

令和 5 年 5 月 16 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K03872

研究課題名（和文）液晶における負性粘度の発現機構解明

研究課題名（英文）Mechanism of Negative Viscosity in Liquid Crystals

研究代表者

折原 宏 (Orihara, Hiroshi)

北海道大学・工学研究院・教授

研究者番号：30177307

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：負の粘度を持つ流体の探索は古くから行われていたが、我々は電場を印加した液晶においてレオメーターを用いて負の粘性を初めて観測することに成功した。本研究では液晶における負性粘度の発現機構を明らかにする。液晶の配向場、流れの速度場および電場を変数とする方程式をオンサーガーの変分原理より導出し、有限要素法による3次元の数値計算を行った。印加電圧を高くすると、流れが速くなり、欠陥が生成されることが再現でき、定常せん断流下の乱流状態でのせん断応力を求めたところ、応力が負、すなわち粘度が負になっていることが確認できた。この負の応力は速度勾配が界面近傍で逆転することに起因していることが明らかになった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により、実験で観測されていた負の粘度がシミュレーションにより再現できた。この際に用いた運動方程式は極めて一般性のあるもので、ネマチック液晶であれば他の条件下の現象にも適用できる。また、本研究で負の粘度の発現機構を明らかにした液晶は非平衡状態にある流体で、最近ではアクティブマターと呼ばれ非平衡物理学の恰好な研究対象となっている。本研究の成果はこのようなアクティブマターに関する新たな学問分野の開拓およびその応用へとつながると期待できる。

研究成果の概要（英文）：Although the search for fluids with negative viscosity has been conducted for a long time, we have succeeded in observing negative viscosity for the first time in liquid crystals to which an electric field is applied, using a rheometer. In this study, we clarify the mechanism of negative viscosity in liquid crystals. The equations for the orientation field of the liquid crystal, the flow velocity field, and the electric field were derived from Onsager's variational principle, and three-dimensional numerical calculations are performed using the finite element method. It can be reproduced that as the applied voltage is increased, the flow becomes faster and defects are generated. The shear stress under turbulent flow conditions under steady shear flow was calculated, and it was confirmed that the stress was negative, i.e., the viscosity was negative. The negative stress is attributed to the reversal of the velocity gradient near the interfaces.

研究分野：ソフトマター物理学

キーワード：負の粘度 液晶 トポロジカル欠陥 乱流

1. 研究開始当初の背景

流体の粘度は流れに対する抵抗を表わすので、通常は正であるが、非平衡状態では見かけの粘度が負になることは可能である。負の粘度を持つ流体の探索は古くから行われていたが、申請者らは電場を印加した液晶において負の粘性およびこれに起因する自発流れを始めとする一連の新規現象を初めて観測することに成功した (“Negative viscosity of a liquid crystal in the presence of turbulence”, H. Orihara, Y. Harada, F. Kobayashi, Y. Sasaki, Y. Satou, Y. Goto and T. Nagaya, Phys. Rev. E **99**, 012701 (2019)). この発見は、負の粘性を持つ流体に関する新たな学問分野の開拓およびその応用へとつながると期待できる。実験および理論的考察の結果、負の粘性は電場によって誘起された乱流、分子配向変化およびトポロジカル欠陥 (分子配向が不連続となる部分) と密接に関係していることが分かっていた。

2. 研究の目的

負の粘性を示す流体の探索は磁性粒子を液体に分散させた系などでも行われていたが、最近バクテリアの濃厚水溶液において微小ではあるが負の粘性が観測された。これらの系については理論的な研究もなされており、発現機構もある程度明らかになっている。本研究の対象である液晶は遥かに大きな負性粘度を示すが、その発現機構は磁性粒子やバクテリア系とは異なり、液晶の流体力学を基に解明される必要がある。本研究ではこの負の粘性の発現機構を主に連続体理論に基づくシミュレーションにより解明することを目的とする。

3. 研究の方法

本系では液晶の配向、流れおよび電場が相互に関係するので、これらの物理量が従う方程式を変分原理より導出し、有限要素法を用いて数値計算を行う。これと同時に実験も行う。まず、自発流れの速度場を動画の相互相関関数を用いて求める。次に、電場印加による欠陥の生成過程を調べる実験を行う。

