

液晶の連続体力学的考察に於るモデルについて

東理大・理工 池田 恵

(5月15日受理)

1. はじめに

液晶なる物質の連続体力学的考察を展開するに当って、最も本質的なことは方向特性をいかにとらえるかということである。即ち、液晶分子の配向関係を特徴的にとらえ、異方性流体の概念に基づいた取扱いをしなければならないわけで、そのためのモデルの設定とそれによる力学的挙動の把握とが全てを支配することになる。

この種の取扱いに於ては、従来からは液晶を連続体そのものとして扱い、分子軸の配向方向が点から点へと連続的に変化していることを前提としたモデルに基づく議論がなされてきており、全く、通常の連続体力学の考察と軌を一にしている (cf. 1), 2))。我々としてもそういうモデルの下に、微分操作を施して、幾何学的取扱いをのべてきたところである。¹⁾

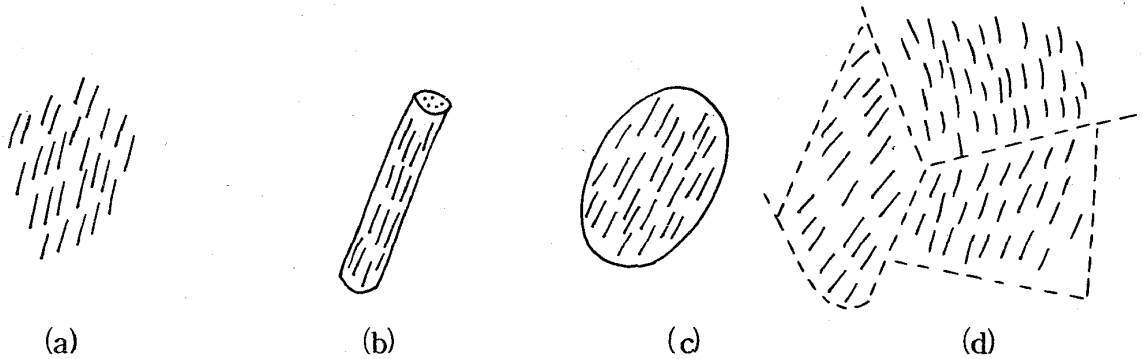
ところが、実験的な事実として、いわゆる molecular-clusters が存在していることが云々され、単なる連続体近似とは違ったモデルが必要となることは確かであろう。ただ、今のところ、その存在の仕方として、多数の分子の集合体である molecular-clusters が海に浮かぶ島の如くに溶媒中に浮いているのか、あるいは、clusters が隣接しあいながら領域構造をとっているのか、といったところまでは判明していなく、このどちらかのモデルでもって実験事実を説明せんと試みている段階である。

こういう何種類かのモデルを背景にして、我々は系統的な連続体力学的考察を展開したいのであろうが、モデル毎に多少の考え方の変化や表現法の違いは余儀なくされる。しかし、基本的には幾何学的方法論で充分やっていけるということを、以下、特に molecular-clusters について議論してみたいと思う。

