

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 3 日現在

機関番号：17501

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2015

課題番号：24656017

研究課題名(和文)光導電体を利用した液晶電気対流の流れ制御

研究課題名(英文)Controlling electro-convection in a liquid crystal cell with a photoconductive crystal

研究代表者

長屋 智之(Nagaya, Tomoyuki)

大分大学・工学部・教授

研究者番号：00228058

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：透明電極付き光導電性結晶とガラスに負の誘電異方性を持つ液晶を入れて電場と光を照射すると、光が照射された領域のみに液晶の対流が誘起される。対流が誘起される閾値電圧の光強度依存性を調べ、局所電気対流を誘起する適切な光強度を特定した。液晶セルは平行配向セルと捻れ配向セルの2種類を作成した。平行配向セルでは、対流ロールの軸の傾きが時間振動する現象を研究した。捻れ配向セルでは、対流ロールの軸方向の流れを研究した。

研究成果の概要(英文)：When we apply an electric field and a laser beam on a liquid crystal with negative dielectric anisotropy which is sandwiched between a photoconductive crystal and a glass plate, a localized electro-convection is induced. The shape of electro-convection is as that of the laser beam. We measured the light intensity dependence of the threshold voltage of electro-convection and found the suitable condition to induce the electro-convection. As the increase of laser beam, the threshold voltage decreases exponentially and becomes a constant value.

We prepared a homogenous cell in which the director aligns a single direction and a twisted cell in which the director rotates by 90 degrees. For the homogenous cell, we investigated angle-deflective oscillation. For the twisted cell, on the other hand, we investigated a flow along the axis of convective rolls.

研究分野：ソフトマター物理学

キーワード：液晶電気対流 パターン形成

1. 研究開始当初の背景

(1)誘電異方性が負のネマチック液晶を分子が一方向を向くように処理されたガラス板に挟んで電圧を印加すると、ある電圧以上で縞状の電気流体力学的対流(Electro Hydrodynamic Convection:EHC)が出現する(図1)。EHCは、レイリー・ベナール対流と同様に、散逸構造の一種である。代表者らは、基礎科学の観点から EHC や液晶系で出現する自己組織化パターンの研究に従事してきた。それらの研究の中では、パターン電極を使って2つの局所的なEHCを作ると、対流が振動的になり両者が同期する事を発見していた(Hidaka et al. J. Phys. Soc. Jpn. 63, 1698-1712 (1994))。一方、液晶の応用分野では、高知工科大の蝶野教授が、液晶に電場を印加した時の背流を利用してモーターを作ること成功していた。この研究を知ったとき、Hertrich らの捻れネマチック(Twisted Nematic: TN)セルでのEHC(A. Hertrich, A. Krekhov and O. Scaldin, J. Phys. II, 4,239-252 (1994))を思い出した。TNセルでは、通常のロールに沿った流れ  $v_{roll}$  とロール軸方向の流れ  $v_{axis}$  が重なった螺旋状の流れになる(図2)。従って、局所的な対流を作ればその周囲に流れを取り出せる。問題は局所対流を作り方であるが、パターン電極法は不効率であるため、ニース非線形研究所の Residori 博士が作成している光導電体付液晶セルに着目した。

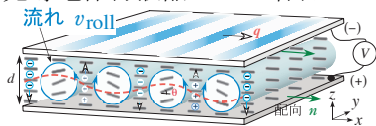


図1 液晶電気対流

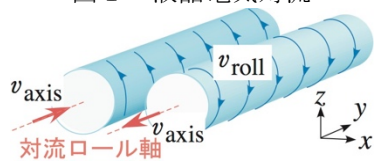


図2 TNセルでの螺旋対流

2. 研究の目的

本研究では、光導電体セルを用いて局所的な液晶電気対流を作り出す方法を開発し、以下の目標を達成することを目指す。(1)局所対流の外部に効果的に液晶の流れを取り出す電圧印加パターンを決める。(2)局所対流の振動の外場同期制御および複数の局所対流間の同期機構の解明を目指す。

