平成２０年３月修了

博士（工学）学位論文

欠陥対消滅が誘起する液晶流動

Liquid Crystalline Flow Induced by Annihilation of a Pair of Defects

高知工科大学大学院　工学研究科　基盤工学専攻

黒岩　正寛

Masahiro Kuroiwa

目次

第1章　研究概要

1・1　研究背景　1

1・2　液晶　1

1・3　ネマティック液晶　4

1・4　液晶欠陥　4

1・5　液晶流動の理論　6

1・6　研究目的　7

1・7　本論文の構成　9

第2章　支配方程式および配向分布関数

2・1　基礎方程式　11

2・2　座標系　12

2・3　無次元化　13

2・2　配向分布関数　13

第3章　配向分布関数を用いた液晶単純せん断流の数値解析

3・1　研究背景および研究目的　16

3・2　基礎方程式および数値計算　16

3・3　初期値　18

3・4　計算結果および考察　19

3・5　結　言　29

第4章　欠陥対消滅が誘起する液晶流動の数値解析

4・1　研究背景および研究目的　30

4・2　基礎方程式および数値計算　30

4・3　計算結果および考察　32

4・4　結　言　57

第5章　欠陥対消滅が誘起する液晶流動の実験的測定
5・1　研究背景および研究目的 58
5・2　実験
5・2・1　実験装置 58
5・2・2　可視化 59
5・2・3　実験方法 60
5・2・4　解析方法 61
5・3　実験結果および考察 62
5・4　結　言 65

参考文献 66

付録 A　支配方程式の展開
A・1　はじめに 68
A・2　配向分布関数の時間発展方程式の展開 68
A・3　構成方程式および運動方程式の展開 74

謝辞 76

第1章　研究概要

1・1　研究背景

液晶は 1880 年代に発見された後，液晶の有する特性を解明し，応用すべく現在に至るまでに化学的，電磁気学的および光学的な研究が行われてきた[1]．現在，液晶は液晶の有する電気的特性（誘電率の異方性）を利用し液晶ディスプレイ（Liquid Crystal Display（LCD））として広く用いられている．また，高強度，高弾性率，寸法安定性および高耐熱性を利用し高強度繊維としても用いられている．しかしながら，現在の液晶の利用方法はこれら 2 通りに限定されていると言っても過言ではない．しかし，液体や固体と同様に「液晶」自体は物質の状態を表すことから，液晶の利用方法も液体や固体のように多岐にわたって然るべきであると考えられる．このような背景から液晶の新たな利用方法の開発が強く求められている．

液晶の利用方法は上記 2 通りに限定されていると記述したが，液晶について他の研究が行われていない訳ではない．例えば Leslie-Ericksen[2][3]は後述する低分子であるネマティック液晶の流体力学的特性を記述する構成方程式の定式化を行っており，Tsuji ら[4][5]や Chono ら[6]は液晶が流動する際の速度場と分子配向場の相互作用に関する研究を行っている．しかしながら，彼らが行った研究はあくまでも液晶の基礎的な研究に止まっており，液晶の新たな利用方法を開発するまでには至ってはいない．

1・2　液晶[1][7][8][9]

一般に，全ての物質は固体（結晶相），液体（等方相），そして気体（気相）の 3 種類の状態（相）を示すことが知られている．しかし，一部の物質にはこれら 3 態とは別に他の状態を示す物質がある．その状態の一つが液晶であり，液晶は固体と液体の中間に発現する．ここで，現在では液晶製品が広く普及したことから「液晶」という言葉が液晶製品自体または液晶状態を示す物質を暗に意味する傾向にある。しかし、「液晶」という言葉は液晶状態を意味することに注意するべきである．

次に図 1 を用いて液晶（液晶相）が固体（結晶相）と液体（等方相）の中間に発現する理由を説明する．図は液晶性物質（液晶状態を発現する物質）の結晶相，液晶相，および等方相における分子配向状態の例を示している．液晶性物質の分子は棒状，または

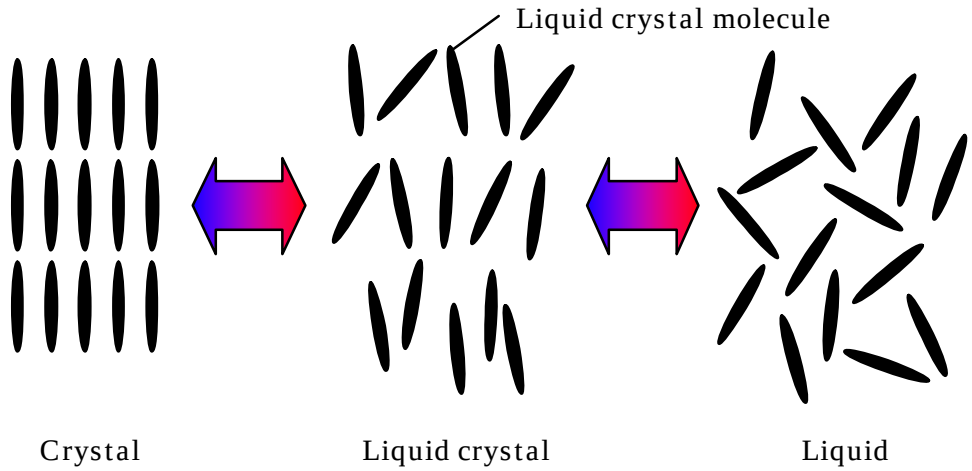
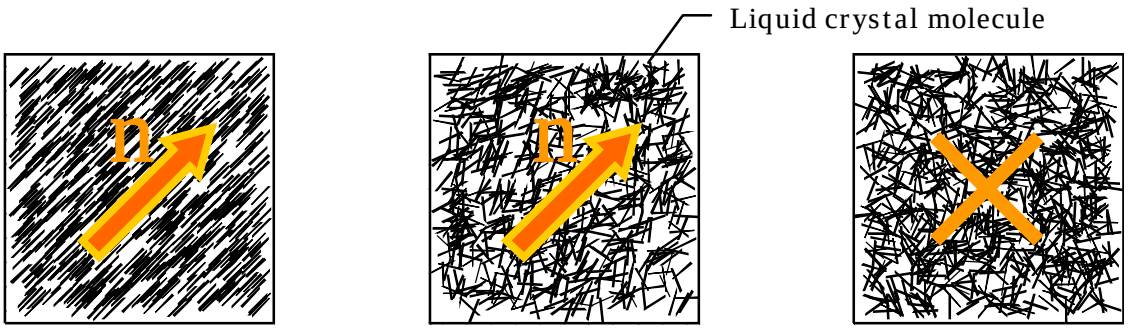


Fig.1 Relationship between each phase

円盤状の形状をしている．図は分子形状が棒状の場合であり，図中の細長い楕円が液晶分子である．これら分子形状のために分子の短軸方向と長軸方向といった分子の方向に関する秩序と分子の重心位置に関する秩序が考えられる．結晶相では分子の長軸方向，重心位置ともに完全に規則正しく配向している．そのため光学的異方性を有する．一方等方相の場合，分子の長軸方向，重心位置ともに規則性が無く完全にランダムに配向している．そのため流動性を有する．結晶相と等方相に対して，液晶相では分子の長軸方向はある程度の規則性を有しているが，分子の重心位置に関する規則性は有していない．そのため液晶は光学異方性と流動性の両性質を兼ね備えた状態であり，結晶相の有する光学的異方性と等方相の有する流動性を兼ね備えていることから両相の中間に発現する相であると言える．また液晶状態を有する流体は上記の理由により異方性流体とも呼ばれる．ここで液晶は棒状または円盤状の液晶分子の向きが流動と相互作用を有するために，液晶のダイナミクスを考える上で，流動中の液晶分子の配向状態（流動特性）を調べることが重要となる．しかし，液晶の流動挙動を扱うためには，通常の流体力学変数（速度および圧力）の他に，液晶分子の局所的な配向状態を連立して解析する必要がある．

図 1 で示したような分子配向状態を表す要素として 2 つのものが挙げられる．それが単位ベクトル **n** で表される配向方向（主配向方向）とスカラー S で表される配向秩序パラメータである．配向方向は局所的な液晶分子の平均的な方向を表し，ディレクタとも呼ばれる．配向秩序パラメータは局所的な液晶分子の揃い度合いを 0（ランダム配向）



(a) S =1　　(b) S =0.6　　(c) S =0

Fig.2 Director and orientational order parameter

～1（完全配向）で表すパラメータである．図 2 を用いて配向方向と配向秩序パラメータについて説明する．図は物理空間のある 1 点での分子配向状態の例を示しており，図中の線分は液晶分子である．まず図 2(a)は配向方向が図中の矢印のように表される例である．図から液晶分子が配向方向に対して完全に規則正しく配向していることが分かる．そのため配向秩序パラメータは S =1 となる．次に図 2(c)では液晶分子が完全にランダムに配向している．そのため配向方向を示すことができないので図中には×印を置いている．また配向秩序パラメータは S =0 となる．これらの中間の例として S =0.6 の場合を図 2(b)に示す．この場合液晶分子は矢印の方向に対してある程度の規則性をもって配向している．そのため配向方向は矢印の方向であると言える．

一般に，物質の状態は温度や圧力に依存して相（状態）が転移（変化）することが知られているように，液晶性物質も温度または液晶性物質自体の濃度に依存して相転移する．この相転移の原因により液晶は分類され，液晶性物質が温度の変化に依存して液晶状態を示す場合，その液晶は温度転移型液晶またはサーモトロピック液晶と呼ばれる．また液晶性物質が濃度の変化に依存して液晶状態を示す場合，その液晶は濃度転移型液晶またはリオトロピック液晶と呼ばれる．図 1 はサーモトロピック液晶の例であり，各相を結ぶ矢印は温度の加熱，冷却を示している．また液晶は構成分子の配向状態によりネマティック液晶，スメクティック液晶，そしてコレステリック液晶の 3 種類に大別される．ここで最も代表的な液晶の一例として低分子サーモトロピック型ネマティック液晶である *N*-(*p*-methoxybenzylidene)-*p*´-butyl-aniline（MBBA）を示す．図 3 は MBBA の化学構造である．また MBBA は結晶相から液晶相へは 295K，液晶相から等方相へは 320K で相転移することが一般的に知られている．