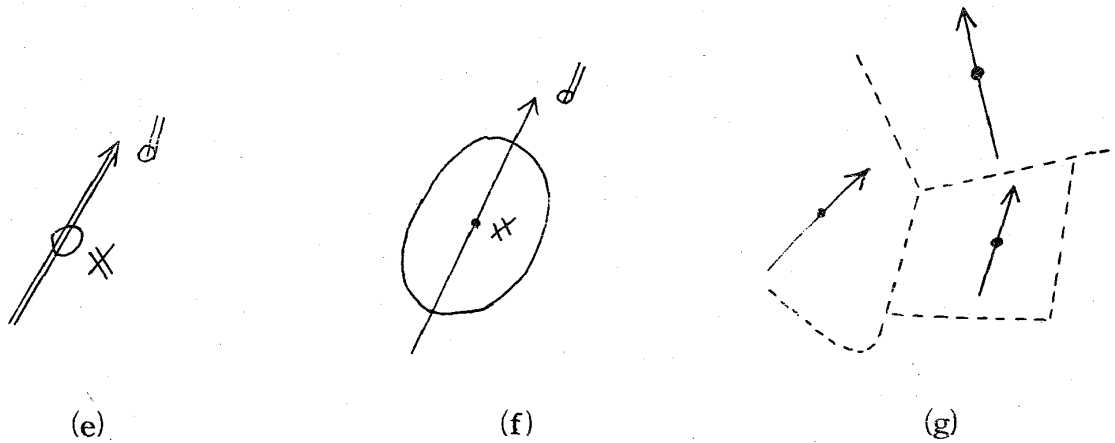
2. Molecular-clusters

液晶の分子は、大体、細長い高分子とみなされ得、それが多数、分子軸を平行にして集まっていると考えられる (図(a)参照)。今まではモデルとしては主

とて図(a)の様な状態が全体的にいきわたっていて、連続体近似でおきかえてやることにより、各点(\mathbf{x})ごとに方向特性(\mathbf{d})が付随し、位置的变化と共に \mathbf{d} が変化するという描像を描いていた。だから、その場合は全体的な場の構造としても、独立変数として (\mathbf{x} , \mathbf{d}) なる element of support に選んだ Finsler 空間的構造が本質的であった (cf. 3)。—だから、実際的には Nematic 相の液晶を扱っていることになる。



ところが前節でのべた如く、molecular-clustersなるものが存在しているとすると、図(a)の描像ではなくて、図(b)の様な分子がたくさん集まった円筒状のものとか、あるいは図(c)の如く、もっと莫然とした形状の集合体とか、が浮遊している状態とか、あるいは浮遊しているのではなくて、図(d)の如く、domain-structure を構成している状態とか、が考えられなくてはならなくなる。図(b), (c), (d) にしても、ミクロな形態をさておいて、全体的にならしてしまえば図(a)のモデルで扱えることはいうまでもないが、分子集合形態を陽に取り出して扱う場合には、この様な形態を想定しなければならないわけである。とはいえ、clustersの内部での個々の分子の配列状態までは判然と見極わめがついていない現状では、一応、大きな枠組として、こういう clusters の存在を前面に押し出す以外にないだろう。従って、これらを連続体力学的に扱うに当っては、各 cluster ごとに平均的な方向特性を付随させることしかできないから、例えば、特徴的に表わせば、図(b)(c)(d)は図(e)(f)(g)の如くに簡略化される。つまり、重心の位置(\mathbf{x})と一つの cluster が全体としても一つの平均的方向特性(\mathbf{d})によって代表されることになるから、独立変数は以前と同じく (\mathbf{x} , \mathbf{d}) ということになる。例えば、Ericksen¹⁾ は図(b)を考えており、それを抽象化してモデ



ルとしては図(e)を考え、重心の位置座標(\mathbf{x})とおく時、分子としての line-segment 上の任意の点は $\mathbf{y} = \mathbf{x} + \lambda \mathbf{n}$ (\mathbf{n} は分子軸方向を表わす単位ベクトル) で表わす。平均をとるのは mass-density $\mu(\lambda)$ を考え、例えば、

$$\int_I M(\lambda) \mathbf{y}(t, \lambda) d\lambda = M \mathbf{x}(t)$$
 の如くである。但し、 I はパラメータ λ の動く interval, M は cluster 全体の質量である。

cluster を有限な大きさをもつ基本単位として考え、(\mathbf{x}, \mathbf{d})を独立変数として扱う立場は、全ての内部自由度を \mathbf{d} 及び \mathbf{d} と \mathbf{x} の関係の中に含ませてしまうので、 \mathbf{d} の位置的变化と同時に、他の clusters の \mathbf{d} との相互作用が重要な因子となる。

