

液晶での巨視秩序形成過程における揺動の挙動とその分布

九工大 甲斐昌一

§1. はじめに

液晶の電気流体力学的あるいは、電氣的発振不安定性における macro dynamics は、 ϵ の小さい領域で次のような式で近似できる¹⁾

$$\dot{y} = ay - by^3 + \nabla^2 y \quad \text{--- (1)}$$

ここで y は director angle で、ホモジニアス配列液晶セルを使用した場合には、電極面とのなす角度で定義される。また、 y は本来空間的周期構造を呈する。ある閾値周波数 f_c 以下では空間電荷が外力に十分な速さで応答でき、これが振動モードとなることにより、director angle は非振動モードとなり、定常ではある周期構造をもった巨視秩序を形成する。一方 f_c 以上では空間電荷の緩和が外力に応答できず、このための director angle の振動が空間電荷の蓄積とともに発達する。したがって、 f_c 以下では director angle が非振動モードの巨視秩序を形成し、一方 f_c 以上では、空間電荷の蓄積量が非振動モードの巨視秩序となる。後者の場合には、これは直接観測できず、director の振動振幅の発達として観測される。いずれの場合も macro dynamics は (1) 式に従う。また外部の電氣的雑音 ξ を加えると multiplicative stochastic process となり²⁾、(1) 式は

$$\dot{y} = \alpha' y - by^3 + \nabla^2 y + \xi \cdot y + \eta(t) \quad \text{--- (2)}$$

となる。ここで α' は外部雑音の trivial part ξ^2 を含むために、(1) 式の α の値とは異なってくる。また $\eta(t)$ は熱雑音である。このような系での f_c 以下の形成時間の雑音や波数依存性については既に報告³⁾したので、ここでは主に、 f_c 以上での巨視秩序の形成過程における平均運動のまわりの揺動の分布と分散の時間発展の様子と報告する。

§2. 空間電荷の発達と揺動

f_c 以上では、図1に示すような揺動が光学的に観測される。これは WD ロール構造の形

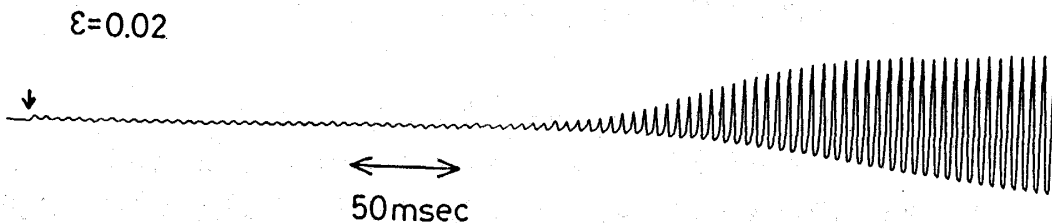


図1. director の発振と不均一な空間電荷の成長

成と同様に、わずかの不均一性から巨視的な空間電荷の周期構造が形成されるために生じるもので、これが振動している director の振幅を成長させる。(注意すべきことは、この発達の envelop は発振モードの発達ではなく、静止モードである空間電荷の蓄積量の発達である。これは実験的に確認されている。) この蓄積量と director の角度 (peak to peak) は比例している。また、光学的に観測される量は director angle の 2 乗となっているが、図 2 以下では実験結果は全て、空間電荷量あるいは director angle の振幅すなわちオーダパラメータ y に直接相当するように再整理を行なっている。 y あるいは ε が大きいところではさらに複雑な関係となるため、ここでは ε の非常に小さいところのみを対象として議論する。