3. 研究の方法

(1)本研究で最も重要なことは、液晶電気対流を局所的に作り出す良質な光導電体液晶セルを作成する手法を確立することにある。

光導電体液晶セルの構造を図3に示す。ネマチック液晶を光導電体結晶と透明電極(酸化インジウム(ITO))がったガラス板と光導電体結晶で挟み電場を印加する。光導電体の液晶が接していない面にITOをスパッタリング装置で成膜する。液晶が接する光導電体とガラスのITO面には液晶分子を一方向に揃えて並べる配向剤を塗布する。光導電体結晶としては、 $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ (BSO)を使用する。そして、

保有している高周波スパッタリング装置を用いてITOを形成する事を試みる。また、高品質な液晶セルを作成するために、配向剤を擦るラビング処理、ガラスと結晶の貼り合わせ、セルのマウント等、実験に必要な各種の治具を3次元プリンターで作成する。

(2)光導電体結晶セルが完成した後は、局所的に任意の形のレーザー光を当てる光学系を構築する必要がある。光学系の概念図を図4に示す。落射型の偏光顕微鏡を用い、液晶セルの下部からハロゲンランプの照明を照射して透過で液晶内部の対流を観測する。550nm以下の波長の光でBSO内に光電子が励起されるので、緑色(532nm)の偏光半導体レーザーをピンホールとアクロマトレンズで平行光にし、マスク、レンズL、対物レンズを通してBSOに照射する。マスクは、透過型の液晶光変調器もしくは黒い紙をカッティングプロッタで切り抜いて作成する。このマスクの位置は、対物レンズとLを介して光学的に等価な位置にあり、マスクの形の光がBSOに照射される。顕微鏡内には550nm以下の波長の光が反射する誘電多層膜ミラー(DM)がフィルターマウントに入っている。

(3)光学系を完成した後、対流発生の閾値電圧の励起光強度依存性を測定する。液晶電気対流は、印加する電場の周波数によって閾値が変わる。本研究では、励起光強度と周波数の両方を変えて閾値電圧依存性を測定する。

(4)局所電気対流を誘起できるようになったら、TNセルで2つの局所対流を隣接して並べ、対流境界軸方向流れを利用して渦的な流れを作成する事を試みる。

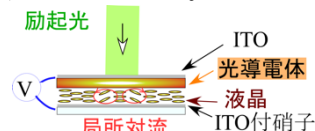


図3 光導電体液晶セルの模式図

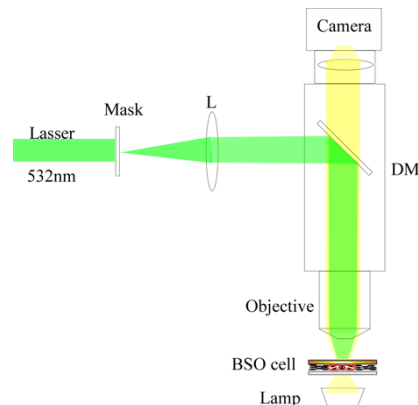


図4 光学系の模式図

4. 研究成果

(1)光導電体セルの作成

まず初めに、ガラスに透明電極ITOを真空スパッタリングで作成する技術を習得した。本実験に適切な導電率の真空度、アルゴンガ

スの流量、スパッタリング時間、加速電圧の条件を決めた。ガラスへのITO成膜に関しては、1cm離れたテスター電極間の抵抗が200Ω程度の良質なITO膜が作成できた。そこで、その条件でBSO結晶の表面にITO膜を成膜することを試みた。しかし、基板がBSO結晶になると、同じ条件で成膜しても抵抗率が1000倍も高くなった。成膜時間を長くし、スパッタ電圧を高くして成膜しようとしたが、アルゴンのプラズマが不安定になり、放電痕が試料に付くようになり、現有のスパッタ装置ではBSO上へのITO成膜はできなかった。BSO結晶は高価なため、むやみに成膜条件を試すことはできない。日本のITO成膜業者に問い合わせても、BSO結晶への成膜は請け負ってもらえなかった。そのため、外国の企業での成膜を調べたところ、ロシアの企業でITO膜付きのBSOを販売する企業を見つけ、そこからITO付きBSOを購入する事にした。ところが、同企業でもITO成膜が難しかったため、契約時の納期3ヶ月条件が守られず、4ヶ月遅れの納入になった。この納期遅れによって実験ができなくなり、研究期間を1年延長することになった。

