

液晶の電気対流系における abnormal rolls 不安定性と欠陥格子

九州大学大学院工学研究院 及川典子(Noriko Oikawa), 日高芳樹(Yoshiki Hidaka),
甲斐昌一(Shoichi Kai)

Faculty of Engineering, Kyushu University

1. はじめに

結晶中の格子欠陥などで見られるように, 欠陥は一般に不規則に配置する. ところが, 欠陥が周期的に配列した構造をつくることがある. その例として, 第二種超伝導体の磁束格子 (Abrikosov Lattice) や, smectic 液晶の Twist Grain Boundary (TGB) Phase がある[1]. 超伝導現象は, 超伝導状態を表す複素オーダー・パラメーター (波動関数) ψ を使った Ginzburg-Landau (G-L) 方程式によって記述され, Abrikosov Lattice における磁束は, $|\psi|^2 = 0$ となる点欠陥に相当する. 一方, TGB Phase では smectic 液晶の層周期とコレステリックのねじれ周期との競合により歪みが局在化して 1 次元的な周期をもつ. この TGB Phase も, 複素振幅をオーダー・パラメーターとする 1 次元の G-L 方程式から導くことができ, Abrikosov Lattice との類似性をもつ [2].

一方, 非平衡散逸系でも, 例えば, 対流ロールの臨界モードを複素オーダー・パラメーターとして表すことにより, その時間発展を時間依存型の G-L (TDGL) 方程式で記述することができる[3]. それによれば, Eckhaus 不安定性と呼ばれる欠陥の周期的な不安定現象が観測される. しかし, この Eckhaus 不安定性に伴う周期欠陥は, 他の安定状態への過渡現象として現れ, 定常的に存在しない.

ところが, 液晶電気対流系において「欠陥格子 (Defect Lattice)」と呼ばれる図 1 のような周期欠陥構造がある. 欠陥格子では対流周期パターンに埋め込まれた欠陥が格子状に周期的に並んでいる. この欠陥格子に関しては, 後で見るようにリミットサイクルやカオスなどの時間振動と密接な関連があり, 通常の G-L 方程式で論じることができない.

この欠陥格子は以前から発見されていたが, その形成メカニズムは解明されていなかった. 最近, 液晶電気対流系の研究において, 定常的な場であると考えられてきた液晶の配向秩序が実際には動的に変化し, パターンの形成に深く関与していることがわかってきた. そのような新しい展開から, 未解明だった問題のいくつかが明らかになってきている[4]. 今回われわれも, その新展開

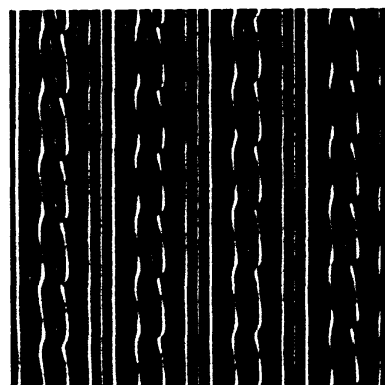


図1 対流構造に現れる欠陥格子. 偏光顕微鏡による写真.

を念頭において別の視点で欠陥格子を観測し、その形成メカニズムを議論する。

2. 実験

本実験では、ネマチック液晶としてMBBA (4'-methoxy-benzilidene-4-n-butyl-aniline) を用い、試料導電率を制御するために0.02wt%のTBAB (tetra-n-butyle-ammonium bromide) をドープした。ITOガラスにポリビニルアルコールを用いて表面を処理し、初期条件をplanar配向にさせている。電極間距離 d は23.4[μm]、電極の面積は1 $\times$ 1[cm^2]である。この試料を温度制御された試料観測容器に入れ、30.00 $\pm$ 0.03 $^{\circ}\text{C}$ で実験を行った。directorと垂直な方向の誘電率と導電率は、それぞれ $\epsilon_{\perp} = 4.7$, $\sigma_{\perp} = 3.2 \times 10^{-7} \Omega^{-1}\text{m}^{-1}$ であった。

この液晶サンプル・セルを偏光顕微鏡で観察した。偏光顕微鏡にはCCDカメラ (SONY XC-75) を取り付け、観察画像を画像取込ボード (Scion Corporation LG-3) を通してコンピュータ (Apple PowerMacintosh 8100/80AV) にデジタル・データとして取り込み、解析を行った。解析には「NIH Image」と自作ソフトウェアを用いた。

以下では、液晶のdirector ($\mathbf{n}$) の初期方向を x 軸、電場印加の方向を z 軸にとる。あるしきい値以上の電圧を印加すると、「Carr-Helfrich効果」[5]によって対流が発生し、 xy 面内でストライプ・パターンとして観測される。一般にこの効果は、 xz 面内でのdirectorの配向の揺らぎによって引き起こされるため、対流状態でのdirectorの xy 面への射影とストライプ・パターンの波数ベクトルは平行で、どちらも x 方向である。

