

機関番号：10101

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2009～2010

課題番号：21740306

研究課題名(和文) 外場存在下での液晶性ソフトマターのトポロジーとダイナミクス

研究課題名(英文) Topology and dynamics of liquid crystalline soft matter under external fields

研究代表者

羅 亮皓 (NA YANGHO)

北海道大学・大学院工学研究院・助教

研究者番号：00421991

研究成果の概要(和文)：非相溶液晶/高分子混合流体に正弦波の電場を印加しながら流体の電場-応力応答を測定し、Maffettone-Minale モデルを用いて解析した。その応答関数は単純な緩和ではなく、減衰振動することや、速度勾配テンソルの反対称部分はその起源であることがわかった。また、キラルスメクチック液晶エラストマーを作製し、電場印加による巨視的変形を測定し、ひずみの2次元テンソルを定量的に見積もった。

研究成果の概要(英文)：I have measured the response of shear stress to sinusoidal electric fields under steady shear flow in the droplet dispersed phase of an immiscible liquid crystal/ polymer blend and analyzed it on the basis of the Maffettone-Minale model. It was obviously shown that the response function was not a type of simple relaxation but of damped oscillation, which was originated from the antisymmetrical parts of the velocity gradient tensor. Additionally chiral smectic liquid crystal elastomers were prepared and the macroscopic deformation induced by the application of electric field was investigated. The two-dimensional strain tensors in an elastomer film were quantitatively estimated

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	2,600,000	780,000	3,380,000
2010 年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：ソフトマターの物理(数物系科学)

科研費の分科・細目：物理学 生物物理・化学物理

キーワード：ソフトマター、液晶、トポロジー、ダイナミクス

## 1. 研究開始当初の背景

外的刺激によるソフトマターの構造形成と、それに起因する非平衡状態を解明する研究が注目を浴びている。ソフトマターの一つである液晶は流動場、電場、磁場、力学場、光などの外場により容易に構造変化をおこすことは良く知られている。特に、せん断下における液晶に電場を印加すると分子配向の変化により系の平均粘度が変化すると考え

られる。さらに液晶に高分子を混合すると単一の液晶流体には無い新たなレオロジー的性質が現れる。両流体間の相溶性、粘度、表面張力、誘電率、導電率がこのレオロジー特性を決める重要な因子である。両流体が非相溶で、誘電率と導電率の差が大きい場合に電圧の印加により粘度が劇的に変化する「電気粘性効果」がその良い例である。これまでの研究により、せん断下で非相

溶混合流体に電場を印加するとトポロジー変化が起こり（ドロップレット分散構造から共連続なネットワーク構造への変化）、流体のレオロジー特性が大きく変化することがわかってきた。このように外場によって形成される新しいタイプのトポロジー変化の過程、形成機構を詳しく調べることは重要である。ドロップレット分散構造から共連続なネットワーク構造へ変化する転移領域で応力が著しく増加し、そのネットワークは、非平衡状態で出現し、常にネットワークの切断、結合が繰り返されている。しかし、そのダイナミクスと機構の詳細は不明なことが多い。ソフトマター混合流体は構造とレオロジーの関係を解明する格好の研究対象であり、特にドロップレット分散構造からネットワーク構造へ転移する現象はソフトマターにおける非線形・非平衡系の統計力学を研究する上で良いモデルになる。ソフトマターにおけるマイクロオーダー構造の制御を目指し、ソフトマター混合流体系でのトポロジー変化とダイナミクスの系統的に研究する必要がある。本研究の成果は電気-機械変換素子への応用における重要な設計指針を与え、電気粘性流体の高性能化および新材料の創製に役立つ重要な情報になる。

## 2. 研究の目的

### (1) 非相溶液晶/高分子混合流体のダイナミクス

定常せん断流下において微小交流電場をドロップレット分散相に印加する際の電気粘性応答を調べる。特に、電場による寄与についてモデルを用いて詳細に解析し、それを実験結果と比較する。

