

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 20 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2010～2012

課題番号：22540416

研究課題名（和文）せん断流下におけるネマチック液晶の配向ゆらぎ

研究課題名（英文）Orientational fluctuations of nematic liquid crystals under shear flow

研究代表者

折原 宏 (ORIHARA HIROSHI)

北海道大学・大学院工学研究院・教授

研究者番号：30177307

研究成果の概要（和文）：定常せん断流下におけるコロイド粒子および液晶の非平衡定常ゆらぎの研究を行なった。平衡状態では液体中のコロイド粒子の平均自乗変位は時間に比例するが、せん断流下では時間の3乗依存の項が現れること（異常拡散）を実験的に初めて示した。また、定常せん断流下において液晶に交流電場を印加したときの応力応答を測定した。その結果、応答関数に平衡系では見られない異常な緩和が観測された。2モード結合モデルを用いて解析を行なったところ、この異常がせん断流によって生じた非保存力を起源とすることが明らかとなった。

研究成果の概要（英文）：We have investigated the nonequilibrium steady state fluctuations of sheared colloids and nematic liquid crystals. Anomalous dispersion giving rise to a cubic term with respect to time in the mean-square distance has been experimentally observed in sheared colloids for the first time. The stress response of a liquid crystal to ac electric fields was measured under shear flow. As a result, anomaly characteristic to nonequilibrium steady state was observed, which was clarified to originate from the nonconservative forces caused by the shear flow.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,900,000	570,000	2,470,000
2011年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2012年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：ソフトマター物理

科研費の分科・細目：物理学・生物物理・物理化学

キーワード：非平衡ゆらぎ、せん断流、液晶、コロイド、応答関数、異常拡散、レオロジー

1. 研究開始当初の背景

近年、熱平衡から離れた非平衡系のゆらぎに関する理論および実験的研究が盛んに行われるようになり、ゆらぎの定理等の重要な発見とそれらの実験的検証が相次いでなされている。しかし、その多くは、単一コロイド粒子の位置ゆらぎに関するものが多く、空

間的に広がった物理量に対するゆらぎについての研究例はほとんどなかった。

2. 研究の目的

本研究では、ソフトマターにせん断流を印加したときに現れる非平衡定常系におけるゆらぎを観測する。特に、今まで研究例のな

い空間的に広がった液晶の配向ゆらぎを観測し、その性質を明らかにする。

3. 研究の方法

液晶の配向ゆらぎに関しては、せん断流下で交流電場を印加したときの応力応答を測定する装置を製作する。また、せん断流下でのコロイドのブラウン運動を観測するために、共焦点レーザー顕微鏡を用いた画像処理システムを構築する。

4. 研究成果

(1) せん断流下におけるネマチック液晶の交流電場応答

液晶は電場を印加することによって分子の配向状態が変化し、粘度が可逆的に変化する性質を持つ(電気粘性効果)。本研究では、非平衡定常状態にある液晶の配向ゆらぎのダイナミクスを調べるために、定常せん断流下において微小交流電場を印加したときの応力応答を測定した。その結果をエリクセンレーズリー理論と2つのモードが結合したモデルに基づいて議論した。

$E = E_0 \cos \omega t$ の微小交流電場を印加したときのせん断応力は以下のように表すことができる。

$$\sigma(t) = \sigma_0 + \sigma_{2,0} + \text{Re}[\sigma_{2,2}(\omega)e^{2i\omega t}] \quad (1)$$

ここで σ_0 は印加電場に依らない項、 $\sigma_{2,0}$ 及び $\sigma_{2,2}$ は印加電場の自乗に比例する。ここでは $\sigma_{2,2}(\omega)$ に注目する。Fig. 1 に室温における4-シアノ-4'-ペンチルビフェニル(5CB)の結果を示す。せん断速度 5 s^{-1} (Fig. 1(a)) では、配向ゆらぎに起因する緩和を見ることができる。エリクセンレーズリー (E-L) 方程式から得られた結果(デバイ型)を点線で示したが、実験との一致は良い。測定データでは実部が高周波側で負になっているが、この傾向は高せん断速度下 (Fig. 1(b)) で著しくなる。虚部のピーク幅が高せん断下で狭くなっている。さらに、ピーク周波数はせん断速度とともに高周波側にシフトするが、この傾向についてはE-L方程式の結果と一致することがわかった。