3. 結果及び考察

3-1. 欠陥格子の形成過程

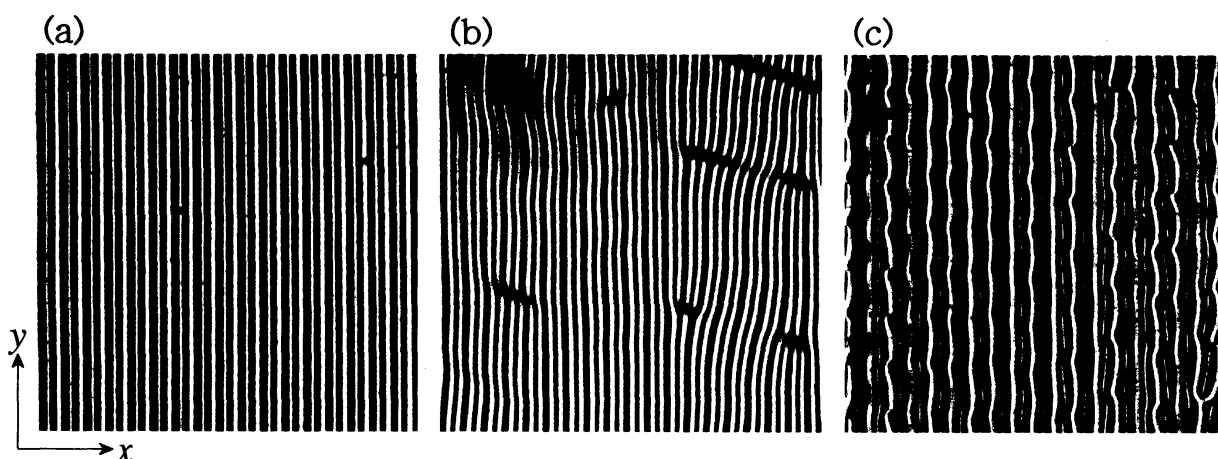


図2 欠陥格子の形成過程。

- (a) $\epsilon = 0.10$. 静止安定な対流ロールパターン。
- (b) $\epsilon = 0.35$. cage effect が働いている欠陥乱流。
- (c) $\epsilon = 0.52$. 欠陥格子。

電圧上昇に対する欠陥格子の形成過程を図2に示した。以下では、コントロール・パラメーターを対流発生の閾値電圧で規格化した電圧 $\varepsilon = (V^2 - V_c^2) / V_c^2$ で表示する。 $\varepsilon = 0.1$ (a) では、静止安定な対流構造が見られるが、 $\varepsilon = 0.35$ (b) では、欠陥が不規則に生成消滅を繰り返す欠陥乱流となる。この状態からさらに ε を上昇させると、欠陥格子 (c) が形成される。

欠陥格子は、ある閾値周波数 f_{DL} より高い周波数領域で観測される。本実験では f_{DL} はおよそ 1400 [Hz] であった。 $f < f_{DL}$ と $f > f_{DL}$ とでは、欠陥乱流の状態に大きな違いが観測される (図3)。図3でわかるように $f < f_{DL}$ では、欠陥は横に幅広くグライドするが、 $f > f_{DL}$ では、グライドはある領域に束縛されている。このように欠陥が見えない壁によって閉じこめられているように見えることから、これを「cage effect」と呼ぶ。欠陥格子の形成にはこのcage effect が働いていることが重要である。

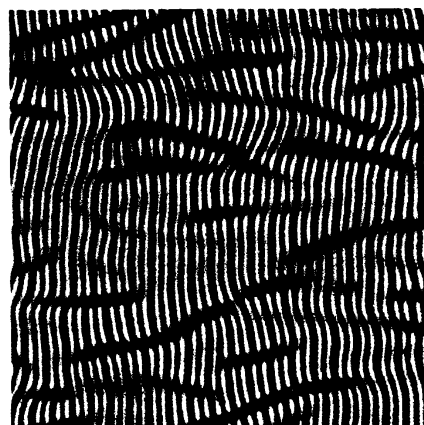


図3 通常の欠陥乱流 ($f < f_{DL}$)。欠陥は不規則に生成・消滅を繰り返す。欠陥のグライドは横に幅広く生じている。

3-2. abnormal rolls と cage effect

次にこのcage effect がどのようにして起こるかについて述べる。以下では、対流パターンの xy 面内での波数ベクトルを $\mathbf{q}$, director の xy 面への射影を $\mathbf{C}$ と表す。上述のように、planar 系における対流発生点では、通常 $\mathbf{q} \parallel \mathbf{C} \parallel x$ である。このような対流パターンを normal rolls という。ところが、 $\mathbf{q} \parallel x$ のまま、 $\mathbf{C}$ が $\mathbf{q}$ に対してある角度をもっている場合があり、これを「abnormal rolls」という。図4に、normal rolls と abnormal rolls の $\mathbf{q}$ と $\mathbf{C}$ の関係を模式的に示した。この abnormal rolls は次のようなメカニズムによって実現される。Carr-Helfrich 効果は $\mathbf{q} \parallel \mathbf{C}$ のときに最も効率的に働く[6]。この効果を E 1 とする。一方、対流発生点から ε を上昇させることで流速が次第に速くなっていくと、

液晶の粘性と弾性の異方性が強く効くようになり、 $\mathbf{C}$ と $\mathbf{q}$ が平行から外れるような効果が生じる[1]。つまり $\mathbf{C}$ は、 $\mathbf{q}$ に対して + または - の方向に回転する。この効果を E 2 とすると、このとき $\mathbf{C}$ は、E 1 と E 2 という相反する二つの効果が釣り合うところで、 $\mathbf{q}$ に対してある角度をもって定常となる。これが ab-