これらのモデルは、それぞれ液晶の中の特定の状態に対応させられることは可能であろうが、統一的なモデルとしてとらえるためには離散的か連続的かのちがいを molecular-clusters 間の相互作用の大きさの程度如何に帰着させ、図でいえば(e)とか(f)とかのものが連続的に分布していると考えた方が考え易い。モデル的には我々の以前のものと同様になるが、ただ、cluster 毎の方向特性の相互作用を考慮に入れねばならぬので、表式としては clusters を区別していくことが必要となる。その点からいえば、高分子孤立鎖における monomer と全体としての一本の孤立鎖との関係に類同となってくる。(cf. 4)。

そういうモデル化によって連続体力学的に考察していくとどうということになるか。又、既知の概念のどういうものに匹敵してくるかをみていこう。

3. Molecular-clusters の連続体力学的考察

各 molecular-cluster を (\mathbf{x}, \mathbf{d}) で代表させるが、前述の如く、cluster

間の相互作用を考えなければならないので、clusterを区別しなければならない。そこで、便宜的に(i)一番目のclusterを $(\mathbf{x}^{(i)}, \mathbf{d}^{(i)})$ ($i=1, 2, \dots, N$)で表わすことにする。もちろん、 $\mathbf{x}^{(i)}$ は重心、 $\mathbf{d}^{(i)}$ は平均的方向である。全体流としての anisotropic fluidとしての挙動は、(i)についての総和平均(Σ)で与えられるとすることが多いが、今、連続体近似で、全体流の中での位置を (z) 、方向特性を (ξ) とおくと、いわゆる micro-macro の関係として、

$$\left. \begin{aligned} Z &= \Sigma_{(i)} \mathbf{x}^{(i)} / N, & \xi &= \Sigma_{(i)} \mathbf{d}^{(i)} / N \\ \text{あるいは} & & & \\ dz &= A_{(i)} d\mathbf{x}^{(i)}, & d\xi &= B_{(i)} d\mathbf{d}^{(i)} \end{aligned} \right\} \quad (3 \cdot 1)$$

が得られる。但し、 $A_{(i)}, B_{(i)}$ は平均化操作を与える作用素とみなされると同時に、micro と macro の相対的変形、あるいは相対的方向変化を意味することになる。全体流の系を (κ) ($\kappa=1, 2, 3$)、各 cluster 毎の系を (r) ($r=1, 2, 3$)とおくと、座標系で明示的に書くと、

$$\left. \begin{aligned} dz^\kappa &= A_{(i)r}^\kappa d\mathbf{x}^{(i)r}, & d\xi^\lambda &= B_{(j)s}^\lambda d\mathbf{d}^{(j)s}, \\ \text{あるいは} & & & \\ dz^\kappa &= A_{(i)}^\kappa d\mathbf{x}^{(i)}, & d\xi^\lambda &= B_{(j)}^\lambda d\mathbf{d}^{(j)} \end{aligned} \right\} \quad (3 \cdot 2)$$

となる。つまり、ここでは cluster の番号付けの指標 $\{(i)\}$ も又、一つの座標系指標とみなされる。但し、 $d\mathbf{x}^{(i)}$ は(i)-cluster とそれに隣接せる cluster との位置のへだたり、即ち、 $d\mathbf{x}^{(i)} = \mathbf{x}^{(i)} - \mathbf{x}^{(j)}$ ($j=i+1, i-1$)、を与え、 $d\mathbf{d}^{(i)}$ は隣接させる clusters 間の方向の変化、即ち $d\mathbf{d}^{(i)} = \mathbf{d}^{(i)} - \mathbf{d}^{(j)}$ ($j=i+1, i-1$) を与える。相互作用としては、せいぜい隣接せるもの同志のもののみを考えれば充分だからである。

(3・2)の操作はよりミクロには cluster の内部の分子の挙動と、その一つの cluster についての平均化の操作に相当し、 $A_{(i)}, B_{(i)}$ は mass-density