4. 研究成果

(1) 液晶乱流中の自発流れ

レオメーターでは自発流れは上部回転盤がトルクフリーの条件で観測されたが、上部回転盤を固定した場合に相当する固定された2枚の板で挟まれた液晶でも自発流れが観測された。画像処理により速度場を求め、印加電場の周波数および振幅依存性を詳しく調べた。

試料として負の誘電異方性を持つネマチック液晶 MBBA (N-(4-ブチルフェニル)-4-メトキシベンゼンメタンイミン)を用いた。平行平板セルを用い、セルギャップは $100\ \mu\text{m}$ に設定した。互いに直交する2つの幅 0.9mm のITO透明電極の交差部分 ($0.9\times 0.9\text{mm}^2$) に交流電場を印加した。電場振幅、周波数を変えながら、定常状態において顕微鏡観察を行った。

Fig. 1(a)に電場強度 $1.06\ \text{V}_{\text{rms}}/\mu\text{m}$ (実効値)、周波数 $50\ \text{Hz}$

のときの顕微鏡像を示す。乱流状態ではディスクリネーションと呼ばれる欠陥が多数発生し、欠陥が密な部分は暗く、粗な部分は明るく見える。動画では明暗のパターンが画面中心の周りにゆっくりと回転していることがわかる。欠陥の移動速度を画像間の相互相関関数を用いて求めた結果を Fig. 1(b)に示す。渦の存在がはっきりと示されている。このような巨視的な渦状の流れが実際に存在していると考えられるが、ここでは欠陥の動きを見ているだけである。実際にこのような流れが存在することは後述するように液晶中に微粒子を分散させた実験から示すことができる。なお、平行平板セルではポアズイユ的な巨視的流れが生じていると考えられる。

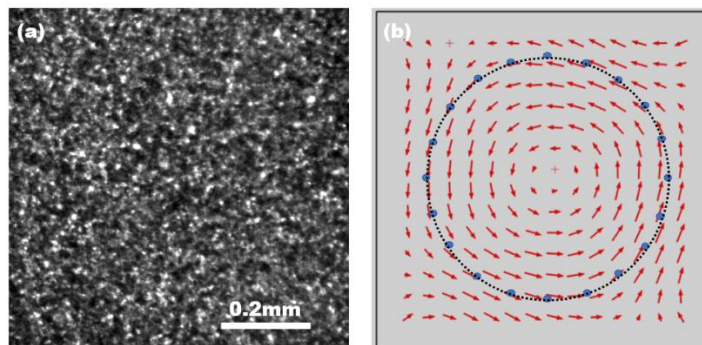


Fig. 1. (a) Microscopic image and (b) the velocity field.

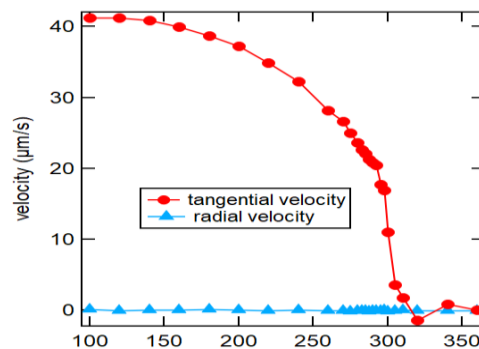


Fig. 2. Frequency dependence of average tangential and radial velocities at $1.06\ \text{V}_{\text{rms}}/\mu\text{m}$.