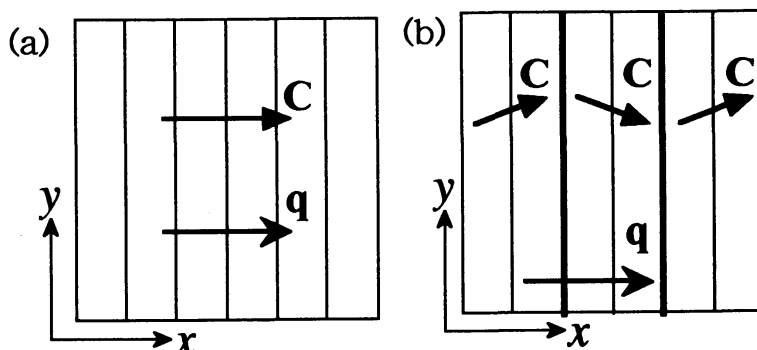


図4 対流の波数ベクトル $\mathbf{q}$ と director $\mathbf{C}$ 。

(a) normal rolls ($\mathbf{q} \parallel \mathbf{C}$)。

(b) abnormal rolls ($\mathbf{q} \nparallel \mathbf{C}$)。

normal rolls の状態であり、 ε を上昇させると、ある ε においてnormal rollsからabnormal rolls への転移が生じる [7]. abnormal rolls では、 $\mathbf{C}$ が $\mathbf{q}$ に対して+方向に回転している領域と、-方向に回転している領域からなるドメイン構造をもつ。

abnormal rollsはdirectorの配向構造に生じる不安定性であり対流モードの不安定性ではないので、対流パターンとしてはnormal rollsと同じパターンが観測される。このため対流パターンに注目していたこれまでの研究では、normal rollsとabnormal rollsを区別することができなかった [7-9].

一般に、 $\mathbf{C}$ の回転はクロスニコルの下で観測できる。しかしplanar系では、ガラス板上で $\mathbf{n} \parallel x$ という境界条件のため、 $\mathbf{C}$ はバルクでのみ回転する。従って、セルの下半分と上半分では $\mathbf{C}$ は逆向きにねじれており、 $\mathbf{C}$ の正味の回転はゼロとなっている。このような状態の系に偏光が入射しても、 $\mathbf{C}$ の回転による影響は系を透過する間に打ち消されてしまうため、従来の手法ではこの回転を観測することはできない。そこで図5に示したように、クロスニコルに加えて1/4波長板を入れた光学系が必要である。この方法を使うと、 $\mathbf{C}$ の回転量を定量的に得るのは難しいが、+回転の領域と-回転の領域を図6のように黒白の明暗として可視化できる [10].

この方法による、欠陥格子の形成過程を調べた結果を図7に示す。まず、幅の広いドメインが x 方向に交互に現れる。図5 (b) を考慮することにより、この明暗のドメインに対応させた $\mathbf{C}$ の方向を、図7の下にバーで示してある。 ε の上昇とともにドメインの幅が狭く均一になって、その周期性が増す。このドメインの幅 λ_{AR} の ε 依存性を図8に示す。このドメインが形成されるメカニズムについて

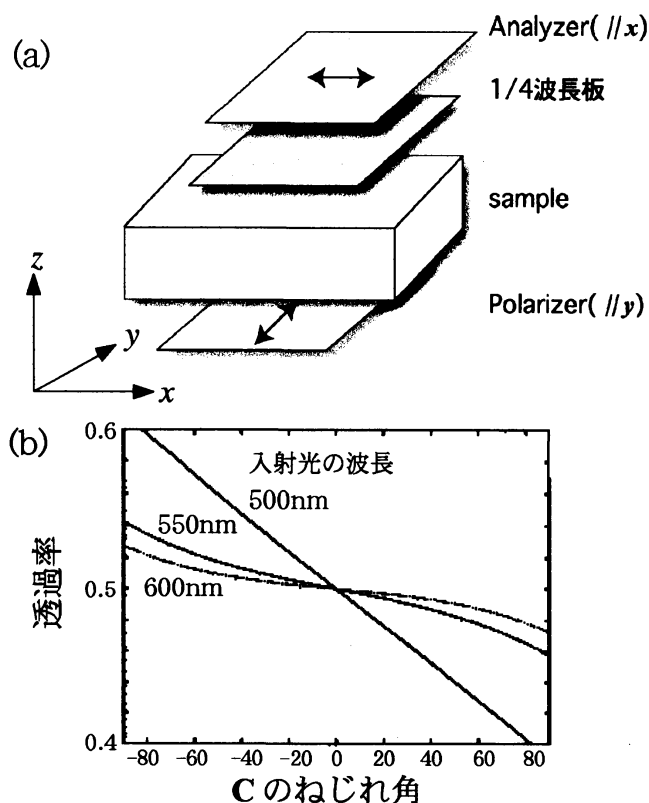


図5 planar系におけるdirector $\mathbf{C}$ の向きの検出法 [10].

