

液晶の電気流体力学的不安定性におけるシェブロン・パターンの多様性

九大工 森 信彰 (Nobuaki MORI)
九大工 日高 芳樹 (Yoshiki HIDAKA)
九大工 Jong-Hoon HUH
九大工 甲斐 昌一 (Shoichi KAI)

1. はじめに

液晶にある閾値以上の電圧を印加すると、系の対称性が自発的に破れ、パターンが発生する。これは液晶の電気流体力学的不安定性 (EHD, electrohydrodynamics) と呼ばれる現象で、このパターンは非平衡開放系における典型的な散逸構造である。

液晶の EHD は印加電圧の周波数 f によって 2 種類に分けられることが知られている¹⁾ (図 1)。 f がある臨界周波数 f_c より低い場合 (図-1(a)) は、液晶の棒状分子のゆらぎがトリガーとなって周期的な電荷分布が発生し、この電荷が電場に引きずられる事によってマクロな対流が発生する。この時電場の交番に伴って電荷分布の正負が入れ替わり再蓄積されるので、交流電界によって対流の向きは変化しない^{2),3)}。この結果、流体を下から熱したときに発生する Rayleigh-Benard 対流と類似の現象となり、対流ロールが一方向に整然と配列した周期的な構造が発生する^{2),4)}。この構造は、液晶の光学的異方性によって偏光顕微鏡下で縞模様 (Williams ドメイン, 図-2(a)) として観察される。

一方、 $f > f_c$ では電荷の再配置が間に合わなくなり、電荷が蓄積されずに液晶分子の外場による振動現象が支配的になる¹⁾ (図-1(b))。液晶の EHD では、前者の現象が起きる領域を導電領域、後者の現象が起きる領域を誘電領域と呼んでいる。

誘電領域では導電領域とは違ったパターンが見られることが知られている。図-2(b) に示すパターンはシェブロンパターン^{5),6)} (杉綾模様の意) と呼ばれる誘電領域特有のパターンである。このパターンは、欠陥とロールによる二重周期構造をもつパターンとして以前から興味を持たれていた。またシェブロンパターンのロール構造については甲斐ら⁷⁾ や山崎ら⁸⁾ の実験から、現在では表面付近での小スケールの対流⁹⁾ によるものだと理解されている。

このシェブロンパターンに対する理論的なアプローチは、最近になってようやく Rossberg らによって行われた¹⁰⁾。これは欠陥とディレクターの向きに注目したモデルで、欠陥をトポロジカルな電荷 (±欠陥) と考え、反応拡散系に類似した方程式でその運動を記述しようとするものである。反応拡散系では、ある条件で Turing 不安定性が起き空間構造が表れることがよく知られているが、このモデルではその空間構造がシェブロンパターンの持つ欠陥の周期配列に相当する。

しかし、シェブロンには色々なタイプが存在することが知られており未だ不明瞭な点が多い。そこで本研究では、シェブロンパターンの構造やダイナミクスなどの特徴を明らかにすることを目的とした。

2. 実験

実験はネマチック液晶をプレーナー配向させた系で行った。これは、液晶分子の平均の方向 (ディレクターという) を上下境界に対し平行に一方向へ揃えて配向させた系である。液晶は EHD の実験でよく使われている MBBA (*p*-methoxybenzilidene-*p'*-*n*-butylaniline) を用い、試料導電率 σ を上げるために TBAB (tetra-*n*-butylammonium bromide) をドーブし、その濃度によって σ を制御した。本研究では 0.01 wt% ($\sigma_{\perp} = 4.5 \times 10^{-7} \Omega^{-1} \text{m}^{-1}$, σ_{\perp} : ディレクターに対して垂直方向への

導電率) 混入のものと 0 wt% ($\sigma_1 = 6.3 \times 10^8 \Omega^{-1} \text{m}^{-1}$) の二つを用意した. 系のサイズは 10×10 mm, 厚さは $50 \pm 5 \mu\text{m}$ である. 上記のサンプルセルを温度制御の装置がついた試料観測容器に入れ, 30 ± 0.1 °C に保って測定を行った.

3. 結果

3.1 サンプルセルの閾値特性

まずサンプルセルの特性を知るために, 周波数に対するパターン発生の閾値を調べた. この時, 周波数を固定してゆっくりと電圧値を上げていき, 対流パターンが発生した値を閾値とした. 図-3(a)が導電率を高くしたセルの閾値特性, 図-3(b)が何も混ぜていない低導電率のセルの閾値特性である. また, グラフ中の●は Williams ドメインの発生閾値, ×がシェブロンパターンの閾値である.

この図から分かるように, 導電率の高いセルでは, パターンが Williams ドメインからシェブロンに変化しても周波数に対する閾値変化が連続的であるのに対し, 導電率の低いセルでは, Williams ドメインからシェブロンに変わったときにその閾値変化に不連続な跳びが現れる.

3.2 波数の周波数依存性

この2種類のセルを用いて実際に観察されたシェブロンパターンを図-4に示す. 図-4(a)が高導電率のセルで観察されたシェブロンパターンであり, 図-4(b)が低導電率のセルで観察されたシェブロンパターンである. この図から, 形に類似性があるもののその空間スケールはまったく違うものであることが分かる. そこでこれらのパターンの違いを特徴づけるために, 周波数に対するパターンの波数変化を調べた.

図-5がその結果である. 図-5(a)が, 高導電率のセルにおける波数の周波数変化, 図-5(b)が低導電率のセルにおける波数の周波数変化である. グラフ中の●は Williams ドメイン, ×がシェブロンパターンを表している.