購入したITO付きBSO結晶で液晶セルを作成した。実験で作成した光導電体セルの構造と写真を図5に示す。配向剤として液晶(LC)に接するBK7ガラスとBSOにポリビニルアルコール(PVA)を塗布してある。これにラビングを施し、液晶の上下で同じ方向に配向する「平行配向セル」と上下で配向方向が90°捻れた「捻れ配向セル」を作成した。電気対流を研究する液晶は誘電異方性が負である必要が有る。通常は、*p*-methoxybenzylidene-*p'*-*n*-butylaniline(MBBA)が使用されているが、この液晶は加水分解によって液晶が劣化する。BSOは入手困難な結晶であるため、安定な液晶であるmerck社MLC2038を用いた。様々な治具を3次元加工機で作成したため、高品質なセルを作成する事ができた。

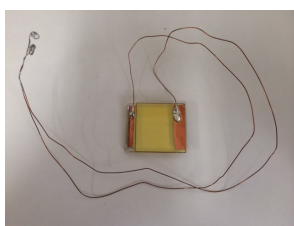
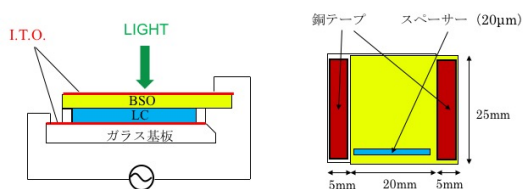


図5 光導電体セルの構造(上)と写真(下)  
(2) 光学系の構築

局所電気対流を生じさせるための光学系の写真を図6に示す。落射型顕微鏡の投光管を取り除き、そこにアクロマートレンズを入れ

て、対物レンズと共焦点の位置にスリットを入れた。このスリットの形状が液晶セルに映され、スリットの形の電気対流が誘起される。光源には、BSOの光電子を励起できる532nmの連続発振レーザーを使用した。レーザー光をビームエキスパンダーで拡大とコリメートしてスリットに平行光を照射した。レーザー光は顕微鏡の底面と同じ高さに設置したため、ビームステアリングを使って投光管の高さまでビームを上げている。使用した偏光顕微鏡の下部にはハロゲンランプがあり、これからの透過光に波長の短い光があると、全体に対流が発生する可能性がある。そこで、赤色のフィルターを通してハロゲンランプの光を下部から照射した。

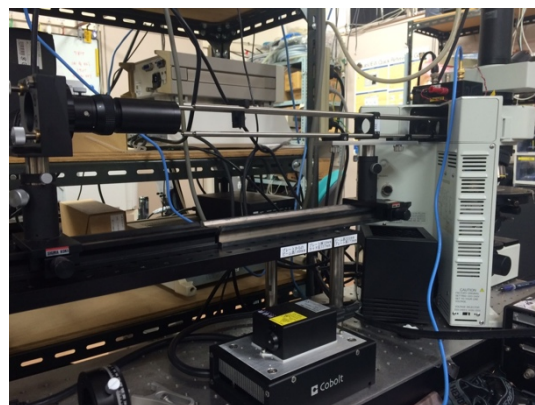
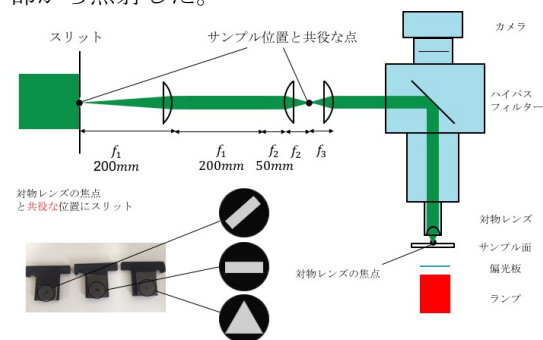


図6 光学系上段(設計), 下段(装置)