をかけて積分する操作に対応している。

ここまでもってくれば、後は以前の我々の相互作用場の構築の理論⁵⁾に準拠することにより、{(i)}-場の(k)-場への影響が場の構造論的にとらえられていく。その概略をのべると、まず、計量は

$$g_{\lambda\kappa}(\mathbf{x}, \xi) = A_{\lambda}^{(i)} A_{\kappa}^{(j)} g_{(i)(j)} \quad (3 \cdot 3)$$

などで結びつけられ、cluster同志の位置関係の変化 $g_{(j)(i)}$ が $g_{\lambda n}$ にまとめられ、 $A^{(i)}$ が相対変形を表わすから、(3・3)はmicroとmacroの変形の関係を与える式とみなされる。

次に接続は、(k)-場と{(i)}-場でそれぞれ

$$\left. \begin{aligned} DV^{\kappa} &= dV^{\kappa} + \Gamma_{\mu\lambda}^{\kappa} V^{\lambda} dz^{\mu} + C_{\mu\lambda}^{\kappa} V^{\lambda} d\xi^{\mu}, \\ DV^{(i)} &= dV^{(i)} + \Gamma_{(k)(j)}^{(i)} V^{(j)} d\mathbf{x}^{(k)} + C_{(k)(j)}^{(i)} V^{(j)} d\mathbf{d}^{(k)}, \end{aligned} \right\} \quad (3 \cdot 4)$$

で導入されているものとする。各接続係数間には通常の変換則による関係が考えられ、平均化の効果がきいてくることがわかるが、実際問題としては、物理的には

$$d\xi^{\lambda} = k_{\cdot\mu}^{\lambda} dz^{\mu}, \quad d\mathbf{d}^{(i)} = k_{\cdot(j)}^{(i)} d\mathbf{x}^{(j)} \quad (3 \cdot 5)$$

なる関係が仮定されるので、(3・4)は

$$\left. \begin{aligned} DV^{\kappa} &= dV^{\kappa} + \overset{*}{\Gamma}_{\mu\lambda}^{\kappa} V^{\lambda} dz^{\mu}; \quad \overset{*}{\Gamma}_{\mu\lambda}^{\kappa} \equiv \Gamma_{\mu\lambda}^{\kappa} + C_{\nu\lambda}^{\kappa} k_{\cdot\mu}^{\nu} \\ DV^{(i)} &= dV^{(i)} + \overset{*}{\Gamma}_{(k)(j)}^{(i)} V^{(j)} d\mathbf{x}^{(k)}; \quad \overset{*}{\Gamma}_{(k)(j)}^{(i)} \equiv \Gamma_{(k)(j)}^{(i)} + C_{(l)(j)}^{(i)} k_{\cdot(k)}^{(l)} \end{aligned} \right\} \quad (3 \cdot 6)$$

に縮退する。(3・5)の関係は方向特性の位置的变化を規定するもので、方向特性が位置の関数で与えられることを意味している。

だから、構造論的にはmicroとmacroの関係は $\overset{*}{\Gamma}_{(k)(j)}^{(i)}$ と $\overset{*}{\Gamma}_{\mu\lambda}^{\kappa}$ の関係にまとめられることになる。これ以上の詳しい議論は文献5)に譲るとして、clusterの運動に着目することにした。これは孤立鎖のmonomerの運動の取扱いと同等である。(cf. 4)。

cluster の運動方程式については，形式的には位置変化に関するもの

$$\ddot{\mathbf{x}}^{(i)} + \dot{\Gamma}_{(k)(j)}^{*(i)} \dot{\mathbf{x}}^{(j)} \dot{\mathbf{x}}^{(k)} = \Gamma^{(i)} \quad (3 \cdot 7)$$