E-L理論との食い違いを説明するために、E-L理論で考慮したせん断速度面内のダイレクターゆらぎに加えて、垂直方向のゆらぎも取り入れた現象論的運動方程式を用いて応力応答を計算した。その結果が、Fig. 1の実線である。高せん断下での上述の特徴が良く再現されていることがわかる。詳しい解析に

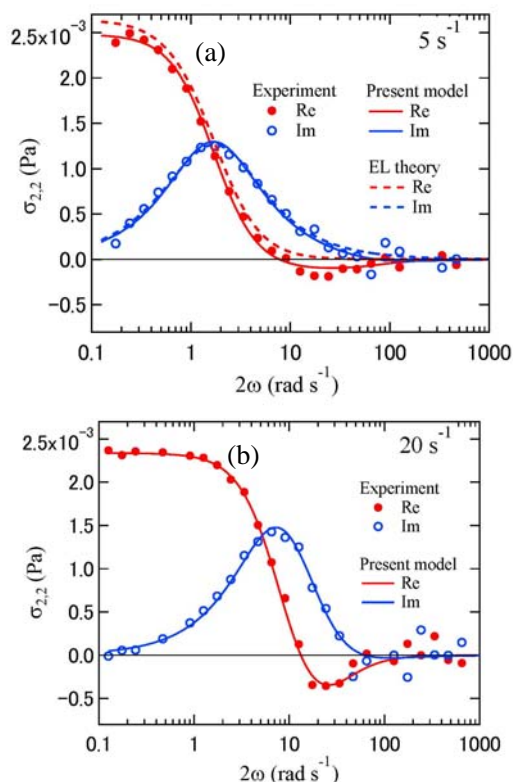


Fig. 1. せん断流下で交流電場を印加したときの応力応答. (a)せん断速度: 5 s^{-1} , (b)せん断速度: 20 s^{-1} .

よると、運動方程式の係数からなる行列(regression matrix)が非対称になることが明らかになった。さらに、この非対称性がせん断流の回転部分を起源とする非保存力によるものであることがわかった。

(2) せん断流下における異常ブラウン運動

ブラウン運動は非平衡定常系における熱ゆらぎを観測するための格好な研究対象である。本研究では、定常せん断流下の微粒子の運動を共焦点レーザー顕微鏡により観測し、非平衡定常ゆらぎの特徴を観測することに成功した。

せん断流下のブラウン運動については古くから研究があり、理論的に

$$\langle x_B(t)^2 \rangle = D \left[t + \dot{\gamma}^2 t^3 / 3 \right] \quad (2)$$

が示されている。ただし、 $x_B(t)$ はせん断流による平均の移動量を差し引いたゆらぎの部分であり、 D は拡散定数、 $\dot{\gamma}$ はせん断速度である。通常の平衡系のブラウン運動では ($\dot{\gamma} = 0$)、平均自乗変位は単に時間に比例するのに対し、せん断流下では t^3 の項が現れるのが特徴である。しかし、実験的に $x_B(t)$ を求めるのは困難であったため、粒子の軌跡が

ら平均自乗変位を計算し、式(2)を検証した例はなかった。本研究では、この困難を克服するために、以下のような量を導入した。

$$\tilde{x}(t) = \left\{ (x(2t) - x(t)) - (x(t) - x(0)) \right\} / \sqrt{2} \quad (3)$$