波数変化も閾値変化と同様に, 高導電率のセルではパターンが Williams ドメインからシェブロンに変化してもその波数変化が連続的であるのに対し, 低導電率のセルでは発生するパターンが Williams ドメインからシェブロンに移ったときに波数変化に大きな跳びが現れる.

以下では, 前者のように波長が数 $10 \mu\text{m}$ のオーダーで波数変化が連続のものをシェブロン A, 後者のように波長が数 μm のオーダーで波数変化に跳びがあるものをシェブロン B と呼ぶことにする¹⁰⁾.

3.3 電圧上昇に対するシェブロンパターンの形成過程

次にそれらのパターンの電圧上昇に対する形成過程に注目した. それぞれのサンプルセルにおいて周波数を逐次固定し, 閾値以下の電圧から徐々に値を上げていき, その様子を観察した¹¹⁾.

まず, シェブロン A の形成過程を図-6に示す. 最初に, クロスニコル下で明暗が周期的に並んだパターンが観察される¹²⁾ (図-6(a)). この時には対流パターンはまだ発生していない. それにも関わらず明暗が現れるが, これは図-6(c)のように液晶分子配向の周期的変形に因るものと考えられる. さらに電圧を上げていくと欠陥のないシェブロンパターンが発生する (図-6(b)). しかしこのパターンは安定ではなく, しばらくすると崩壊する.

次にシェブロン B の形成過程を示す (図-7). まず Williams ドメイン状の, 細いストライプパターンが発生する (図-7(a)). この後, 電圧を上げると系内に多数の欠陥が発生し, 欠陥カオス¹³⁾状態になる (図-7(b)). さらに電圧を上げていくと, +欠陥 (欠陥の上側でロールの波数が大) と -欠陥 (欠陥の下側でロールの波数が大) が, 縦には同符号の欠陥が真っ直ぐに, 横にはそれ

それぞれの欠陥が交互に周期的な並びを形成するように集まり、シェブロン B を形成する (図-7(c)). このとき集まった欠陥は、それぞれの欠陥の正負により上方向か下方向に動いており、そのためシェブロン A とは違い、このシェブロン B の形は保持される。

4. 考察

これら、シェブロン A とシェブロン B の違いについて導電率の違いから次のように推測できる。周波数が高くなるとロールサイズは小さくなる。そのために、上下境界から離れた中央の部分では電荷を電極間で上下に移動させるより横方向に移動して正負を打ち消しあったほうがエネルギー的に有利になると考えられる。つまりバルクでは、横方向で電荷の再結合、消滅が優勢である。これに対し境界近傍では、電極への移動で電荷を脱極する方が有利であり、これは通常の Williams ドメインと同様の対流を導く。しかしながらこれは境界領域のみで生じるため、対流ロールの大きさは小さくなる^{5),7),8)} (シェブロン B)。この境界層の厚さは導電率や弾性率に依存し、導電率が高くなると電荷の上下動の移動のほうが有利になるので、系全体にわたるロール構造が保たれる (シェブロン A)。この時、シェブロン A の方ではロール構造が変化しないために閾値変化に大きな跳びがなく、シェブロン B の方ではロールサイズの大きな変化のために閾値変化に大きな跳びが存在するものと考えられる。

5. まとめと今後の課題

プレーナー配向をしている液晶における EHD の誘電領域で観察されるシェブロンパターンについて、周波数に対する閾値と波数の変化、電圧上昇に対する形成過程について明らかにした。その結果、シェブロンパターンには少なくとも波長が数 $10 \mu\text{m}$ と数 μm の二種類があることが分かった。前者はその波数変化が連続的であり、パターンは一様静止状態からいきなり表れ欠陥が存在しない。後者はその波数変化に跳びがあり、欠陥乱流状態からの欠陥の再配列によってパターンを形成する。ここでわれわれは欠陥のない波長数 $10 \mu\text{m}$ のシェブロンをシェブロン A と、欠陥によって構成される波長数 μm のシェブロンをシェブロン B と名付けた。

これらの違いは境界からバルクまでの距離と導電率に関係があると考えられる。そこで今後、これらのパラメータを変化させることにより、欠陥のあるシェブロン A と欠陥のないシェブロン B がどのような状態で現れるかを研究する予定である。また、液晶分子が電極面に垂直に配向している系 (ホメオトロピック系) の誘電領域や空間強制周期外力下でもシェブロンパターンが生じることが確認されている。これらの系でシェブロンパターンが観測される事実は、その機構解明に関するヒントになると共に、シェブロンパターン形成の非線形数理による理解に大きな示唆を与える。今後の詳細な観測およびそれを通じてのシェブロンの機構についての研究にも興味を持たれる。

6. 参考文献

- 1) 甲斐昌一: 『パターン形成』(蔵本由紀, 甲斐昌一 他著, 朝倉書店, 1991) 第4章「液晶パターン」
- 2) W. Helfrich: J. Chem. Phys. **51** 4092 (1969)
- 3) Orsay Liquid Crystal Group: Mol. Cryst. Liq. Cryst. **12** 251 (1971)
- 4) E. F. Carr: Molecular Cryst. **7** 253 (1969)
- 5) H. Yamazaki, S. Kai and K. Hirakawa: J. Phys. Soc. Jpn. **56** 502 (1987)
- 6) S. Kai and W. Zimmermann: Prog. Theor. Phys. Suppl. **99** 458 (1989)
- 7) S. Kai, K. Yamaguchi and K. Hirakawa: J. Jour. App. Phys. **14** 1653 (1975)
- 8) 矢山, 高田, 甲斐, 平川: 九大工学集報 **52** 634 (1979)
- 9) A. G. Rossberg and L. Kramer: Physica D **115** 19 (1998)

