

令和 6 年 5 月 17 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K03480

研究課題名（和文）電気インピーダンス法による液晶トポロジカル欠陥のパターン形成メカニズムの解明

研究課題名（英文）Investigation of pattern formation mechanism of liquid crystal topological defects by electrical impedance measurement

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） 3,100,000円

研究成果の概要（和文）：負の誘電異方性をもつ液晶材料にイオンを混合し、絶縁性の高い界面で閉じ込めて電圧を印加すると独特のパターン形成を観察することができる。この現象のメカニズムを明らかにするために、本研究では試料セルに対して電気インピーダンス測定を実施した。電気インピーダンスの周波数依存性から試料セル内部の電圧降下を定量的に見積もった。解析の結果、液晶のパターン形成が観察される際に液晶部分に印加されている電圧は、通常の再配向転移に必要な電圧値とほぼ同等であることが示された。得られた実験事実に基づいて系を記述する方程式を仮定し、数値シミュレーションを実施したところ現象を再現できることが分かった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

液晶材料を扱う上で、配向の制御は基礎・応用研究の両方において重要である。中でも、電場と界面の効果は様々な場面で活用されており、これまでに多様な研究がなされてきた。本研究では、導電性の高い液晶と絶縁性の高い界面の組み合わせにおいて独特な現象が観察されることに注目し、メカニズムの解明を目指して電気インピーダンス測定を実施した。実験の結果、試料セル内部の電圧降下を定量的に見積もることが可能となり、欠陥のパターン形成の理解につながる情報を得ることができた。得られた知見を踏まえて数値計算を行ったところ、現象を再現できることが分かった。今後の理論的な理解に役立つことが期待される。

研究成果の概要（英文）：When an electric voltage is applied to nematic liquid crystals which contain ionic impurity, a unique pattern formation of topological defects can be observed under cross-polarized light. In order to understand the mechanism of the pattern formation, we investigate the internal voltage drop in the sample cell using electrical impedance measurement. By analyzing the data, we found that the voltage drop in the liquid crystal was found to be almost the same as the voltage required for the conventional reorientation transition. Based on the obtained results, we performed a numerical simulation and obtained the periodic pattern of topological defects, which could be useful for the theoretical understanding.

研究分野：ソフトマターの物理

キーワード：液晶 自己組織化 パターン形成

### 1. 研究開始当初の背景

ネマチック液晶は棒状分子の長軸が一定の向きに揃った状態である。電氣的、光学的に異方性をもつため、ディスプレイをはじめとして様々な場面で利用されている。ネマチック液晶の機能を引き出すためには配向を制御することが重要である。代表的な方法として、界面と電場の効果を利用することが挙げられる。液晶セルは二枚の平行なガラス基板から構成され、その隙間に試料を封入して実験が行われる。例えば、垂直に配向させた負の誘電異方性を有する液晶材料に交流電圧を印加すると、電場に対して垂直な方向に再配向が起こる。(図 1a,b)ただし、面内に傾く向きが定まらないことによって図 1c,1d のような欠陥(しばしば umbilic と呼ばれる)構造がしばしば観察される。これまでに私たちは負の誘電異方性をもつネマチック液晶材料に交流電圧を印加した際に、トポロジカル欠陥が規則正しく自己組織化することを報告してきた。トポロジカル欠陥の配向構造は特殊な光波を作り出す光学素子として利用できるため、欠陥が整列する現象は液晶材料を用いた新しい応用研究へ繋がるのが期待される。最近では、表面改質を適切に導入することで、様々な液晶化合物で欠陥のパターンを観察することが可能となってきた。その一方で、パターンを観察するには、フレデリクス転移よりも大きな電圧を試料セルに印加する必要があった。特徴的な閾値電圧の振る舞いはパターン形成のメカニズムを調べる上で重要な手掛かりになると考えられる。