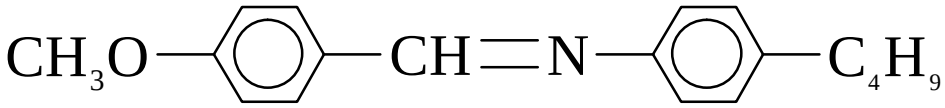


Fig.3 Chemical structure of MBBA

1・3　ネマティック液晶[1][7][8][9]

ネマティック液晶を構成する分子は配向方向に関する長距離秩序を有しているが，分子の重心位置に関する長距離秩序は有していない．そのため，液晶中では最も粘性が低く流動性が大きい．このことから，等方相に近い液晶であると言える．

一般に，液晶は電圧を印加すると印加された電圧の方向に対して液晶分子の配向方向が変化する電気的特性を有している．この電気的特性およびネマティック液晶の有する粘性率の低さから，ネマティック液晶は LCD に最も広く用いられている．

1・4　液晶欠陥[9]

ネマティック液晶を偏光顕微鏡下で観察すると，液晶分子が偏光方向に対して平行または垂直に配向している領域では暗視野に，±45°方向に配向している領域では明視野となり，他の方向に配向している領域ではグレーとなる．図 4 は MBBA の等方相から液晶相への相転移直後の写真であり，液晶特有のシュリーレン組織が観察されている．図中に黒色の帯状組織が交差する箇所（図中の○で示す箇所）がいくつか存在するが，これらは「液晶欠陥」または単

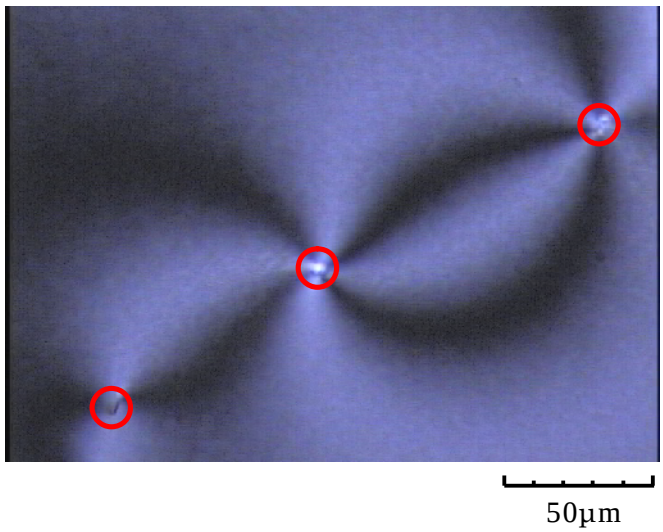
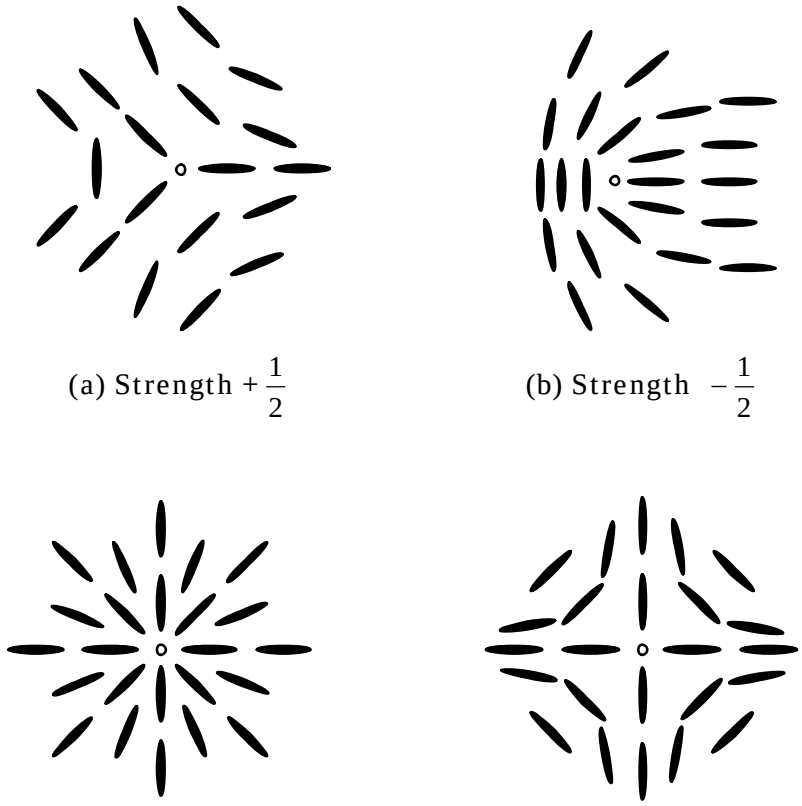


Fig.4 Liquid crystalline defect structures



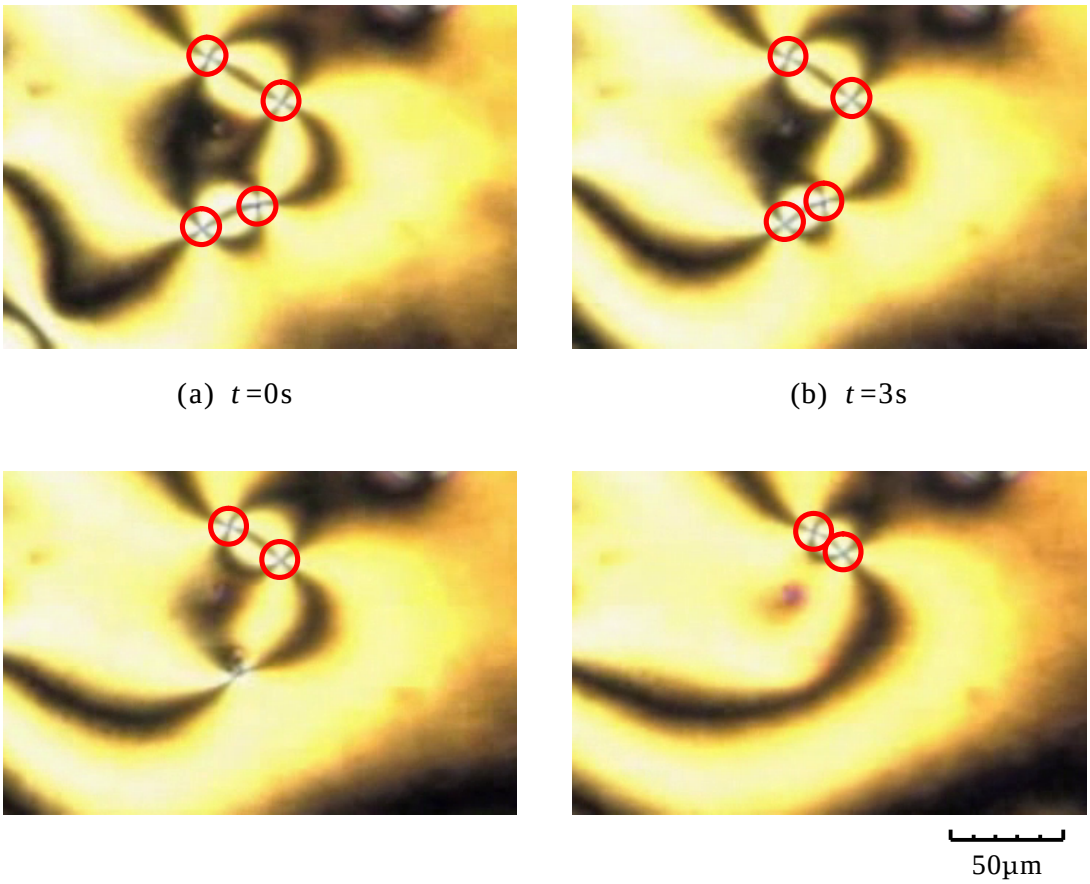
(a) Strength $+\frac{1}{2}$　　(b) Strength $-\frac{1}{2}$

(c) Strength $+1$　　(d) Strength -1

Fig.5 Molecular orientation configurations of defects

に「欠陥」と呼ばれ，ここを中心に分子配向場の空間的歪みが発生している．図 5(a)〜(d)は液晶欠陥の代表的配向状態であり，欠陥強度によって図のように表される．図中の細長い楕円は液晶分子，円は欠陥核である．欠陥核では配向方向が不連続に変化しており，ここは配向特異点となる．つまり欠陥核を中心として配向秩序パラメータが低くなっているため，熱エネルギーの印加が欠陥発生に繋がる．

液晶製品の製造工程において電場や磁場，流動および熱などの印加にともないしばしば液晶欠陥が発生し，これが液晶製品の生産性や製品性能の低下を引き起こす原因となっている．そのため液晶欠陥を除去または抑制するための研究[5]が行われた．一方，図 5(a)，(b)に示すような異なる分子配向（異符号の欠陥強度）をもつ液晶欠陥同士は互いに引き付け合い，最終的に消滅することが実験的に確認されている[9]．欠陥対消滅の様子を図 6 に示す．図は観測開始時間をt =0s とした場合のt =0〜9s におけるt =3s 間隔での偏光顕微鏡観測画像である．図中の◯は欠陥核を示す．この欠陥対消滅過程では分子の配向状態に変化が生じるため流動の誘起が予測される[6]．