- 10) S. Kai and K. Hirakawa: *Memories Fac. Engr. Kyushu Univ.* **36** 269 (1977)
- 11) ここでは $38 \mu\text{m}$ の厚さのセルによる図を載せているが、 $50 \mu\text{m}$ のものと定性的に同じであった。
- 12) A. N. Trufanov, L. M. Blinov and M. I. Barnik: *Sov. Phys. JETP* **51** 314 (1980)
- 13) S. Kai, M. Kohno, M. Imasaki and W. Zimmermann: *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **198** 247 (1991)

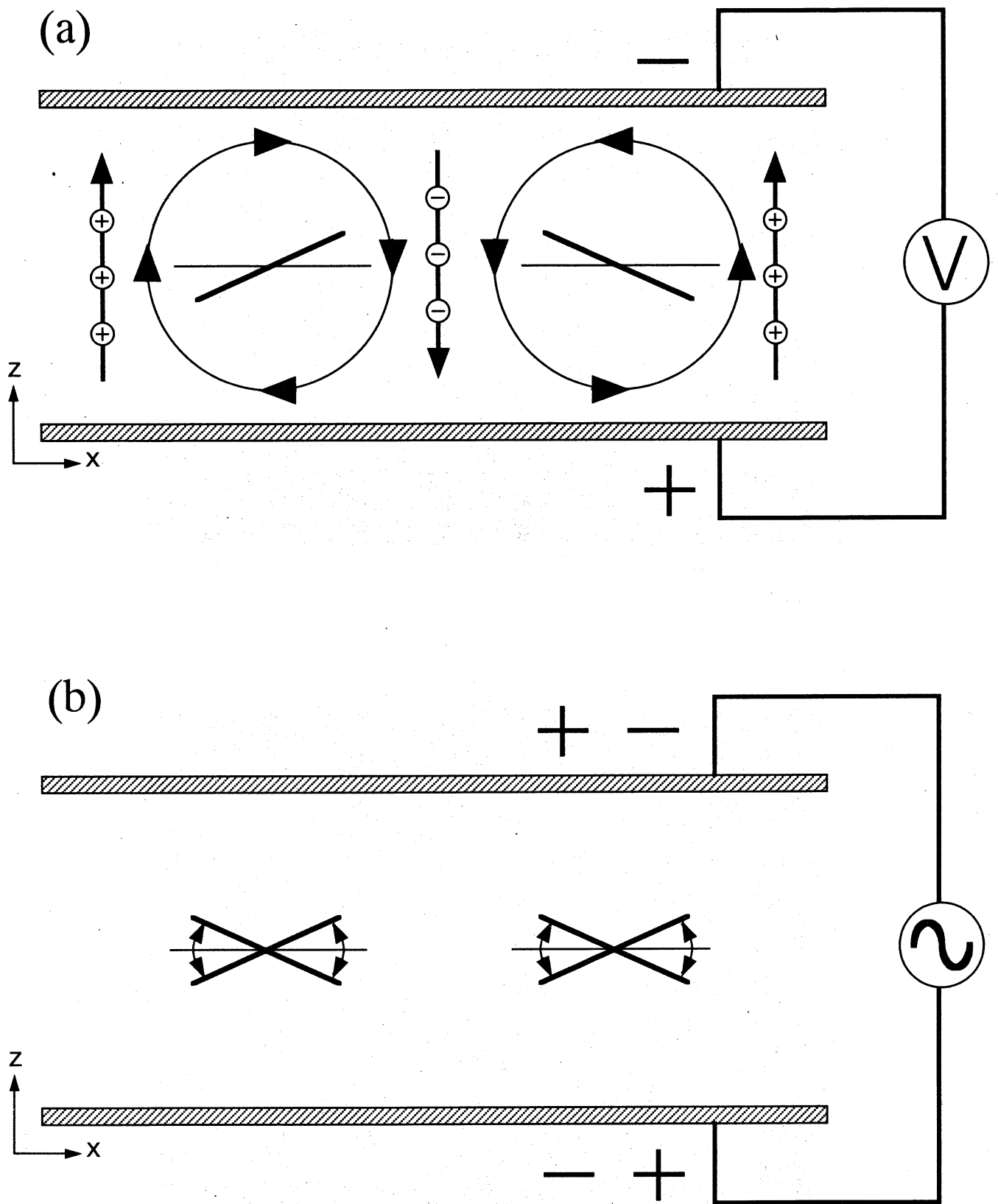
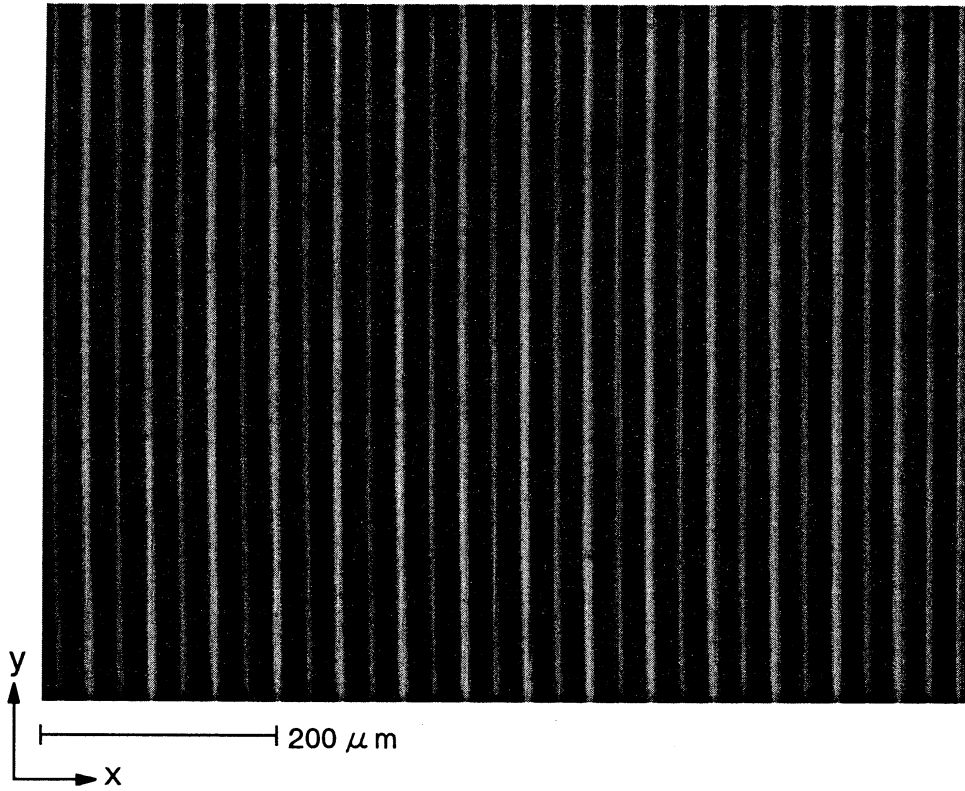