図 2 は、 $\varepsilon = 0.098$ までステップ状に外力を増加させた場合の y の時間発展と揺動 σ の

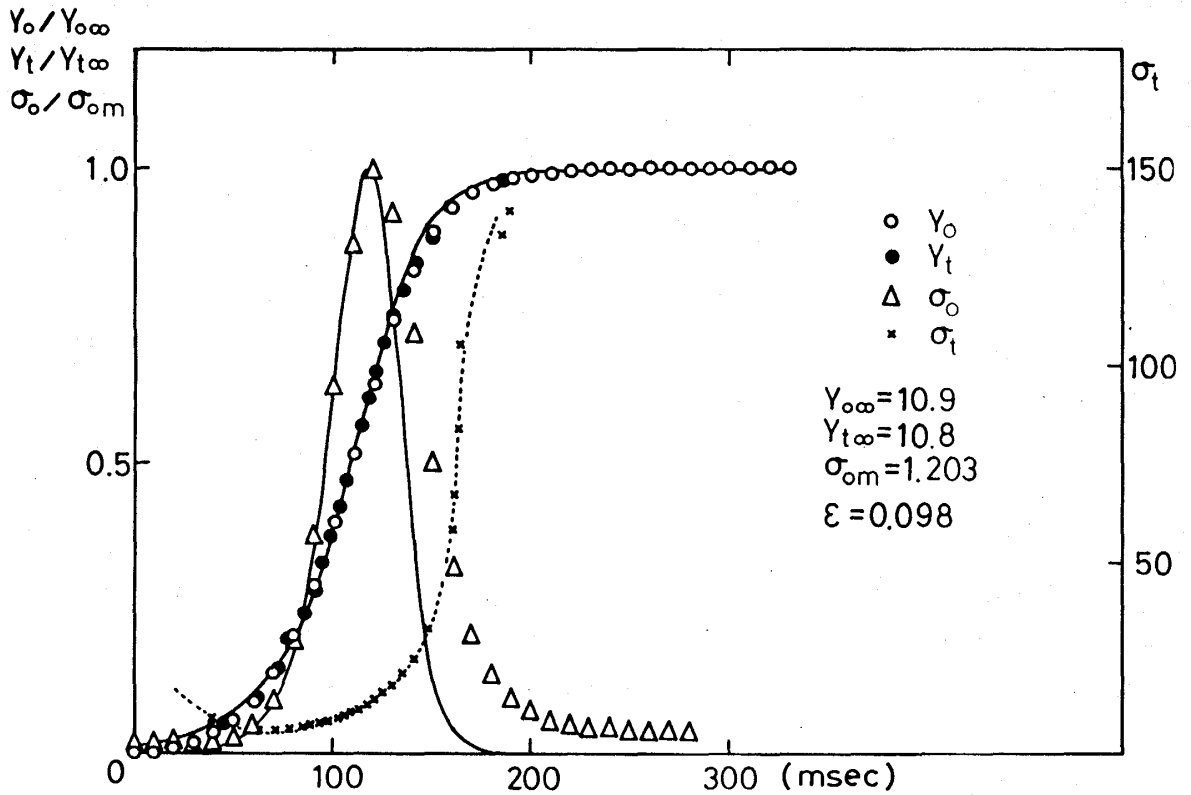


図 2. 平均運動 y_0 , y_t と分散 σ_0 , σ_t の時間変化
 実線は y に対して (1) 式, σ に対してはステップ状
 理論より得られる σ の変化を示す。

時間変化を示す。ここで y は most probable path であり、 y_0 は平均化をしたが一定のもとで、一方、 y_t は y が一定のもとで行なわれているが、双方とも most probable path は全く同一の時間発展を示す。図中実線は $\dot{y} = ay - by^3$ の曲線を表わす。実験値は完全に曲線上に載っており、非常によい近似式であることがわかる。

一方 σ , σ_t は上記の各々での統計的な分散値で、

$$\left. \begin{aligned} \sigma_o(t) &= \frac{1}{N} \sum_i^N (y_o - y_i)^2, & t \text{ は 固定} \\ \sigma_x(y) &= \frac{1}{N} \sum_i^N (x_o - x_i)^2, & y \text{ は 固定} \end{aligned} \right\} \text{--- (3)}$$

で与えられる。すなわち、 σ_o はある時間 t での y のバラツキと、一方 σ_x はある値 y_x を示す x のバラツキを意味する。 $\sigma_o(t)$ は $t=t_m$ で最大を示し、定常に向うとともに再び減少する。実線は鈴木理論を示す⁴⁾。 $t > t_m$ では、理論との一致は悪くなり、その差は終期になるほど大きくなる。一方、 $\sigma_x(y_x)$ は初期には大きく、50 msec ~ 120 msecの領域ではほぼ一定となり、 $t \rightarrow t_m$ 近傍から再び急激に大きく成長するようになる。スケーリング理論では、 $\sigma_x(y_x)$ が一定であることが要請される。したがって、 $t > t_m$ で σ_x が急激に変化することと $\sigma_o(t)$ が理論からはずれることは矛盾しない。現在のところ終期過程に対するスケーリング理論には改良の余地があるように思える(この $\sigma_x(y_x)$ については本研究会で指摘されたもので、この稿をまとめるにあたり、実験データの再整理を行なった)。なお、14%の外