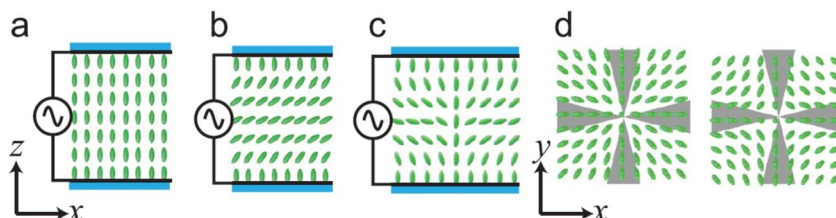


図 1: 電場印加における配向場の変化。(a)-(c) 横から見た時の様子。(b)と(d)は(c)を  $z=d/2$  の面を  $z$  軸方向から見た場合。

### 2. 研究の目的

多くの場合、二枚の透明電極(ITO)膜付ガラスの表面には配向を制御するための高分子膜が塗布されている。一般的な液晶セルでは、高分子膜における電圧降下は無視することができ、分子を再配向させるのに必要な電圧は数ボルトである。これはフレデリクス転移によって説明される。それに対して、私たちの研究で用いる試料セルは、液晶材料にイオンを添加することで材料の導電性を高め、それを絶縁性の高い材料で覆った構造を有している。このような試料セルに電圧を印加した場合、電圧の全てが液晶試料に印加されるとは限らない。

上記の事情を踏まえ、試料セル内部でどのように電圧降下が起きているかを調べるのが本研究の目的である。液晶試料に印加されている電圧を見積もることによって、顕微鏡観察で見られるパターンとの対応を明らかにすることを目指した。欠陥のパターン形成を観察するには、通常のフレデリクス転移と比べて大きな電圧を試料セルに印加する必要がある。電気インピーダンスの周波数依存性を調べることで、液晶と高分子膜にどのように電圧が印加されているのかを検討し、そこからパターン形成のメカニズムに関する知見を得ることを試みた。

### 3. 研究の方法

実験で用いる試料セルでは、透明電極(ITO)膜付ガラスにシリキサン系の高分子(例えば、絶縁材料として市販されているスピノングラス(SOG)材料(ACCUGLASS 512B, Honeywell)や KR-251(信越化学))を塗布した基板を使用した。ポリシリキサン膜はスピノコートによって準備され、分光器を用いて厚さを調整した。ポリシリキサン樹脂だけでは垂直配向を定めることは難しいため、表面にさらにシランカップリング剤を塗布した。但し、スピノコートした状態では、表面に十分にシランカップリング剤を吸着させることができない。そのため紫外線オゾン洗浄を行い、表面を改質した。表面改質した基板を垂直配向用のシランカップリング剤(例えば DMOAP)の水溶液に 1 時間程度浸漬させた。

上記の方法で作成した ITO ガラス基板を用いて試料セルを作成した。液晶試料を注入するための隙間はスペーサ

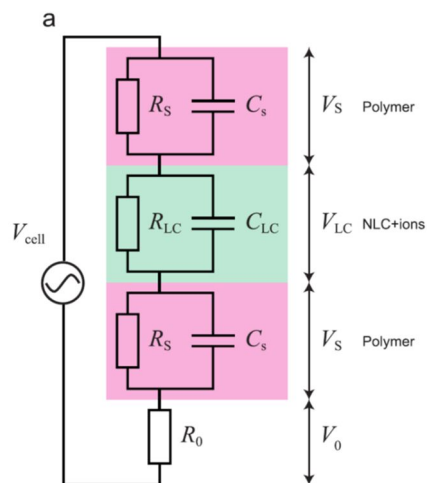


図 2: 試料セルの等価回路

ー（ガラスビーズ）で確保し、分光器で確認した。液晶をセルに注入した後、インピーダンスアナライザに取り付け、周波数を変化させながら測定を行った。得られたデータを図2のような等価回路に置き換えて解析することで、絶縁層の誘電率や抵抗率などの各パラメータを見積もった。さらに、電気インピーダンス測定を行った後に、従来と同様に偏光顕微鏡観察を実施した。波形発生器からの信号を増幅させて試料セルに交流電圧を印加し、垂直配向から変化するときの閾値電圧を記録した。

