数理解析研究所講究録
1081 巻 1999 年 1-9

ゴールドストーン・モードの存在する対流系における時空カオス

九州大学大学院工学研究科　日高芳樹　(Yoshiki HIDAKA)
甲斐昌一　(Shoichi KAI)

1．ネマチック液晶の電気対流

ロール状対流が空間周期的に配列した秩序構造は，非平衡開放系における散逸構造の代表例として多くの研究がなされている．流体を下から熱したときに起こるRayleigh-Bénard（ＲＢ）対流が身近な例として上げられるが，ネマチック液晶に電場を印加することによっても対流（電気対流；Electroconvection）は発生することが知られている．

ネマチック液晶は棒状の有機分子からなり，ある温度範囲では，棒状分子の配向が一方向に揃い，かつ液体のような流動性をもつ異方性流体としてふるまう．通常その分子の配向方向はディレクタと呼ばれる単位ベクトル **n** によって表すが，液晶では **n** に垂直な方向と平行な方向で誘電率や磁化率など多くの物性値が異なる．また，液晶は本来誘電体であるが，不純物によるイオン伝導を示し，その導電率も異方性を示す．そして，電気対流はこれら異方性や導電性によって生じる [1]．また生じた対流構造は，ネマチック液晶の屈折率の異方性により，光学的パターンとして容易に観察することができる（図 1）．

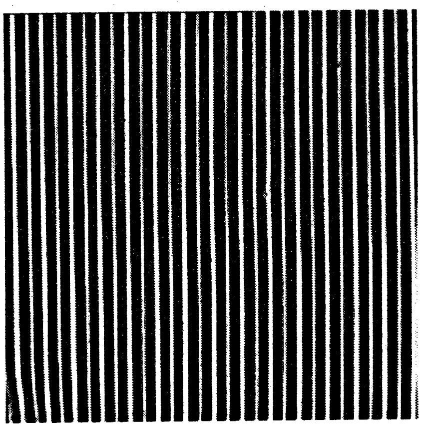


図 1　液晶の電気対流パターン．

ネマチック液晶の電気対流は，通常 50μm 程度の間隔の２枚のガラス板（通常 $1\times1\mathrm{cm}^2$ 程度）の間に挟んで光学顕微鏡で観察する．ガラス面には透明電極が蒸着されており，電場の印加と透過像の観察を同時に行うことができる．さらに表面処理を施すことにより，電極付近の液晶分子を望んだ方向に配向させることができ，**n** が電極面に平行で，なおかつ全系に渡って一様な方向に配向した系を作成することができる．このような系をプレナー系と呼ぶが，電気対流の対流ロール軸は常に **n** に垂直になるので，この系では波数ベクトルが一様に揃った対流パターンを観察することができる．

このように一様な大アスペクト比系が作成できること以外にも，等方性流体のＲＢ対流と比較した場合，応答時間が短い，外力パラメータ（印加電圧の大きさ：V）が制御しやすい，などの実験上の利点があり，液晶プレーナー系の電気対流は非平衡開放系のパターン形成の恰好の研究対象として，数多くの研究がなされてきた．一方，**n** が

電極面に垂直なホメオトロピック系での電気対流は，後で見るように系の対称性とパターン・ダイナミクスの関係の観点から大変興味深く，近年大きな注目を浴びている．

2．振幅方程式

x-y 方向に拡がった等方な流体系に z 方向に温度勾配を与え，定常な熱対流が発生したとき，z 方向の流速 v_z は，

$$v_z(x, y, z) = u(x, y) \sin\frac{\pi}{d}z \tag{1}$$

と書ける．さらに対流ロールが並んだ方向を x とすると，

$$u(x, y) = A \exp(i\, q_c\, x) + \text{c.c.} \tag{2}$$

となる．ここで A は複素振幅，q_c は周期パターンの波数を表し，静止安定な完全周期パターンでは A は定数である．そしてこの周期パターンが不安定化した場合を考える．対流発生点での中立モードの波数を q_c とし，その近傍では q_c 付近の長波長の不安定モードが現れるとすると，(1) は時間空間的にゆっくりとした変調を受けるだけとして考えられる．つまり，背景に q_c^{-1} という固定された周期が存在することを前提として，それからゆっくり変位しているものとして，A を定数からゆっくりとした時空依存性をもつものに置き換える．A は複素数だから，$A(x, y, t) = R(x, y, t) \exp[i\, \phi(x, y, t)]$ と書くと，(1) は

$$u(x, y, t) = R(x, y, t) \exp\{i[q_c\, x + \phi(x, y, t)]\} + \text{c.c.} \tag{3}$$