渦の強さは電場強度および周波数に依存する。ここで、渦の強さを Fig. 1(b)に描かれた円に沿った速度の接線成分の円上の 20 点にわたる平均値（定常状態での時間平均も行っている）で定義する。同様に、動径方向の成分の平均値も定義する。Fig. 2 に電場強度が $1.06 \text{ V}_{\text{rms}}/\mu\text{m}$ のときの周波数依存性を示す。周波数が高くなると接線速度成分は減少し、320 Hz 付近でほとんどゼロとなっている。このような振る舞いは、レオメーターを用いた上部回転盤の自発回転速度と似ているが、レオメーターの場合ゼロとなる臨界周波数は 430 Hz と平行平板セルより高かった。これは、レオメーターのせん断流よりも平行平板セルのポアズイユ流のほうが抵抗が大きいためと考えられる。周波数依存性に関しては、平衡系相転移における秩序変数の温度依存性に類似している点を強調しておきたい。なお、速度の動径成分は周波数とは関係なく、ほぼゼロである。

Fig. 3 に周波数 50 Hz における電場強度の自乗依存性を示す。低電場では渦は生じていないが、 $0.62 \text{ V}_{\text{rms}}/\mu\text{m}$ 付近で接線速度が急激に増大している。また、高電場側では接線速度は電場の自乗に比例しているのが分かる。このような振る舞いはレオメーターの自発回転速度でも観測されており、電場により液晶分子に作用するトルクが電場の 2 乗に比例することで説明がなされている。

次に実際の流れを観察するために、液晶に直径 $6.5 \mu\text{m}$ の粒子を分散させた。Fig. 4 は周波数 50 Hz 、試料温度 25°C の条件下で振幅 140 V の電圧を印加した時の (a) 欠陥の速度場、(b) 粒子の軌跡である。(a) については、先に述べたように、撮影した連続する画像間における欠陥の動きについて相互相関関数を計算し、それから速度場を求めている。(b) については、黒線は画像から直接粒子の動きを求めた結果であり、赤線は (a) の速度場から計算した軌跡である。(a) を見ると、電圧印加によって液晶乱流中に渦状の速度場が形成される事が分かる。(b) の 2 つの軌跡を比べると、だいたい一致していることから、欠陥の動きから求めた速度場は実際の流れを反映していることが確認できた。ただし、(b) の (a) から求めた軌跡では、2 つの軌跡をできるだけ一致するように、計算の際に速度を 1.5 倍している。これは、欠陥が絡まりあっているために、実際の流れよりも欠陥の移動速度が遅くなることを示唆している。

(2) 電場誘起乱流と負の粘性のシミュレーション

ここでは、連続体理論を用いたシミュレーションにより、乱流、欠陥、負の粘性を再現できることを示し、その生成機構について考察する。

ネマチック液晶における分子の配向状態はテンソル秩序変数 $Q_{ij} = \langle a_i a_j \rangle - \delta_{ij}/3$ によって表される。ただし、 a_i は分子に平行な単位ベクトル \mathbf{a} の i 成分であり、 $\langle \dots \rangle$ は微小領域での平均を意味する。 Q テンソルの最大固有値に対応する固有ベクトルはダイレクター \mathbf{n} と呼ばれ、分子の平均の配向方向と一致する。一方、液晶の流動状態は速度ベクトル \mathbf{v} で記述される。ここでは、非圧縮性を仮定し、圧力を p とする。これらの変数は時間と場所に依存する。シミュレーションでは、変分原理 (“Q-tensor model for electrokinetics in nematic liquid crystals”, O. M. Tovkach *et al.*, Phys. Rev. Fluids 2, 053302 (2017).) から導かれた基礎方程式を用いた。また、周波

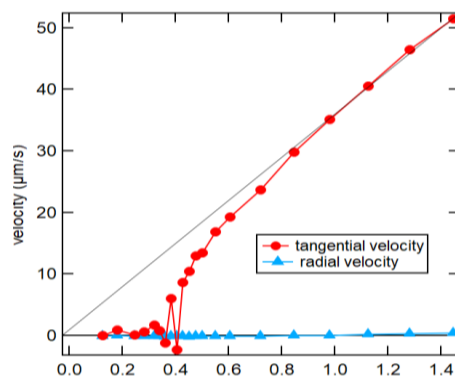


Fig. 3. Electric field dependence of average tangential and radial velocities at 50 Hz .

