

論文内容の要旨

博士論文題目 集光レーザービームの光圧による単一高濃度凸面状液滴形成と結晶作製に関する研究

氏名 柚山 健一

(論文内容の要旨)

集光レーザービームの光圧による捕捉技術は、常温・常圧においてナノからマイクロメートルサイズの物体を液中で非接触に捕捉し、三次元的に操作する事ができる手法として発展してきた。分子を捕捉対象とした場合には、分子固有の分子間相互作用や温度、濃度などの実験条件、さらには界面分子の特異な分子配列などに起因した分子集合体が形成される。このような光圧を用いた分子集合体の形成は、光圧捕捉力が対象物の体積に比例することから、比較的分子量の大きな高分子を対象として始まった。捕捉対象物が有機低分子の場合には、孤立した単一分子への光圧捕捉力は弱く、安定な捕捉は実現されないものの、光圧の影響により集光スポット内で拡散が抑制されることが報告されており、単一分子系においても光圧は有効に作用するという事が実証されている。本研究では、捕捉対象を低分子化合物へと展開し、光圧特有の分子の集合を実現することにより、光圧化学の研究分野を開拓する事を目的とする。ここでは、捕捉対象物として強い分子間相互作用を有する有機低分子が液中で形成する液状クラスターに着目し、そのクラスターの高効率な光捕捉により誘起される新奇光誘起集合体の創成を行い、そのプロセス・メカニズムについて考察した。本論文は以下に示す6章から構成される。

第1章では、本研究に関連するこれまでの研究成果と課題について記述し、本研究の目的及び構成について概説した。第2章では、本研究で用いた化合物の特性や基礎物性、サンプル調製法、実験系などについて示した。第3章では、グリシン重水過飽和溶液の液膜の固液界面に集光レーザービームの光圧を作用させると、初期溶液よりも約2倍高い濃度を有するミリメートルサイズの単一高濃度凸面状液滴が形成する新規現象について述べた。また、液滴形成過程をレーザー変位計による液面プロファイル測定とCCDカメラによる直接観察により調べ、そのメカニズムを光圧によるクラスターの光捕捉と集光点に向かう対流による効率的な物質輸送の観点から考察した。第4章では、光圧を用いて作製した高濃度液滴や結晶の内部構造に対して、初期溶液濃度及び捕捉用レーザーの強度や偏光依存性について、その形状及び分光学的解析結果から議論した。さらに、これらの結果を溶液中でのクラスター構造の変化とクラスターに対する動的な光圧捕捉力の観点から考察した。第5章では、集光レーザービームを高濃度液滴の外側に作用させることにより誘起される液滴の移動について述べた。液滴作製と位置制御から成る一連の操作を、溶液中に分散している分子クラスターを大量に集め輸送する新しい技術、すなわちミリメートルスケールでの新規分子操作として提案した。また、本液滴移動のメカニズムをクラスターの光捕捉及び対流の効果から考察した。第6章では、本学位論文を総括し、本研究の意義や今後の展望について論じた。

氏名	柚山 健一
----	-------

(論文審査結果の要旨)

集光レーザービームの光圧による分子の光捕捉では、分子固有の分子間相互作用や温度、濃度などの実験条件、さらには界面分子の特異な分子配列に起因した分子集合体が形成される。このような光圧を用いた分子集合体の形成は、光圧捕捉力が対象物の体積に比例することから、主に分子量の大きな種々高分子を捕捉対象として展開されてきた。捕捉対象物が有機低分子の場合には、孤立した単一分子への光圧捕捉力は弱く、安定な捕捉は実現されないものの、光圧の影響により集光スポット内で拡散が抑制されることが報告されており、単一分子系においても光圧は有効に作用するという事が実証されている。本論文提出者は、光圧化学の低分子化合物への展開を目的とし、捕捉対象物として強い分子間相互作用を有する有機低分子が液中で形成する液状クラスターに着目し、そのクラスターの高効率な光捕捉により誘起される新奇光誘起集合体の創成とその形成ダイナミクスの解明を行い、以下の成果を得た。

グリシン重水過飽和溶液の液膜の固液界面に集光レーザービームの光圧を作用させることにより、初期溶液よりも約2倍高い濃度を有するミリメートルサイズの単一高濃度凸面状液滴の形成に成功した。さらに、液面プロファイル測定とCCDカメラによる直接観察を通して、光圧によるクラスターの光捕捉と対流による物質輸送との空間的な協奏が、この液滴形成過程において重要な役割を果たしていることを明らかにした。また、形成した高濃度液滴は、レーザービームの集光位置をコントロールすることにより任意に位置制御できることを実証した。液滴作製と位置制御から成る一連の操作は、溶液中に分散している分子クラスターを大量に集め輸送する新しい技術とみなすことができ、ミリメートルスケールでの新規な分子操作として提案された。一方、光圧を用いて作製した高濃度液滴や結晶の内部構造は、初期溶液濃度及び捕捉用レーザーの強度や偏光に強く依存することを明らかにした。これらの結果は、溶液中でのクラスター構造の変化とクラスターに対する動的な光圧捕捉力の変化により達成されたと考察され、光圧による結晶内の分子配列制御が実証された。

以上のように本論文では、強い分子間相互作用によって液状クラスターを形成する有機低分子を捕捉対象物質とし、集光レーザービームの光圧により誘起される高濃度液滴の形成と結晶化及び相制御を実証することにより、光圧化学の新規研究分野の開拓に成功した。さらに、本研究で得られた成果を通して、光科学技術及び分子科学技術における光圧の新たな応用展開が世界に先駆けて示された。よって審査委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。