(a) t =0s　(b) t =3s

(c) t =6s　(d) t =9s

Fig.6 Annihilation of a pair of defects

1・5　液晶流動の理論

液晶流動の構成方程式はいくつか提案されており，各々長短所を有している．主な理論を列挙すると以下となる．

- Transversely Isotropic Fluid（TIF）理論[10][11]
- Leslie-Ericksen（L-E）理論[2][3]
- 土井理論[12][13]
- Beris 理論[14]
- Tsuji-Rey 理論[4]
- 土井理論＋Marrucci-Greco ポテンシャル[15]

配向挙動を満足に記述するためには，分子間の長距離秩序効果，短距離秩序効果，および流動効果が織り込まれた理論が必要である．この観点から，流動効果のみの TIF 理論，長距離秩

序効果と流動効果の L-E 理論，短距離秩序効果と流動効果の土井理論は除外される．残り 3 種類の理論の中で Beris 理論と Tsuji-Rey 理論は配向状態を 2 階のテンソルで表現している．しかし 2 階テンソルによる構成方程式は，そのままでは液晶特有のせん断挙動であるタンブリング（tumbling）挙動やワギング（waging）挙動，アライニング（aligning）挙動に対応できず，物理的意味を有しないフィッティングパラメータを導入する必要があることが明らかにされている[16]．さらに応力の結果がかなり不満足であるため，既知の速度場の基で配向場のみを扱う場合には問題ないが，速度場を運動方程式から求める場合には適用が困難である．

土井理論に用いられている Maier-Saupe ポテンシャルは短距離秩序効果のみを有しているが，Marrucci らはこれを短距離秩序効果と長距離秩序効果の両者を有した形に拡張し[15]，土井理論の原型に適用した[17]．この新しい理論は配向分布関数で記述されていることから closure 近似と呼ばれる数学的近似（4 階のテンソルを 2 階のテンソルの積で近似する手法）は排除されており，上述のテンソル型方程式が有している問題点はない．近年，Feng ら[18]が応力式を提案し，液晶の構成方程式として完成されるに至った．

1・6　研究目的

液晶の新たな利用方法を開発する研究として，Chono ら[6]や Liu ら[19]は液晶に電場や磁場を印加し，配向方向を変化させることにより液晶流動を誘起させ，この液晶流動を液晶アクチュエータとして利用する研究を数値的，そして実験的に行っている．ここで流動発生の原理について図 7 を用いて説明する．図中の細長い楕円は液晶分子である．液晶に電場（電場強度 E）や磁場（磁場強度 H）を印加した場合，液晶は誘電率の異方性をもつため誘電率が正ならば液晶分子が印加された電場や磁場の方向に向く性質を有する．この性質を利用し図のように液晶分子に電場または磁場を印加すると液晶分子

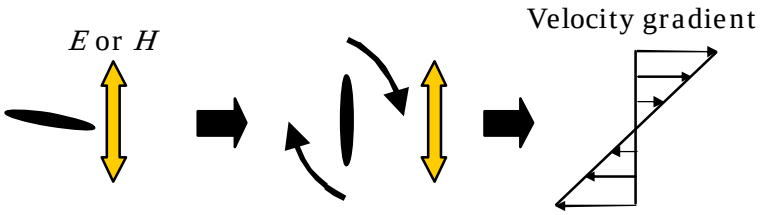
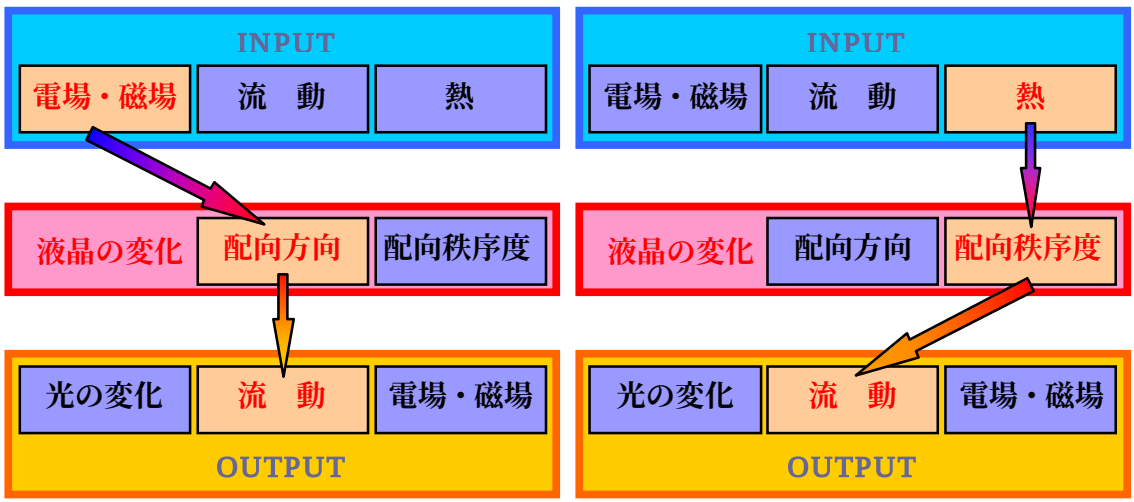


Fig.7 Generation of flow

は印加された電場や磁場の方向に再配向する．この際，液晶分子が回転運動をするため速度こう配（流動）が誘発されることが理論的および実験的に確認されている[6]．つまり，Chono らや Liu らは電気・磁気エネルギーを運動エネルギーに変換するためのデバイスとして液晶を利用している．この液晶アクチュエータは駆動電圧が数 V オーダーと低電圧で駆動させることができる．また液晶の有する流動性から大きさ，形状を自由に設定することができるため極小化を容易に行うことができ，構造をシンプルに設計できる．そのため従来では駆動させることのできなかったマイクロマシーンの開発が期待されている．

これに対して，本研究では Chono らとは異なるアプローチにより新たな液晶アクチュエータの開発を目指す．Chono らとの原理の違いを明確にするために Chono らの原理と本研究の原理を図 8 に示す．図 8 は液晶にある因子（電場・磁場，流動，熱）を与えた場合液晶にどのような変化が生じ，その結果どのように出力されるのかを簡単に図示したものである．上述したように，液晶に熱エネルギーが印加されることにより液晶欠陥が発生する．この液晶欠陥が対消滅する過程では分子配向状態が変化する，つまり液晶分子が回転運動をするため速度こう配（液晶流動）の誘起が予測される．従って任意の場所に人為的に液晶欠陥を発生させれば（欠陥核の液晶分子は不連続に配向しているため欠陥核を中心とした領域の液晶分子の揃い度合いは低く，等方性液体に近いため



(a) Principle of Chono et al. study　　(b) Principle of this study

Fig.8 Comparison of principle

熱エネルギーの印加が配向秩序パラメータを変化させ液晶欠陥の発生に繋がる）そこに必然的に液晶流動が誘起される．つまり液晶に熱エネルギーを印加し，液晶分子の配向秩序パラメータを変化させ液晶流動を誘起させることにより，熱エネルギーを運動エネルギーに変換する新しいタイプの液晶アクチュエータを開発することができる．そこで，本研究では欠陥対消滅が誘起する液晶流動を応用して，熱を用いた新しいタイプの液晶アクチュエータを開発することを目的とする．

そこで本研究では新たなマイクロアクチュエータを開発するにあたり，構成方程式として Feng らが提案した理論を，配向状態を表す理論として配向分布関数で記述された土井理論に Marrucci らが提案したポテンシャルを適用した理論を用いて，一対の液晶欠陥が対消滅する過程において誘起する液晶流動を数値的に確認するとともに，その大きさを実験的に確認する．Toth ら[20]は Beris 理論を用いて欠陥対消滅時の液晶流動について数値解析を行っている．しかし上述したように彼らが用いた Beris 理論は分子配向状態を 2 階のテンソルで記述しており，結果の信頼性は低い．また彼らはアクチュエータとしての応用を目指しておらず，液晶流動よりも液晶欠陥そのものの移動に主眼を置いている．

単純せん断流中における物理空間 1 点の配向分布関数を差分法で離散化した結果，多大な計算時間を要することが明らかにされている[16][21]．そこで Larson ら[22]は十分な計算精度を保ったまま解析時間の短縮を図るため，配向分布関数を球面調和関数の級数を用いて近似した．計算精度は流動条件（例えばせん断速度や温度などの計算パラメータ）に強く依存すると推察されるが計算パラメータと計算精度の関係は明らかにされていない．そこで，長距離秩序効果を有しない土井理論を基礎方程式として，配向分布関数を球面調和関数の級数で近似し，配向状態と必要とされる最小の展開項数の関係について明らかにする．得られた結果から液晶欠陥挙動の解析手法を確率した後，欠陥対消滅過程において誘起される液晶流動を理論的および実験的に予測・確認する．

1・6　本論文の構成

本論文は本章を含む全 5 章および付録 A から構成され，第 1 章では本研究の研究背景，液晶，液晶欠陥，および研究目的について記述した．第 2 章では本研究で用いた支配方程式および配向分布関数について記述する．第 3 章では配向状態と計算精度の関係について明らかにした後，第 4 章で欠陥対消滅過程において誘起される液晶流動を数値解析により明らかにする．

最後に第 5 章では欠陥対消滅過程において誘起される液晶流動を実験により確認する．また付録 A において支配方程式の展開を行う．

第2章　支配方程式および配向分布関数

2・1　基礎方程式

以下に本研究で用いる基礎方程式を示す.

非圧縮性流体を用いる場合連続の式，運動方程式は以下のように表される.