(a) 光学系の模式図。

(b) (a) により得られる光の透過率の、 $\mathbf{C}$ の x 軸からの角度に対する依存性。

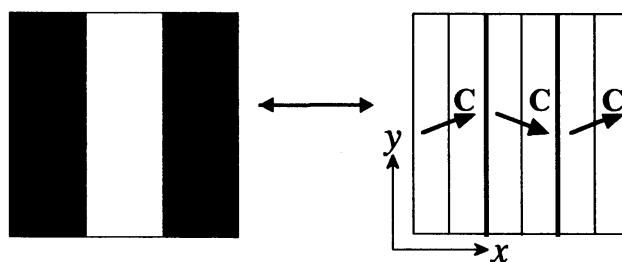


図6 abnormal rolls のドメイン. abnormal rolls の状態となっているとき、図5 (a) の光学系を用いることにより明暗のドメインが観測される。左図のようなドメインが観測されたとき $\mathbf{C}$ が右図のような構造をもつことを示す。

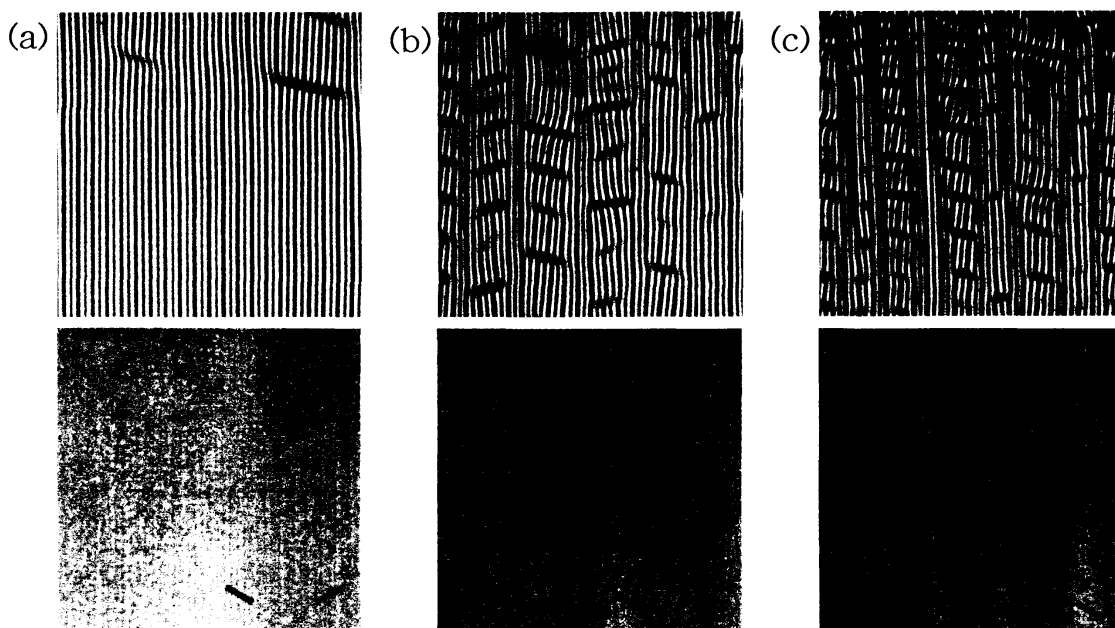


図7 欠陥格子形成過程における roll 構造 (写真上) と director 構造 (写真下).
 (a) $\varepsilon = 0.22$. abnormal rolls が形成されている (写真下). 形成初期のドメインは横に幅広く生じる.
 (b) $\varepsilon = 0.39$. 欠陥のグライド (写真上) が abnormal rolls のドメイン (写真下) で止められている.
 (c) $\varepsilon = 0.54$. 欠陥格子が形成され始めている (写真上). このとき abnormal rolls のドメイン (写真下) の幅は狭くなり周期的になっている.

は, 現在まだ明らかではない[11].

図7によると, 欠陥のグライド領域の端は abnormal rolls ドメインの境界に対応している. つまり, cage effect は abnormal rolls ドメインの存在によって生じていることがわかる. 一方, ドメインの境界付近では対流の振幅の変化が観測される. これは, $\mathbf{C}$ の方向が急激に変化する境界上では, Carr-Helfrich 効果が弱められるためと考えられる. 同時に, 配向の特異性をもつ欠陥がドメインの境界で止まるのは, この急激な $\mathbf{C}$ の配向変化のためと考えられる.

以上のことから欠陥の運動を図9の模式図を使って考察する. 通常, 欠陥が生成されると, その欠陥は位相勾配に沿ってグライドし, トポロジカル・チャージの符号が異なる欠陥と互いに引き合って対消滅する. それは図9 (a) のようなポ

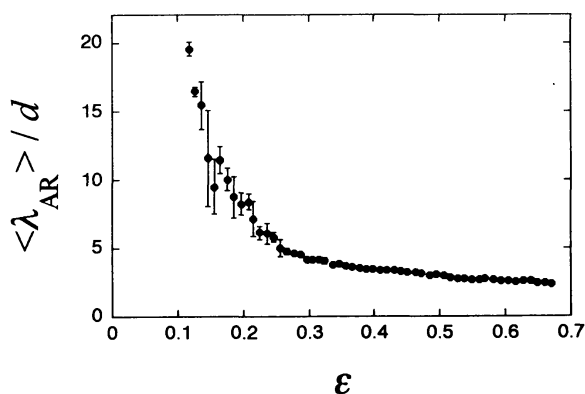


図8 ε に対する abnormal rolls の幅 λ_{AR} . λ_{AR} は欠陥の x 方向の幅に相当しており, データはセルの厚さ d で規格化をしている. $\varepsilon \leq 0.3$ では, ε の上昇とともにドメインの幅が急激に狭くなるが, $\varepsilon \geq 0.3$ においてはその変化は小さくなっている.

