

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年 4月 1日現在

機関番号：17102

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2012

課題番号：23656052

研究課題名（和文） 液晶中の自己組織化を利用した3次元構造体の創製

研究課題名（英文） Creation of three-dimensional structures by self-organization in liquid crystal

研究代表者

木村 康之（KIMURA YASUYUKI）

九州大学・大学院理学研究院・教授

研究者番号：00225070

研究成果の概要（和文）：

本研究課題では、等方的な媒質（溶媒）の代わりに異方性溶液である液晶中に分散したコロイド粒子の三次元自己組織構造の作成およびその制御を目指した基礎的研究を行った。まず、光ピンセットを用いた粒子間力測定およびコンピューター・シミュレーションによる粒子間力の算出を行ない、液晶中の粒子間相互作用の解明に成功した。さらに、光ピンセットにより発生させた光電場勾配および局所熱勾配を用いて、1，2，および3次元構造を作成する方法に関して新たな知見を得ることに成功した。

研究成果の概要（英文）：

In this research, we performed fundamental study which aimed at formation and control of three-dimensional self-organized structures of colloidal particles in liquid crystal which is an anisotropic liquid. Firstly, we succeeded in the elucidation of the interparticle force in liquid crystal by both the experimental force measurement using an optical tweezers and the force calculated by computer simulation. Furthermore, we also succeeded in acquiring new knowledge about the method of creating one-, two-, and a three-dimensional structure using the optical electric field gradient and local thermal gradient of the optical tweezers.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,000,000	900,000	3,900,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎・応用光学・量子光工学

キーワード：光学素子・装置・材料、液晶、光ピンセット

1. 研究開始当初の背景

近年、メソスコピックサイズの微粒子を配列させたフォトニック結晶が、新たな光学デバイス用材料あるいはメタマテリアルの候補として注目され、基礎・応用の両面から盛

んに研究が行われている。その作成法として、従来は重力を用いた沈降法などの簡便ではあるが、制御性に乏しい方法が主として用いられて来た。このため、1種類の微粒子からなる最密充填結晶の作成は可能であるが、複

数種の粒子からなる複雑なメソスコピック構造や最密充填でない構造を実現することは原理的に困難である。しかし、種々のヘテロ構造の実現は今後のフォトニックデバイスへの応用を考える際に必須であると考えられる。このような背景のもと、本研究課題では、液晶が秩序、すなわち「方向秩序を持った液体」であることに注目し、その異方的秩序を利用することで、液晶中で上述の要求を満たす新規のコロイド粒子構造の実現を目指した。

2. 研究の目的

液晶中の粒子は液晶の秩序を乱す「欠陥」であり、これらによる乱れを最小とするように、粒子間に長距離相互作用が働くことが近年、理論的に明らかとなってきた。従って、液晶中では、この粒子間相互作用を利用して極めて安定な構造形成が可能となる。しかもこの相互作用が粒子に付随して誘起される欠陥構造の対称性を反映して、従来の水などの等方性媒質中とは異なり、異方的であることが理論的には予測されている。実際に、最近、Musevicらは光ピンセットを用いて液晶中でコロイド粒子を配列させ、2次元結晶の作成に成功している [Science, 2006]。

本研究では、まず、液晶中のコロイド粒子間相互作用を光ピンセットを用いて精密に計測し、得られた結果を液晶の配向場シミュレーションを基にした粒子間力計算の結果と直接比較することで、粒子間相互作用を解明することを目指した。次に、得られた知見を基にして任意の2次元、3次元構造体の作成および制御を目指した基礎的研究を行なうことを目指した。

3. 研究の方法

本研究課題では液晶（主にネマチック液晶）を媒質として用い、その中に分散したコロイド粒子を自己組織的に集積し、3次元構造体（結晶）を作成し、その構造制御を行なうための方法論の確立を目指した。具体的には以下の2つの研究を行なった。

(1) 粒径の異なる粒子間および表面の性質の異なる粒子間に働く相互作用を2ビーム光ピンセットにより直接測定するとともに、液晶の弾性理論に基づく理論シミュレーションを行い、その定量的な評価を行なった。
 (2) レーザー光により作成した局所熱勾配、光電場勾配などの外場を用いた液晶中での3次元自己組織化構造の作成および制御法の開発を行なった。

