

Aggregation in ferrofluid is a particularly interesting example with considerable scientific and practical importance.

In this paper the limited aggregation of oriented anisotropic particles is investigated using computer simulations. Figure 1 below shows patterns formed linear rods in the 512×512 square lattice. Initially 8000 particles are distributed and the average cluster size is 20.19 and diffusion constant is assumed to be proportional to s^{-1} . Figures 2(a) and 2(b) show patterns formed linear rods in 3-dimensional cubic lattice (128^3), where 10,000 particles are distributed initially and average cluster size is 40. Figures 2(top two) are intersected by a plane including the external field and Figs. 2 bottom right and left are a projection onto and an intersection by a plane respectively that is perpendicular to the external field. The aggregation process is well described by the cluster-size distribution function $N_s(t)$, which is the number of clusters of size s at time t .

By the dynamical scaling theory the time dependent cluster-size distribution can be represented by the scaling form $N_s(t) = s^{-2} f(s/S(t))$ where $S(t)$ is the mean cluster size. At high particle densities a crossover from two (or three) dimensional behavior to that that is characteristic of a one dimensional system is found.

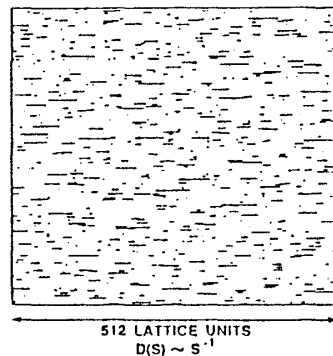


Fig. 1

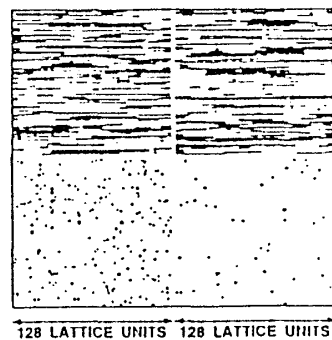


Fig. 2

18. 液晶の秩序化過程に於けるパターン形成

名大・工 長屋智之, 折原宏, 石橋善弘

§ 1. はじめに

Allen-Cahn によって理論的に研究された非保存系界面の運動¹⁾は, Cu_3Au や Ni_3Mn などの秩序-無秩序転移をする合金を急冷する実験^{2, 3)}により X線などを使って観測することができるが, 折原らによって考案された TNセル (Twisted Nematic cell) を使った液晶の急冷実験⁴⁾

では、界面の運動（この場合は液晶中に現れるディスクリネーション）を偏光顕微鏡により実空間、リアルタイムで簡単に観測することができる。ここで、TNセルというのは2枚のガラス板にネマティック液晶をサンドイッチ状にはさむ形に作製してあり、液晶に接する上下のガラス板にはラビング処理が施してあり、ガラス面で液晶分子がラビング処理の方向に一樣に揃えられているセルである。上下のガラス板

のラビング方向のなす角度を θ とすると、

$\theta = 90^\circ$ に選んで作製したTNセル（直交TNセル）を液晶の等方相の温度からネマチック相に急冷すると、液晶分子はセルの上下方向に右 90° ねじれた状態と左 90° ねじれた状態が存在し、同じエネルギー状態をもつ2つの領域の境界に、

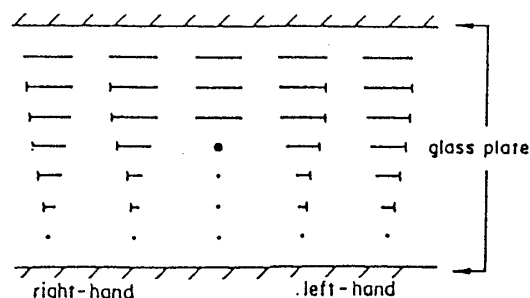


図1 TNセルの構造（模式図）

$S = 1/2$ のディスクリネーションが出現する。図1にTNセルの断面を模式的に示してある。液晶分子は棒状に記してあり、その端に付けてある縦線はその分子の端が紙面より手前にあるとする。上のガラス面では液晶分子は紙面に平行に揃っていて、下では垂直に揃っている。図1の左側では液晶分子が上下方向に対して左方向に 90° ねじれていて、右側では右方向に 90° ねじれている。2つの領域の境界にディスクリネーション（黒丸）が現れる。