図3 (a) σ_o の外部雑音強度(Q)依存性

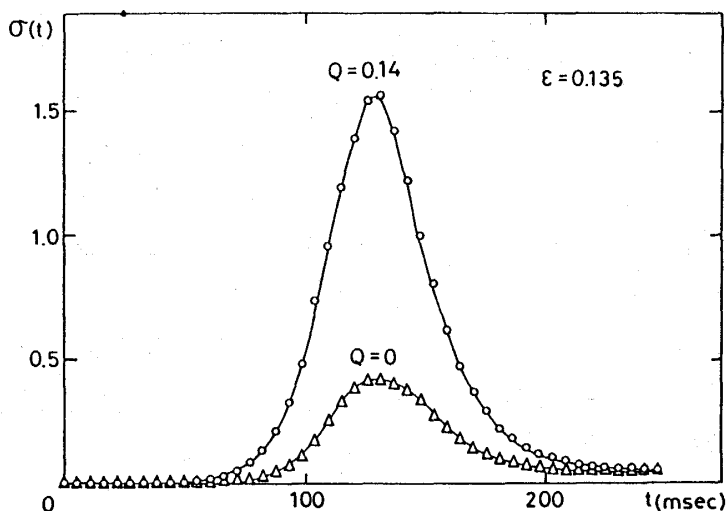
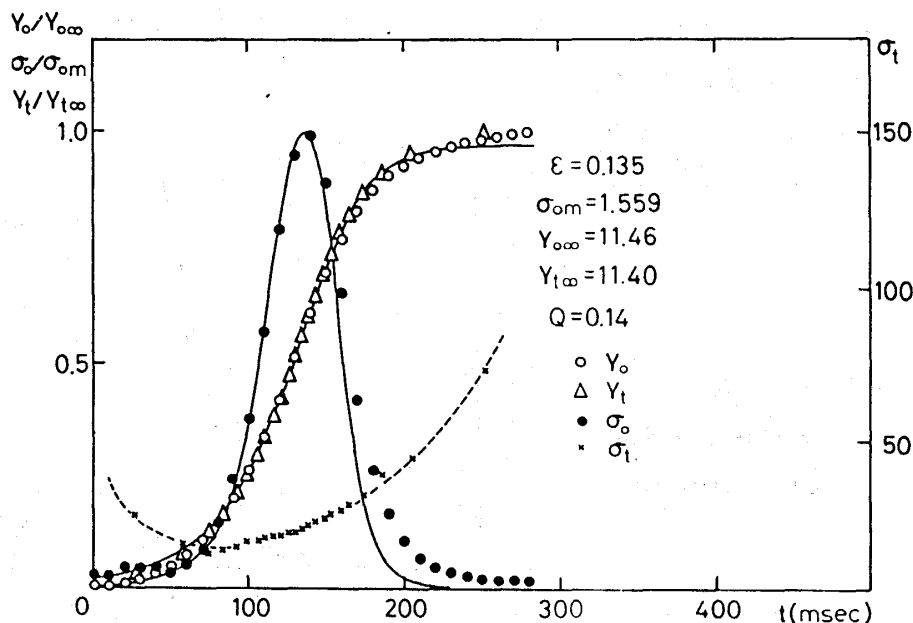


図3 (b) Q=0.14の場合の平均運動 y_o, y_x , 分散 σ_o, σ_x の時間変化。実線は図2と同様に(1)式とスケーリング理論より得られる σ_o の変化を示す。