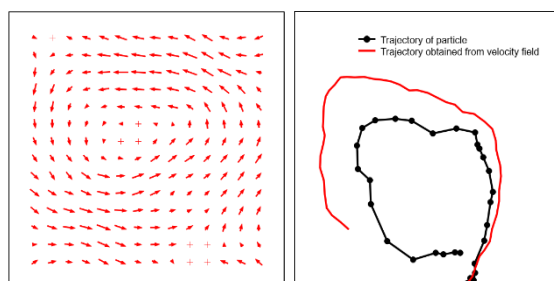


Fig. 4 (a) Velocity field and (b) trajectories

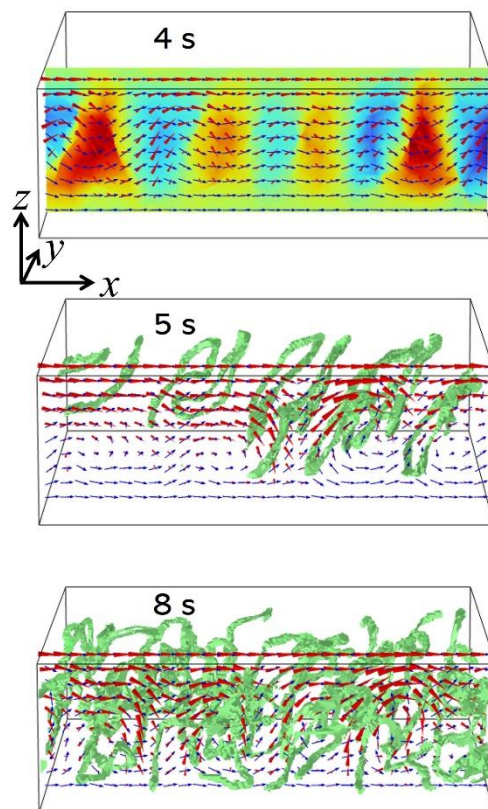


Fig. 5. Director, velocity fields and topological defects obtained at 4, 5, 8 s.

数 f の交流電場を印加するが、ダイレクターの時間変化に比べて電場が十分速く変化すると仮定している。

液晶は間隔 d の 2 枚の平行平板に挟まれており、これらの間には振幅 V_0 、周波数 f の交流電場が印加されているとする。なお、平板は一辺が w の正方形とするが、側面には周期境界条件を課す。上下の平板上ではダイレクターは一方向を向いているとする。有限要素法を用いて数値計算をおこなった。

Fig. 5 にシミュレーションの結果を示す。 $d = 100 \mu\text{m}$, $w = 300 \mu\text{m}$, $V_0 = 40\text{V}$, $f = 50\text{Hz}$ とし、計算には液晶 MBBA の弾性定数および粘性係数等を用いた。上板を x 軸方向へ、せん断速度が 1 s^{-1} となるように一定速度で移動させた。ダイレクターは 2 枚の板上で x 軸方向を向くように設定した。せん断速度と電圧はシミュレーション開始後 5 秒間で設定値になるように線形的に増大させている。矢印はダイレクター (青)、円錐は速度ベクトル (赤) を示す。

Fig. 5 から、4 秒後にはダイレクター場と速度場が波打っているのが分かる。このような変形はウィリアムズドメインと呼ばれ、導電率と誘電率の異方性を起源とする。液晶 MBBA では $\Delta\sigma$ は正、 $\Delta\epsilon$ は負である。ダイレクター方向の導電率が大きいために、電荷はほぼダイレクターに沿って流れる。したがって、ダイレクターが空間的に変化をしていると、電荷の偏りが生じる。図では電荷密度を濃淡 (密度の高低に対応する赤から青のグラデーション) で示している。電荷密度がゼロでない領域には、その正負に応じて電場と同じか反対向きの力が働き、流れが誘起される。さらに、誘電率の異方性により、ダイレクターは電場に垂直になろうとする。これらの力はウィリアムズドメインの形成過程では正のフィードバックとして作用する。

ダイレクターの空間歪が大きくなると、全体のエネルギーを下げるために欠陥 (緑色の曲線) が生成する (5 秒後)。欠陥の部分では Q テンソルが小さな値をとることを利用して欠陥を可視化している。この欠陥はダイレクター場のトポロジカル欠陥になっている。さらに時間が経過すると (8 秒後)、ダイレクターの乱れが大きくなるのに伴って、欠陥も増えている。この時刻でほぼ定常状態になっている。