となり，位相と振幅が時間と空間に依存していると考えることになる．

このような時空依存する複素振幅パラメータ $A(x, y, t)$ を用い，対流発生点近傍の弱非線形方程式（振幅方程式）を導出すると，Newell-Whitehead 方程式と呼ばれる次のような方程式になる [2]．

$$\frac{\partial A}{\partial t} = \left[\varepsilon + \left(\frac{\partial}{\partial x} - \frac{i}{2q_c}\frac{\partial^2}{\partial y^2}\right)^2\right]A - |A|^2 A\,. \tag{4}$$

ただし係数は，スケール変換で簡単に書き直されている．ε は対流系の制御パラメータで，Rayleigh 数 R，対流発生の臨界 Rayleigh 数 R_c に対し，$\varepsilon \equiv (R - R_c) / R_c$ と定義される．

等方性流体のＲＢ対流についての振幅方程式(4) は，流体の基礎方程式から対流に関する情報だけに縮約することによって得られるが，液晶の電気対流についての振幅方程式を同様の手続き（ただし異方性流体の基礎方程式だけではなく，Maxwell 方程式や $\mathbf{n}$ にはたらくトルクまで考慮する必要がある）で導出すると，

$$\frac{\partial A}{\partial t} = \left(\varepsilon + \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}\right)A - |A|^2 A \tag{5}$$

となる [3]．ただし，$R \propto V^2$ である．(4) と (5) を比較すると，空間微分の形が異なっているが，これは等方性流体の系と液晶のプレーナー系の対称性が異なっているためと考えられる．すなわち，等方性流体では，初期の xy 平面が連続回転対称性を有するのに対し，液晶プレーナー系では連続回転対称性が強制的に破れていることを反映している．

3．液晶プレーナー系の欠陥乱流

液晶プレーナー系の電気対流では，$\varepsilon_{\mathrm{th}}$～0.3程度で静止安定な対流パターンが不安定化し，時空カオスが発生する（図2）．これは，トポロジカルな欠陥が時間空間的に不規則に生成・運動（主としてグライド）・消滅を繰り返すもので，「欠陥乱流」と呼ばれている [4]．時空カオスは (5) 式のようなポテンシャルをもつ方程式では記述できないが，欠陥乱流は最初の分岐点 ($\varepsilon = 0$) に比較的近いところで発生し，また基本的な周期構造を保ちつつ，その中に欠陥（$A = 0$ で表される）が埋め込まれたパターンをもつことから，振幅方程式を改良することによって記述されると考えられる．等方性流体のＲＢ対流では，(4) 式では記述できない不安定性が分岐点に近いところで観測されているが，これは緩和時間の長い長波長の水平面内流速成分（平均流効果）が考慮されていないためと考えられ，平均流を考慮に入れて改良された振幅方程式が提案されている [5]．液晶電気対流の欠陥乱流についても，それに倣って (5) 式のような振幅方程式などに平均流効果を取り入れたモデルが提案されている [6-8]．