図-1 液晶の電気流体力学的不安定性

(a)



(b)

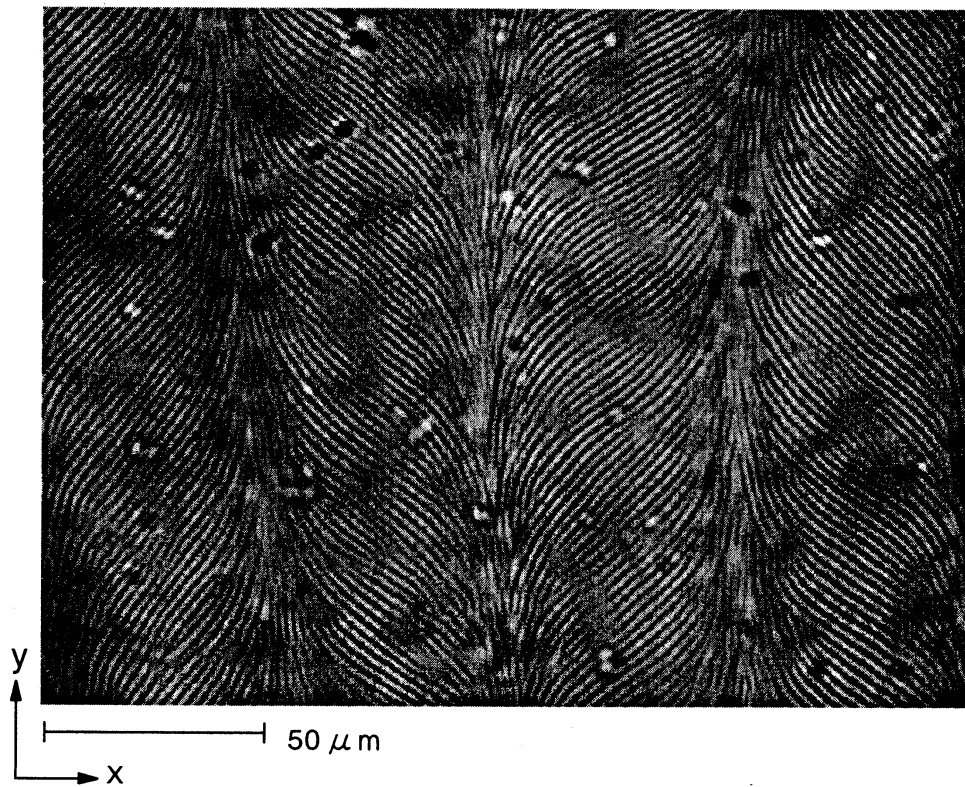


図-2 液晶のEHDで観察されるパターン (a)ウィリアムズドメイン, (b)シェブロンパターン