### (2) 非相溶液晶/高分子混合流体の構造変化 外場(流れ場・電場)による構造変化とレオロジーの関係を明らかにする。また、画像をもとに界面テンソルを求め応力(粘性力、界面張力、マクスウェル応力)の寄与について詳しく調べる。

### (3) キラルスメクチック液晶エラストマーの電場応答

キラルスメクチック液晶エラストマーを用いて、電場印加による変形を観測・解析することで電場誘起ひずみテンソルを定量的に求める。また、ひずみテンソルの解析から電場誘起変形の起源を調べる。

## 3. 研究の方法

### (1) 非相溶液晶/高分子混合流体のダイナミクス

電圧を発生・変調・増幅し、試料に印加した

後、電場誘発応力をレオメーターにより測定するシステムを作製した。混合流体がドロップレット分散相を保つように十分小さい正弦電場を印加する条件で測定を行い、入力電圧と出力応力の振幅および位相を求めた。

(2) 非相溶液晶/高分子混合流体の構造変化  
共焦点レーザー顕微鏡(CLSM)を用いた3次元の構造観察と、レオメーターによるレオロジー測定を同時に行うシステムを構築した(Fig. 1)。このシステムを用い、外場印加時の構造観察とレオロジー測定を行った。また、得られた画像から応力テンソルを求めた。

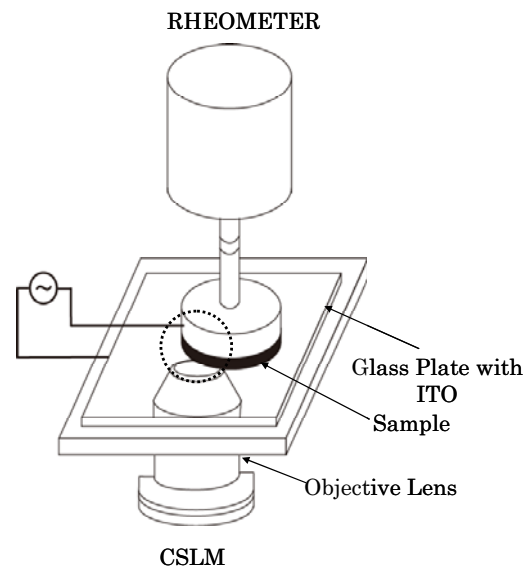


Fig. 1 Schematic the system combining a CSLM and a rheometer

### (3) キラルスメクチック液晶エラストマーの電場応答

ポリシロキサンの高分子主鎖に不斉炭素を持つメソゲン基と架橋剤を導入し、1軸応力を印加しながら架橋反応することにより、均一に配向したキラルスメクチックエラストマーを用いた。蛍光ビーズ追跡法により直接的に電場印加部分の変位を、ナノスケールで測定した。また、その結果から電場誘起ひずみテンソルを定量的に求めた。

## 4. 研究成果

### (1) 非相溶液晶/高分子混合流体のダイナミクス

せん断定常流下における電場誘起応力の周波数分散から、ドロップレット変形由来の緩和が見られ、その緩和時間は次元解析からド

ロップレットサイズに比例し、せん断速度に反比例するのがわかった。応力の実数部分が負になることが見られ、その原因は定常せん断下でドロップレットの変形モードの固有値が複素数になることがわかった。Maffettone-Minale(MM)モデルを用いて電場効果を表わす項を加えて、せん断流下での電場による応力の周波数分散を計算した。この結果から応答関数は単純な緩和ではなく減衰振動すること、また、せん断流れがその起源であることが分かった。