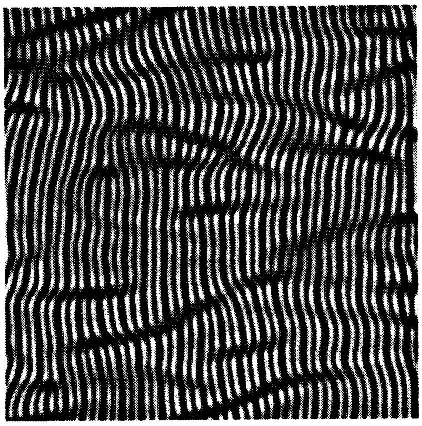


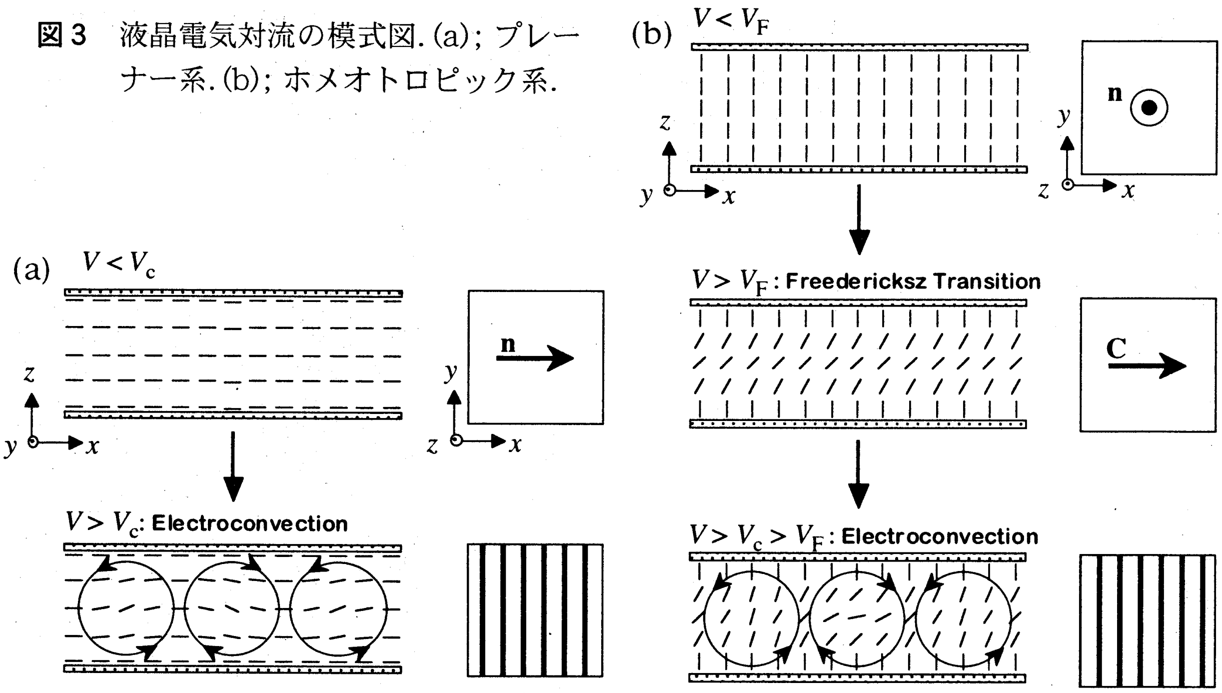
図2　欠陥乱流．

4．液晶ホメオトロピック系とソフトモード乱流

上述したように，液晶プレーナー系では，初期の xy 平面は，連続並進対称性を有するが連続回転対称性が強制的に破れており，周期対流パターンが発生するとパターンの波数ベクトルの方向（初期の $\mathbf{n}$ と同じ向き）の連続な並進対称性が破れる（図3(a)）．一方，等方性流体では，回転と並進の連続対称性を有し，周期対流パターンが発生すると並進対称性と同時に回転対称性も破れている．

プレーナー配向系の電気対流は，負の誘電異方性（$\varepsilon_{/\!/} - \varepsilon_{\perp} < 0$）をもったネマチック液晶で生ずる．この場合，印加電場は本来この配向状態を安定化させるが，配向の熱ゆらぎに導電異方性によるフィードバックがかかり，ある特定の波数のゆらぎが成長して対流パターンが生じる．一方，$\mathbf{n}$ が電極面に垂直なホメオトロピック系は，あるしきい値以上の電圧に対して不安定になり，$\mathbf{n}$ が一斉に傾く（これは弾性的な一種の座屈不安定性で，フレデリクス転移 [9] と呼ばれる）．$\mathbf{n}(x, y, z)$ を xy 面に射影した新たなディレクタ $\mathbf{C}(x, y)$ を定義すると，$\mathbf{C}$ の向きは任意だが，$\mathbf{C}$ の間には弾性的相互

図 3　液晶電気対流の模式図. (a); プレーナー系. (b); ホメオトロピック系.