部雑音を加えると、図3(a)に示すように分散値は約4倍と増加したが、 t_m については顕著な変化は見られなかった。これは、液晶では ε と外部雑音強度に応じて、multiplicative stochastic process と additive noise process との領域があり、 $Q=0.14$ では、multiplicative stochastic process と additive noise process の中間あたりにあるためと思われる。図3(b)に σ_x と σ_0 を示した。図2と定性的に大きな違いは見られないが、外部雑音が存在すると、 σ_x の一定の領域は広くなり、 σ_x はゆるやかに変化するようになる。これに相応するようにスケーリング理論は σ_0 に対して、より広い領域で一致が良くなっている。このことは外部雑音の印加により、巨視秩序形成を遅らせていることを意味するが、そうすると $Q=0.14$ では多少MSP^{*}となっているといえる。 * multiplicative stochastic process

§3. most probable pathのまわりの揺動の分布

図4に平均値のまわりの分布を示す。外部雑音のない場合には、分布は図4(a)に示すように、初期 $t=109\text{msec}$ ($\tau = t/t_m = 0.484$) ではガウス分布となっているが、 t が t_m に近づくとともにガウス分布から外れてくる(図4(b))。そして最終的には、多分散の臨界成長でみられる拡散律速過程でのサイズ分布(LSW分布)に類似した分布となる(図4(c)-(d))。図中実線はその分布を示す。特に $t > t_m$ では、一般にLSW分布と適当にスケール変換することによって常に一致する。一方、外部雑音がない場合に対して14%加えられた場合には、分布は初期 $t=109\text{msec}$ ($\tau = 0.77$) では対数正規分布あるいは、 τ 2次の界面反応律速成長過程での粒子サイズ分布に類似した分布となる(図5(a))⁵⁾。一方、 t_m 付近($\tau=1.03$)では、ほぼガウス分布($\sigma_g = 1.823$)となり(図5(b))、最終的には定常分布はLSW型の分布となる(図5(c))。これらの事実から考えると、 $t < t_m$ の領域では、微視的不安定性から巨視的要素の発生する過程であり、 t_m 付近では巨視的要素が十分発生し、微視的には定常に達している(例えば、過飽和溶液にたとえると、ほとんど核生成が終わ

図4. $Q=0$ の場合の平均運動のまわりの揺動の分布とその時間変化

(a) $t = 109\text{msec}$
 実線は Gaussian
 ($\sigma_g = 0.0441$)

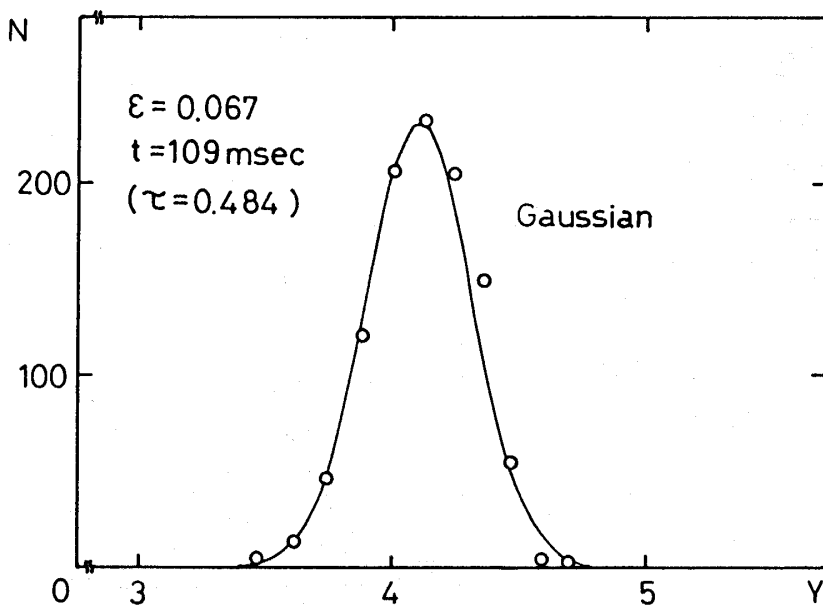


図 4 (b)