と方向変化に関するもの

$$\ddot{\mathbf{d}}^{(i)} + \dot{\Gamma}_{(k)(j)}^{*(i)} \dot{\mathbf{d}}^{(j)} \dot{\mathbf{x}}^{(k)} = \mathbf{G}^{(i)} \quad (3 \cdot 8)$$

との二つを同時に考えなければならない。但し， $\text{dot}(\cdot)$ は時間微分 $\frac{d}{dt}$ を， $\Gamma^{(i)}$ ， $\mathbf{G}^{(i)}$ は一般的外力を，接続係数の介在している項は一般的抵抗力を表わす。

ところで， $\dot{\mathbf{x}}^{(i)}$ については孤立鎖のmonomerについての議論と同じ議論が展開されるので，ここでは省略し，それと同じことを $\dot{\mathbf{d}}^{(i)}$ についての議論に適用してみたい。そのために，まず， $\dot{\mathbf{d}}^{(i)}$ なる方向変化速度について，(3・1)より

$$\dot{\mathbf{d}}^{(i)} = \mathbf{B}_{\lambda}^{(i)} \dot{\xi}^{\lambda} \equiv \mathbf{u}^{(i)} - \Delta \mathbf{u}^{(i)} \quad (3 \cdot 9)$$

とおけるものとする。但し， $\mathbf{B}^{(i)}$ なる変形を，macroな変形に比例的な部分とそうでない部分とに分け，前者による全体流 $\dot{\xi}^{\lambda}$ からの寄与を $\mathbf{u}^{(i)}$ ，後者による寄与を $-\Delta \mathbf{u}^{(i)}$ とおいた。この時，(i)-clusterに作用する粘(弾)性抵抗力(非線型変形を考慮に入れているから)は，Oseenの式を用いることにより，

$$\boldsymbol{\eta}^{(i)} = \zeta (\dot{\mathbf{d}}^{(i)} - \mathbf{u}'^{(i)}) ; \mathbf{u}'^{(i)} \equiv \mathbf{u}^{(i)} + \zeta_{(j)}^{(i)} \boldsymbol{\eta}^{(j)} \quad (j \neq i) \quad (3 \cdot 10)$$

とかける(cf. 6), 4)。但し， ζ は各clusterのもつ粘性抵抗係数とし， $\mathbf{u}'^{(i)}$ は(j)(j ≠ i)-clusterの存在によって攪乱された(i)-clusterの位置での(平均)流速を意味し， $\zeta_{(j)}^{(i)}$ はその攪乱の大きさを与える一般的な抵抗係数である。(3・10)は，又，

$$\zeta (\dot{\mathbf{d}}^{(i)} - \mathbf{u}^{(i)}) = \Phi_{(j)}^{(i)} \boldsymbol{\eta}^{(j)} ; \Phi_{(j)}^{(i)} \equiv \delta_{(j)}^{(i)} + \zeta \zeta_{(j)}^{(i)} \quad (3 \cdot 11)$$

とも書き直され，左辺は(3・9)より $-\zeta \Delta \mathbf{u}^{(i)}$ になっている。つまり，他のclusterからの流体力学的相互作用によって，micro-macroの相対的な方向変化が惹き起こされることになる。

ところで，我々としては，この $\boldsymbol{\eta}^{(i)}$ なる作用力を(3・8)の $\mathbf{G}^{(i)}$ と等置し，

かつ、慣性項 $\ddot{\mathbf{d}}^{(i)}$ を無視することにすれば、(3・11)より、

$$\overset{*}{\Gamma}_{(k)(j)}^{(i)} \dot{\mathbf{d}}^{(j)} \dot{\mathbf{x}}^{(k)} = -\zeta \overset{-1}{\Phi}_{(j)}^{(i)} \Delta \mathbf{u}^{(j)} \quad (3 \cdot 12)$$

なる関係が得られ、接続係数の物理的意味が議論される。但し、 $\overset{-1}{\Phi}_{(j)}^{(i)}$ は $\Phi_{(j)}^{(i)}$ の逆テンソルである。