作用がはたらくので任意のある方向にすべての **C** が揃うことになり, この時点で準プレーナー系となる. この状態からさらに高い電圧を印加すると, 波数ベクトル **q** (// **C**) の周期対流パターンが発生する (図 3(b)).

ホメオトロピック系の初期の xy 平面は, 等方性流体と同様に回転と並進の連続対称性を有する. しかしながら, 等方性流体とは異なり, 上記のフレデリクス転移によって, 対流発生前に連続回転対称性の自発的破れ, 言い換えれば等方性の自発的破れが起こる. 連続な対称性が破れた相では, 波数 → 0 の極限で緩和時間 → ∞となる中立モードが存在し, そのモードは「ゴールドストーン (Goldstone)・モード」と呼ばれる. ホメオトロピック系では **C** の回転ゆらぎがゴールドストーン・モードとしてふるまう. すなわち, 液晶ホメオトロピック系の電気対流系では, 長波長のゴールドストーン・モードと短波長の対流モードが (言い換えると回転対称性と並進対称性に関する 2 つのゴールドストーン・モードが) 共存する系であると言える.

ホメオトロピック系の電気対流では, まずはプレーナー系と同様に, 波数ベクトル **q** が **C** の向きに一様に揃った対流パターンが現れる. ところがこの状態はすぐに不安定化して, 図 4(a) のようなパターンへ発展する. このパターンは一見ランダムに見えるが, 2 次元パワースペクトル (図 4(b)) から分かるように, $|\mathbf{q}| = q_0$ である特徴的長さが存在し, これが対流構造の周期に相当する. つまりプレーナー系と違って, **q** がバラバラな方向を向いたパターンとなっている. またパターンはこの状態で凍結するわけではなく, **q** の方向は時間空間的に不規則に絶えず変化し続け, 時空カオス状態になっている.

図 5 は, 液晶ホメオトロピック系で実際に観測された, この時空カオスのマクロなゆらぎの時間相関を示す. 縦軸の τ^{-1} は, パターンの時間変動を測定しその時間相関