以上のように、シミュレーションによって、乱流状態および欠陥の生成を再現できた。次に、レオロジー測定によって得られた応力に対応する液晶の上面および下面の σ_{zx} の 10 秒間にわたる平均値を Fig. 6 に示す。せん断速度一定 (1 s^{-1}) の下で印加交流電圧の振幅 V_0 を変化させた結果である。電圧が大きくなると、応力は低電圧側で一定値をとった後、いったん増大し、次に減少に転じ、負の値をとる。このような振る舞いは実験結果と定性的に良く一致している。Fig. 7 に流速の x 成分の時間平均の高さ z 依存性を示す。無電圧下では単純せん断となっているが、電圧が大きくなるとせん断速度が高さに依存するようになる。セル中央ではせん断速度が増大するのに対し、上下の板の近傍では減少している。応力が負になる 50V では、板上のせん断速度は負になる。液晶の固有な粘度は正であるので、この板上の負のせん断速度が負のせん断応力、つまり見かけの負性粘度の起源と考えられる。

本研究によって、ネマチック液晶に高電場を印加したときに発生する乱流に関して以下のことが明らかになった。

- ・液晶を挟む上下の板が固定されていても、自発流れが生じることが分かった。微粒子を分散させることによって、これが実際の液晶の移動を伴う流れであることが確認できた。
- ・変分原理から導出された運動方程式を基にシミュレーションを行った。トポロジカル欠陥と乱流の発生および負の粘度を再現することに成功した。さらに、上下界面付近でせん断速度が負になることが見出され、これが負の粘度の起源であることが分かった。なお、界面近傍の負のせん断速度の起源については現在その機構を調べている。

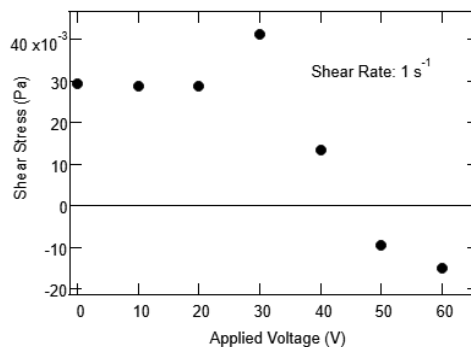


Fig. 6. Voltage dependence of shear stress.

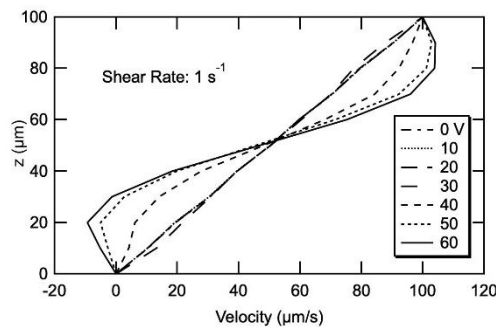


Fig. 7. Height dependence of velocity at various voltages.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 武田純、芳原晃旗、佐々木裕司、小林史明、長屋智之、折原 宏
2. 発表標題 液晶乱流における巨視的自発流れの発生
3. 学会等名 第 69 回レオロジー討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 芳原晃旗、武田純、佐々木裕司、小林史明、長屋智之、折原 宏
2. 発表標題 液晶乱流における巨視的自発流れの発生
3. 学会等名 第 69 回レオロジー討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小林史明、氏家誠司、折原宏、長屋智之
2. 発表標題 電場誘起のMBBA同族液晶の負の粘性
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 折原 宏、芳原晃旗、長屋智之
2. 発表標題 液晶における電場誘起乱流のシミュレーション
3. 学会等名 第70回レオロジー討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 折原 宏
2. 発表標題 液晶における電場誘起乱流と負の粘性
3. 学会等名 MIMS共同研究集会（招待講演）
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	田中 之博 (Tanaka Yukihiro)		
研究協力者	藤井 修治 (Fujii Shuji)		
研究協力者	佐々木 裕司 (Sasaki Yuji)		

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------