この系に於ては、ディスクリネーションは非保存2次元系の1次元界面と考えられ、右 90° ねじれと左 90° ねじれはエネルギーが等しく縮退している。ディスクリネーションの運動方程式は

$$v = \Gamma \kappa \quad (1)$$

であり⁵⁾ v はディスクリネーションの法線速度、 κ は曲率、 Γ は運動係数である。この系でのディスクリネーションの時間発展には動的スケールリング則が観測されており⁴⁾ その相関関数は太田 - Jasnow - 川崎によって導かれた u -場理論の結果⁶⁾ とよく一致することが報告されている。

今回我々は、ラビング方向のなす角度 θ を 90° からずらしたTNセル（非直交TNセル）についての実験結果を報告する。尚、実験系は $\theta = 90^\circ$ の時⁴⁾と同じである。

§ 2. 非直交TNセルに於けるディスクリネーションの運動

θ を 90° からずらした非直交TNセルを急冷すると、 θ -ねじれと $(\pi - \theta)$ -ねじれの状態が

出現する。図2(a)は θ -ねじれの状態を表し(b)は $(\pi-\theta)$ -ねじれの状態を表している。セル内の液晶分子の静的配向の等方位角線を直交TNセル $\theta=90^\circ$ と非直交TNセルの一例として $\theta=70^\circ$ の場合についてそれぞれ図3(a)(b)に示した。 $\theta=90^\circ$ の直交TNセルの運動方程式は(1)式で表されており、ディスクリネーションの速度はその位置での曲率に比例しており、ディスクリネーションの張力のみがディスクリネーションを動かす駆動力であった。これに対し、非直交TNセルの場合には、 θ -ねじれの状態と $(\pi-\theta)$ -ねじれの状態にエネルギー差が存在するので、ディスクリネーションには θ ねじれの領域が広がり $(\pi-\theta)$ -ねじれの領域が少なくなる方向にディスクリネーションが移動しようとする力も現れ、(1)式の右辺にその効果による項が付け加わることになる。この様な考察から、非直交TNセルに於けるディスクリネーションの運動方程式は、

$$\frac{dR}{dt} = -\frac{\Gamma}{R} \mp D\varepsilon \quad (3)$$

となる⁷⁾。但し、 $\varepsilon = \frac{\pi}{2} - \theta$ 、 R は曲率半径 ($R = \frac{1}{\kappa}$)、 D は運動係数、また、 $v \equiv (dR/dt)$ である。

§ 3. 実験結果と考察

(2)式右辺の第2項のために、非直交TNセルを急冷したときに現れるディスクリネーションのパターンは、直交TNセルの場合のパターンとは違った様子を示す。図4に $\theta=90^\circ$ 、 80° 、