・　連続の式

$$\nabla \cdot \mathbf{v} = 0 \tag{1}$$

・　運動方程式

$$\rho \frac{D\mathbf{v}}{Dt} = -\nabla p + \nabla \cdot \boldsymbol{\tau} \tag{2}$$

式中の $\mathbf{v}$ は速度ベクトル，ρ は密度，t は時間，D/Dt は実質微分，p は圧力である.

また $\boldsymbol{\tau}$ は偏差応力テンソルであり，本研究では Feng らが提案した液晶特有の構成方程式である以下の式を用いる.

・　構成方程式

$$\begin{aligned}\boldsymbol{\tau} = 3ckT\Bigg[&\mathbf{S} + \frac{\boldsymbol{\delta}}{3} - U\left\{\mathbf{S}\cdot\mathbf{S} + \frac{\boldsymbol{\delta}}{3} - \left(\mathbf{S} + \frac{\boldsymbol{\delta}}{3}\right) : \langle \mathbf{uuuu} \rangle\right\} \\ &- \frac{Ul_i^2}{24}\left\{\left(\mathbf{S} + \frac{\boldsymbol{\delta}}{3}\right)\cdot\nabla^2\mathbf{S} - \langle \mathbf{uuuu} \rangle : \nabla^2\mathbf{S} + \frac{(\nabla\mathbf{S}) : (\nabla\mathbf{S})^{\mathrm{T}} - \nabla\nabla\mathbf{S} : \mathbf{S}}{4}\right\}\Bigg] + \frac{c}{2}\zeta_r \boldsymbol{\kappa} : \langle \mathbf{uuuu} \rangle\end{aligned} \tag{3}$$

上式において c は液晶分子の数密度，k はボルツマン定数，T は絶対温度，$\boldsymbol{\delta}$ は単位テンソル，U は無次元のネマティックポテンシャル強度，$\mathbf{u}$ は着目した液晶分子に平行な単位ベクトル，l_i は液晶分子の長距離効果の強度を表す物理量，ζ_r は回転抵抗定数，$\boldsymbol{\kappa}$ は速度こう配テンソルである. また式中の $\mathbf{S}$ は配向秩序パラメータテンソルであり以下のように表される.

・　配向秩序パラメータテンソル

$$\mathbf{S} = \int_{|\mathbf{u}|=1} \left(\mathbf{uu} - \frac{\boldsymbol{\delta}}{3}\right) f d\Omega \equiv \left\langle \mathbf{uu} - \frac{\boldsymbol{\delta}}{3} \right\rangle \tag{4}$$

ここで式中の

$$\int_{|\mathbf{u}|=1} (\cdots) d\Omega$$

は単位球面上での面積分である.

次に本研究では分子配向状態を高精度で解析するために配向分布関数を用いる. 以下

に配向分布関数の時間発展方程式を示す.

・　配向分布関数の時間発展方程式

$$\frac{Df}{Dt} = \overline{D}\nabla_u \cdot \left(\nabla_u f + \frac{f\nabla_u V}{kT} \right) - \nabla_u \cdot \left\{ f\left(\boldsymbol{\kappa} \cdot \mathbf{u} - \boldsymbol{\kappa} : \mathbf{uuu} \right) \right\} \tag{5}$$

ここで $f(x, z, t, \mathbf{u})$ は $\mathbf{u}$ の配向分布関数，∇_u は単位球面上での微分演算子である．また式中の $\overline{D}$ は回転拡散係数，V はネマティック Marrucci-Greco ポテンシャルでありそれぞれ以下のように表される.

・　回転拡散係数

$$\overline{D} = D_s \left(1 - \frac{3}{2}\mathbf{S} : \mathbf{S} \right)^{-2} \tag{6}$$

・　ネマティック Marrucci-Greco ポテンシャル

$$V = -\frac{3}{2} UkT \left(\mathbf{S} + \frac{1}{24} l_i^2 \nabla^2 \mathbf{S} \right) : \mathbf{uu} \tag{7}$$

式(6)中の D_s は等方状態における回転拡散係数である．本研究のような欠陥対消滅時に誘起される液晶流動を明らかにするためには，分子配向場，応力場，速度場を表す式(1)～(7)を同時に連立した複雑な解析を行う必要がある.

2・2　座標系

図 9 に本研究で用いた座標系を示す．本研究では一辺が長さ H である正方形領域を考え計算を行う．ゆえに本研究において代表長さを H とした.

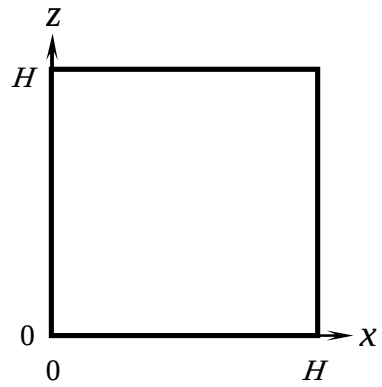


Fig.9 Coordinate systems

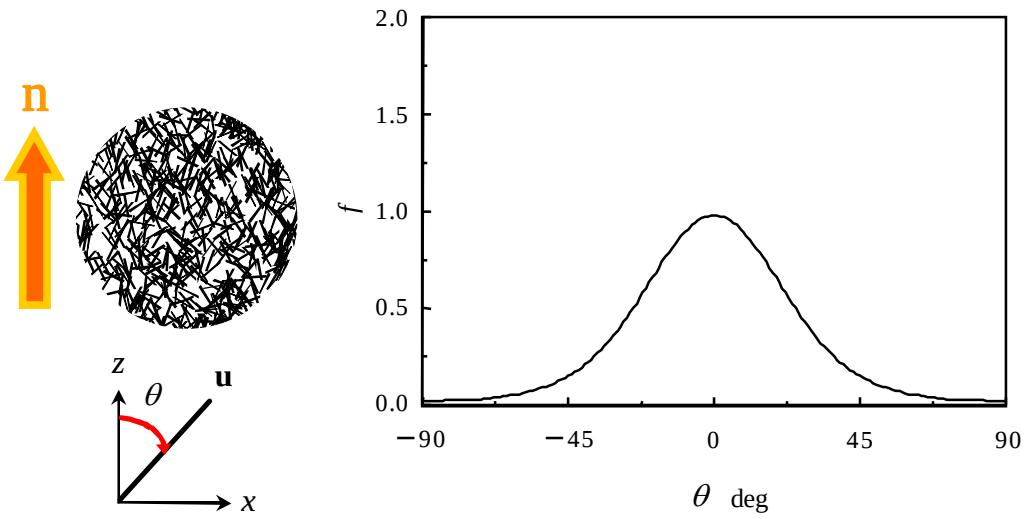
2・3　無次元化

上述した式(1)～(7)の基礎方程式を図 9 の座標系を用いて展開後（各基礎方程式の展開については付録Aにて後述する）, 式中の各物理量を時間に関しては代表時間$1/D_s$を, 空間に関しては代表長さHを, また構成方程式については係数$3ckT$を用いて無次元化を行う．以下に無次元化した各物理量を示す.

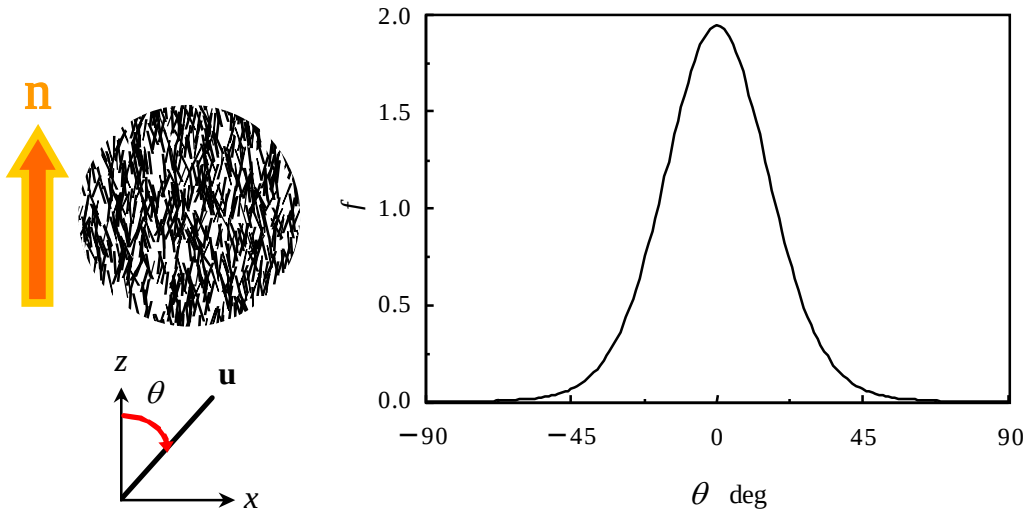
$$x^* = \frac{x}{H},\quad z^* = \frac{z}{H},\quad \mathbf{v}^* = \frac{\mathbf{v}}{HD_s},\quad t^* = tD_s,\quad \boldsymbol{\tau}^* = \frac{\boldsymbol{\tau}}{3ckT},\quad l_i^* = \frac{l_i}{H},\quad \boldsymbol{\kappa}^* = \frac{\boldsymbol{\kappa}}{D_s}$$

2・4　配向分布関数

配向分布関数fとは確率密度関数と呼ばれるもので, 分子の存在を確率的に表す関数である. 本研究では配向分布関数の値を配向方向および配向秩序パラメータを知るための指標としている．ある配向状態の液晶分子を表す配向分布関数の例として図 10(a), (b)にS=0.6 とS=0.9 の場合の配向分布関数の図を示す. 図 10 の座標系は着目した棒状の液晶分子に平行な単位ベクトル$\mathbf{u}$がz軸からなす角度θを示す．また図 10 の左図は物理空間のある 1 点での液晶分子の状態を示し，図 10 の右図は角度θに配向している液晶分子の確率を示す配向分布関数の図である．図 10(a)の場合，多くの液晶分子がθ=0°方向に配向している. そのため配向方向は矢印のように表される. ここで図 10(a)の配向分布関数を示す右図を見ると多くの液晶分子が配向しているθ=0°での値が大きくなり，配向している液晶分子が少ないθ=±90°での値が小さくなっていることが分かる．次に図 10(b)の場合，図 10(a)の場合よりもより多くの液晶分子がθ=0°方向に配向している. そのため配向方向は矢印のように表され, 配向分布関数を示す図 10(b)の右図を見るとθ=0°での値がより大きく, 急峻になっていることが分かり, 配向している液晶分子がほぼ存在しないθ=±90°での値が限りなく小さくなっていることが分かる. 以上のことから物理空間のある 1 点での配向分布関数を求めればその点での配向方向を求めることができる. また配向分布関数の分布からその点での配向秩序パラメータを求めることもできる.