### (3) 対流発生条件の測定

電気対流が発生する閾値電圧  $V_{th}$  の、照射光強度、電場の周波数依存性を2種類のセルについて調べた結果を図7, 8に示す。照射領域の大きさによって閾値電圧が変わる可能性があるため、この実験では結晶全体に光を照射した。レーザー強度  $I$  が50mW以下までは、 $V_{th}$  は指数関数的に減少し、50mW以上になると  $V_{th}$  はほぼ一定になる。従って、この実験の用途では100mWのレーザーで十分である。平行配向セルの方が捻れ配向セルよりも  $V_{th}$  が高くなった。印加周波数が高いほど  $V_{th}$  は高くなる。通常のセルで実験に使った液晶を用いて  $V_{th}$  の周波数依存性を測定した結果を図9に示す。図9より、光導電体セルの閾値電あるの周波数依存性は、通常の液晶セルと同じであることがわかった。

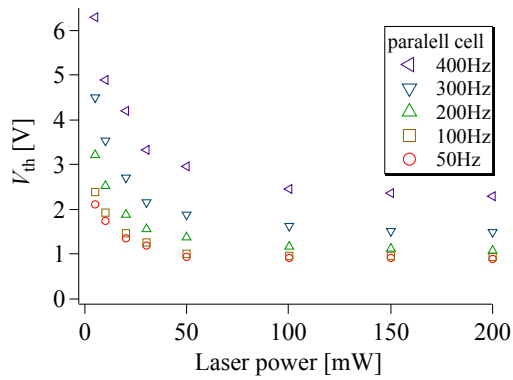


図7 閾値電圧の光強度依存性 (平行配向セル)

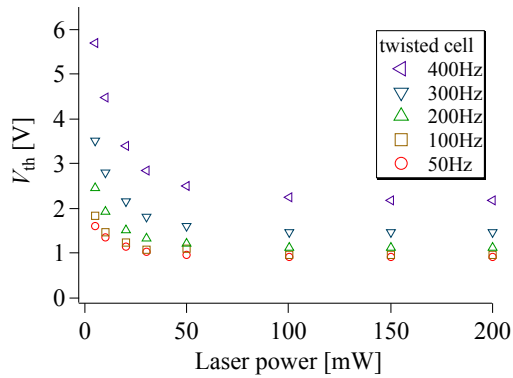


図8 閾値電圧の光強度依存性 (捻れ配向セル)

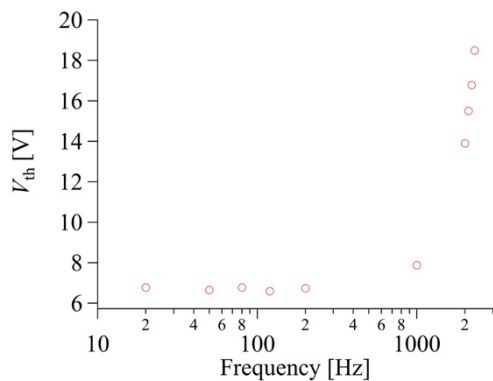


図9 閾値電圧の周波数依存性 (通常セル)

(4) 局所対流の首振り運動の観察

過去のパターン電極を使った局所的液晶電気対流の研究では、局所対流に特徴的な対流ロールの首振り運動が観測されている。本実験系でこれを観測できるかを確認する実験を行った結果を図10に示す。過去の研究と同じ対流局所対流の幅と高さは200ミクロンと90ミクロン、平行配向セルを用いた。ロールの首振り運動を確認することができた。さらに液晶の流れを観測するために、直径5ミクロンの黒い粒子を液晶に混合した。図11に示すように、対流ロール近傍の流れが推定できた。

(5) 局所対流のロール軸方向流れの観測

図1に示したように、TNセルでは対流ロールの軸方向の流れがある。隣り合う流れの間

で向きが異なる。図12に示すように本実験により、局所対流でも同じ軸流れがあることがわかった。図12の白い矢印の元にある黒い粒子が、時間と共に矢印の方向に移動している。

この軸流れの存在を確認したので、TNセルで2つの局所対流を作成し、2つの対流の間に回転流を作ることを試みた。図13にその様子を示す。2つの局所対流のロール軸をロール幅程度にずらし、対流の間に渦を作成する事を試みた。過渡的には渦が生じることはあったが、定常的な渦は発生させることはできなかった。本研究では光導電体セルの作成に予想以上の時間が掛かったため、目標としていた局所対流のロール軸流れを利用して回転流を作り出すことに到達できなかったが、局所対流の大きさをさらに変化させて試みれば、定常的な渦を作る条件を探ることができると期待できる。