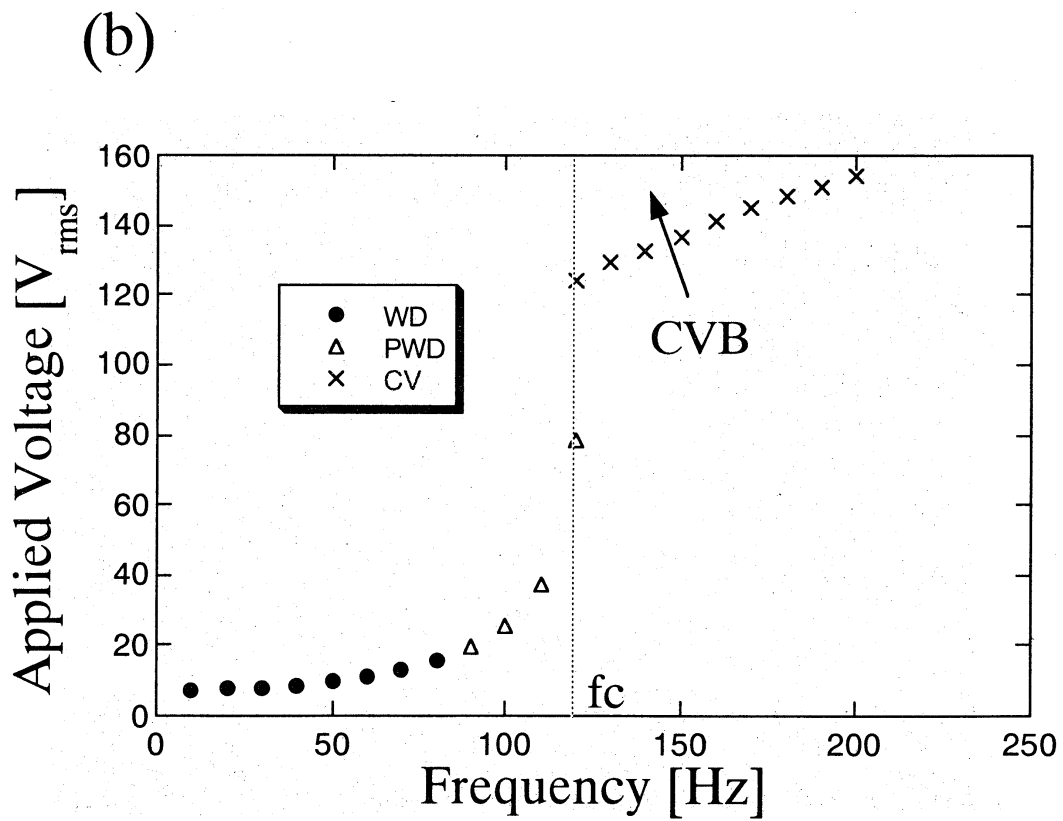
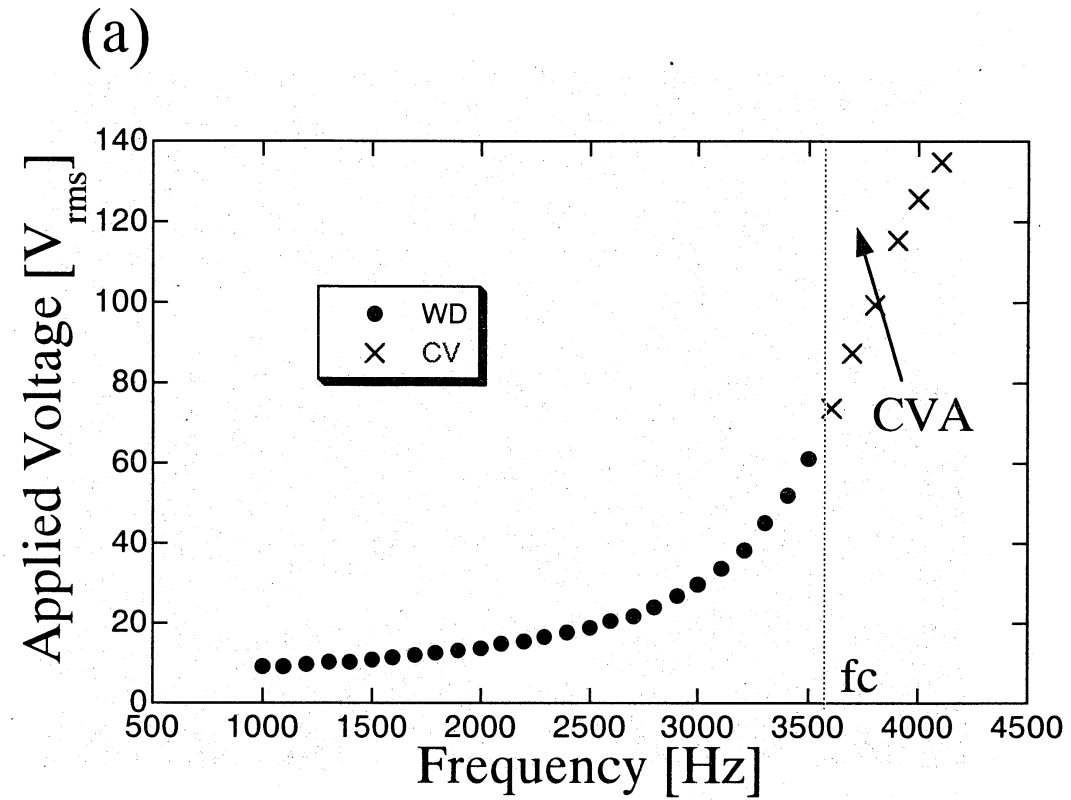
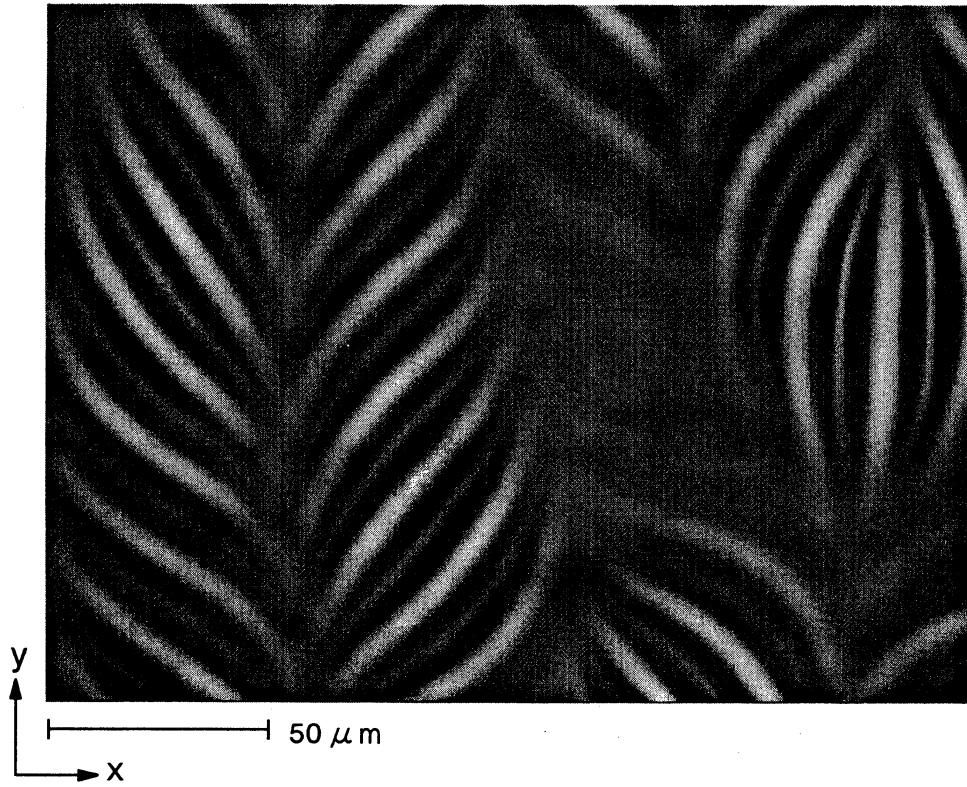