$t = 172 \text{ msec}$
 $(\tau = 0.764)$,
 $\sigma_{\bar{q}} = 0.203$

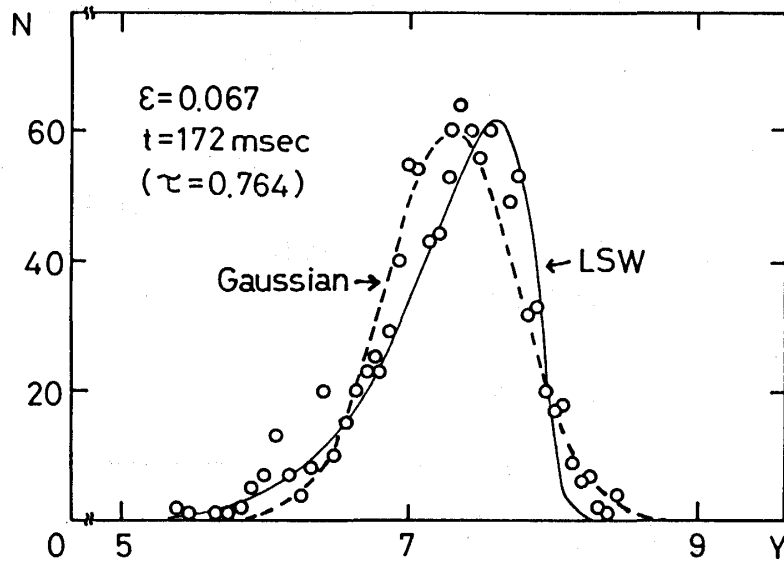


図 4 (c)

$t = 203 \text{ msec}$
 $(\tau = 0.902)$,
 $\sigma_{\bar{q}} = 0.25$

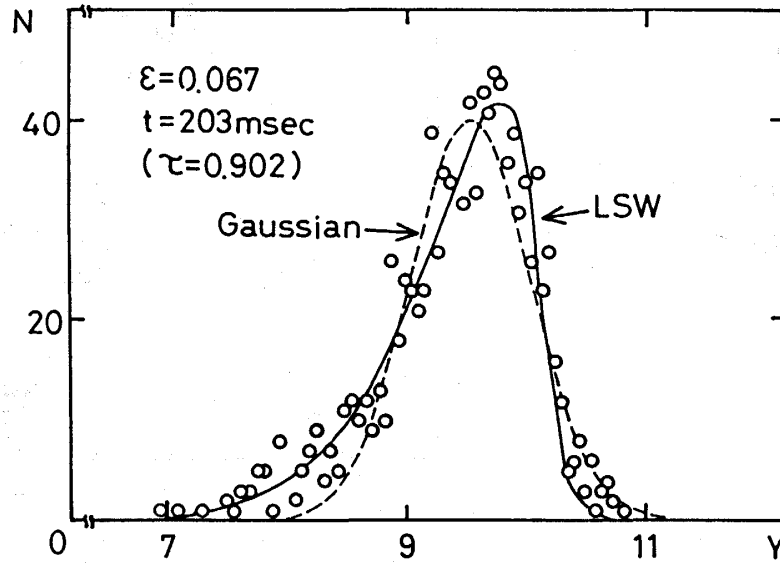
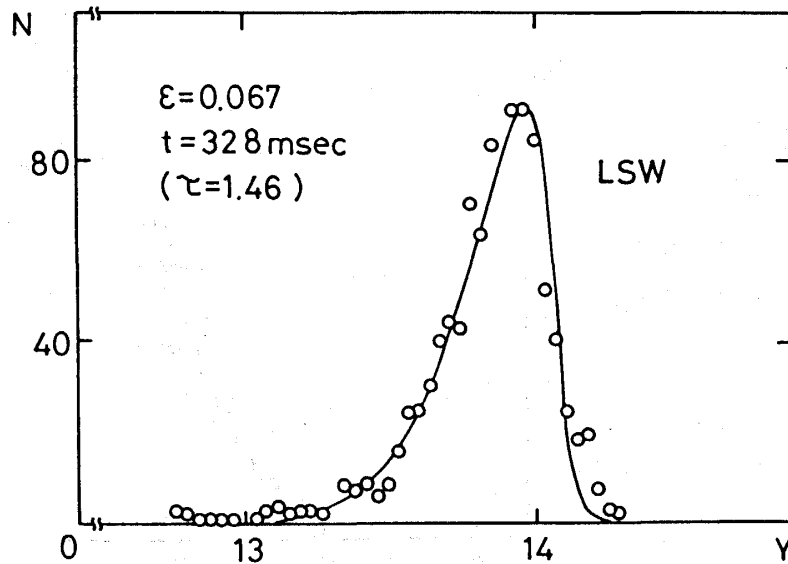