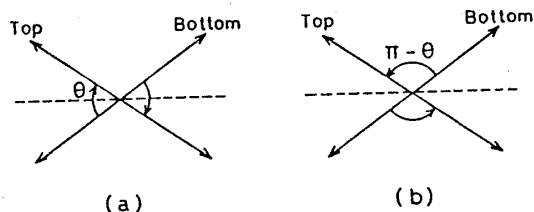


図2 非直交TNセル内の液晶分子のねじれ
(a) θ -ねじれ (b) $(\pi-\theta)$ -ねじれ

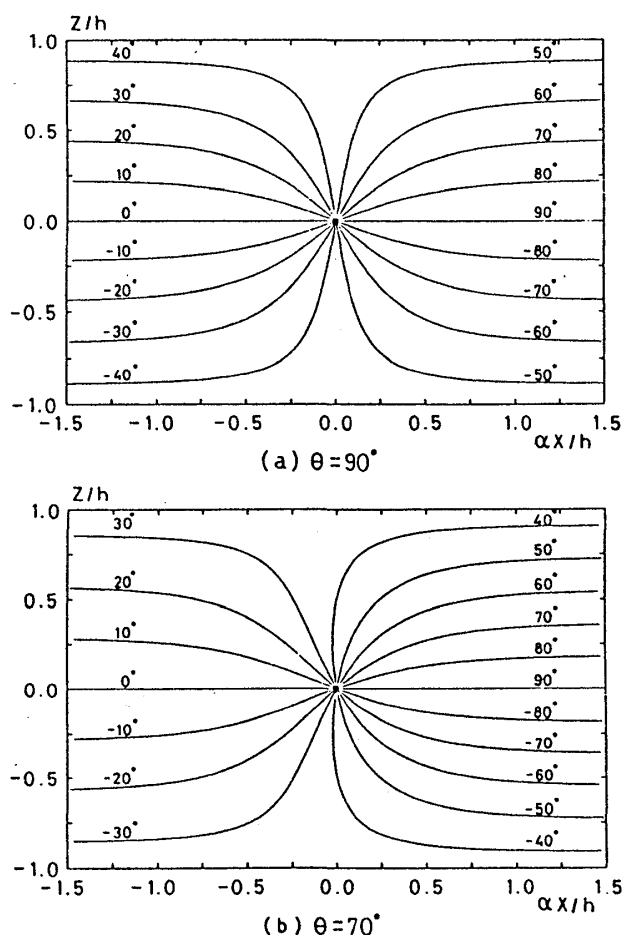


図3 液晶分子の等方位角線 (a)直交TNセル (b)非直交TNセル $\theta=70^\circ$

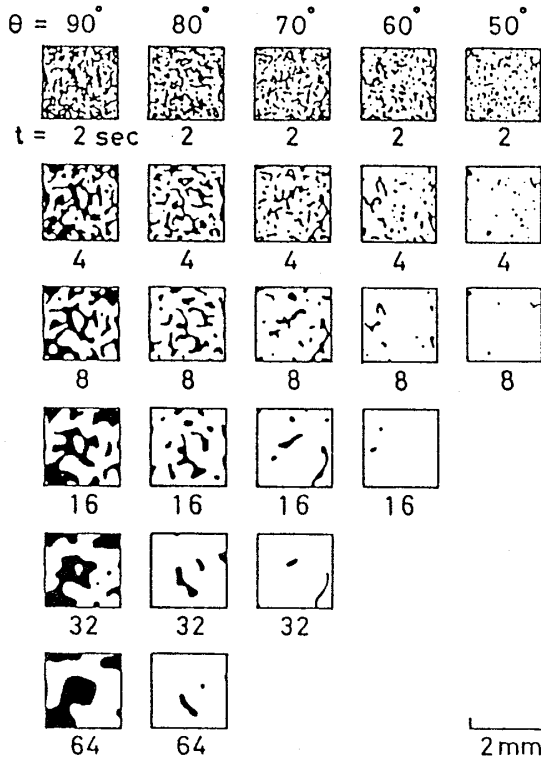


図4 TNセル急冷後における2つの領域の時間変化。白い領域は θ -ねじれの状態, 黒い領域は $(\pi-\theta)$ -ねじれの状態, 境界がディスクリネーションに対応する。

70°, 60°, 50°のTNセルの急冷後の時間変化を示してある。白い領域は θ -ねじれの状態, 黒い領域は $(\pi-\theta)$ -ねじれの状態, 境界がディスクリネーションに対応する。直交TNセル($\theta = 90^\circ$)では2つの領域が時間に対してほぼ一定の割合で存在しているのに対して, 非直交TNセル($\theta = 80^\circ, 70^\circ, 60^\circ, 50^\circ$)では $(\pi-\theta)$ -ねじれの領域は時間と共に小さくなり, 消滅してしまう。その傾向は, θ の90°からのずれ, 即ち ε が大きいほど著しくなる。この様子を定量的に表したのが図5と図6であり, 図5は2つの領域の面積比 $A(t)$ の時間変化, 図6は単位長さ当たりのディスクリネーションの長さ $L(t)$ の