(2) 非相溶液晶/高分子混合流体の構造変化リアルタイム3次元構造観察とレオロジー測定により以下のことがわかった。一定のせん断・無電場下では、液晶のドロップレットが高分子のマトリクスに分散している。電場を印加すると、液晶のドロップレットが電場方向に引き伸ばされ、時間の経過と共に、ドロップレットはさらに引き伸ばされ、せん断流により流れ方向へと傾き、この時点でせん断応力が極大となった。次に応力はやや減少し、極小を取った時に、液晶はせん断流により流れ方向まで大きく傾いていた。その後、傾いた液晶は周囲の液晶同士で合体を始め、さらに液晶の合体が促進されネットワークを形成した。画像から界面テンソルが得られた。せん断応力と界面テンソルの時間変化が良く似ていることがわかった。また、マクスウェル応力による寄与もその大きさは小さいが、界面テンソルに比例して変化することが示された。

(3) キラルスメクチック(SmC\*)液晶エラストマーの電場応答  
電場応答によるエラストマーのx成分とy成分の変位を同時にナノスケールで測定できた。変位が電場と同じ周期を持って振動することから、この電場応答は主にキラルスメクチック液晶の自発分極に起因したことがわかった。2次元のひずみテンソルが得られ、せん断ひずみが支配的であることが示された。また、ひずみの大きさ( $10^{-4}$ オーダー)が液晶分子のティルト角( $10^{-1}$ オーダー)より非常に小さいことや電場除去時に元の形に戻る復元力が存在することからキラルスメクチックLCEの電場応答は、液晶分子の回転だけの‘soft deformation’ではなく、ある安定状態の周辺での微小変形であると考えられた。また、ひずみテンソルの温度依存性の結果からSmC\*相での変形がNambu-Goldstoneモードに起因することがわかった (Fig. 2 参照)。

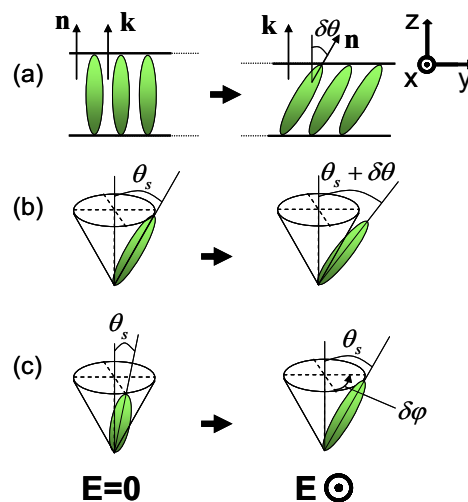


Fig. 2 Expected behavior of mesogens by the contribution of (a) soft mode in SmA phase, (b) amplitude mode, and (c) phase (Nambu-Goldstone) mode in SmC\* phase when an electric field is applied.  $\mathbf{n}$ ,  $\mathbf{k}$ , and  $\theta_s$  represent the director, layer normal, and smectic tilt angle respectively.  $\delta\theta$  and  $\delta\varphi$  represent the field-induced changes in the tilt and the azimuthal angles, respectively.

## 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 6 件)

1. Relationship between morphology and rheology of immiscible polymer blends, Hiroshi Orihara, Yuki Nishimoto, Kohei Aida, Yang Ho Na, Tomoyuki Nagaya, and Seiji Ujiie, *Journal of Physics: Condensed Matter*, 2011 (Accepted) 査読有
2. Three-dimensional observation of an immiscible polymer blend subjected to a step electric field under shear flow, Hiroshi Orihara, Yuki Nishimoto, Kohei Aida, and Yang Ho Na, *Phys. Rev. E*, 83, 2011, 026302-1-8 査読有
3. Studies on Structural Characteristics and Dynamics of Double Network Gels and Polymer Blend ER Fluids, Yang Ho Na, *J. Soc. Rheol. Jpn*, 2010, 38, 181-6 査読無
4. Droplet coalescence process under electric fields in an immiscible polymer blend, Kohei Aida, Yang Ho Na, Tomoyuki Nagaya, and Hiroshi Orihara, *Phys. Rev. E*, 2010, 82, 031805-1-7 査読有

