

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 10 日現在

機関番号：10101

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2017

課題番号：16K17776

研究課題名(和文) 液晶の電気流体力学現象がもたらす特異なコロイド結晶構造の研究

研究課題名(英文) Study on the colloidal aggregation caused by electro-hydrodynamic effects of nematic liquid crystals

研究代表者

佐々木 裕司 (Sasaki, Yuji)

北海道大学・工学研究院・助教

研究者番号：00649741

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：液晶にイオンを意図的に混合し交流電圧を印加すると、多様な電気流体力学的流れが起こる。この流れを利用してコロイド粒子を運動させ、さらに凝集構造を作成することを試みた。液晶材料や配向膜などの実験条件を様々に変化させることによって、幾つかの特徴的な凝集構造を生み出すことができた。また、特定の実験条件では、液晶材料自身のイオンによる新規なパターン形成を見出した。

研究成果の概要(英文)：Ion-doped nematic liquid crystals (NLCs) can exhibit rich electro-hydrodynamic phenomena when an ac electrical voltage is applied. In this work, we use the electro-hydrodynamic effects to control the colloidal aggregation. By using various NLCs and alignment layers, we have found that colloidal particles form some characteristic structures. Moreover, for a specific experimental condition, we have observed a pattern formation of an NLC which is caused by the ionic contribution.

研究分野：ソフトマター物理

キーワード：液晶 コロイド 界面 自己組織化

### 1. 研究開始当初の背景

(1)ネマチック液晶とは図1のように、棒状分子の長軸がある一定の向きに揃った異方性流体である。イオンを含んだネマチック液晶に交流電圧を印加すると、様々な電気流体力学現象が現れる。例えば、液晶中に表面処理を施したコロイド粒子を分散させ、適切な交流電圧を印加すると、粒子周りの電気浸透流によって粒子が運動(輸送)可能であることが近年示され、微小な物質の動きを制御する場としても注目を集めている。これに関連し、申請者らも液晶電気対流を用いて、コロイド粒子の特徴的な運動を見出している。我々は、良く知られたバルクの液晶分子が示す電気対流現象と、粒子周りに発生する電気浸透流を組み合わせることによって、鎖状に繋がったコロイド粒子の輸送を実現した。この実験から申請者らは、液晶にイオンを意図的に用いることで、新しい現象が起こるのではないかと考えた。印加する電圧を強くしていくと、液晶電気対流による流れは乱流へと変化し、粒子の運動は不規則なものとなる。また、粒子については、電氣的に誘起された双極子モーメントによって、コロイド粒子間に相互作用が発生する。これらの事実を考慮すると、液晶の電気流体力学的現象は、単一粒子の運動を制御するだけでなく、数多くの粒子を凝集させるためにも利用できると考えた。

### 2. 研究の目的

(1)ネマチック液晶材料がもたらす電気流体力学的現象は、印加する電圧の振幅や周波数によって様々に変化するため、その流れを利用することで物質の運動を制御することが期待できる。これは、イオンを含んだ水溶液系で行われている実験が、ネマチック液晶でも実現可能であることを示唆している。本研究では、粒子をある一定の方向に規則正しく運動させる代わりに、粒子をランダムに動かすために電気対流を利用する。粒子をランダムに動かすことで、粒子に安定な配置をとらせ、最終的に規則正しいコロイドの凝集構造を作成することを目的とした。さらに、本研究は液晶材料中に置かれたコロイド粒子を観察するため、粒子の周りに形成されるトポロジカルな欠陥に関する情報を得ることも研究の主な目的の一つである。

### 3. 研究の方法

(1)まず試料セルを準備する。図1はその概略図である。液晶の研究としては標準的なサンドウィッチ型のセルを用いる。透明電極(ITO)付きのガラスセルに、配向材をスピノコートする。液晶研究で標準的に用いられるポリイミド、シランカップリング材などを配向膜として用いた。配向材が塗布された二枚のガラス基板の間にスペーサーを挟んで平