#### 4. 研究成果

代表的なインピーダンス測定の結果を図3に示す。液晶にCCN37を用い、TBABEをイオンとして添加した。両者の試料セルの形状（電極の面積や試料の厚み等）は殆ど同じであり、液晶中のイオンの有無が異なっている。イオンを含んだ試料については、偏光顕微鏡で観察すると、適切な電圧を設定することで欠陥のパターン形成を確認することができる。電気インピーダンス測定を実施し、実部と虚部を平面上にプロットすると、二つの半円が現れる。図3aまたは図3dのように、低周波側では大きな半円が見られる。この半円の高周波部分を拡大したものが図3b、図3eである。相対的に小さな半円が存在していることが分かる。大きな半円は絶縁層に由来しており、ここで示した図からは400 M程度の抵抗を持っていることが分かる。それに対して小さな半円同士を比較した場合、大きさが異なっている様子が見て取れる。小さな半円は液晶材料のインピーダンスを反映しているため、イオンを混合した図3bの半円がより小さいものになっている。

ナイキスト線図を作成したときに得られる二つの半円を解析した。液晶試料と絶縁層のインピーダンスを図2の等価回路に合うようにフィッティングすることで、ある周波数におけるインピーダンスを推定することができる。本研究では、高周波における閾値電圧の振る舞いが通常のフレデリクス転移に類似していることに注目し、液晶に印加されている電圧はフレデリクス転移の値と仮定した。液晶と絶縁層のインピーダンスの比を使って試料セルに印加されている電圧の分布を計算したものが図3cと図3fである。黒い点は偏光顕微鏡観察を行った時に、垂直配向から再配向するときの条件を調べたものである。顕微鏡観察で確かめた閾値と、電気インピーダンス測定から求めた閾値の周波数依存性は良く一致していると言える。したがって、液晶部分にはフレデリクス転移の閾値に相当する電圧が印加されていることが明らかになった。

これは低周波側で液晶セルに印加されている電圧のほとんどは絶縁層に印加されていることを意味している。したがって、再配向メカニズムは本質的にフレデリクス転移であり、電気対流効果などの流れの効果は本質的でないことが分かる。図3cと図3fにおける閾値電圧の曲線が折れ曲がる周波数は液晶材料の抵抗と絶縁層の電気容量によって決まり、物理的にはイオンが