(a) S =0.6



(b) S =0.9

Fig.10 Orientation distribution function

図 10 では液晶分子の配向状態を 2 次元で考えたため配向分布関数も 2 次元でグラフ化した．しかし実際の物理現象を計算する際，空間を 3 次元として捉えて計算する．そのため配向分布関数も図 11 のように 3 次元で表すこととなる．底面の各軸には図 11 の右上に示すような z 軸からの天頂角 θ，x 軸からの方位角 ϕ を取り，高さ方向に配向分布関数の値をとる．

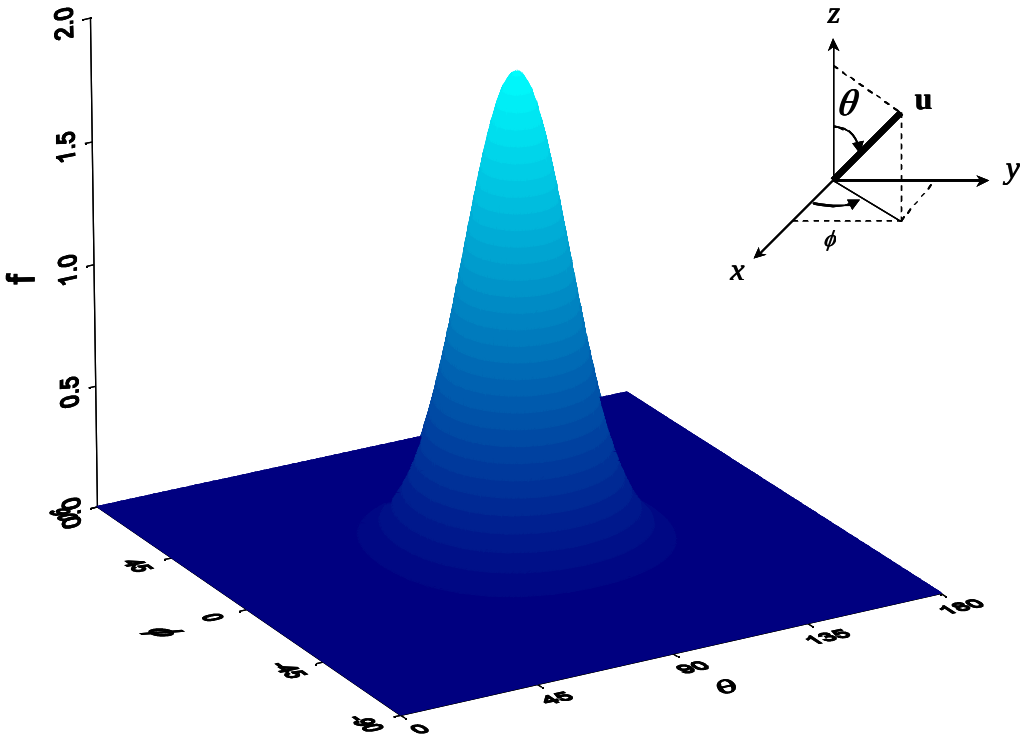


Fig.11 3 dimension graphic of orientation distribution function

第3章　配向分布関数を用いた液晶単純せん断流の数値解析[23]

3・1　研究背景および研究目的

分子配向状態を 2 階のテンソルで表現した場合，2 階テンソルによる構成方程式のままでは液晶特有のせん断挙動を表すことが不可能である．さらに応力の結果に疑問が残り，既知の速度場の基で配向場のみを扱う場合には問題ないが，速度場を運動方程式から求める場合には適用が困難である．そのため分子配向状態を高精度で表現するために配向分布関数を用いて分子配向状態を表す必要がある．そこで本章では欠陥対消滅過程で誘起される液晶流動の数値解析を行う前計算として，単純せん断流中における物理空間 1 点の配向分布関数の計算精度に関しての議論を行う．

単純せん断流中における物理空間 1 点の配向分布関数を差分法で離散化した結果，多大な計算時間を要することが明らかにされている[16][21]．そのため本研究のように物理空間の多数の位置で配向分布関数を計算するには膨大な計算量を必要とする．そこで Larson ら[22]は十分な計算精度を保ったまま解析時間の短縮を図るため，配向分布関数を球面調和関数の級数を用いて近似した．計算精度は流動条件（例えばせん断速度や温度などの計算パラメータ）に強く依存すると推察されるが計算パラメータと計算精度の関係は明らかにされていない．そこで，長距離秩序効果を有しない土井理論を基礎方程式として，配向分布関数を球面調和関数の級数で近似し，配向状態と必要とされる最小の展開項数の関係について明らかにする．

3・2　基礎方程式および数値計算

本章では基礎方程式として式(4)～(7)を用いる．しかし長距離秩序効果を含まないため式(7)は次式のように表される．

・　ネマティック Maier-Saupe ポテンシャル

$$V = -\frac{3}{2}UkT\mathbf{S} : \mathbf{uu} \tag{8}$$

本章では図 12 に示すような $x-z$ 平面内の単純せん断流を考える．流れ方向を x 軸，速度こう配方向を z 軸，それらに垂直な方向を y 軸とし，単位ベクトル $\mathbf{u}$ の天頂角を θ，x 軸を基準とした方位角を ϕ とする．図中に示した速度場では，式(5)中の速度こう配テンソル $\boldsymbol{\kappa}$ および式(4)の配向秩序パラメータテンソル $\mathbf{S}$ は以下のように成分表示される．

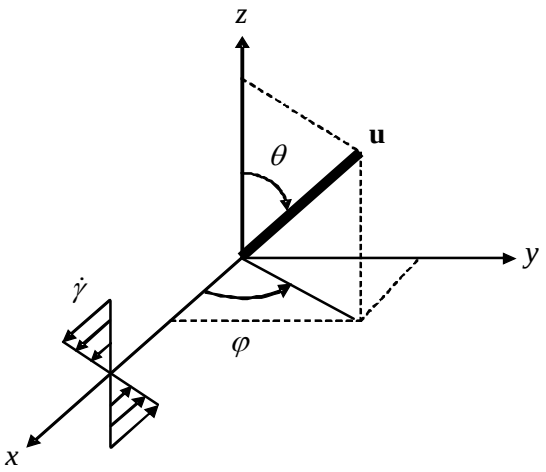


Fig.12 Flow geometry and coordinate systems

$$\boldsymbol{\kappa} = \begin{vmatrix} 0 & 0 & \dot{\gamma} \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{vmatrix} \tag{9}$$

$$\mathbf{S} = \begin{vmatrix} S_{xx} & 0 & S_{xz} \\ 0 & S_{yy} & 0 \\ S_{zx} & 0 & S_{zz} \end{vmatrix} \tag{10}$$

ただし$\dot{\gamma}$はせん断速度の大きさである．式(6)，(8)～(10)を式(5)に代入し配向分布関数fを求める．本章ではfを球面調和関数$Y_{lm}(\mathbf{u})$の有限級数で次式のように近似する[22][24][25]．

$$f(t,\mathbf{u}) = \sum_{l=0}^{l_{\max}} \sum_{m=-l}^{l} C_{lm}(t) Y_{lm}(\mathbf{u}) \tag{11}$$

式中の$C_{lm}(t)$は係数，$l_{\max}$は方位量子数の最大値で級数解の項数を決定するパラメータである．液晶分子に頭尾の区別はないので

$$f(t,\mathbf{u}) = f(t,-\mathbf{u}) \tag{12}$$

であり，球面調和関数の性質

$$Y_{lm}(-\mathbf{u}) = (-1)^l Y_{lm}(\mathbf{u}) \tag{13}$$

を用いると$(-1)^l = 1$となるのでlは偶数に限定される．式(5)を時間に関して$1/D_s$で無次元化した後，両辺にY_{lm}の複素共役Y_{lm}^*（$=(-1)^m Y_{lm}$）を掛け単位球面上で積分し，球面調和関数の直交性[26]

$$\int_{|\mathbf{u}|=1} Y_{lm} Y_{l'm'}^* d\Omega = \delta_{ll'}\delta_{mm'} \tag{14}$$

を用いれば，C_{lm}の時間に関する常微分方程式を得る．得られた方程式についての展開は付録

A に掲載する．計算方法として時間方向には 4 次精度 Runge-Kutta 法を用いた．時間刻み幅は $\Delta t^* = 1/\left(1000\dot{\gamma}^*\right)$ とし，t^* =80 まで計算した．ただし $\dot{\gamma}^*$ （$=\dot{\gamma}/D_s$）は無次元せん断速度である．また本研究を通して $D_s = 5.2\times10^3 \mathrm{s}^{-1}$ とした．ここで，表 1 に $l_{\max}$ と展開項数の関係を示す．$l_{\max}$ を大きくすると展開項数が増し近似精度が高くなるが，その分計算時間が増加してしまう．