4. 研究成果

本研究では、従来の水などの等方的な媒質の代わりに異方性液体である液晶を用い、液晶中のコロイド粒子間に働く長距離かつ異

方的な相互作用を利用することにより、コロイド粒子の3次元自己組織構造の作成および制御を目指した以下のような基礎的研究を行なった。

(1) 異粒径粒子間の相互作用および異種粒子間の相互作用の直接測定

従来、液晶中での粒子間相互作用の研究は同じサイズの粒子間のみに限られていたが、粒子周囲の液晶場のひずみはそのサイズに依存して大きく変化するために、粒子間相互作用の形態は両者のサイズ比に依存して大きく変化するものと予想される。このため、粒径の異なる粒子で形成される安定な高次構造にもこれまでに見えない多様性が生まれるものと考えられる。実際、我々は液晶-高分子相分離系において粒径の異なる粒子が混在することで種々の新たな規則的構造が形成されることを報告している [Phys. Rev. E, 2008]。また、このような粒子間相互作用を実験・理論両面から定量的に理解することは、今後、欠陥の少ない構造を作成するための、あるいは合金様の新規構造を設計するために有用な基礎的知見を与えるものと考えられる。

本研究では、2つの光ピンセットを用いて各々の粒子を捕捉し、一方のビームを固定し、他方のビーム位置を移動させ粒子間距離を変化させながら、固定したビームにより捕捉された粒子位置の変化から粒子間力を測定した。一方、理論シミュレーションでは、液晶場の弾性エネルギーを最小化する液晶配向場を数値的に求め、これから粒子間に働く力の算出を行なった [Fukuda, Phys. Rev. E, (2004)]。

両者の方法を用いて粒子に点欠陥が付随するダイポール型粒子を用いて同じ粒径および異なる粒径粒子間の相互作用を調べた (論文 [2])。その結果、実際の測定結果およびシミュレーションの結果が完全に一致することが確認された (図1)。このような理論と実験の定量的比較は従来なされておらず、我々の提案する方法論の有効性を示す有力な証拠となるといえる。

また、粒子サイズが異なる場合にはその位置に依存して力の大きさが変化する配置に関する非対称性が明らかとなり、これを用いる

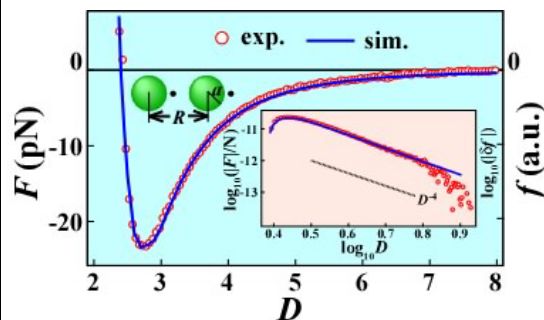


図1. ダイポール型粒子間力の距離依存性。

ことで液晶中でのコロイド構造体は非対称構造を自発的に作成する可能性があることがわかった。

一方、図2に示すような土星型欠陥を付随する粒子(S)や表面欠陥を伴う粒子(P)などの異種欠陥を伴う粒子間力の測定も行った。その結果、これらの粒子は電気的4重極子と同じ形の粒子間力を示すことが明らかとなった。これに加え、粒子間と液晶の配向方向とのなす角度を変化させ、粒子間力の異方性についての測定も行なった。さらに、得られた結果を現象論的な理論と比較し、その遠距離での妥当性と近距離で破綻する理由を議論した。これらの結果は現在、論文投稿中である。

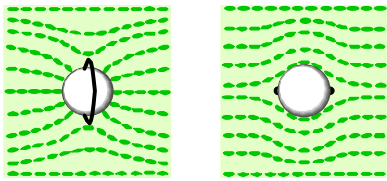


図2. S型粒子(左)とP型粒子(右)周囲の液晶の配向。

(2) 棒状構造体の相互作用測定

コロイド粒子の構造体の安定性を定量的に評価するために、多数のコロイド粒子からなる直鎖状クラスターと単独粒子間の相互作用を光ピンセットを用いて直接測定を行った。その結果、単独粒子とクラスター間の相互作用はクラスターサイズにあまり依存せず、粒子間相互作用には重ね合わせが成立しないことがわかった(論文投稿準備中)。

この測定を行う際には、クラスターと球を同時に光トラップから外し、引力により接近する粒子速度と粒子の受ける実効的な粘性力から粒子間力を測定する「フリーリリース法」を用いた。しかし、従来の方法では、粒子間距離が小さいときには粒子間の実効的な粘性が増加するため、正確な粒子間力を測定することが困難であった。しかし、我々は流体的な潤滑効果を理論的考慮した補正を加えることで粒子間力を求める「補正フリーリリース法」を新たに開発することにより、光ピンセットを用いた場合と同じ粒子間力測定に成功した。

一方、棒状のガラス粒子と球状粒子の相互作用の測定も行ったが、この際には棒状粒子の先端の形状に依存して、粒子長軸の方向が液晶の配向方向からずれることを見出した。このずれは棒の長さとともに減少し、十分長い棒の場合には液晶の方向に配向することが明らかとなった。