図 4 (d)

$t = 328 \text{ msec}$
 $(\tau = 1.46)$

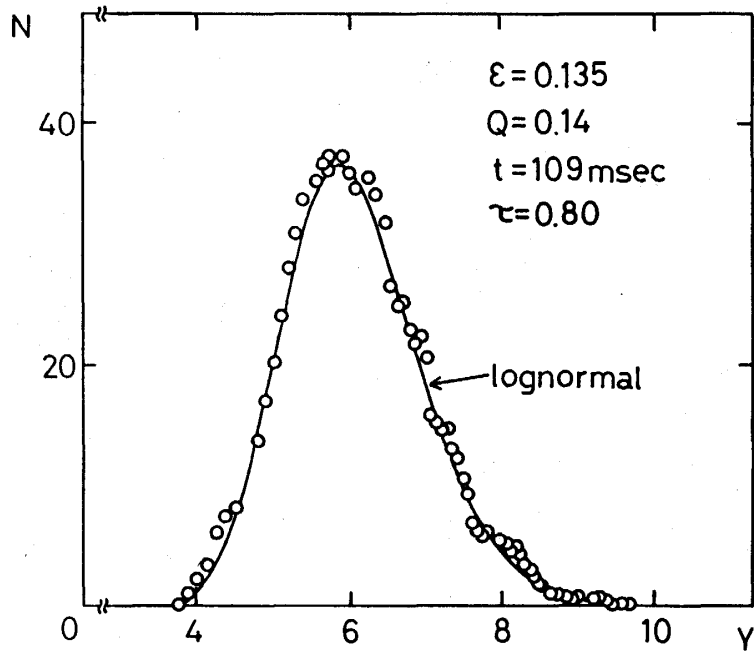


甲斐晶一

り、過飽和度 ϵ に近い)が、巨視的要素(秩序)の間の安定性(例えば、生成核の間の安定性)はまだであり、巨視的モード間の相互作用が t_m から始まるものと考えられる。すなわち、 $t > t_m$ では、過飽和溶液のオストワルド成熟期、あるいはスピノダル後期のような領域に入るものと推測される。したがってこの領域では、以前の報告でも述べたように、空間的な不均一構造間のモード選択の領域にあたり、終領域の間でそれが終わるのではないと思われる。長距離の巨視秩序間の相互作用が支配的になるといふ、この考えが正しいならば、拡散律速に従うLSW分布がよく一致することも、あながち奇妙とは思えない。また、外挿推定を印加すると、初期に対数正規分布型分布となることは、直接揺動間の反応動力学が成長を支配している、かつ、そこにカステードプロセスのような機構を含んで

図5. $Q=0.14$ の場合の揺動の分布

(a) $t=109\text{msec}$
(実線は対数正規分布)



(b) $t=141\text{msec}$
($\tau=1.03$)
(実線はGaussian分布, $\sigma_q=1.823$)