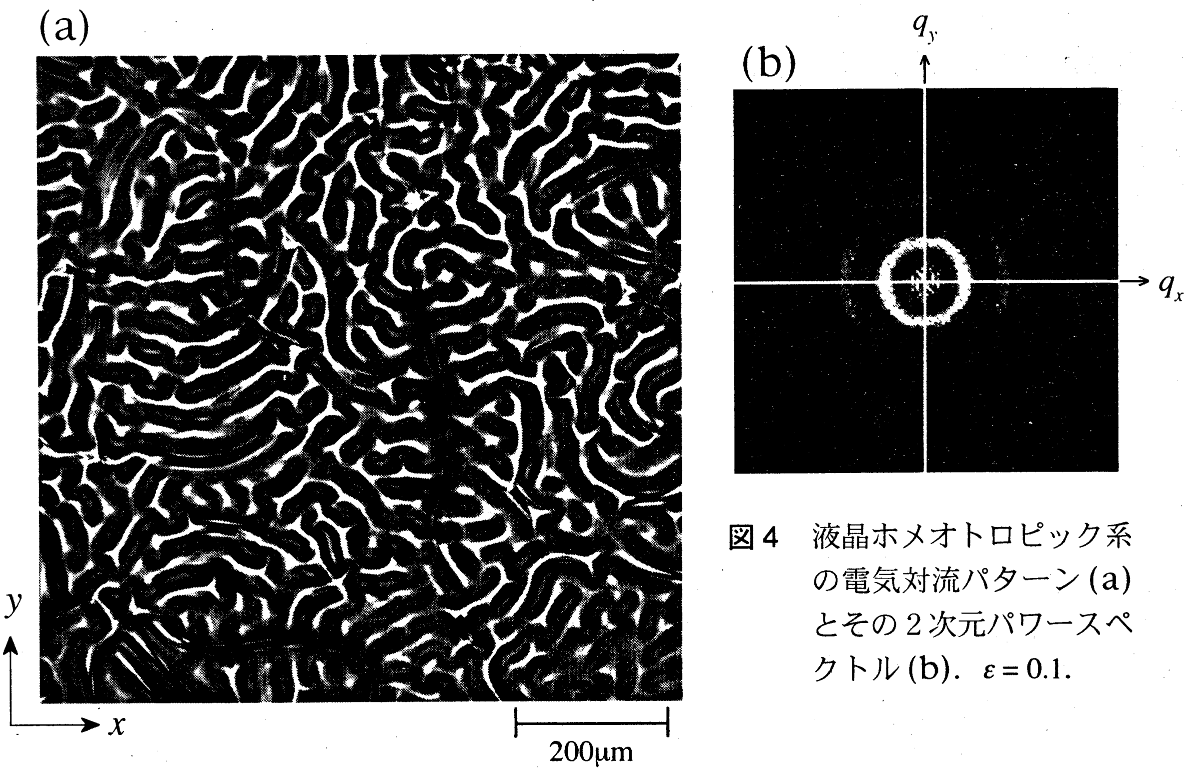


図 4　液晶ホメオトロピック系の電気対流パターン (a) とその２次元パワースペクトル (b).　$\varepsilon = 0.1$.

から求めた緩和時間の逆数（パターンの時間変動の速さを表す），横軸 ε は制御パラメータで $\varepsilon = 0$ は対流発生点である．つまり $\tau^{1} \propto \varepsilon$ となり，緩和時間が $\varepsilon = 0$ で発散していることを示す．つまり $\varepsilon = 0$ では，対流が発生すると同時に時空カオスへ超臨界分岐（連続転移）をしていることを示している．また，この図から分かるように，対流発生点へ向かって時空カオスのゆらぎが一種のソフト化を示している．そこでこの新しいタイプの時空カオスは，「ソフトモード乱流」と名付けられた [10].

正の磁化率異方性（$\chi_{//} - \chi_{\perp} > 0$）をもつ液晶には，外から磁場を印加すると分子長軸がその方向に揃おうとする性質がある．この性質を利用して，ゴールドストーン・モードの発生を制御することができる．つまり充分強い磁場を印加すると **C** は完全に一方向に揃い，なおかつ回転の自由度，すなわちゴールドストーン・モードは抑えられ，その結果，静止安定な整然とした周期パターンが現れる（図6(a)）．磁場を取り除くと抑えられていたゴールドストーン・モードが解放され，自発的に時空カオスへ発展

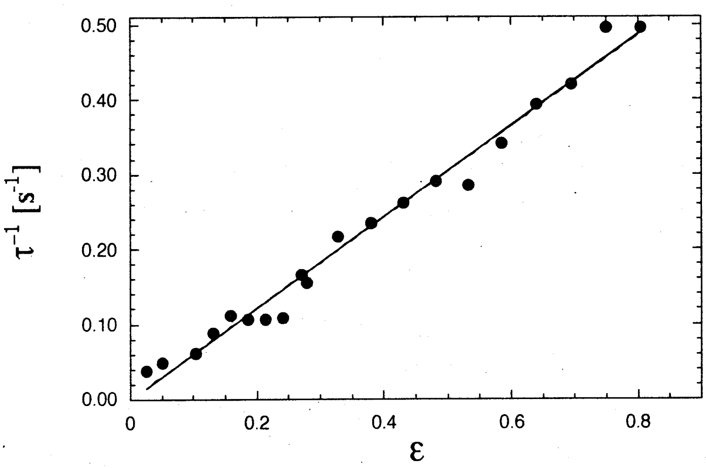


図 5　液晶ホメオトロピック系の時空カオスのゆらぎの相関時間の逆数 τ^{-1}.