テンシャルで説明される。しかし、欠陥格子を形成している欠陥に対しては、abnormal rollsのドメインの境界が高いポテンシャル障壁の役目を果たしており、欠陥は x 方向に動くことができない(図9 (b), 図9 (c))。そのため、欠陥は隣にある異符号の欠陥と対消滅せずにポテンシャル障壁の内側に定常に存在する。

3-3. 欠陥の生成

前述したようにabnormal rollsは、E 1効果と、E 2効果がつりあうことによって実現されている。そこから ε をさらに上昇させると、E 2の効果が強くなり、 C は q の方向から外れるように、より大きく回転させられる。その一方で、ロールはE 1効果を高めるためにdirectorに対して平行な波数ベクトルを得ようとする。このようなE 1とE 2の間の競合は、directorと波数ベクトルの間の「frustration」を誘起させる[5]。

C が回転して生じたfrustrationを解消するために q は C に追従して回転しようとする。 q の回転は、欠陥のグライドによって効率的に行われるので、frustrationは欠陥の生成とグライドを導くことになる。このことは次に述べる実験から明らかである。実験

で用いた液晶には、磁場(H)に対して $H \parallel C$ となる性質があるため、 xy 面に平行な磁場を与えると C を磁場の方向へ向けさせることができる。そのことを利用して C を回転させて強制的にfrustrationを与え、その後の q の様子を追ったのが図10である。もとのロールの波数ベクトルを q_1 とする。 C が回転すると q_1 はそれに追従して回転し、最終的には $q_2 \parallel C$ であるような q_2 になるが、その過程において欠陥の生成およびグライドが起こる。また、そのグライドのラインは図10 (b)のように空間的に周期的に生じる。この実験から、 C の回転に追従して q_1 が回転しようとする際、欠陥のグライ

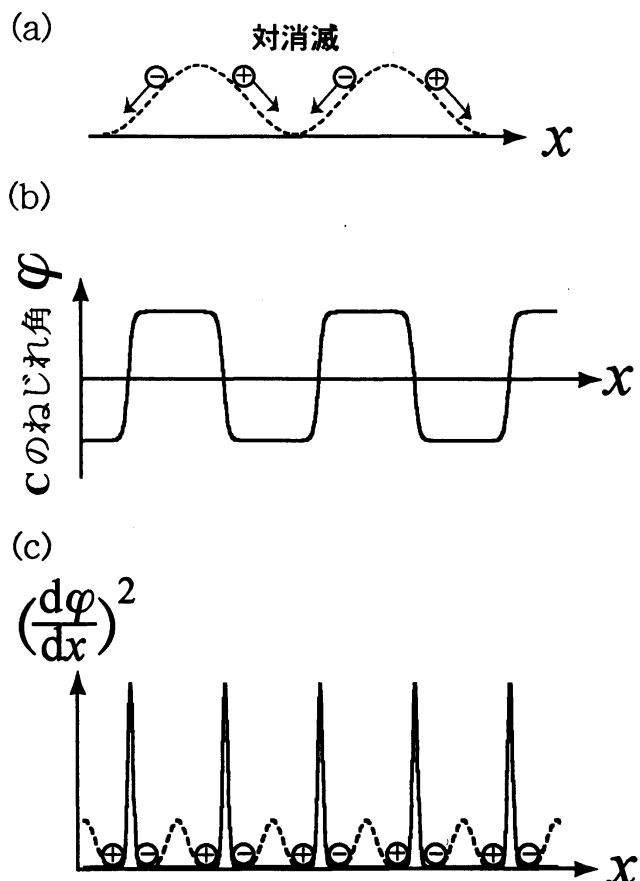


図9 欠陥の運動。

(a) 通常の欠陥乱流における欠陥の運動。欠陥は生成されると符号の異なる欠陥に近づき、対消滅する。それは欠陥がポテンシャルの谷へ向けて運動する様子として表現できる。

(b) abnormal rollsのドメイン構造。簡単化して1次元の模式図で表したもの。

(c) abnormal rollsのドメインの境界部。 $(d\varphi/dx)^2$ は弾性的なエネルギーに関係しており、これを欠陥に対するポテンシャル障壁と見なすことができる。