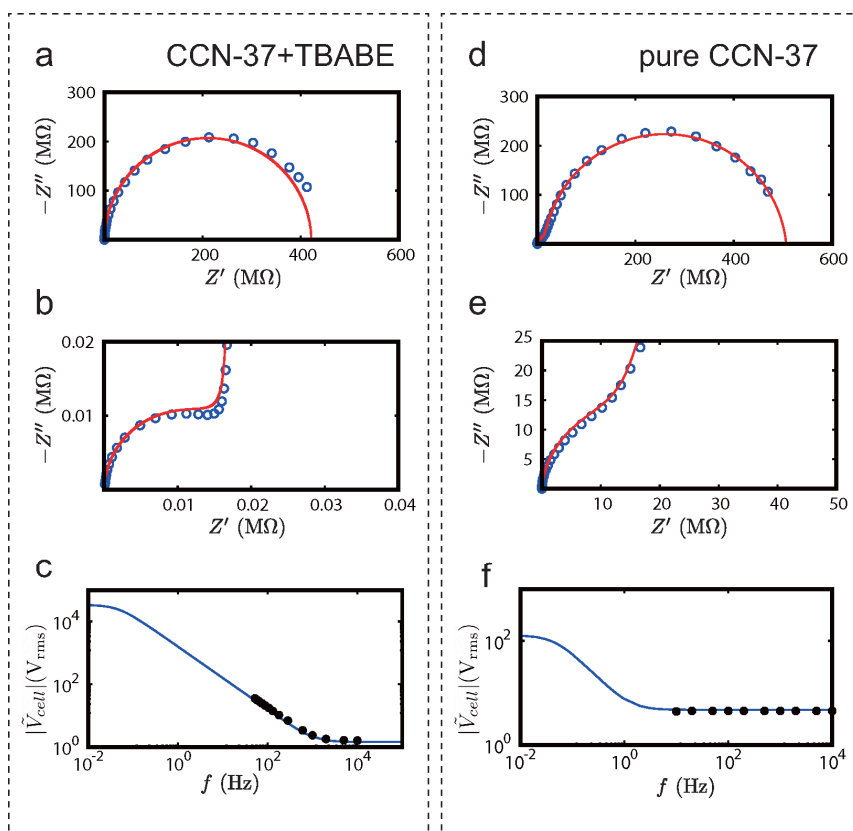


図3：欠陥のパターンが現れるセル（左側）とパターンが観察されないセル（右側）についてのインピーダンス測定の様子

界面に蓄積される周波数に対応している。ただし、図 3f のように、通常の液晶セルでは 1 Hz よりも十分小さな値をとるため立ち上がりを観察することができない。イオンの添加と絶縁層の存在によって、イオンが蓄積される周波数帯が現れたと考えることができる。

電気インピーダンスの実験から得られた情報を用いて、数値シミュレーションを実施した。その結果の一部を図 4 に示す。まず、電気対流現象のような流れの効果は無視できると仮定し、液晶部分については弾性エネルギーと電場のエネルギーを考慮したフレデリクス転移を記述する方程式を適用する。ただし、この自由エネルギー密度を極小にするための方程式のみではパターン形成は再現することができない。そのため、絶縁層の影響を考慮するための式を追加した。具体的には、液晶部分に印加される電圧を一定と見なさずに、高分子膜での電圧降下を考慮する条件を加えた。2つの方程式を COMSOL Multiphysics を用いて計算した。計算に用いるパラメータは実際にインピーダンス測定から得られた値を使用した。図 4a は垂直配向を初期条件として、電圧を上昇させたときの様子である。実験と同質のパターン形成を見出した。液晶部分の厚みを増やして計算すると、パターンの間隔が大きくなることも確かめられた。(図 4b)さらに、図 4d のように分子が傾いた状態から電圧を下げていくと、ストライプパターン (図 4e) を示すこともできた。シミュレーションについて詳細に検討していくことで理論的な理解が深まると期待される。