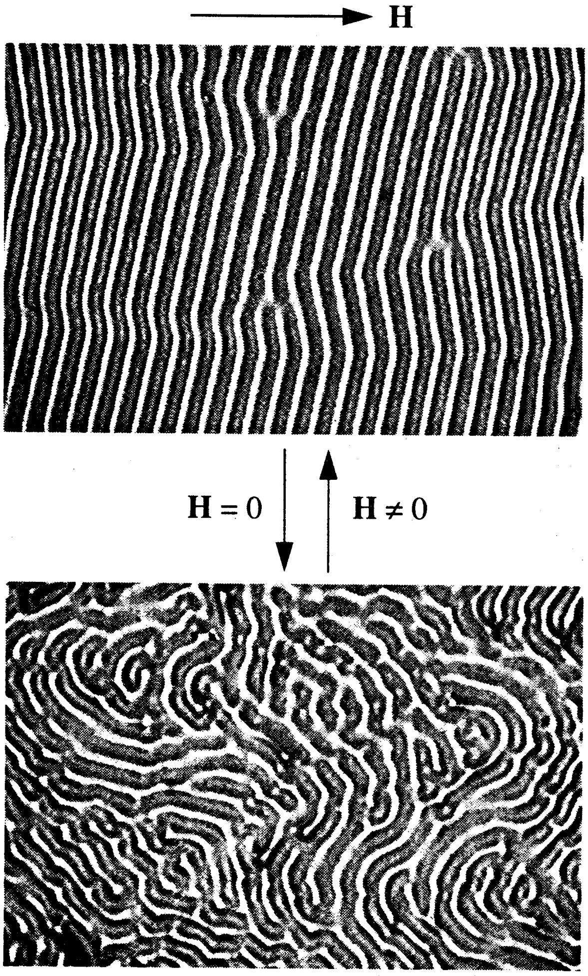


図 6　上は，液晶ホメオトロピック系において，磁場によって **C** の回転自由度を抑えたときに現れる整然としたオブリーク・ロール・パターン．磁場を切ると下のように変化し，最終的には再び時空カオス状態へ至る．

していく（図 6(b)）．上述したように，**C** が完全に一方向に揃った状態は平衡系であれば最も安定な状態であるが，対流系では安定に保たれないことがわかる．この実験から，ゴールドストーン・モードと対流モードの相互作用が時空カオスを生み出すのに重要な寄与をしていることがわかる．

5．ソフトモード乱流と欠陥乱流

液晶ホメオトロピック系の対流パターン・ダイナミクスを議論するためには，対流振幅 A だけでなく **C** の位相角 ϕ（$\mathbf{C} = (\cos\phi, \sin\phi)$ によって定義される）が重要で，それらの結合系を考える必要がある．Rossberg らはそのようなホメオトロピック系を念頭に置いて，等方性が自発的に破れる系の結合方程式を考え，上記のような整然とした周期パターンが不安定化する様子を議論している [11]．その方程式系のうち ϕ のダイナミクスを表す方程式のみを簡単に書くと次のようになる．

$$\gamma \frac{\partial \phi}{\partial t} = K\nabla^2\phi - h^2\phi + G(A, \phi)\,. \tag{6}$$

ただし，γ はディレクタの回転粘性率，K は液晶の弾性率，h は磁場の強さに比例するパラメータ，G は非線形項を表し，$A = 0$ のとき $G = 0$ である．また，フレデリクス転移後に **C** が一様に傾いた方向を $\phi = 0$ としている．$A = 0$ の平衡系で，磁場を印加していない場合は，ϕ のゆらぎの分散関係は $\lambda(k) = -(K/\gamma)\,k^2$（$\lambda$：成長率，$k$：波数）となっており，波数 → 0 の極限で成長率 → 0（緩和時間 → ∞）となるため，確かに ϕ はゴールドストーン・モードであることがわかる．一方 $h \neq 0$ の場合は $\lambda(k) = -(K/\gamma)\,k^2 - h^2/\gamma$ となり，波数 → 0 に対して緩和時間は有限にとどまる．

$h = 0$ の場合，対流が発生して $A \neq 0$ になると，G の項が効いてきて ϕ のゆらぎが励起される．一般に液晶の電気対流では，ディレクタの向き **C** と対流周期パターンの波数 **q** が平行な場合（ノーマル・ロールと呼ぶ）だけでなく，ある角度をもつ場合（オブリーク・ロールと呼ぶ）も起こる．G の形もノーマル・ロールとオブリーク・ロールでは異なり，A の空間依存性を無視すれば，ノーマル・ロールの場合は $G \propto |A|^2\phi$,

オブリーク・ロールでは $G \propto -|A|^2$ となる．したがって，ノーマル・ロールでは $\lambda(k) = -(K/\gamma)k^2 + a^2$（$a \propto |A|$）となるため無限小の $|A|$ に対して $\lambda(0) > 0$ となり，オブリーク・ロールでは，同じく無限小の $|A|$ に対して ϕ の定常解が存在しなくなり，これらの理由によって，対流発生と同時に ϕ が一様で静止した状態が保たれずに時空カオスへ至ると考えられる．

$h \neq 0$ のノーマル・ロールでは，$\lambda(k) = -(K/\gamma)k^2 - h^2/\gamma + a^2$ となり，$|A| > |A|_{th}(h)$ になったときに $\lambda(0) > 0$ となる．対流発生点近傍では，$A \propto \varepsilon^{1/2}$ となるので，このことは $\varepsilon > \varepsilon_{th}(h)$ で時空カオスが発生することを意味しており，実験事実と一致している [12].