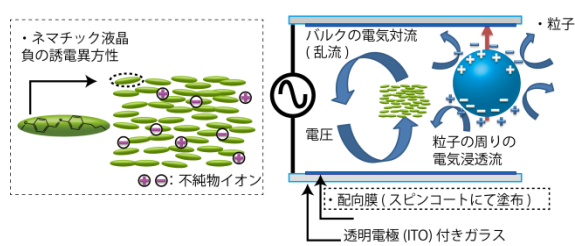


図1：ネマチック液晶と試料セルの様子

行に保つ。この隙間に(負の誘電異方性をもつ)液晶材料、コロイド粒子を入れる。コロイド粒子は主にシリカ粒子を使用した。粒子径は数 $\mu\text{m}$ のものを使用した。液晶試料にはイオンを1wt%混合している。試料を封入したセルに交流電圧を印加する。その様子を顕微鏡観察によって調べる。研究の過程で得られた液晶材料のパターン形成に関する実験条件の詳細については、研究成果の項目にその都度記載している。

### 4. 研究成果

(1)実験の結果、液晶電気対流(乱流)の存在によって、コロイド粒子が様々な凝集構造をとることがわかった。異なる凝集構造が形成される理由について調べるために、一番単純な系として、二つの粒子の関係に注目した。実験で得られた結果の一部を図2に示す。ラビング処理がなされた標準的な水平配向セルを用いている。図2(a)-(c)では電圧を印加する前の様子である。偏光顕微鏡画像を見ると粒子周囲の液晶配向場を反映した様子が観察される。一方で、図2(d)-(f)は電圧を印加した後の様子である。顕微鏡写真から分かるように、電圧を印加すると、二つの粒子が電氣的な相互作用によって縦に繋がり、一つの粒子のように見える(図2(d))。偏光顕微鏡では、単一粒子の場合とは異なる様子が観察される(図2(e), (f))。これに関連し、電場を印加していない場合に、別の初期状態にある二つの粒子の注目し、同様の実験を行った。そのときの偏光顕微鏡による観察画像が図3である。図3(a)-(c)は電圧が印加されていない

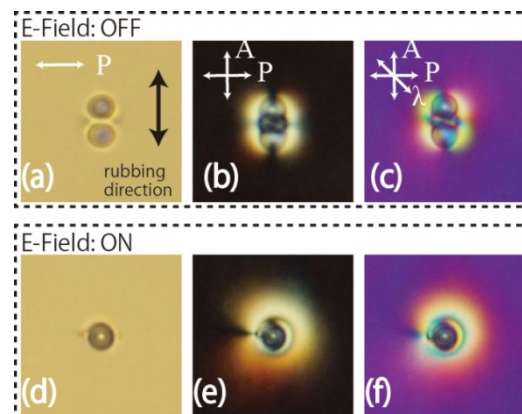


図2：二つの粒子に着目し、電圧を印加したときの様子。

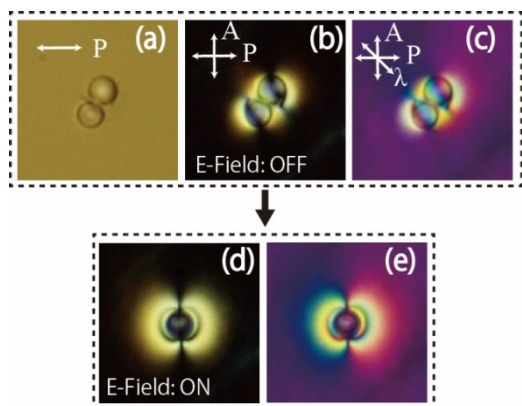


図 3: 粒子の周りの配向場が、図 2 とは異なる状況から電圧を印加したときの様子。

い場合であるが、図 2(a)-(c)と比較すると、粒子周りの様子が異なっていることがわかる。これは周囲の配向の違いを表している。電圧を印加したときの画像が図 3(d), (e)である。直交ニコルにしない場合、縦に繋がった粒子には大きな違いがみられない。しかしながら、直交ニコル下では図 2 と図 3 では大きな違いが観察されている。他の場合についても実験を重ねた結果、二量体を形成する際には、電圧を印加する前の配向場の影響が残っていることが明らかになった。多数の粒子の場合にも、直交ニコル下では、異なる様子が観察されるため、今後は二量体とコロイド結晶構造の種類との関連について調べる必要がある。

さらに、対物レンズを用いてレーザー光 (1064nm) を照射する実験を行った。結果として、多くの粒子をレーザー光の照射領域に集め、比較的広範囲に渡ってコロイド結晶構造を作成可能であることが分かった。今後は、研究を重ねさらに広範囲に渡る結晶構造を作っていく予定である。