上式では時間 t の間に移動した距離が相殺され、平均流の寄与がなくなることがわかる。

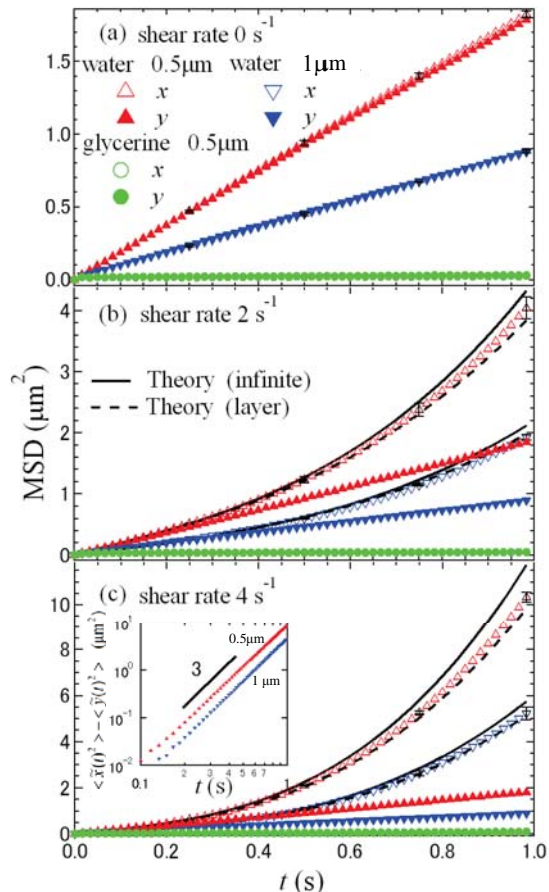


Fig. 2. せん断流下のブラウン運動. せん断流下では流れの方向に t^3 依存が現れることがわかる.

$\langle \tilde{x}(t)^2 \rangle$ は $\langle x_B(t)^2 \rangle$ と等しいことを示すことができる。

粒径 (0.5, 1 μm) とせん断速度 (0, 2, 4 s^{-1}) を変えて水中のブラウン運動を共焦点レーザー顕微鏡を用いて観測し、 $\tilde{x}(t)$ の平均自乗変位を求めた。Fig. 2 からわかるように、無せん断下では(a)、粒径に関わらず直線となっている。なお、比較のため粘度の高いグリセリン水溶液 (0.42 Pa s) の結果も示してある。せん断速度 2 s^{-1} では(b)、流れ方向 (x 軸) と垂直な方向 (y 軸) で違いが現れ、流れ方向では直線から外れ、 t^3 の寄与を明確に見ることができる。せん断速度 4 s^{-1} ではさらに t^3 の寄与が大きくなっている。図中の実線は、式(2)から計算したものであり、結果をほぼ再現

している。実験値がわずかに小さいが、その理由は観測領域が有限であることである。有限性を考慮した理論値が点線であるが、一致が良くなっている。以上の結果より、せん断流がブラウン運動に及ぼす効果を定量的にも明確に示すことができた。

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 9 件)

- ① T. Nagaya, M. Niu, Y. H. Na, and H. Orihara
 “Apparent viscosity of p-methoxybenzylidene-p'-n-butylaniline in the presence of electrohydrodynamic convection”
 Pys. Rev. E, Vol. 87, 012501/1-10 (2013) (査読有) (DOI: 10.1103/PhysRevE.87.012501)
- ② Y. Takikawa and H. Orihara
 “Diffusion of Brownian Particles under Oscillatory Shear Flow”
 J. Phys. Soc. Jpn., Vol. 81, 124001/1-5 (2012) (査読有) (DOI: 10.1143/jpsj.81.124001)
- ③ I. Kunita, K. Sato, Y. Tanaka, Y. Takikawa, H. Orihara, T. Nakagaki
 “Shear Banding in an F-Actin Solution”
 Phys. Rev. Lett., Vol. 109, 248303/1-4 (2012)(査読有) (DOI: 10.1103/PhysRevLett.109.248303)
- ④ H. Orihara, F. Yang, Y. Takigami, Y. Takikawa and Y. H. Na
 “Influence of shear flow on the linear response of a nematic liquid crystal to external electric fields”
 Phys. Rev. E, Vol. 86, 041701/1-6 (2012) (査読無) (DOI: 10.1103/PhysRevE.86.041701)
- ⑤ Y. Aburay, Y. H. Na, H. Orihara and K. Hiraoka
 “Electric-field-induced deformation of a chiral liquid-crystal elastomer in smectic A phase”
 Korea-Australia Rheology Journal, Vol. 24, 83-88 (2012) (査読有) (DOI: 10.1007/s13367-012-0009-y)
- ⑥ H. Orihara and Y. Takikawa
 “Brownian motion in shear flow: Direct observation of anomalous diffusion”
 Phys. Rev. E, Vol. 84, 061120/1-4 (2011) (査読有) (DOI: 10.1103/PhysRevE.84.061120)
- ⑦ Y. H. Na, Y. Aburaya, H. Orihara and K. Hiraoka