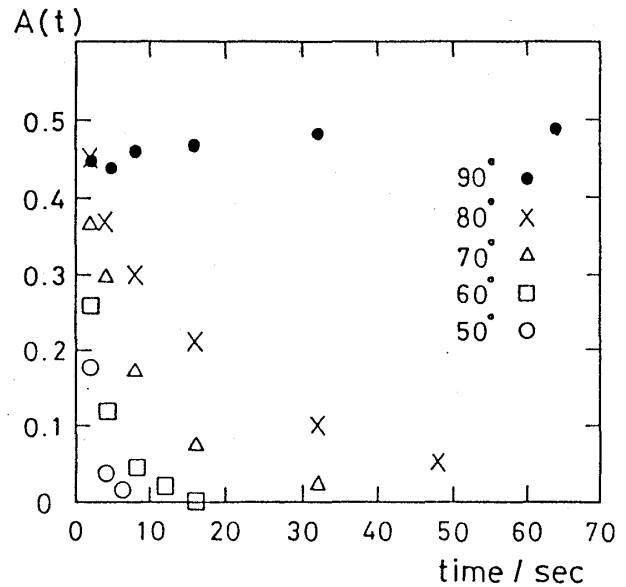


図5 2つの領域の面積比の時間変化

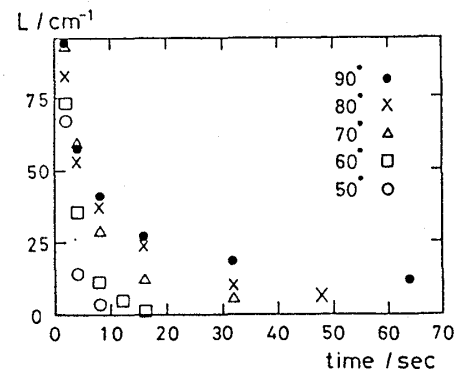


図6 単位面積当たりのディスクリネーションの総長 L の時間変化

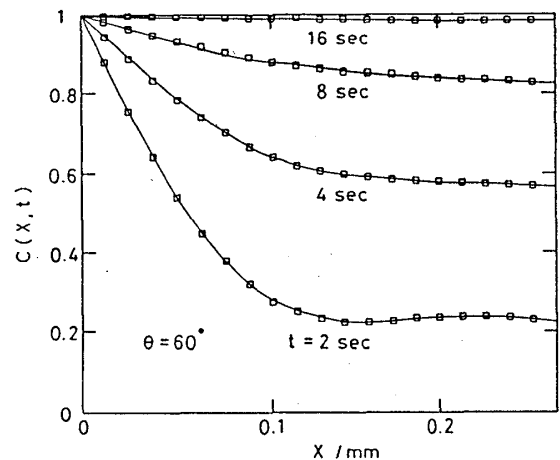


図7 $\theta = 60^\circ$ の非直交TNセルにおける相関関数の各時刻での空間変化

時間変化を示している。

また、直交TNセルでは動的スケーリング則が成り立っていたが、非直交TNセルでは図4から予測されるように成り立たなくなる。図7に $\theta = 60^\circ$ のセルに対する空間相関関数の時間変化を示してあるが、 $\theta = 90^\circ$ の時のグラフ⁴⁾と違って図7の横軸をどのようにスケールしようと一本の曲線にはならないことがわかる。

しかし、次のような方法で空間と時間をスケールすることにより、色々な非直交TNセルの間に共通した性質のパターンがあることが判った。それは、特徴的な長さ $l \equiv \Gamma/D\varepsilon$ [cm]と特徴的な時間 $\tau \equiv \Gamma/(D\varepsilon)^2$ [sec]を導入することにより、(2)式を Γ と $D\varepsilon$ をあらわに含まない無次元の形に書き直すことができ、

$$\frac{d\tilde{R}}{d\tilde{t}} = -\frac{1}{\tilde{R}} \mp 1 \quad (3)$$

となる。ここで $\tilde{R} \equiv R/l$ 、 $\tilde{t} \equiv t/\tau$ である。この様な量により、全てのスケールされた量を Γ と $D\varepsilon$ に依存しない形にすることができる。各量の次元を考慮して