Table.1　Relationship between $l_{\max}$ and number of terms

$l_{\max}$	0	2	4	6	8	10	12	14
Terms	1	6	15	28	45	66	91	120

3・3　初期値

C_{lm} の初期値 $C_{lm}(0)$ を以下の方法で求めた．式(11)の両辺に Y_{lm}^* を掛け単位球面上で積分し，さらに式(14)を用いると次式のようになる．

$$C_{lm}(0) = \int_{|\mathbf{u}|=1} f(0,\mathbf{u}) Y_{lm}^*(\mathbf{u}) d\Omega \tag{15}$$

f は t^* =0 で平衡状態（$\dot{\gamma}^* = 0$）にあるとすれば，

$$f(0,\mathbf{u}) = \frac{\exp\left(-\dfrac{V}{kT}\right)}{\displaystyle\int_{|\mathbf{u}|=1} \exp\left(-\frac{V}{kT}\right) d\Omega} \tag{16}$$

となる[12]．上式の分母は f を正規化するために用いている．流動および外場が存在しなければ f は一軸対称となるので，式(4)の配向秩序パラメータテンソルは

$$\mathbf{S} = S\left(\mathbf{nn} - \frac{\boldsymbol{\delta}}{3}\right) \tag{17}$$

と表される．式(8)，(17)を式(16)に代入すると

$$f(0,\mathbf{u}) = \frac{\exp\left\{\dfrac{3}{2} US(\mathbf{n}\cdot\mathbf{u})^2\right\}}{\displaystyle\int_{|\mathbf{u}|=1} \exp\left\{\frac{3}{2} US(\mathbf{n}\cdot\mathbf{u})^2\right\} d\Omega} \tag{18}$$

と変形される．上式の $\exp\{\cdots\}$ をべき級数展開し，$\mathbf{n}\cdot\mathbf{u}$ のべき乗を球面調和関数で表せば

$$\exp\left\{\frac{3}{2}US(\mathbf{n}\cdot\mathbf{u})^2\right\}=4\pi\sum_{p=0}^{\infty}\frac{(2p)!}{p!}\left(\frac{3}{2}US\right)^p\sum_{r=0}^{p}\frac{1}{(2p-2r)!!(2p+2r+1)!!}\sum_{m'=-2r}^{2r}Y_{2r\,m'}^{*}(\mathbf{n})Y_{2r\,m'}(\mathbf{u}) \quad (19)$$

$$\int_{|\mathbf{u}|=1}\exp\left\{\frac{3}{2}US(\mathbf{n}\cdot\mathbf{u})^2\right\}d\Omega=4\pi\sum_{p=0}^{\infty}\left(\frac{3}{2}US\right)^p\frac{1}{(2p+1)\,p!} \quad (20)$$

となる[27]．ただし

$(2n)!!=2n(2n-2)\cdots4\cdot2$

$(2n+1)!!=(2n+1)(2n-1)\cdots3\cdot1$

$0!!=1$

である（n は 0 または正の整数）．式(19)，(20)を代入した式(18)を式(15)に代入すると，

$$C_{lm}(0)=\frac{\displaystyle\sum_{p=0}^{\infty}\frac{\left(\frac{3}{2}US\right)^p(2p)!}{p!(2p-l)!!(2p+l+1)!!}Y_{lm}^{*}(\mathbf{n})}{\displaystyle\sum_{q=0}^{\infty}\frac{\left(\frac{3}{2}US\right)^q}{(2q+1)q!}} \quad (21)$$

を得る．$t^*=0$ でディレクタ $\mathbf{n}$ は x 軸方向に配向していると仮定し $\theta_m=\pi/2$，$\phi_m=0$ とした．ただし θ_m，ϕ_m は $\mathbf{n}$ の天頂角と方位角である．また平衡状態の S は無次元ネマティックポテンシャル強度 U のみの関数である[21]．

3・4　計算結果および考察

図 12 よりディレクタ $\mathbf{n}$ は $x-z$ 平面内に存在するので，ディレクタの方位角 ϕ_m は常に 0 ° となる．天頂角 θ_m とスカラーの配向秩序パラメータ S は，配向秩序パラメータテンソル $\mathbf{S}$ を用いて以下のように表される．

$$\tan 2\theta_m=\frac{2S_{xz}}{S_{zz}-S_{xx}} \quad (22)$$

$$S=\sqrt{\frac{3}{2}\mathbf{S}:\mathbf{S}} \quad (23)$$

図 13 に $l_{\max}$ =4～10 の場合の θ_m と S の時間変化を示す．ネマティックポテンシャル強度として U =5 を選択した．ここで U は熱の影響を表すパラメータであり以下のように表される[12]．

$$U = \frac{3T_c}{T} \tag{24}$$

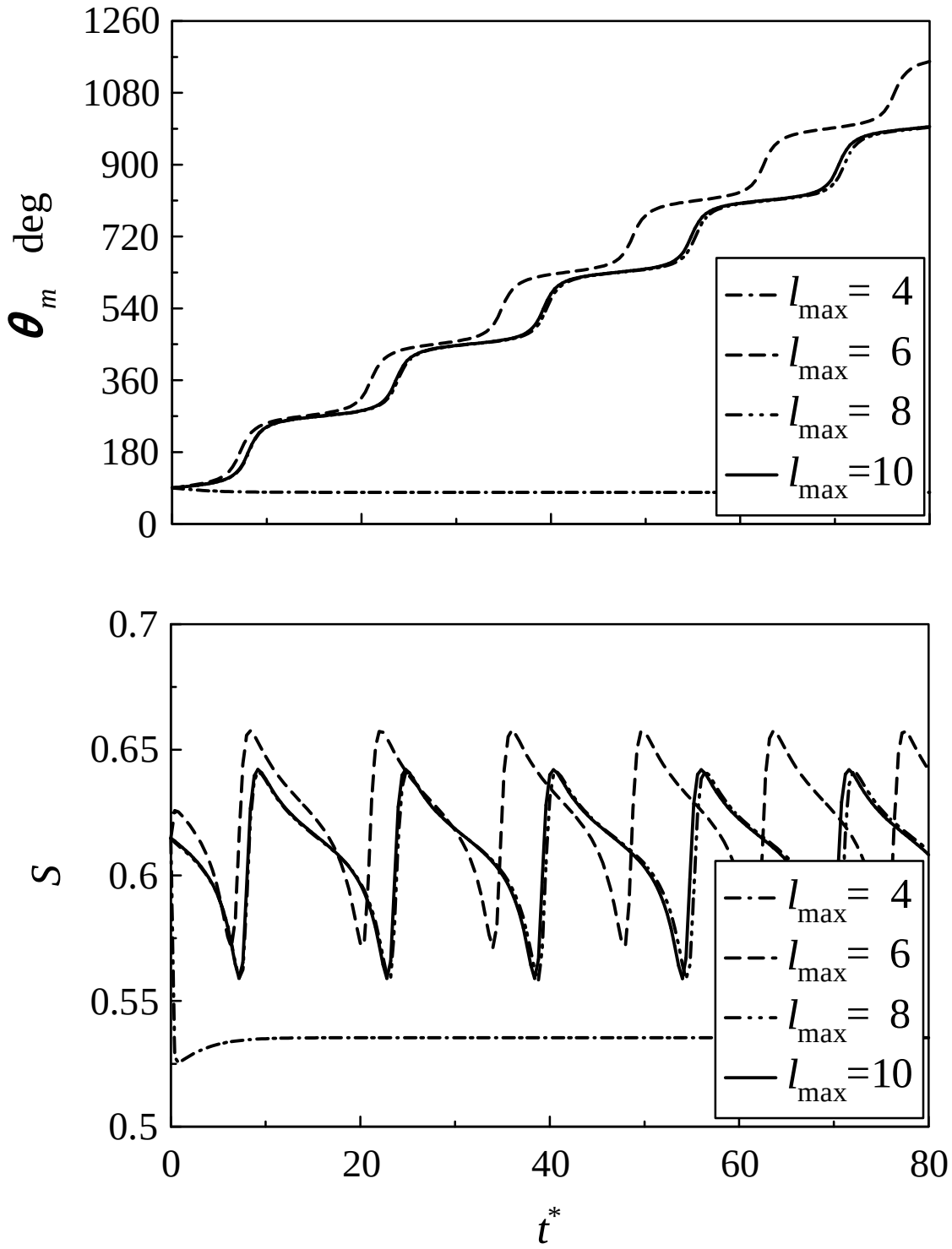
式中のT_cは等方－液晶相転移温度である．テンソル表記を用いた配向分布関数を解く場合，U=5 が液晶性の最も低い値である[21]．そのため式中の 3 は 5 と書き換えられる．

図 13(a)は$\dot{\gamma}^*$=1 の場合でθ_mはタンブリング挙動を示す．すなわち，ディレクタがx軸と平行になる$\theta_m = (n+1/2)\pi$（nは整数）付近では，せん断流の影響が最小になるのでθ_mの傾きは小さく，ディレクタがx軸と垂直になる$\theta_m = n\pi$付近では，せん断流の影響が最大になるためθ_mの変化は大きい．$l_{\max}$=8 と 10 の挙動はほぼ一致し，$l_{\max}$=6 は$l_{\max}$≧8 の挙動と比較すると回転周期が短い．$l_{\max}$=4 ではタンブリング挙動を示さずアライニング挙動となっている．Sは平衡状態の値（0.618）をほぼ中心として振動している．$l_{\max}$の影響はθ_mの場合と同様である．

図 13(b)は$\dot{\gamma}^*$=3 の場合でワギング領域である．図 13(a)と同様，θ_m，Sともに$l_{\max}$=8 と 10 の挙動はほぼ一致し，$l_{\max}$=6 は$l_{\max}$≧8 の挙動と比較すると振動周期が短く，且つ振幅が大きい．$l_{\max}$=4 の挙動は全く異なり，θ_m，S ともに振動挙動を示さない．

