている。さらに第3の応用として、液晶に強誘電性液晶を用い、ポリマーを繊維状形態とした液晶/ポリマー複合膜を検討している。液晶と微量なモノマーの混合物が室温で液晶相をとるように条件を設定し、この状態で紫外線を照射してポリマーの配向重合を行わせることによって液晶分子の配向構造を制御したものであり、液晶のしきい値電圧が空間的にばらついた微細な液晶ドメインが形成されることを巧みに利用している。これによって強誘電性液晶の高速動作とメモリ性の長を保持した上で、新たに中間調表示機能を発現させるという画期的なディスプレイを実現し、電気書き込み型の高品位・動画表示用ディスプレイへの可能性を示している。これら3つの応用例はいずれも液晶ディスプレイの高性能化の可能性を示す重要な成果であり、特に中間調メモリを可能とする新しい液晶ディスプレイは今後の液晶ディスプレイの性能を飛躍的に向上させる可能性を示すものとして高く評価できる。

第4章は結論である。

以上要するに本論文は、新たなポリマー形態制御法とポリマーの3次元配向効果を巧みに用いて従来の液晶素子では得られなかった光機能性を実現したものであり、学術的のみならずディスプレイへの応用にも新たな可能性を示したものであり、電子工学および画像工学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。

学力確認結果の要旨

平成15年12月27日、審査員並びに関係教官出席のもとに、学力認定のための試問を行った結果、本人は電子工学並びに画像工学に関する十分な学力と研究指導能力を有することを確認した。

なお、英語学術論文に対する理解力よりみて、外国語に対する学力も十分であることを認めた。

論文審査結果の要旨

液晶ディスプレイの高性能化が要求されているが、従来の液晶ディスプレイでは液晶材料や分子配向に制約があり、特性の飛躍的向上には限界があった。本論文は、液晶にモノマーを混合し、紫外線照射によってモノマーの光重合と相分離を起こさせて液晶／ポリマー複合膜を形成させ、液晶の新しい電気光学特性を引き出すことによって高性能な液晶ディスプレイの実現の可能性を示したものであり、全編4章よりなる。

第1章は序論であり、本研究の背景と目的について述べている。

第2章では、低真空型2次電子顕微鏡を用いた光重合相分離現象のその場観察システムを構築し、液晶小滴の過渡的形成過程やポリマー形態の立体構造を明らかにしている。また、これによって非平衡なポリマー形態の急速固定という新たな発想の形態制御法を見出し、紫外光強度と液晶含有率を任意に組み合わせることによって小孔形態、泡膜形態および繊維状形態など多様な複合膜の形状を制御できることを明らかにしている。これらの結果は液晶ディスプレイに新たな性能を付与するための重要な知見を与えるものである。

第3章では、第2章の結果を応用した高性能な液晶ディスプレイについて述べている。まず、第1の応用として、液晶／ポリマー複合膜にネマティック液晶を用いた高透過率・高精細の光書き込み型ディスプレイについて検討している。すなわち、液晶含有量および紫外線強度、基板表面処理等の最適化により液晶小滴の微細化・均一化をはかり、平均小滴サイズ $3\mu\text{m}$ でばらつき幅20%を達成している。これによって解像度120lp/mmを実現し、投射型ディスプレイシステムを試作して高輝度・大画面・高精細テレビとして十分な性能が得られることを実証している。第2の応用として、液晶／ポリマー複合膜にコレスリック・ネマティック相転移液晶を用い、ポリマーを泡膜状形態とすることによって中間調メモリを有する新しい光書き込み型ディスプレイを実現している。一般にメモリ性と中間調表示は相反するものであるが、泡膜状に形成したポリマーの隔壁で双安定性のコレスリック液晶を微細に分割・ドメイン化することにより安定な中間調メモリ、高い光散乱能および高速応答が得られることを明らかにしている。さらに第3の応用として、液晶に強誘電性液晶を用い、ポリマーを繊維状形態とした液晶／ポリマー複合膜を検討している。液晶と微量なモノマーの混合物が室温で液晶相をとるように条件を設定し、この状態で紫外線を照射してポリマーの配向重合を行わせることによって液晶分子の配向構造を制御したものであり、液晶のしきい値電圧が空間的にばらついた微細な液晶ドメインが形成されることを巧みに利用している。これによって強誘電性液晶の高速動作とメモリ性の長を保持した上で、新たに中間調表示機能を発現させるという画期的なディスプレイを実現し、電気書き込み型の高品位・動画表示用ディスプレイへの可能性を示している。これら3つの応用例はいずれも液晶ディスプレイの高性能化の可能性を示す重要な成果であり、特に中間調メモリを可能とする新しい液晶ディスプレイは今後の液晶ディスプレイの性能を飛躍的に向上させる可能性を示すものとして高く評価できる。

第4章は結論である。

以上要するに本論文は、新たなポリマー形態制御法とポリマーの3次元配向効果を巧みに用いて従来の液晶素子では得られなかった光機能性を実現したものであり、学術的のみならずディスプレイへの応用にも新たな可能性を示したものであり、電子工学および画像工学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士（工学）の学位論文として合格と認める。