- “Response of Shear Stress to ac Electric Fields under Steady Shear Flow in a Droplet-Dispersed Phase Measurement of electrically induced shear strain in a chiral smectic liquid-crystal elastomer”
Phys. Rev. E, Vol. 83, 061709/1-5 (2011) (査読有) (DOI: 10.1103/PhysRevE.83.061709)
- ⑧ H. Orihara, Y. Nishimoto, K. Aida and Y. H. Na
“Morphology and rheology of an immiscible polymer blend subjected to a step electric field under shear flow”
J. Phys.: Condens. Matter, Vol. 23, 284106/1-6 (2011) (査読有)
(DOI: 10.1088/0953-8984/23/28/284106)
- ⑨ H. Orihara, Y. Nishimoto, K. Aida and Y. H. Na
“Three-dimensional observation of an immiscible polymer blend subjected to a step electric field under shear flow”
Phys. Rev. E, Vol. 83, 26302/1-8 (2011) (査読有) (DOI: 10.1103/PhysRevE.83.026302)
- [学会発表] (計 22 件)
- ① Y. Takikawa, H. Orihara
“Brownian Motion of Colloidal Particles Subjected to Steady Shear Flow”
International Association of Colloid and Interface 2012 (May 15, 2012), International center, Sendai
- ② H. Orihara, M. Yasuta, Y. Takikawa
“Morphology and Rheology of Immiscible Polymer Blends under Electric Fields”
International Association of Colloid and Interface 2012 (May 15, 2012), International center, Sendai
- ③ 安田宗玄、瀧川佳紀、折原宏、田中良巳、西成勝好
“キサントガム溶液のマイクロレオロジー”
第60回レオロジー討論会, 2012年9月26日、名古屋大学、名古屋市
- ④ 永田純輝、瀧川佳紀、折原宏、羅亮皓、崔瑩鎮
“ステップ電場に対する微粒子分散系 ER 流体の3次元構造観察とレオロジー”
第60回レオロジー討論会, 2012年9月26日、名古屋大学、名古屋市
- ⑤ 末松直樹、折原宏、油家佑紀、平岡一幸、羅亮皓
“SmC*液晶エラストマーにおける電場応答の周波数依存性”
第60回レオロジー討論会, 2012年9月26日、名古屋大学、名古屋市
- ⑥ 瀧川佳紀、折原宏
“振動せん断流下における微粒子のブラウン運動”
第60回レオロジー討論会, 2012年9月26日、名古屋大学、名古屋市
- ⑦ J. F. Fatriansyah and H. Orihara
“Dynamical Properties of Nematic Liquid Crystal Under Shear Flow and Magnetic Fields: Tumbling Instability and Violation of Fluctuation-Dissipation Theory”
1st Asian Conference on Liquid Crystals (Dec. 17, 2012), Fuji-Calm, Fuji-Yoshida
- ⑧ Y. H. Na
“Electrically induced deformation in chiral smectic liquid-crystal elastomer”
East Asia Young Scientists GEL Symposium (Jan. 6, 2012), Hokkaido University, Sapporo
- ⑨ Y. H. Na, Y. Aburaya, K. Hiraoka and H. Orihara
“Measurement of electrically induced shear strain in chiral smectic liquid crystal elastomer”
International workshop on Physics of Poly-Domain Liquid Crystalline Elastomers (June 10, 2011), Shanghai Jiao Tong University, Shanghai, P.R. China
- ⑩ Y. H. Na, Y. Aburaya, K. Hiraoka and H. Orihara
“Mechanical response to electrical stimulation in chiral smectic liquid-crystal elastomer”
The 6th Korean-Australian Rheology Conference (Sept. 26, 2011), Daejeon Convention Center, Daejeon, Korea
- ⑪ 油家佑紀、羅亮皓、折原宏、平岡一幸
“モノドメインキラルスメクチック液晶エラストマーの電気力学効果”
レオロジー学会第39年会、2011年5月20日、京都リサーチパーク、京都市
- ⑫ 羅亮皓、油家佑紀、折原宏、平岡一幸
“キラルスメクチックエラストマーにおける電場誘起ひずみの測定”
日本液晶学会討論会、2011年9月11日、東京都市大学、東京
- ⑬ 瀧川佳紀、折原宏
“定常せん断流下における微粒子のブラウン運動”
レオロジー学会第39年会、2011年5月20日、京都リサーチパーク、京都市
- ⑭ 末松直樹、羅亮皓、折原宏、氏家誠司
“スメクチック液晶におけるイオン移動度”
レオロジー学会第39年会、2011年5月20日、京都リサーチパーク、京都市
- ⑮ 成田裕録、西本裕樹、羅亮皓、折原宏
“せん断流下における非相溶高分子ブレ