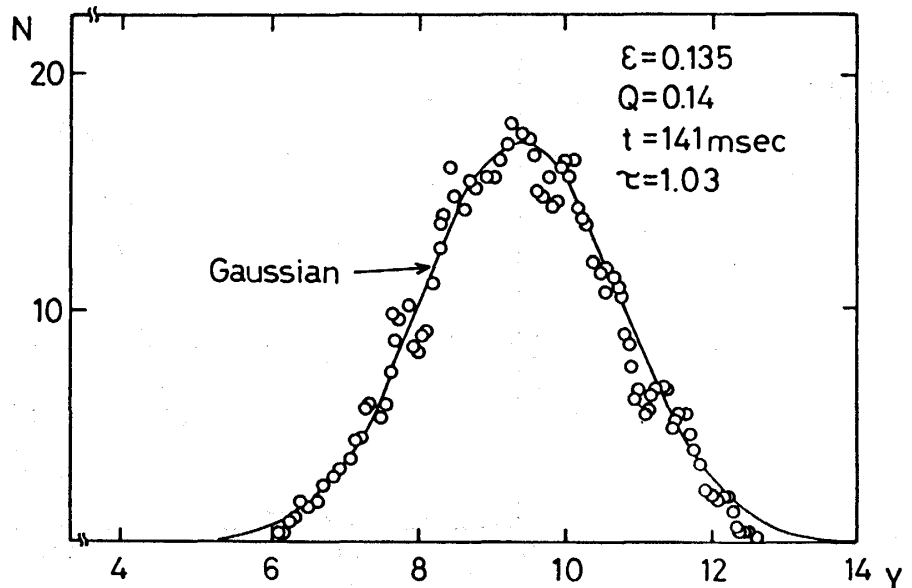
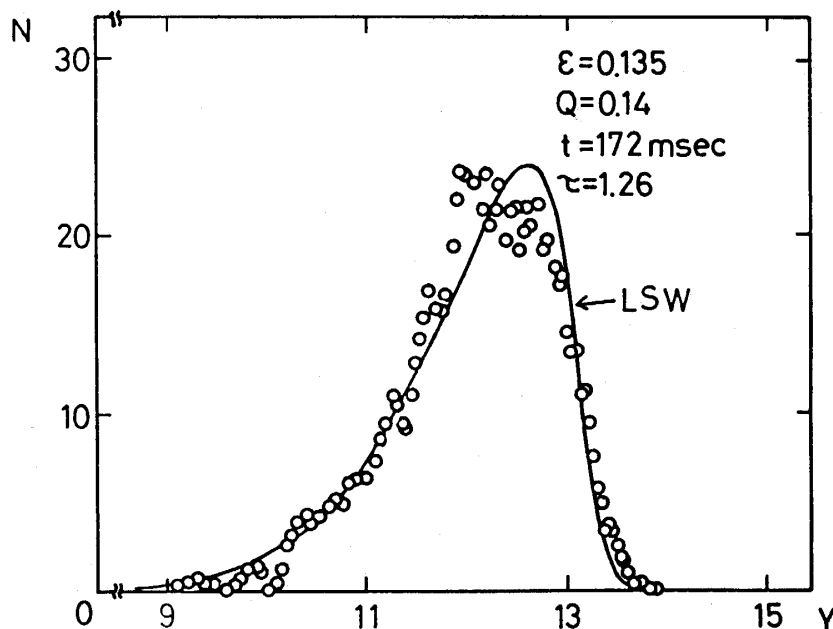


図5(c)

$t = 172 \text{ msec}$
($\tau = 1.26$)



いることを示す。さらに、始めから雑音が印加されているということは、初期に揺動密度が高く、揺動の拡散は必要なく、したがってその反応速度のみによって成長が支配されていることになる。しかし、終期にはすべて成長に喰われて、必要とする巨視要素の揺動の密度は薄くなり、拡散律速-LSW型へと移っていく。このように考えると、分布の時間変化に対する説明は双方とも矛盾なくつなげられているように思える。

§4. おわりに

本稿では、特に分布の移り変わりを多分散の結晶成長との類似性から議論したが、物理的に妥当か否か不明である。しかし、核生成やスピナル分解のような現象は、本来微視的なTDGL型方程式の不安定性から発生し、安定相(例えばドロレット)の発生の後にこれらの安定相向の長距離相関が重要となる終領域となり、ここではダイナミクスの性質が異なってくる。この点から本現象との強い相似性があるように思える。ともかく、実験結果からは、分散の最大になる時間(t_m)を境にして、 $t > t_m$ の終領域と $t < t_m$ の初領域とは系内のダイナミクス、揺動の性質が質的に異なることはまちがいないといえる。このような分布関数の時間変化が、直接的あるいは(2)式の確率微分方程式の解から導かれるか、あるいは上記のように新しいスローダイナミクスが必要であるのかについては、今後の問題である。

参考文献

- 1) 例えば直流では, N. Hijikuro, Prog. Theor. Phys. 54 (1975) 592
- 2) A. Schenzle and H. Brand, Phys. Rev. A20 (1979) 1628
- 3) 甲斐昌一・平川一美, 物性研究 41 (1983) 514

甲斐昌一

- 4) M. Suzuki, *Prog. Theor. Phys.* 56 (1976) 77, *ibid* 56 (1976) 477, *ibid* 57 (1977) 380.
- 5) M. Kahlweit, *Adv. Colloid Inter. Sci.* 5 (1975) 1.