(2) 実験条件を様々に変えていく中で、イオンの混入がもたらす液晶の自己組織化現象を見出し、精力的に研究を行った。その成果について述べる。これは、フッ素系高分子であるサイトップを配向膜、液晶材料に CCN-37 を使用した際に観察される。CCN-37 は負の誘電異方性を有し、サイトップ界面に対して垂直に配向するという性質がある。CCN-37 にイオンを添加し、同様の実験を行った際に、電気対流とは異なる現象が観察された。その特徴を表したものが図 3(下)である。グラフについては、印加電圧の周波数を横軸、縦軸に振幅をとっている。周波数と電圧を変化させたときに観察される偏光顕微鏡画像が図 3(上)である。配向が電圧によって変化する際に標準的に観察される様子が図 3(上の①)である。それに対して、格子状・さらには帯状の様子が現れていることが分かる。我々は、このパターン形成の発生機構について詳しく調べた。その結果、サイトップの高い電気抵抗率によって、イオンが配向膜近傍に凝集

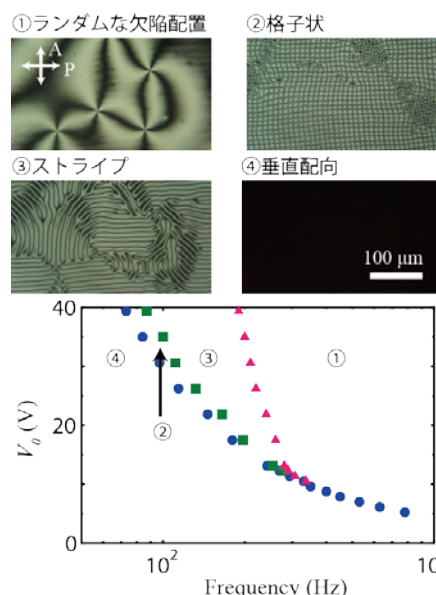


図 4: 液晶の新規なパターン形成とその発生条件。格子状に変調構造を作っているためであると理解された。

(3) 液晶は複屈折性をもつため、この特異なパターン構造は光学などの様々な研究に応用できると期待される。不利な点としては、パターンを維持するために電圧を印加し続けなければいけないことである。そこで、自己組織化したパターンを電圧除去後も維持するための検討を行った。ここでは代表的な結果について述べる。申請者らは高分子安定化の手法を用いて、構造の維持を試みた。液晶材料の中に、高分子化のための液晶性モノマー (RM257) を混合する。RM257 も棒状分子であり、CCN-37 の液晶性を壊さずに、混合することが可能となる。まず、モノマーを数 wt% 混合した試料に電圧を印加する。このとき、モノマーを混ぜたとしてもパターンを誘起することが可能である。ここに、紫外線 LED を用いて、高分子化を行う。すると、モノマーが重合し、ネットワークを形成する。電圧を除去したときの様子が図 4a である。パターンの維持に成功していることがわかる。安

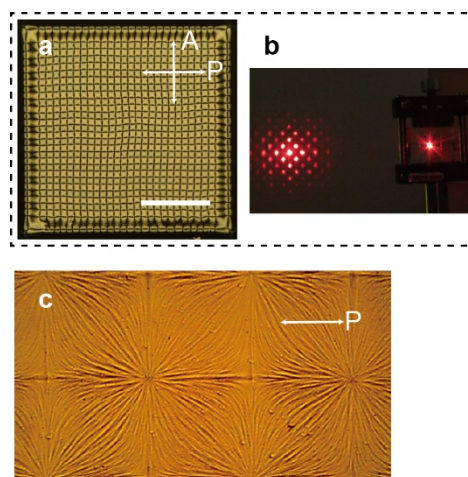


図 5: 高分子安定化したパターン

定化前後で、パターンに劣化などは見られていない。その試料にレーザー光を照射したときの様子が図 4b である。期待した通り、レーザー光の回折が得られた。さらに、温度を上昇させ、高分子化していない CCN-37 を等方相へと転移させて観察したときの様子が図 4c である。RM257 ネットワークが劣化し、束になった様子が観察され、試料の配向場を間接的に理解することができる。実際に、トポロジカル欠陥が規則的に配列している様子を実証することに成功した。さらに、応用研究を行い、試料の内部の重合していない液晶を別の種類のものに置き換えることが可能であることを示した。その他にも、局所的な領域を高分子化するなど、様々な応用研究の可能性を示した。