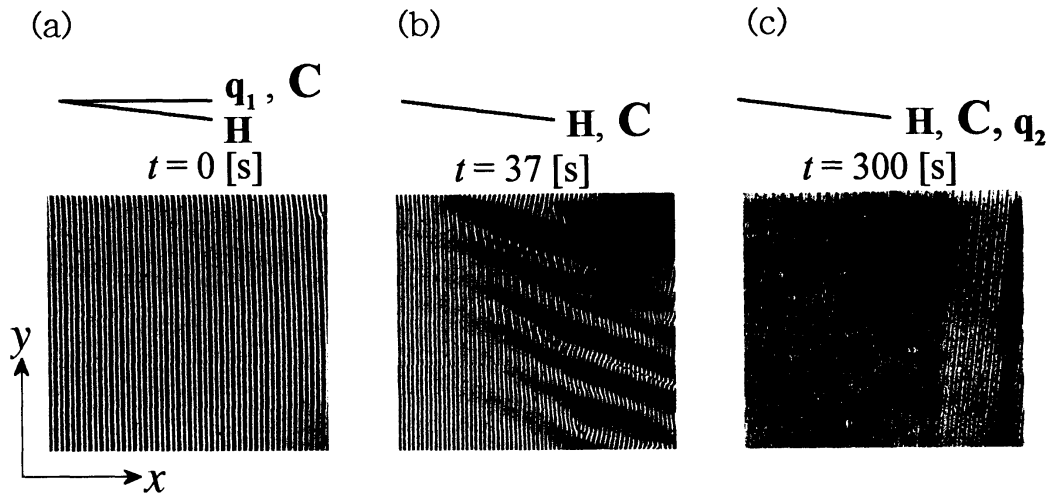


図10 磁場による director (C) の回転と roll の波数ベクトルの回転.

(a) normal rolls ($q_1 \parallel C$) の状態に対して, 磁場 (H) を, x 方向から角度をずらした方向に与える. 与える磁場 (H) の方向を写真の上部にバーで示す. この, 磁場を印加した時間を $t = 0$ [s] とすると, director (C) は比較的速やかに回転し, $H \parallel C$ となる.

(b) C が回転したことにより, q_1 は遅れて C に追随する. この $t = 37$ [s] は, q_1 が最終状態である q_2 へ移ろうとする過渡過程であり, q_1 と q_2 が共存している. 欠陥のグライドによって q_1 の回転が効率的に行われており, その際, 欠陥のグライドは, 自発的に, ほぼ $q_2 - q_1$ となるような周期をもって生じる.

(c) $t = 300$ [s]. 全系の波数ベクトルは, ほぼ $q_2 \parallel C \parallel H$ であるような q_2 になり, これ以降変化は見られない.

ドが生じ, それは波数ベクトルがほぼ $q_2 - q_1$ となるような周期を自発的につくることが明らかになった.

欠陥格子も, C の回転および欠陥の y 方向の周期性を伴っていることから, 欠陥格子における欠陥はこの frustration によって生じているのではないかと考えられる. そこで次に, 欠陥が生成されていない状態 (abnormal rolls) と, 欠陥が生成された状態 (欠陥格子) における director の回転の大きさを確認するために, それぞれの状態における director のドメイン構造の平均の明るさを測定した. その結果, 明るいドメインの明るさ (I_-) と暗いドメインの明るさ (I_+) の比は, 欠陥非生成の状態で $I_- / I_+ = 1.04$, 欠陥生成の状態で $I_- / I_+ = 1.08$ であった. 図5 (b) からその比が大きいほどそれぞれのドメインでの回転角が大きいと言えるので, 欠陥が生成されている方が C の回転が大きいことがわかった. この結果から, 欠陥格子の欠陥は C の回転が大きくなったため q が C に追随しようとする過程で生成されていることが示唆される.

しかしながら, 欠陥格子の場合 abnormal rolls によるドメイン構造が形成されており, 1つのドメインの内部では C は空間的に一様に回転しているが, 各ドメインごとにそれは異なっていて, 欠陥のグライドが個別に起こる. その際, グライドは先に述

べたように cage effect によってドメインの境界で止められてしまうため、 $\mathbf{q}$ は自由に回転できず、最終的に $\mathbf{q} \parallel \mathbf{C}$ となるような一つのモードに落ちつくことができない。そこで、欠陥格子の2次元スペクトルを見てみると、図11のようになっている。欠陥格子には normal rolls モード A と abnormal rolls モードの他に、波数ベクトルに y 成分を含む secondary モード B が存在していることがわかる。この A と B の2つのモードは、図10 (b) の、 $\mathbf{q}_1$ と $\mathbf{q}_2$ にそれぞれ相当しているが、本来、過渡的に現れる2つのモードが、ここではドメイン境界の存在によりグラインドが完了しないために共存しているものと考えられる。

次に、 ε に対する欠陥の y 方向の幅 λ_y の変化を測定し、図10の $\langle \lambda_{AR} \rangle$ との比を図12に示す。 $\varepsilon \geq 0.3$ では、 λ_{AR} と λ_y の比が一定に保たれているが、この領域では欠陥格子が完成している。

3-4. 欠陥格子における時間振動

ε の大きい領域では、図13に示すように欠陥が生成・消滅を繰り返す振動が見られる。欠陥が生成されているときは、図13の2次元スペクトルと同様に normal rolls モードと secondary モード B という2つのモードが共存しており、また、欠陥が消えているときは normal rolls モードである A のみとなっている。つまりこの状態では「A と B が共存している状態」と、「A のみが存在している状態」との間で振動している。