ンドのステップ電場に対する応力応答と構造”

レロジー学会第39年会、2011年5月20日、京都リサーチパーク、京都市

- ⑩ 瀧川佳紀、折原宏
“定常せん断流下における微粒子のブラウン運動”
第21回日本MRS、2011年12月20日、横浜情報文化センター、横浜市
- ⑪ 折原 宏、羅 亮皓、會田 航平、西本祐樹、長屋智之、氏家誠司
“外場下における非相溶高分子ブレンドの構造形成とレオロジー”
特定領域研究（ソフトマター物理）第5回領域研究会、2011年1月7日、東京大学、東京
- ⑫ H. Orihara, Y. Nishimoto, K. Aida, Y. H. Na, T. Nagaya, and S. Ujiie
“Relationship Between Morphology and Rheology of Immiscible Polymer Blends”
International symposium on Non-Equilibrium Soft Matter (Aug. 18, 2010), Nara Prefectural New Public Hall, Nara
- ⑬ H. Orihara, Y. Nishimoto, K. Aida, Y. H. Na, and T. Nagaya
“Transient Response of Electrorheological Effect to a Step Electric Field in an Immiscible Polymer Blend”
5th Pacific Rim Conference on Rheology (Aug. 3, 2010), Hokkaido University, Sapporo
- ⑭ 折原 宏、羅 亮皓、會田 航平、長屋智之、氏家誠司
“非相溶混合流体の構造とレオロジー”
第59回高分子討論会、2010年9月16日、北海道大学、札幌
- ⑮ 濱田篤志、會田航平、羅 亮皓、折原 宏
“定常せん断流下における非相溶高分子ブレンドの交流電場応答”
第58回レオロジー討論会、2010年10月5日、仙台国際センター
- ⑯ 瀧川佳紀、羅 亮皓、折原宏
“ネマチック液晶中での微粒子のブラウン運動”
第58回レオロジー討論会、2010年10月5日、仙台国際センター

[図書] (計1件)

- ① H. Orihara
“Morphology and rheology of immiscible polymer blends in electric and shear flow fields” in Non-equilibrium soft matter physics edited by S. Komura and T. Ohta, 89-144 (2011), World Scientific

[その他]

ホームページ:

<http://www.eng.hokudai.ac.jp/labo/MOLPHY/home/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

折原 宏 (ORIHARA HIROSHI)
北海道大学・大学院工学研究院・教授
研究者番号：30177307

(2) 研究分担者

長屋 智之 (NAGAYA TOMOYUKI)
大分大学・工学部・教授
研究者番号：00228058

羅 亮皓 (NA YANG HO)
北海道大学・大学院工学研究院・助教
研究者番号：00421991