## 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 5 件)

- ① F. Araoka, K. V. Le, S. Fujii, H. Orihara, Y. Sasaki  
“Polymer-stabilized liquid crystalline topological defect network for micro-pixelated optical devices”  
Proceedings of SPIE, 査読無  
10555, 1055504-1-7 (2018)
  - ② H. Orihara, N. Sakurai, Y. Sasaki, T. Nagaya  
“Direct observation of coupling between orientation and flow fluctuations in a nematic liquid crystal at equilibrium”  
Physical Review E, 査読有  
95, 042705-1-6 (2017)
  - ③ Y. Sasaki, M. Ueda, K. V. Le, R. Amano, S. Sakane, S. Fujii, F. Araoka, H. Orihara,  
“Polymer-stabilized liquid crystalline topological defect network for micro-pixelated optical devices”  
Advanced Materials, 査読有  
29, 703054-1703054 (2017)
  - ④ V. S. R. Jampani, Y. Sasaki, K. V. Le, F. Araoka, H. Orihara  
“Reconfigurable topological defect arrays in nematic liquid crystals”  
Proceedings of SPIE, 査読無  
10125, 1012506-1-8 (2017)
  - ⑤ Y. Sasaki, V. S. R. Jampani, C. Tanaka, N. Sakurai, S. Sakane, K. V. Le, F. Araoka, H. Orihara,  
“Large-scale self-organization of reconfigurable topological defect networks in nematic liquid crystals”  
Nature Communications, 査読有  
7, 13238 (2016)
- [学会発表] (計 9 件)
- ① F. Araoka, K. V. Le, S. Fujii, H. Orihara, Y. Sasaki  
“Polymer-stabilized liquid crystalline topological defect network for micro-pixelated optical devices”  
SPIE Photonics West  
2018 年 1 月 27-2 月 1 日、San Francisco, USA
  - ② 佐々木裕司、謝曉晨、荒岡史人、折原宏  
“非晶性フッ素界面における液晶分子の配向制御”  
日本物理学会、2017 年 9 月 21 日-24 日  
岩手大学、岩手市
  - ③ 佐々木裕司、謝曉晨、荒岡史人、折原宏  
”フッ素系配向膜における液晶分子の配向制御”  
日本液晶学会討論会、2017 年 9 月 13 日-15 日、弘前大学、弘前市
  - ④ 天野怜央、佐々木裕司、荒岡史人、藤井修治、折原宏  
“自己組織化で作成した 2 次元液晶パターンの光学的性質”  
日本液晶学会討論会、2017 年 9 月 13 日-15 日、弘前大学、弘前市
  - ⑤ 佐々木裕司、レバンコア、荒岡史人、折原宏  
”液晶トポロジカル欠陥配列の高分子安定化”  
日本物理学会、2017 年 3 月 17 日-20 日、大阪大学、大阪市
  - ⑥ V. S. R. Jampani, Y. Sasaki, K. V. Le, F. Araoka, H. Orihara  
“Reconfigurable topological defect arrays in nematic liquid crystals”  
SPIE Photonics West  
2017 年 1 月 28-2 月 2 日、San Francisco, USA
  - ⑦ 西岡自晶、高橋允、佐々木裕司、折原宏  
”ネマチック液晶中におけるコロイド二量体の電気泳動”  
日本液晶学会討論会、2016 年 9 月 5 日-9 月 7 日、大阪工業大学、大阪市

- ⑧ 坂根伸、佐々木裕司、レバンコア、荒岡史人、折原宏  
“光重合による液晶トポロジカル欠陥配列の局所的安定化”  
日本液晶学会討論会、2016年9月5日-9月7日、大阪工業大学、大阪市
- ⑨ 佐々木裕司、坂根伸、天野怜央、上田基史、レバンコア、荒岡史人、折原宏  
“ネマチック液晶におけるトポロジカル欠陥配列の高分子安定化とその物性”  
日本液晶学会討論会、2016年9月5日-9月7日、大阪工業大学、大阪市

〔図書〕（計 0件）

〔産業財産権〕

- 出願状況（計 0件）  
○取得状況（計 0件）

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

佐々木 裕司 (SASAKI, Yuji)  
北海道大学・大学院工学研究院・助教  
研究者番号：00649741