5. Response of shear stress to ac electric fields under steady shear flow in a droplet-dispersed phase, Yang Ho Na, Kohei Aida, Ryosuke Sakai, Toyoji Kakuchi, and Hiroshi Orihara, Phys. Rev. E, 2009, 80, 061803-1-7 査読有

6. Storage shear modulus of columnar structure formed in an immiscible polymer blend under electric fields, Kohei Aida, Yang Ho Na, Tomoyuki Nagaya, and Hiroshi Orihara, Phys. Rev. E, 2009, 80, 041807-1-5 査読有

〔学会発表〕(計 11 件)

1. 油家 佑紀、羅 亮皓、折原 宏、平岡一幸、“キラルスメクチック液晶エラストマーの電場応答”、第 58 回レオロジー討論会、2010 年 10 月 4～6 日、仙台国際センター (仙台)

2. 羅 亮皓、油家 佑紀、折原 宏、平岡一幸、“キラルスメクチック液晶エラストマーにおける電場誘起ひずみの定量的測定”、第 58 回レオロジー討論会、2010 年 10 月 4～6 日、仙台国際センター (仙台)

3. K. Aida, Y. H. Na, H. Orihara, T. Nagaya, and S. Ujiie, “Coalescence of Polymer Droplets Subjected to Electric Fields”, International Symposium on Non-Equilibrium Soft Matter 2010, 2010 年 8 月 17～20 日, Nara Prefectural New Public Hall, Nara (Japan)

4. Y. H. Na, Y. Aburaya, K. Hiraoka, S. Ujiie and H. Orihara, “Electromechanical Effect of Chiral Smectic Liquid-Crystalline”, International Symposium on Non-Equilibrium Soft Matter 2010, 2010 年 8 月 17～20 日, Nara Prefectural New Public Hall, Nara (Japan)

5 Y. H. Na, Y. Aburaya, K. Hiraoka, S. Ujiie and H. Orihara, “Electromechanical Effect of Chiral Smectic Liquid-Crystalline”, 5th Pacific Rim Conference on Rheology (PRCR-5), 2010 年 8 月 1～6 日, Hokkaido University, Sapporo (Japan)

6. K. Aida, Y. H. Na, H. Orihara, T. Nagaya, and S. Ujiie, “Coalescence of droplets in an Immiscible Polymer Blend under Electric Fields”, 5th Pacific Rim Conference on Rheology (PRCR-5), 2010 年 8 月 1～6 日, Hokkaido University, Sapporo (Japan)

7. 羅 亮皓、“ダブルネットワークゲルおよび高分子ブレンド ER 流体の構造特性とダイナミクスに関する研究”、日本レオロジー学会第 37 年会、2010 年 5 月 13～14 日、東京大学生産技術研究所 (東京)

8. 羅 亮皓、“キラルスメクチック液晶エラストマーの電気力学効果”、特定領域研究 非平衡ソフトマター物理学の創成 A02 班・A04 班合同班会議、2010 年 3 月 26～27 日、お茶の水女子大学 (東京)

9. Y. H. Na, “Effect of Electrical Response and Nanostructure of Chiral Smectic Liquid-Crystalline Elastomers”, SNU-HU Joint Symposium, November 20th, 2009, Seoul National University, Seoul (Korea)

10. 羅 亮皓、久保田 匠、氏家 誠司、折原 宏、“キラルスメクチック液晶エラストマーの電場応答”、第 58 回高分子討論会、2009 年 9 月 16 日(水)～18 日(金)、熊本大学 (熊本)

11. 羅 亮皓、折原 宏、“非平衡定常状態におけるドロップレット分散相の電気粘性応答 I”、特定領域研究「非平衡ソフトマター物理学の創成」第 4 回領域研究会、2009 年 7 月 1～3 日、北海道大学 (札幌)

6. 研究組織

(1)研究代表者

羅 亮皓 (NA YANGHO)

北海道大学・大学院工学研究院・助教

研究者番号：00421991

(2)研究分担者

なし

(3)連携研究者

なし