一方、欠陥格子パターンが形成されている

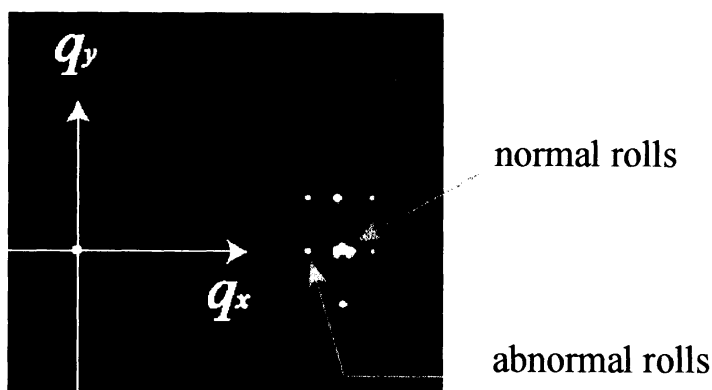


図11 欠陥格子 (図1) の2次元スペクトル. normal rolls と abnormal rolls の他に、 y 成分をもつモードが存在している。

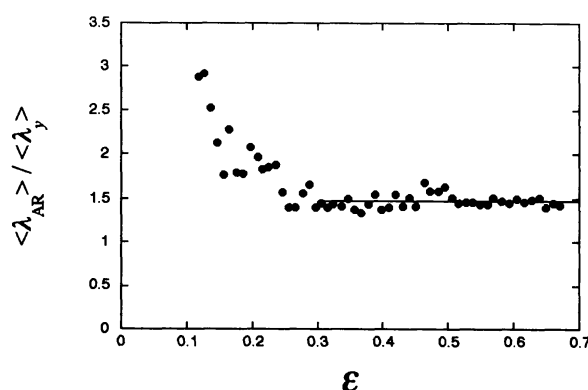


図12 図9における $\langle \lambda_{AR} \rangle$ と欠陥の方向の間隔の平均 $\langle \lambda_y \rangle$ の比. 欠陥格子が形成される $\varepsilon \geq 0.3$ では、比が一定に保たれる。

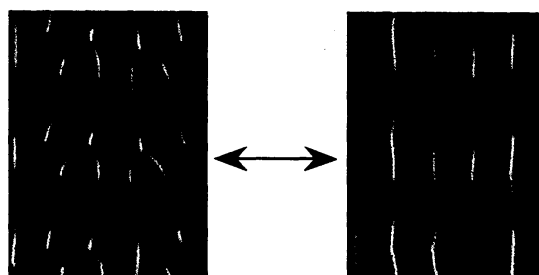


図13 欠陥格子に見られるロールの振動. 欠陥の生成と消滅を繰り返している。



図14 欠陥格子と、そのdirector構造に見られる finestructure.

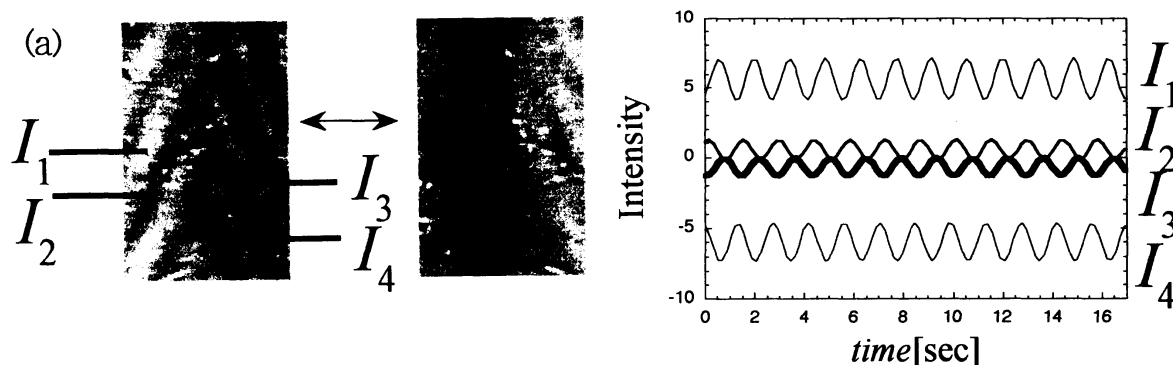


図15 振動している欠陥格子の director 構造に見られる振動.

(a) 実際に観察される director 構造の明るさの振動. 4つの領域 ($I_1 \sim I_4$) に分かれており, それぞれの領域の明るさが変化している.

(b) それぞれの領域の明るさの時間変化. 画像をデジタル処理して得られた時系列に, 平滑化処理をしている.

ときにCの構造をより詳細に観察すると, abnormal rollsの暗い領域(+回転のドメイン)と明るい領域(-回転のドメイン)は, それぞれ, さらに細かい明るい領域と暗い領域とに分かれている(図14). 欠陥格子の欠陥が振動するとき, Cの構造ではそれぞれの領域の明るさが図15のように振動している. そしてCの構造に見られる明るさの振動は, Cの回転の振動に相当していることから, directorの回転が図16のように推測される. このdirectorの回転の振動数はロールの振動数と一致しており, その値は0.7[Hz]であった.