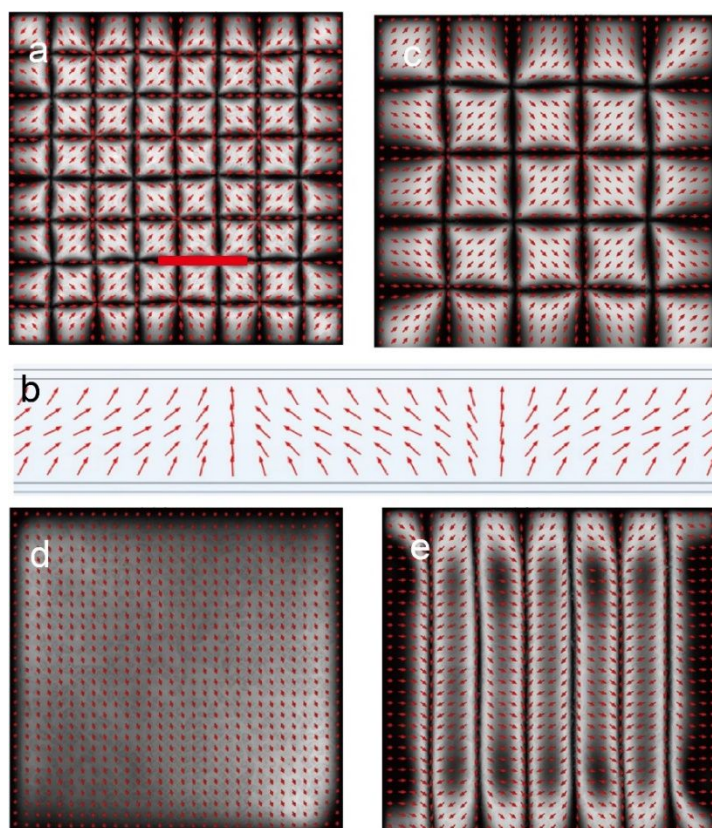


図 4: 数値計算の結果、赤い矢印は配向ベクトルを表している。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Yuji Sasaki, Fumito Araoka, Hiroshi Orihara	4. 巻 56
2. 論文標題 Reconfigurable spatially-periodic umbilical defects in nematic liquid crystals enabled by self-organization	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of Physics D: Applied Physics	6. 最初と最後の頁 453001 ~ 453001
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1088/1361-6463/aced42	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Sasaki Yuji, Yamazaki Kenji, Murakami Naoshi, Yamane Keisaku, Orihara Hiroshi	4. 巻 3
2. 論文標題 Lensless Wavefront Parallel Processing of Vector Beams by Self Images of a Self Organized Q Plates Microarray	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Advanced Photonics Research	6. 最初と最後の頁 2100368 ~ 2100368
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1002/adpr.202100368	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計14件（うち招待講演 1件／うち国際学会 3件）

1. 発表者名 Yuji Sasaki, Ryota Mikami, and Hiroshi Orihara
2. 発表標題 Numerical Study on a Pattern Formation in Nematic Liquid Crystals
3. 学会等名 34th IUPAP Conference on Computational Physics (CCP2023) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 小西 恵人、佐々木 裕司
2. 発表標題 液晶のトポロジカル欠陥におけるねじれの抑制法
3. 学会等名 第59回応用物理学会北海道支部学術講演会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 廣脇晴、佐々木裕司
2. 発表標題 液晶のパターン形成における電極の微細凹凸構造の影響
3. 学会等名 第59回応用物理学会北海道支部学術講演会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 佐々木裕司, 三上遼大, 折原宏
2. 発表標題 キラルネマチック液晶におけるトポロジカル欠陥のパターン形成
3. 学会等名 日本物理学会 2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 小西 恵人 , 佐々木 裕司, 折原 宏
2. 発表標題 表面レリーフ構造を用いた液晶パターンの制御
3. 学会等名 2022 年日本液晶学会討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 廣脇 晴, 長川純也, 佐々木裕司, 折原 宏
2. 発表標題 トポロジカル欠陥のパターンを使った光の自己修復効果
3. 学会等名 2022 年日本液晶学会討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 折原宏, 三上遼太, 佐々木裕司
2. 発表標題 導電性ネマチック液晶におけるパターン形成I
3. 学会等名 2022 年日本液晶学会討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 三上遼太, 佐々木裕司, 折原宏
2. 発表標題 導電性ネマチック液晶におけるパターン形成II
3. 学会等名 2022 年日本液晶学会討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 佐々木裕司, 村上尚史, 山根啓作, 折原宏
2. 発表標題 液晶のトポロジカル欠陥を用いた光渦アレイの回折現象
3. 学会等名 日本物理学会2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 三上遼太, 吉川拓穂, 佐々木裕司, 折原宏
2. 発表標題 選択的表面改質を用いた液晶トポロジカル欠陥配列の制御
3. 学会等名 2021年日本液晶学会討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 佐々木裕司, 吉川拓穂, 高橋淳之介, 折原宏
2. 発表標題 電気インピーダンス測定による液晶パターン形成における閾値電圧の解析
3. 学会等名 日本液晶学会討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Y. Sasaki, N. Murakami, K. Yamane, H. Orihara
2. 発表標題 Near-Field Diffraction from Self-Organized Topological Defects Arrays in Nematic Liquid Crystals
3. 学会等名 Optics of liquid crystals 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 R. Mikami, T. Kikkawa, Y. Sasaki, H. Orihara
2. 発表標題 Patterning topological defects in nematic liquid crystals using area-selective surface modification
3. 学会等名 Optics of liquid crystals 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 佐々木裕司
2. 発表標題 液晶におけるトポロジカル欠陥の自己組織化を用いた制御
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会 (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
--	---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------