図-3 使用セルの閾値特性

(a)



(b)

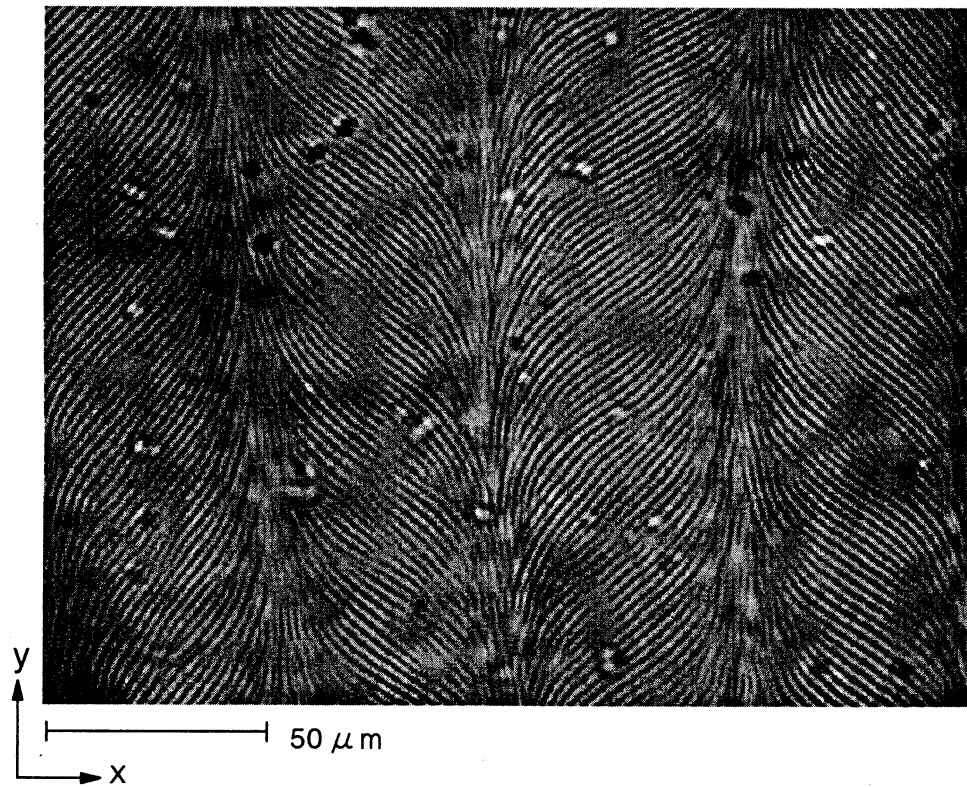


図-4 シェブロンパターン (a) $f=3600 \text{ Hz}$, $V=150$ ボルト, (b) $f=400 \text{ Hz}$, $V=152$ ボルト