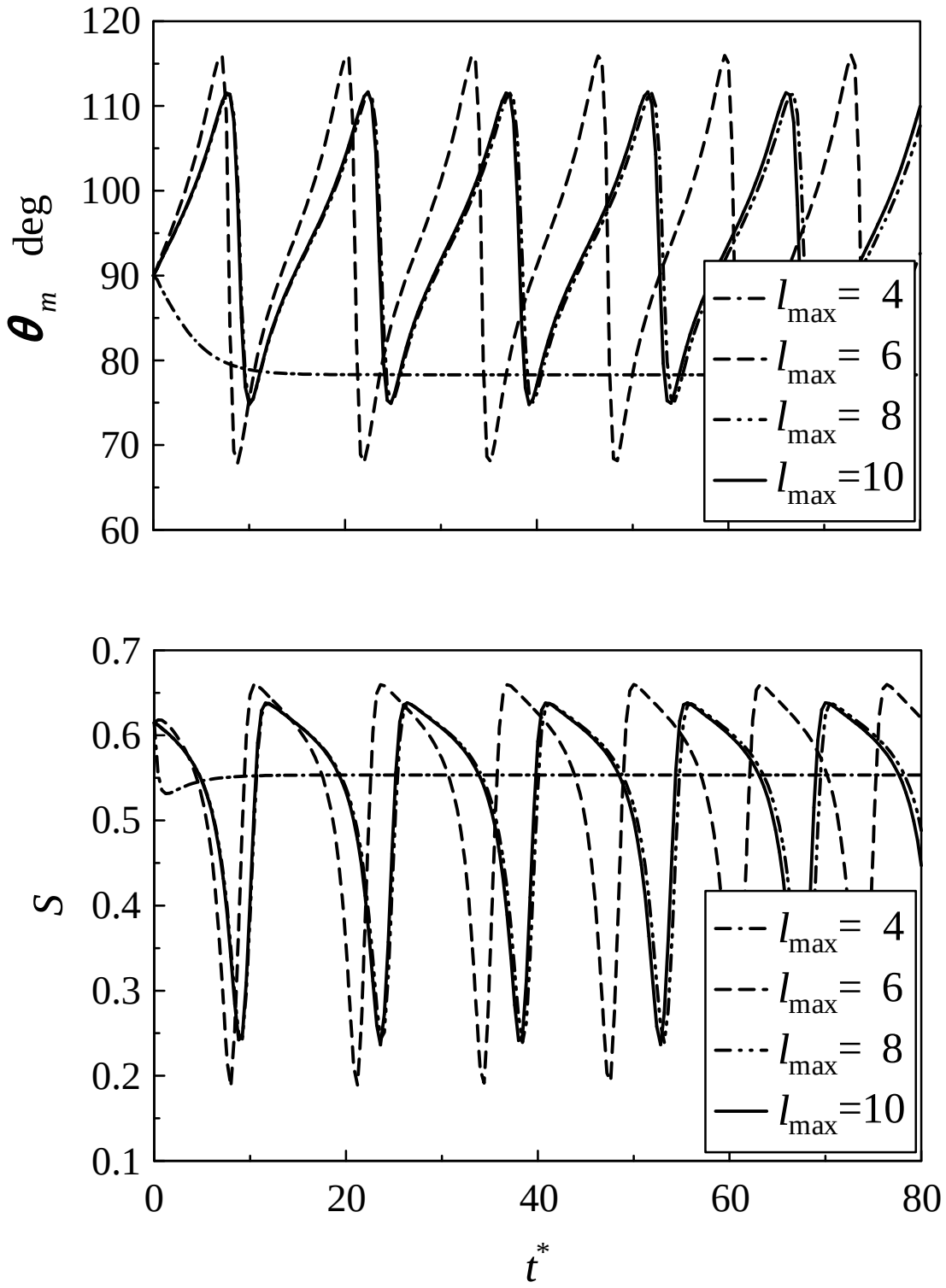
図 13(c)は$\dot{\gamma}^*$=40 の場合でアライニング領域である．図 13(a)，(b)で示したように$l_{\max}$=4 はタンブリング領域およびワギング領域でもアライニング挙動を示したので，図 13(c)では低$l_{\max}$でも有用であると推測した．しかし$l_{\max}$=4 では定常に至る挙動を示すが，途中の変化および定常値は他の$l_{\max}$と大きく異なっていることが分かる．$l_{\max}$=8 と 10 の挙動はほぼ一致し，$l_{\max}$=6 は$l_{\max}$≧8 の挙動と比較すると定常値にやや差異がみられる．

以上のことから，図示したネマティックポテンシャル強度とせん断速度領域では，$l_{\max}$=4 は配向挙動を定性的にも表現できず使用不可と言える．一方$l_{\max}$≧8 は定量的に満足であり，両者の中間である$l_{\max}$=6 は定性的に十分である．従って計算精度を優先するなら$l_{\max}$=8，計算時間を優先するなら$l_{\max}$=6 と結論づけられる．なお$l_{\max}$=2 では計算が発散した．



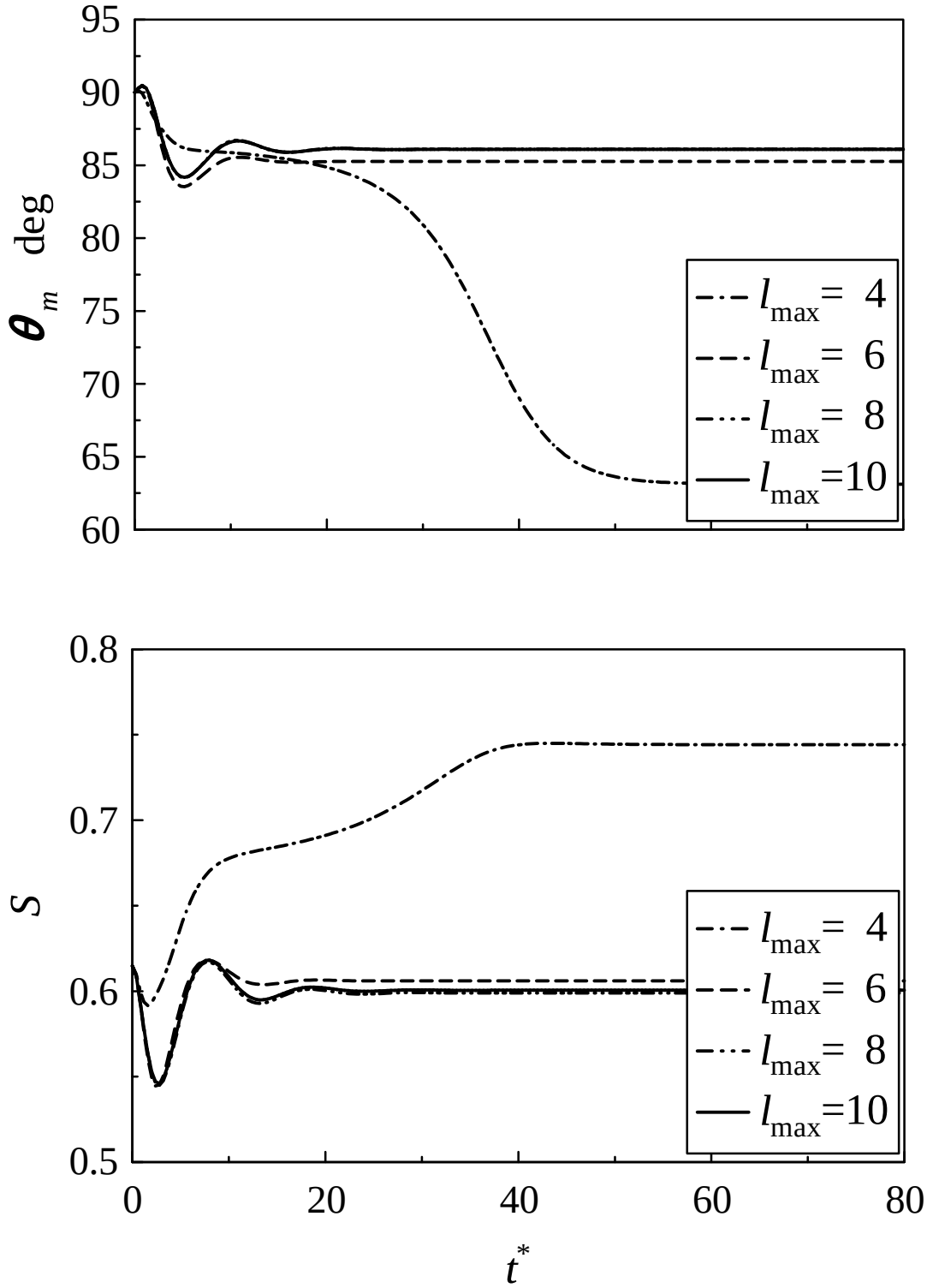
(a) Tumbling ($\dot{\gamma}^*$ =1)

Fig.13 Transient behavior of preferred angle and order parameter for U =5



(b) Waging ($\dot{\gamma}^*$ =3)

Fig.13 Transient behavior of preferred angle and order parameter for U =5



(c) Aligning ($\dot{\gamma}^*$ =40)

Fig.13 Transient behavior of preferred angle and order parameter for U =5

U の影響を検討するため, 図 13(c)において U を 6.5 に変更した結果を図 14 に示す. $l_{\max}$ =2〜6 では計算が発散した. このポテンシャルとせん断速度領域では θ_m はワギング挙動を示す. $l_{\max}$ =10 と 12 の挙動はほぼ一致し, $l_{\max}$ =8 は $l_{\max}$ ≧10 の挙動と比較すると振動周期が長い. S についても θ_m と同様である. 従って U =6.5, $\dot{\gamma}^*$ =40 では, 計算精度を優先するなら $l_{\max}$ =10, 計算時間を優先するなら $l_{\max}$ =8 となり, 図 13(c)と比較して高い $l_{\max}$ が要求される.