ところで，プレーナー系の平衡状態では，上述したように電極付近の液晶分子を強制的にある方向に配向させ（アンカリングと呼ぶ），その境界条件によって系全体の **n** を一様に揃える．ところが，上下境界から充分離れた中央付近の **n** は，アンカリングの束縛力に打ち勝って回転することが可能である．このときの回転モードについては，h^2 をアンカリングとみなせば，以上のホメオトロピック系のノーマル・ロールの議論がそのままあてはまる．つまりプレーナー系における欠陥乱流は，ディレクタの回転モードが，対流モードとの相互作用によって，アンカリングに打ち勝って励起したことによって起こると考えられる．

一般に，周期パターンの波数ベクトルの変化は，欠陥の生成と運動を伴う．ディレクタが回転すると，波数ベクトルはそれに追随して回転しようとするが，そのような波数ベクトルの向きの変化によっては欠陥のグライドが起こる．欠陥乱流において欠陥のグライドが多く見られる理由は，そのように理解することができる．

上下境界が剛体の液晶系では，平均流効果は充分小さい．にもかかわらず平均流効果を考慮した上述のモデルがある程度欠陥乱流の再現に成功したのは，平均流モードとディレクタの回転モードが対称性の上では等価であるためと考えられる．

6．等方性流体における平均流効果とソフトモード乱流

平均流モードとディレクタの回転モードが対称性の上で等価であれば，平均流効果が充分にはたらく等方性流体の対流系であればソフトモード乱流が起こるはずである．最近，低プラントル数流体のブシネ方程式の３次元数値計算の研究が Gunton らによって行われ，対流発生と同時に時空カオスへ超臨界分岐するという結果が得られている [13]. これは液晶ホメオトロピック系の時空カオスへの転移の特徴と全く同様であり，等方性流体のＲＢ対流でもソフトモード乱流が観測されたことを示している．

彼らの数値シミュレーションの特徴は，上下境界が自由境界であり，比較的アスペクト比 Γ の大きい系（$\Gamma = 60$）で計算していることである．上下境界が自由であれば，平均流はゴールドストーン・モードとしてふるまうが，厳密に言えば，波数 $k \to 0$，すなわち波長 $\to \infty$ の極限で緩和時間 $\to 0$ となり，有限サイズの系では $k = 0$ のゴールドストーン・モードは対流発生点で励起されない．しかし，励起されうる最小の波数 $k_{min} \sim 1/\Gamma$ となるため，アスペクト比が大きいほど対流発生点に近いところで時空カ

オスが発生する.

7. まとめ

以上の結果から，長波長のゴールドストーン・モードと短波長の対流モードの共存する系では，対流発生と同時に時空カオスへ超臨界分岐を起こすという結論が得られる．等方性流体のゴールドストーン・モードは，流体の基礎方程式がガリレイ変換に対して不変であるため水平面内流速が保存量となるところから来ている [14]. しかしながら，上記の Gunton らの研究のような上下自由境界を実験的に実現するのは非常に困難である．一方，液晶では相転移が対称性の自発的破れを引き起こすことによってゴールドストーン・モードが現れる．また液晶系では大アスペクト比系を容易に作れることも上で述べた観点から重要である（図4，5のソフトモード乱流の測定は，$\Gamma = 200$ の系で行われた）.