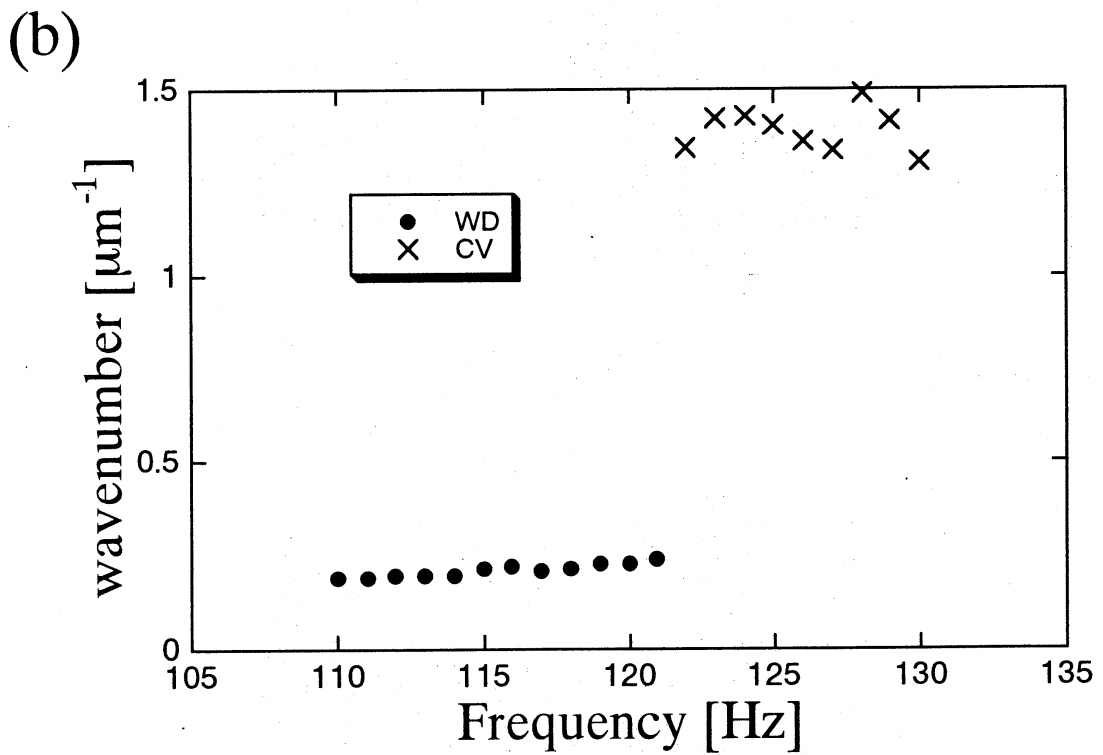
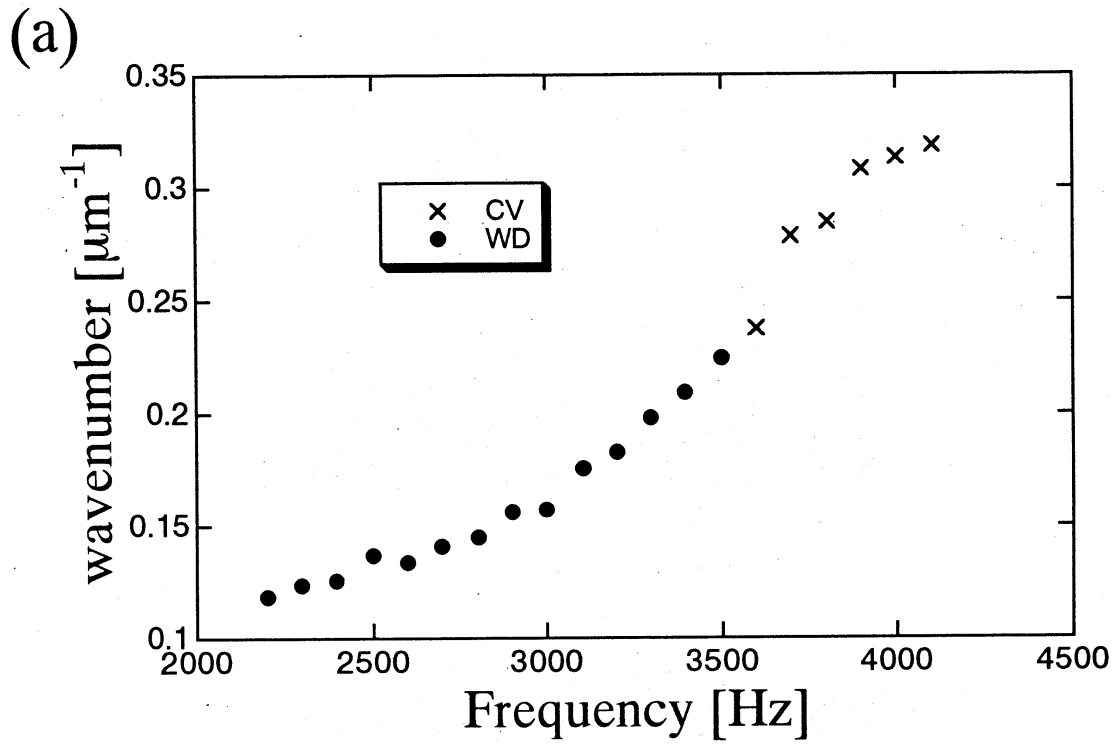