2つのモードの存在によるこのロールとdirectorの振動のメカニズムについて, 図17に示す模式図を用いて考察をしよう. directorがAの方向へ近づくとAにE1の効果が働くためAの振幅が大きくなるが, Aの振幅が大きくなるとAにE2の効果が働くようになりdirectorはAから押し返される. 押し返されたdirectorはBの方向に近づき, 今度はBに対して同様のことが生じる. このように, Aの振幅とBの振幅の周期的な変化に対応して, directorはAとBの間で回転振動を繰り返すことになる.

対流モードの他にもう一つモードが存在する

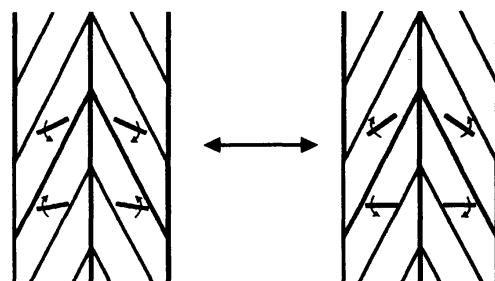


図16 振動している欠陥格子における director の回転. abnormal rollsの finestructureの明るさの振動(図16(b))と, 像の明るさとCの回転の関係(図6(b))とを対応させることによって推測される directorの回転の様子を, 模式的に表しており, 左図と右図の間で時間的に振動する.

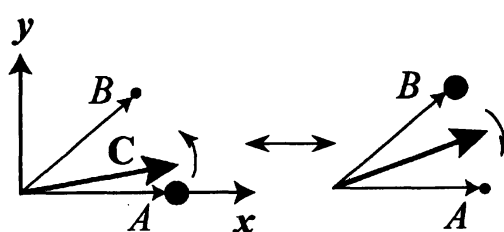


図17 欠陥格子の振動のメカニズム. 黒丸は振幅の大きさを表す.

と、ロールの振幅と director の回転が、 ε に対して Hopf 分岐を示すという理論的報告がある[5]。我々は、上で説明したように欠陥格子の振動にこの理論を応用することができるのではないかと考えている。しかしながら、この Hopf 分岐がどのようなパラメーターの変化に対して生じるかは、実験ではまだ明確になっていない。なお、C の構造のそれぞれの領域に見られる局所的な振動に関しては、この理論では予測されていない。

4. まとめ

欠陥格子は欠陥が、 x 方向、 y 方向に周期的に配列した構造をもつ。この周期的な欠陥列は、 x 方向には abnormal rolls 不安定性による cage effect でグライドが制限されることによって生じ、また y 方向には abnormal rolls 不安定性が発達してロールの波数ベクトルが director に追従しようとする結果実現されることが明らかになった。すなわち、欠陥格子は abnormal rolls という director 構造と、流れがつくるロール構造との相互作用によって形成される。そして、欠陥格子のロール振動（欠陥の生成 $\leftrightarrow$ 消滅）は、director の回転の振動も伴っている。

一方、初めに述べた TGB Phase に見られる周期的な欠陥は、分子のもつ層状構造とコレステリックのねじれ構造という 2 つの長さスケールの競合により実現されている。ここには、下層の液晶秩序を場としたフラストレーションの遠距離相互作用が自発的に生じているという点で、液晶対流の欠陥格子と類似している。

しかしながら、欠陥格子が平衡系の構造と異なるのは定常的な時間変動が生じることである。振動が生じているとき、液晶分子の配列秩序はもはやパターンを作り出す単なる場ではなく、それ自体がダイナミクスを示すようになる。つまり、場が構造をつくり、そのつくられた構造が場のダイナミクスを励起させるのである。このような、場のダイナミクスによるパターン形成は、散逸構造の特徴であり、複数場の相互作用によって変化する系であれば共通して生じる現象である。

参考文献

- [1] S. Chandrasekhar: 液晶の物理学 (1995).
- [2] T. C. Lubensky: *Physica A*, **220**, 99-112 (1995).
- [3] A. C. Newell and J. A. Whitehead: *J. Fluid Mech.*, **38**, 279-303 (1969).
- [4] L. Kramer, A. Hertrich and W. Pesch: *Pattern Formation in Complex Dissipative Systems* (ed. S. Kai), 238 (1992), World Scientific.
- [5] 井村秀文, 岡野光治: 応用物理, **42**, 739 (1973).
- [6] E. Plaut and W. Pesch: *Phys. Rev. E*, **59**, 1747-1769 (1999).
- [7] J.-H. Huh, Y. Hidaka and S. Kai: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **68**, 1567-1577 (1999).
- [8] H. Richter, A. Buka and I. Rehberg: *Spatio-Temporal Patterns in Nonequilibrium Complex Systems* (ed. P. E. Cladis and P. Palffy-Muhoray), 343-352 (1995), Addison-Wesley.

- [9]E. Plaut, W.Decker, A. G. Rossberg, L. Kramer, W. Pesch, A. Belaidi and R. Ribotta:*Phys.Rev.Lett.*, **79**, 2367-2370(1997).
- [10]H. Amm, R. Stannarius and A. G. Rossberg:*Physica D*, **126**, 171-188(1999).
- [11]S. Komineas, H. Zhao and L. Kramer:preprint(2002).