(3) セルの配向制御を用いた2次元構造体の構造制御

セルの表面処理を制御して、セル内の液晶に種々の配向状態を実現し、この中で光ピンセットを用いた粒子の2次元構造作成を行った。ことに、液晶をねじる配向状態にし

た場合には、粒子の周囲にリング状欠陥を形成する粒子のリングが変形し、粒子にキラリティーを付与できることがわかった。

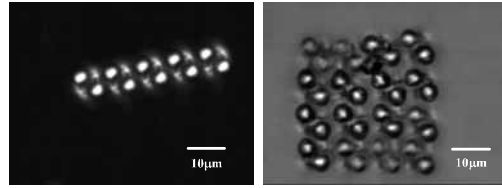


図3. ひも状欠陥を伴う粒子で構成した構造体(クロスニコル)

(4) 光ピンセットを用いた2次元、3次元構造体の配向制御

セル中の高さの違う位置に2次元結晶を作成し、それら进行操作することで3次元結晶を得ることを目指した。しかし、従来認識されていなかったセルの界面での配向と粒子表面での配向に依存して相互作用が変化すること(壁面相互作用)、セル厚が厚いと1次元結晶を2次元配列に充填することが困難になり、幅の小さな帯状の2次元結晶のみが安定化すること(セル厚効果)を発見した。このため、2次元充填結晶を作成するためには粒子サイズとセル厚がほぼ同程度でなければならないことが明らかとなった。このことは、単純に2次元結晶を積層して3次元化する方法では3次元充填結晶の作成は困難であることがわかった(図4)。

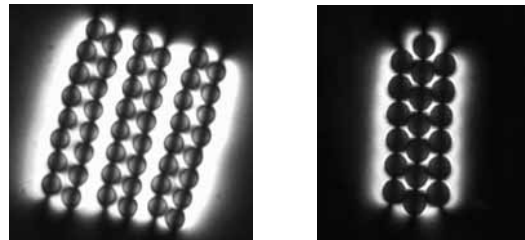


図4. 厚いセル中での粒子配列(左)と薄いセル中での粒子配列(右)。

一方、等方相において熱泳動および光ピンセットを用いて凝集体を作成し、これをネマチック相に急冷する方法では、ランダムな扁平状3次元凝集体の作成には成功した。しかし、その凝集体中での欠陥構造や詳細な充填構造については共焦点蛍光顕微鏡等による解析が必要であり、今後さらに研究を推進する予定である。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計3件)

- (1) Yasuyuki Kimura, Takahiro Kishita, Kosuke Kita and Noboru Kondo, Nematic colloids interaction between

particles in anisotropic liquids, Journal of Physical Society of Japan 81, 2012, pp.SA007-1-8, 査読有
DOI:10.1143/JPSJS.81SA.SA007

- (2) Takahiro Kishita, Noboru Kondo, Kenji Takahashi, Masatoshi Ichikawa, Jun-ichi Fukuda and Yasuyuki Kimura, Interparticle force in nematic colloids comparison between experiment and theory, Physical Review E84, No.2, 2011, pp.021704-1-9, 査読有
DOI:10.1103/PhysRevE.84.021704
- (3) Noboru Kondo, Yasutaka Iwashita and Yasuyuki Kimura, Temperature and confinement effect on interparticle force in nematic colloids, Molecular Crystals and Liquid Crystals, 545 巻, 2011, pp.115-122, 査読有
DOI: 10.1080/15421406.2011.568880

〔学会発表〕(計 8 件)

- (1) 井崎邦義他、ネマチックコロイドの異方的相互作用、日本物理学会第 68 回年次大会、2013 年 3 月 29 日、広島大学
- (2) 木村康之、ネマチックコロイドの相互作用と構造形成(招待講演)、東北大学物性コロキウム、2012 年 12 月 18 日、東北大学
- (3) 桴海文吾他、ネマチックコロイドの構造体の物性、第 118 回日本物理学会九州支部例会、2012 年 12 月 8 日、琉球大学
- (4) 井崎邦義他、異種ネマチックコロイド間の相互作用、第 118 回日本物理学会九州支部例会、2012 年 12 月 8 日、琉球大学
- (5) 井崎邦義他、異種欠陥を伴うネマチックコロイドの粒子間相互作用、第 2 回ソフトマター研究会、2012 年 9 月 25 日、九州大学
- (6) 井崎邦義他、異種欠陥を伴うネマチックコロイドの粒子間相互作用、日本物理学会 2012 年秋季大会、2012 年 9 月 18 日、横浜国立大学
- (7) K. Izaki 他, Anisotropic Interparticle Force in Nematic Colloids, 24th International Liquid Crystal Conference, 2012 年 8 月 23 日, Mainz, Germany
- (8) Y. Kimura 他, Interparticle Force in Nematic Colloids - Comparison between Experiment & Theory, 24th International Liquid Crystal Conference, 2012 年 8 月 23 日, Mainz, Germany

〔その他〕

ホームページ等

<http://mag.phys.kyushu-u.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

木村 康之 (KIMURA YASUYUKI)

九州大学・大学院理学研究院・教授

研究者番号：00225070

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：