図-5 周波数に対する波数変化

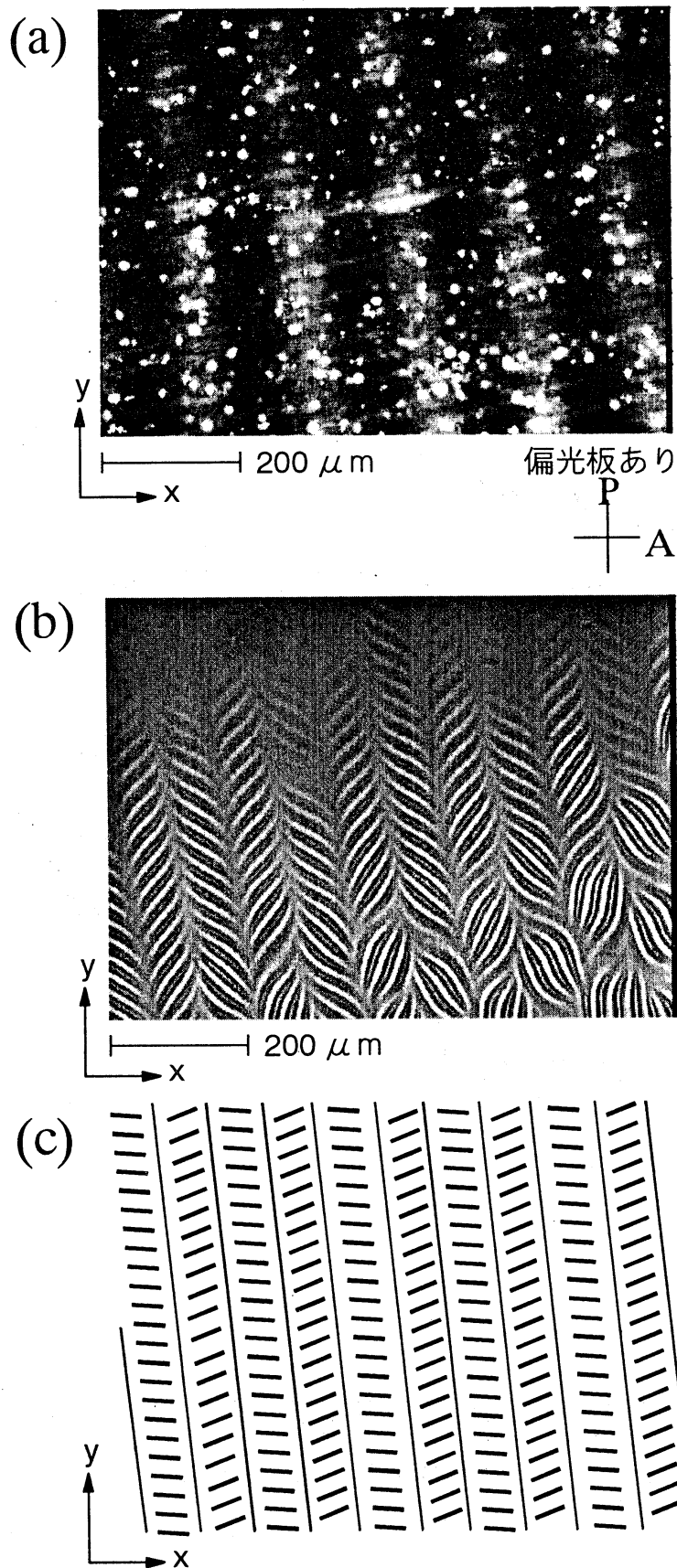


図-6 シェブロンAの形成過程 ($f=2800 \text{ Hz}$) (a) $V=119.3$ ボルト, (b) $V=129.3$ ボルト, (c)ディレクターの配列の模式図

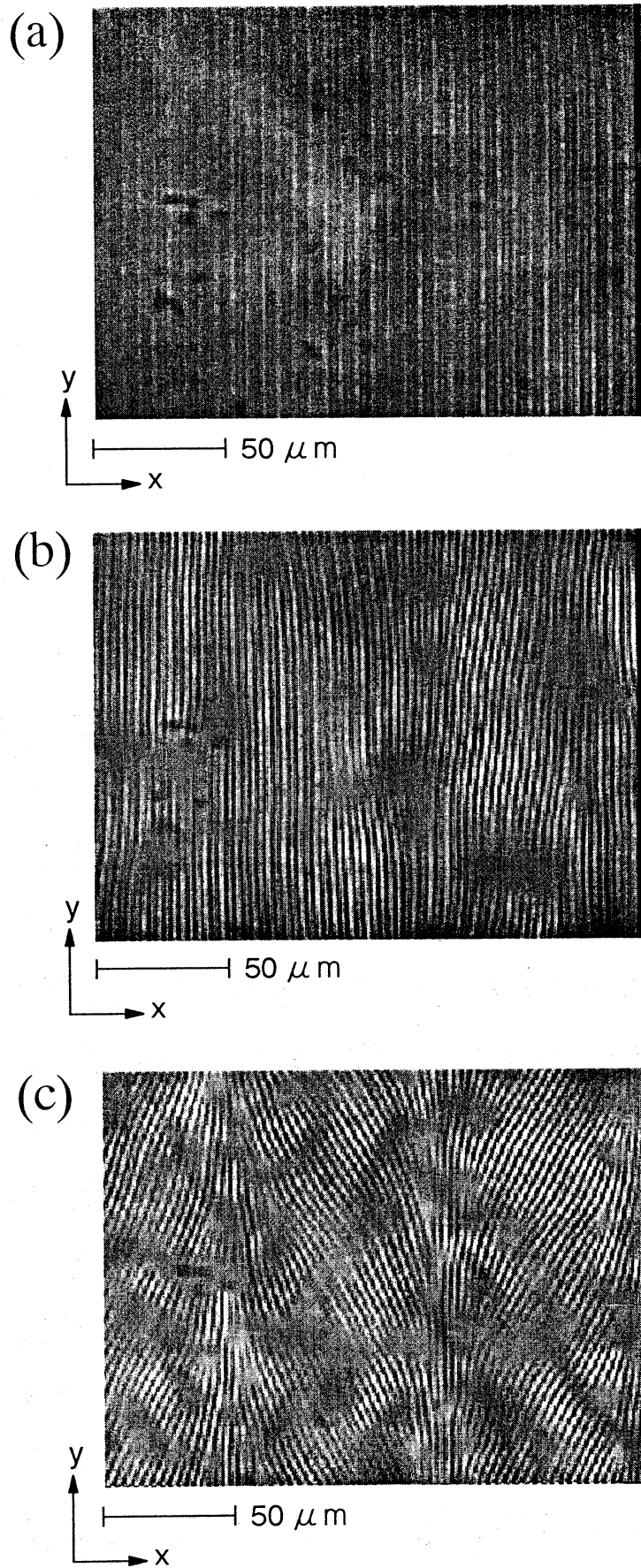


図-7 シェブロンBの形成過程 ($f=200$ Hz) (a) $V=101.2$ ボルト, (b) $V=102.2$ ボルト, (c) $V=103.2$ ボルト