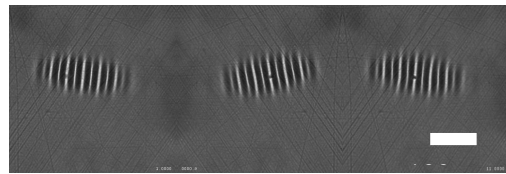
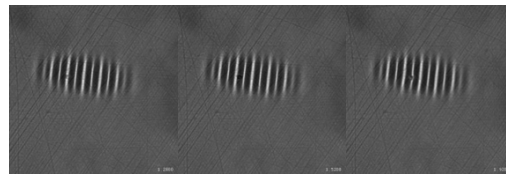
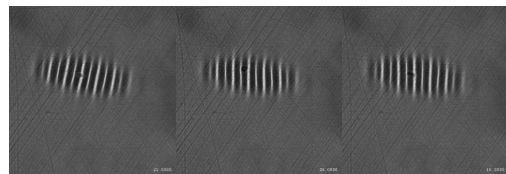
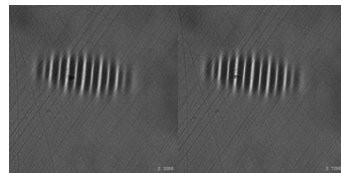


図10 対流軸の首振り運動 5秒毎

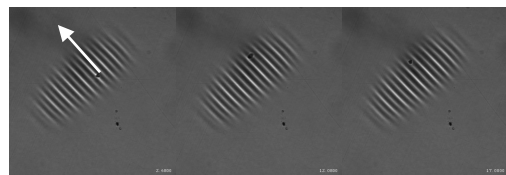


1.28s 後 1.52s 後 1.92s 後

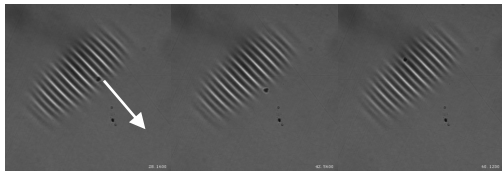


2.32s 後 2.72s 後

図11 局所対流の流れ観察



2.68s 後 12.08s 後 17.00s 後



28.16s 後    42.56s 後    60.12s 後

図 1 2 TN セルでのロール軸流れ

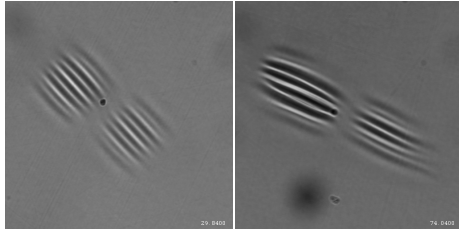


図 1 3 結合対流系での境界流れ

本研究によって、局所的な液晶電気対流を作成する技術が得られたので、この手法を使って局所対流の首振り運動の研究が行えるようになった。目標としていた局所対流の振動の外場同期制御および複数の局所対流間の同期機構の解明までには至らなかったが、これを行う実験的困難は全て克服できた。また、TNセルのロール軸流れが外部に取り出せることも明らかにできた。局所対流の大きさ、形を様々に変えれば、この流れを巧妙に制御できるようになると期待できる。

#### 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 Tomoyuki Nagaya, Yuki. Satou, Yoshitomo Goto, Yoshiki Hidaka, and Hiroshi Orihara, Viscosity of Liquid Crystal Mixtures in the Presence of Electro-Convection, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **85** (2016) to be published. 査読有り

② Takayuki Narumi, Junichi Yoshitani, Masaru Suzuki, Yoshiki Hidaka, Fahrudin Nugroho, Tomoyuki Nagaya, and Shoichi Kai, Memory function of turbulent fluctuations in soft-mode turbulence, *Physical Review E*, **87**(2013) 012505-1-012505-10. 査読有り

③ Tomoyuki Nagaya, Mikiyasu Niu, Shigetoshi Nara, Yang Ho Na, and Hiroshi Orihara, Apparent viscosity of p-methoxybenzylidene-p'-n-butylaniline in the presence of electrohydrodynamic convection, *Physical Review E*, **87**(2013) 012501-1-012501-10. 査読有り