又、(3・5)より、 $\dot{\mathbf{d}}^{(i)} = \mathbf{k}_{(j)}^{(i)} \dot{\mathbf{x}}^{(j)}$ なる関係が得られ、 $\mathbf{u}^{(i)}$ は平均速度として、当然、 $\dot{\mathbf{x}}^{(i)}$ に関係づけられるので、今、それを、例えば、 $\mathbf{u}^{(i)} \equiv \kappa \dot{\mathbf{x}}^{(i)}$ とおくと、

$$-\Delta \mathbf{u}^{(i)} = [\mathbf{k}_{(j)}^{(i)} - \kappa \delta_{(j)}^{(i)}] \dot{\mathbf{x}}^{(j)} \quad (3 \cdot 13)$$

なる関係が得られる。これを(3・11)に代入すると、

$$\zeta [\mathbf{k}_{(j)}^{(i)} - \kappa \delta_{(j)}^{(i)}] \dot{\mathbf{x}}^{(j)} = \Phi_{(j)}^{(i)} \boldsymbol{\eta}^{(j)} \quad (3 \cdot 14)$$

が得られ、更に、(3・12)の対応を考えると、

$$\zeta \overset{-1}{\Phi}_{(j)}^{(i)} [\mathbf{k}_{(k)}^{(j)} - \kappa \delta_{(k)}^{(j)}] \dot{\mathbf{x}}^{(k)} \equiv \overset{*}{\Gamma}_{(k)(j)}^{(i)} \dot{\mathbf{d}}^{(j)} \dot{\mathbf{x}}^{(k)} \quad (3 \cdot 15)$$

が得られる。よって、この式からも接続係数の物理的意味が考えられる。

これまで述べたところは、独立変数 ($\mathbf{x}^{(i)}$, $\mathbf{d}^{(i)}$) による場の構造についてであり、clusters の張る空間の構造に着目する立場であった。粘性抵抗力と運動方程式が結びつけば、(3・7)以下の様な議論も可能となるわけである。

4. 液晶モデルの一般化について

さて、以上のべてきた様な液晶のモデルを眺めてみると、考え方の問題として、それらを一般化して扱うこともできそうである。その一般化についてはどういう概念が基本になるかをみていきたい。

通常 of 液晶理論、例えば、Ericksen¹⁾ や Leslie²⁾ の場合、最初から通常の mass, momentum, energy などの balance eqs. を仮定し、それに加えて、方向特性についてのものを新しく導入する。従って、方向特性という新しい自由度に対応する momentum, energy などが一様に導入され、しかも直和的にとり入れられているために、相互作用が陽にはとらえられていない。つまり、相対変形、相対速度というものが intrinsic に把握されなく、あくまで \mathbf{x} と \mathbf{d} を個

別的に扱う立場を貫ぬいている。熱力学的考察にしても entropy production inequality と結びつけて, constitutive eqs. を求めることに終始しているにすぎず, 全体構造の枠組はそのままにしておいて, 新しい内部自由度としての方向特性の分だけ内容的に拡張していることになる。

そこで我々としては, そういう新しい自由度の介在による相互作用を明示的にとり入れていきたいのだが, そうすると, 一般的にいえば, 代表的に二種類の性格の異なる自由度をもつ物質間の相互作用を考慮に入れた連続体力学を考えねばならなくなる。場の構造からいえば既に何度ものべた物理的相互作用場の概念がこれに相当してくるが, molecular-clusters になぞらえると, 物質間の相互作用, 就中, 構成粒子間のそれを陽に議論しなければならない。その意味で, 連続体力学の分野で多少ともモデル的類同が見出されるのは, reacting continua⁷⁾, あるいは interacting continua⁸⁾ の理論であろう。詳細は原論文を参照してもらうことにして, 以下では液晶モデルとの関連についてのみふれる。