$$\tilde{L}(\tilde{t}) = L(t)l \quad (4)$$

$$\tilde{A}(\tilde{t}) = A(t) \quad (5)$$

$$\tilde{C}(\tilde{x}, \tilde{t}) = C(x, t) \quad (6)$$

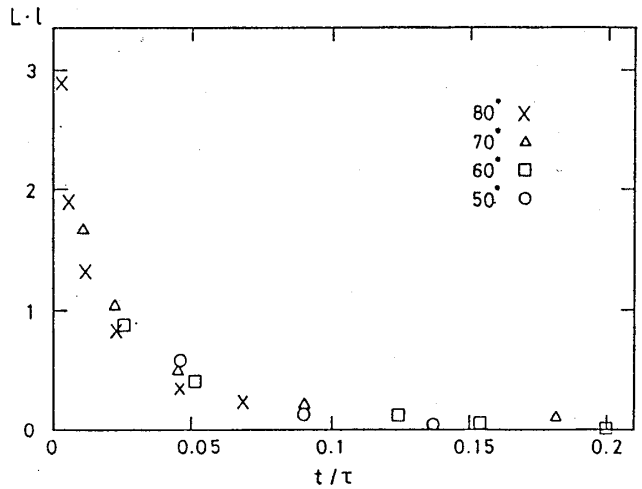


図8 特徴的な長さ $\times$ 単位面積当りのディスクリネーションの総長 L のスケールされた時間依存性

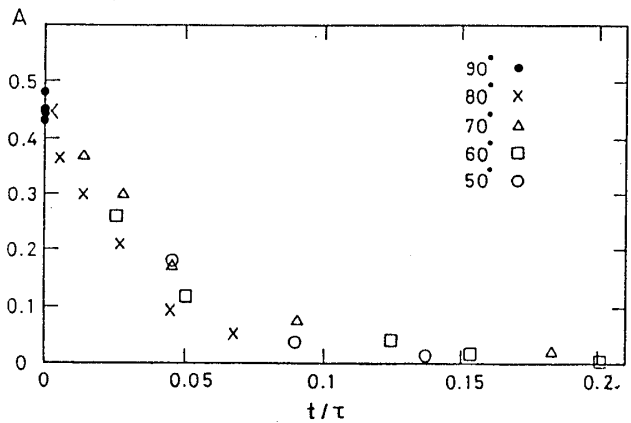


図9 2つの領域の面積比のスケールされた時間依存性

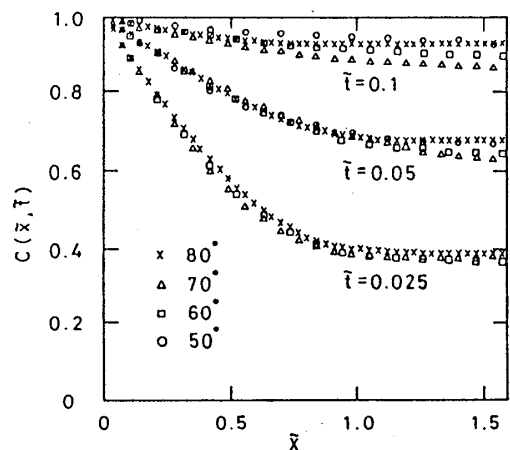


図10. スケールされた時刻におけるスケールされた空間での相関関数。

ここで $\tilde{x} = x/l$ であり, $\tilde{L}(\tilde{t})$, $\tilde{A}(\tilde{t})$, $\tilde{C}(\tilde{x}, \tilde{t})$ は Γ と $D\varepsilon$ に依存しない。(4)~(6)式を確かめるために, 図8に Ll 対 t/τ , 図9に A 対 t/τ を実験データを使ってプロットした。どちらも同じ一つの曲線にのっていることが判る。同様にして相関関数も空間と時間を l と τ でスケールしてプロットしてみた。図10は3つの異なったスケールされた時間での相関関数を, 空間をスケールしてプロットしてある。図10より, 同じスケールされた時間においては各非直交TNセルは統計的に同じ構造をしていることが判る。

この様に, 非直交TNセルでは動的スケーリング則が存在しないが, 図10に現れているようなスケーリング則が存在していることが判った。

これまでの議論はディスクリネーションの運動方程式のみを基にしていたが, さらにディスクリネーションの初期分布をも考慮にいれなければならない。界面の時間発展に対する初期分布の影響は豊木・本田⁸⁾によって研究されている。

一般的には初期分布において特徴的な長さ l 以外の長さのスケールが存在すれば, 今回我々が観察した様なスケーリング則は存在しない。つまりスケーリング則が存在するのは, 唯一つの特徴的な長さ l のみが存在するか, 又は何も存在しないかである。これらの点を明確にするために, 初期分布による界面の時間発展に対する影響を解明するための実験を現在計画している。

References

- 1) S. M. Allen and J. W. Cahn: Acta. Metall. **27** (1979) 1085.
- 2) T. Hashimoto, K. Nishimura and Y. Takeuchi: J. Phys. Soc. Jpn. **45** (1978) 1127.
- 3) S. Nishimura, Y. Noda and Y. Yamada: Solid State Commum. **44** (1982) 1487.
- 4) H. Orihara and Y. Ishibashi: J. Phys. Soc. Jpn. **55** (1986) 2151.
- 5) J. A. Geurst, A. M. J. Spruijt and C. J. Gerritsma: J. Phys. (France) **36** (1975) 653.
- 6) T. Ohta, D. Jasnow and K. Kawasaki: Phys. Rev. Lett. **49** (1982) 1223.
- 7) T. Nagaya, H. Orihara and Y. Ishibashi: J. Phys. Soc. Jpn. **56** (1987) 1898.
- 8) H. Toyoki and K. Honda: Phys. Rev. **B33** (1986) 385.