[学会発表] (計 12 件)

① 長屋智之, 小川航太, 後藤善友, 光導電体を利用した局所的液晶電気対流の観測, 日本物理学会 2015 年秋季大会, 平成 27 年 9 月 17 日 関西大学(大阪府吹田市)

② 小林史明, 佐々木裕司, 日高芳樹, 長屋智之, 折原宏, 液晶電気対流のしきい値近傍における配向ゆらぎの観察, 2015 年液晶学会討論会, 平成 27 年 9 月 7 日 東京工業大学すずかけ台キャンパス (神奈川県横浜市)

③ Yuki Satou, Tomoyuki Nagaya, Yoshitomo Goto, Yoshiki Hidaka and Hiroshi Orihara, Rheology and Patterns of Electro-Hydrodynamic Convection in Liquid Crystal Mixtures, International Symposium on Fluctuation and Structure out of Equilibrium 平成 27 年 8 月 21 日, 京都大学紫蘭会館 (京都府京都市)

④ Tomoyuki Nagaya, Yuki. Satou, Yoshitomo Goto, Yoshiki Hidaka, and Hiroshi Orihara, Apparent Viscosity and Stripe Structure of a Mixture of MBBA and EBCA in the Presence of Electro-Convection, The 2nd Asian Conference on Liquid Crystals, 平成 27 年 1 月 19 日, 海雲台グランドホテル (韓国釜山特別市)

⑤ 佐藤裕樹, 後藤善友, 長屋智之, 折原宏, 剪断場における MBBA-EBCA 混合液晶の電気対流とレオロジー, 第 120 回日本物理学会九州支部例, 平成 26 年 12 月 6 日, 崇城大学 (熊本県熊本市)

⑥ 長屋智之, 佐藤裕樹, 後藤善友, 折原宏, MBBA-EBCA 混合液晶における電気対流下のレオロジー, 新学術領域「ゆらぎと構造」第 2 回公開シンポジウム, 平成 26 年 8 月 30 日, 北海道大学 (北海道札幌市)

⑦ 佐藤裕樹, 後藤善友, 長屋智之, 折原宏, Rheology of Electro-Hydrodynamic Convection in a Liquid Crystal Mixture, International Union of Materials Research Societies, International Conference in Asia 2014, 平成 26 年 8 月 25 日, 福岡大学 (福岡県福岡市)

⑧ 長屋智之, 折原宏, 液晶電気対流のレオロジー, 新学術領域 ゆらぎと構造の協奏 第一回領域研究会 平成 25 年 12 月 26 日, KKR 熱海 (静岡県熱海市)

⑨ 三上洋輔, 日高芳樹, 鳴海孝之, 鈴木将, 長屋智之, 原一広, 液晶電気対流における欠陥乱流の時空揺動 II, 日本物理学会 2013 年秋季大会, 平成 25 年 9 月 25 日 徳島大学常三島キャンパス (徳島県徳島市)

⑩ 九鬼広之, 長屋智之, 折原宏, 電氣的応力が液晶電気対流下の粘性に及ぼす効果, 第 2 回ソフトマター研究会, 平成 24 年 9 月 25 日, 九州大学西新プラザ (福岡県福岡市)

⑪ 三上洋輔, 日高芳樹, 吉谷淳一, 鈴木将, 鳴海孝之, 長屋智之, 甲斐昌一, 液晶電気対流における欠陥乱流の時空揺動 日本物理学会 2012 年秋季大会, 平成 24 年 9 月 18 日 横浜国立大学常盤台キャンパス (神奈川県横浜市)

⑫ 長屋智之, 九鬼広之, 奈良重俊, 折原宏, MBBA-EBCA 混合系における電気流体力学的対流下の粘性, 日本物理学会 2012 年秋季大会, 平

成24年9月18日, 横浜国立大学常盤台キャンパス (神奈川県横浜市)

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

長屋 智之 (Nagaya Tomoyuki)

大分大学・工学部・教授

研究者番号: 00228058

### (3) 連携研究者

折原 宏 (Orihara Hiroshi)

北海道大学・工学研究科・教授

研究者番号: 30177307

日高 芳樹 (Hidaka Yoshiki)

九州大学・工学研究院・助教

研究者番号: 70274511