これらの議論では, 二種類の相互作用—化学的と物理的との区別なく—をする物質をとってきて, 各々の種の代表的な粒子, あるいは平均密度に着目して, 連続体力学の諸原理が着目する領域と全体域とについて同様に成立っていると仮定して, 一般的な balance eqs. から出発する。目的は entropy production inequality を介して constitutive eqs. を求めることである。その際, micro から macro への移行は, ここでも総和平均がとられるので, micro な相互作用は平均化されて, 方向特性とか, 相対速度とかの形になって初めてとり入れられることになる。その辺の考え方は Ericksen,¹⁾ Leslie²⁾ らと同じである。

モデルとしては流体力学的要素が強いので, これらの理論では種類の違う物質, あるいは粒子間の相対速度が新しい内部自由度として表面に出てくる。このモデルは, 粒子の種類わけによる分類, 総和平均による micro と macro の結びつけ方, 一般的な保存則の成立の仮定など, cluster モデルと共通点が多いが, reactions とか interactions とかの本質については何も深い考察がなされず, 相対速度の介在なども一般的外力や constitutive eqs. に便宜的にとり入れられているだけなので, 我々の問題意識とは多少のズレがあることは認められなければならない。又, 一般的な平衡, あるいは保存則の成立が, 個別粒子の領域で成立つと同時に全体としても成立つことを仮定するのは, 連続

体近似である領域についての平均をとっているから可能なだけで、その段階での micro な相互作用そのものは、結果としてはとらえられなくなる。

いずれにせよ、方向特性という新しい内部自由度をとり入れることと、interacting continuum などと同時に二つの種類の異なる物質を想定した扱いとは、形式的には同じところが多い。ただ、相互作用をどう取り入れるかが問題で、単に個別的なたしあわせのみを考えるならば、両者は全く同等になる。今までのところ、連続体力学的にも、そういう“たしあわせ”とか、“総和平均”とかの単純な操作しか考えられていないので、真の相互作用の規定とはいいたいと思われる。

5. おわりに

以上、種々の液晶モデルについての連続体力学的コメントをのべてきたが、モデルの類同性は諸々の分野に求められ得、ただ着目する階層の違いに注意すればよいだけのことである。扱い方としては、ここでのべたところからもわかる如く、そういう類同性を抽象していった相互作用場の概念とか、方向特性の効果を場の構造に反映させていく概念だとか、が一般性をもっていることが主張される。流体力学的なモデルが考え易いが、その時は相対変形、相対速度などの規定が重要になり、cluster モデルにも Oseen の式などが使えることもいえる。

この種の着目する基本単位が点ではなく、有限の、しかも変形可能な領域になった場合の連続体力学は、“非局所連続体力学”⁹⁾として、現在及び将来共に、重要な課題を含んでいることがいえ、このことは液晶モデルについてだけでも充分うかがえることと思う。

6. 参考文献

- 1) J.L. Ericksen, Trans. Soc. Rheology, 5 (1961), 23.
- 2) F.M. Leslie, Arch. Rational Mech. Anal., 28 (1968), 265.
- 3) 池田 恵, 物性研究, 16 (1971), 367, 429.
- 4) 池田 恵, 同上, 12 (1969), 245.
- 5) 池田 恵, 同上, 14 (1970), 203, 419.

15 (1971), 217.

Sci. Pap. RIPAM, 2-1 (1971), 16.

- 6) C.W. Oseen, Hydrodynamik. Akademie Verlag,
Leipzig, 1927.
- 7) P.D. Kelly, Int. J. Engng Sci., 2 (1964), 129.
- 8) A.E. Green & P.M. Naghdi, Ibid., 3 (1965), 231.
A.E. Green & T.R. Steel, Ibid., 4 (1966), 483.
- 9) 池田 恵, Sci. Pap. RIPAM, 1-2 (1971), 3.