これまでは対流系にのみ注目してきたが，ゴールドストーン・モードは対流系にのみ存在するものではなく，もっと普遍的なものである．Tribelsky らは，ゴールドストーン・モードと短波長モードが非線形相互作用する一般的なモデルにおいてソフトモード乱流が普遍的に起こることを示している [15]. また，このような時空カオスは，対流発生点に近い弱非線形領域で起こるため数理的な研究が比較的容易で，空間自由度をもつ系で発生する乱れの理解に大きな役割を果たすことが期待される．図4(a)に示したような時空カオスパターンはこれまでの欠陥乱流や位相乱流などでは記述されない特異なものである．このような時空カオスを記述するもっと縮約された方程式が導出されれば，時空カオスの研究に新たな局面を生み出すことが期待される.

なお，本講演を行うに当たっては A. G. Rossberg 氏との議論が大変有意義であった．ここに謝辞を述べる.

参考文献

[1] 蔵本由紀，甲斐昌一 他：『パターン形成』（朝倉書店，1991）.

[2] A. C. Newell and J. A. Whitehead: “Finite bandwidth, finite amplitude convection”, J. Fluid Mech. 38, 279 (1969).

[3] E. Bodenschatz, W. Zimmermann and L. Kramer: “On electrically driven pattern-forming instabilities in planar nematics”, J. de Physique 49, 1875 (1988).

[4] S. Kai and W. Zimmermann: “Pattern Dynamics in the Electrohydrodynamics of Nematic Liquid Crystals”, Prog. Theor. Phys. Suppl. 99, 458 (1989); S. Kai, M. Kohno, M. Andoh, M. Imasaki and W. Zimmermann: “Defect Dynamics and Statistics of Defect Chaos in Electrohydrodynamic Convections in Nematics”, Mol. Cryst. Liq. Cryst. 198, 247 (1991).

[5] E. D. Siggia and A. Zippelius: “Pattern Selection in Rayleigh-Bénard Convection near Threshold”, Phys. Rev. Lett. 47, 835 (1981).

[6] S. Sasa: "A Model for Defect Chaos in Electrohydrodynamic Convection of Nematic Liquid Crystals", Prog. Theor. Phys. 83, 824 (1990).

[7] M. Kaiser, W. Pesch and E. Bodenschatz: "Mean flow effects in the electro-hydrodynamic convection in nematic liquid crystals", Physica D 59, 320 (1992).

[8] H. Sakaguchi: "Transitions to defect turbulence in an anisotropic system", Prog. Theor. Phys. 92, 509 (1994).

[9] P. G. de Gennes and J. Prost: *The Physics of Liquid Crystals*, 2nd ed. (Oxford University Press, New York, 1993).

[10] S. Kai, K. Hayashi and Y. Hidaka: "Pattern Forming Instabilities in Homeotropically Aligned Liquid Crystals", J. Phys. Chem. 100, 19007 (1996); Y. Hidaka, J.-H. Huh, K. Hayashi, S. Kai and M. I. Tribelsky: "Soft-Mode Turbulence in Electrohydrodynamic Convection of Homeotropically Aligned Nematic Layer", Phys. Rev. E 56, R6256 (1997).

[11] A. G. Rossberg, A. Hertrich, L. Kramer and W. Pesch: "Weakly Nonlinear Theory of Pattern-Forming Systems with Spontaneously Broken Isotropy", Phys. Rev. Lett. 76, 4729 (1996); A. G. Rossberg and L. Kramer: "Weakly Nonlinear Theory of Electroconvection in Homeotropically Oriented Nematic Liquid Crystal", Physica Scripta T67, 121 (1996).

[12] J.-H. Huh, Y. Hidaka and S. Kai: "Transition Properties of the Soft-Mode Turbulence in the Homeotropic Electroconvection Superimposing Magnetic Fields", J. Phys. Soc. Jpn. 67, 1948 (1998); "ホメオトロピック系における電気対流不安定性での逐次転移とダイヤグラム (Novel Pattern Transition Scenarios in Electroconvection in Homeotropic Nematics under Magnetic Field)", 本研究会.

[13] H. Xi, X. Li and J. D. Gunton: "Direct Transition to Spatiotemporal Chaos in Low Prandtl Number Fluids", Phys. Rev. Lett. 78, 1046 (1997).

[14] 森肇, 蔵本由紀：『散逸構造とカオス』(岩波書店, 1994).

[15] M. I. Tribelsky and K. Tsuboi: "New Scenario for Transition to Turbulence?", Phys. Rev. Lett. 76, 1631 (1996).