次に $\dot{\gamma}^*$ の影響を検討するため, 図 13 において $\dot{\gamma}^*$ を 90 に変更した結果を図 15 に示す. $l_{\max}$ =2 では計算が発散した. このせん断速度領域では θ_m はアライニング挙動を示す. $l_{\max}$ =10 と 12 の挙動は一致し, $l_{\max}$ =6 と 8 は $l_{\max}$ ≧10 の挙動と比較すると定常値が異なる. $l_{\max}$ =4 の場合, 本計算範囲内では定常値に至らず振動挙動を示している. 従って計算精度を優先するなら $l_{\max}$ =10, 計算時間を優先するなら $l_{\max}$ =6 となり, 図 13 と比べて定量的精度の要求のみが高くなった.

以上のことから, 配向分布関数を近似するために必要な展開項数はネマティックポテンシャル強度とせん断速度の大きさに依存する. そこで U =5.0〜7.5, $\dot{\gamma}^*$ =1〜300 について, 図 13〜15 と同様, θ_m と S の時間変化図から著者らが目視によって判断した結果を図 16, 17 に示す. 両図の縦軸は U, 横軸は $\dot{\gamma}^*$ であり, 図中の×印は計算点を表す. 図 16 は定性的に満足な項数を, 図 17 は定量的に満足な項数を与える線図である. 図より U および $\dot{\gamma}^*$ の増加とともにより多くの球面調和関数の展開項数が必要とされることが確認できる. これは, U および $\dot{\gamma}^*$ が増加すると配向分布関数が急峻になり, いわゆる高周波成分がより増大し, 且つ一軸非対称となるためと推察される.

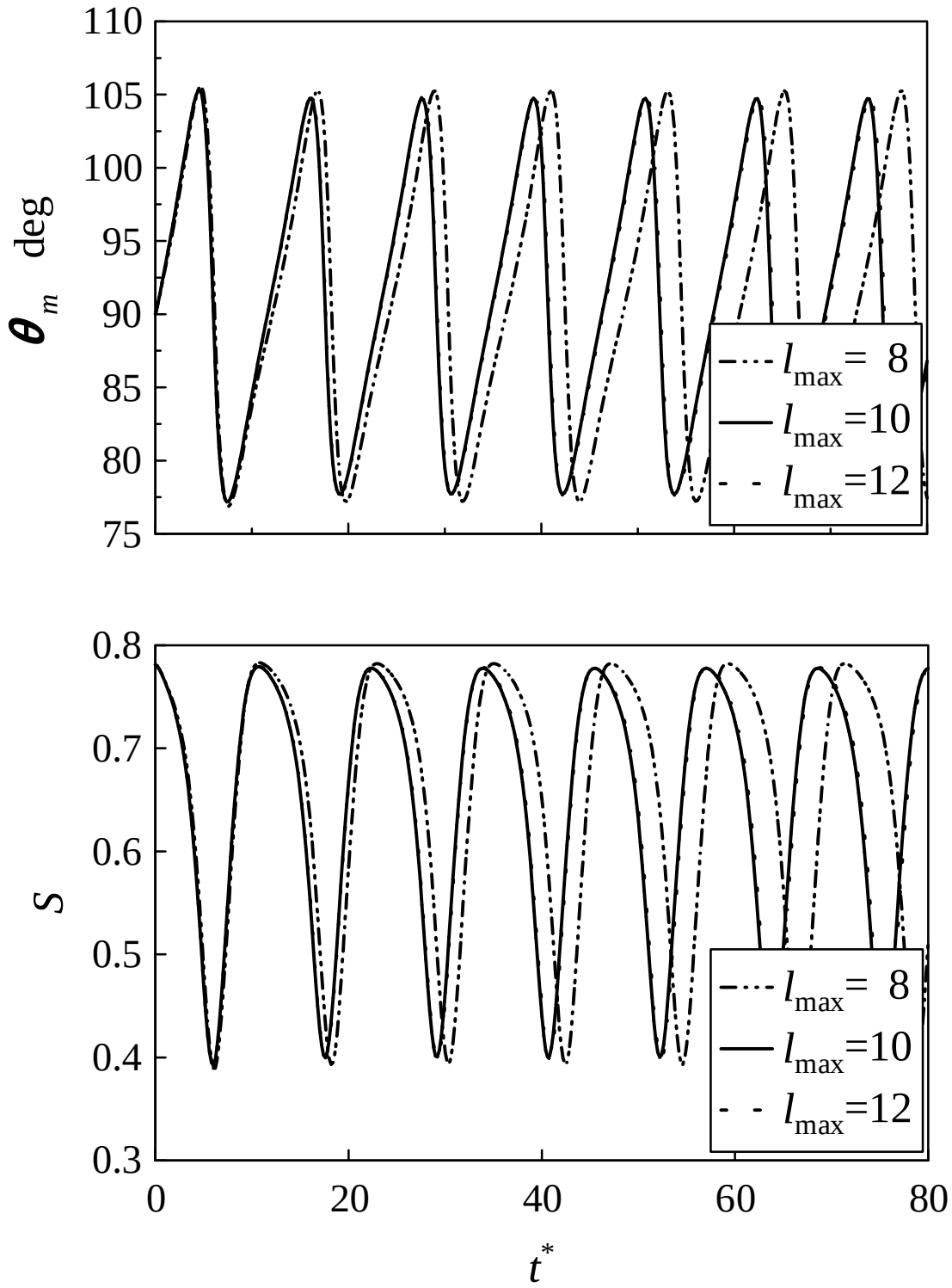


Fig.14 Transient behavior of preferred angle and order parameter for U =6.5, $\dot{\gamma}^*$ =40

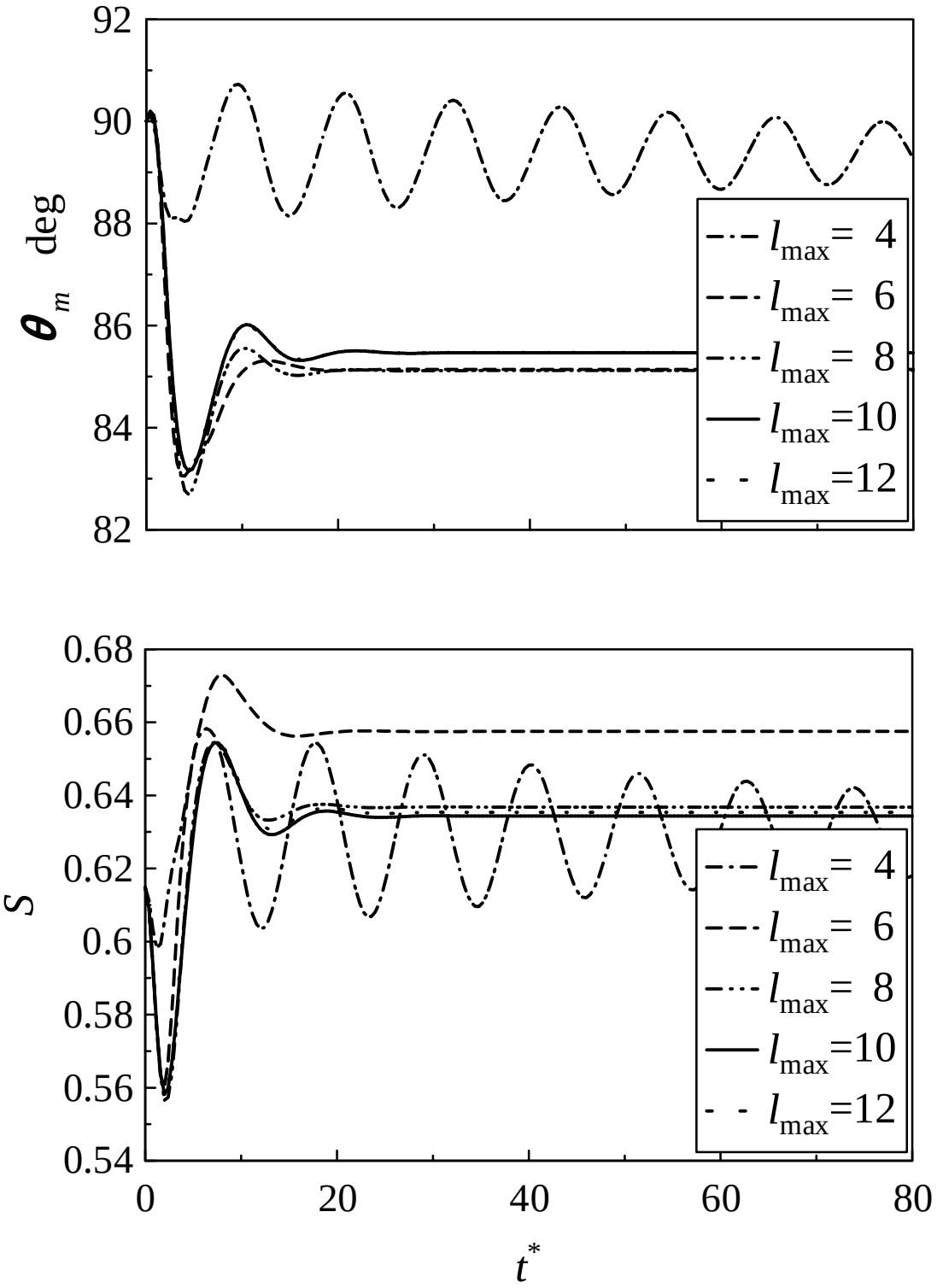


Fig.15 Transient behavior of preferred angle and order parameter for U =5, $\dot{\gamma}^*$ =90

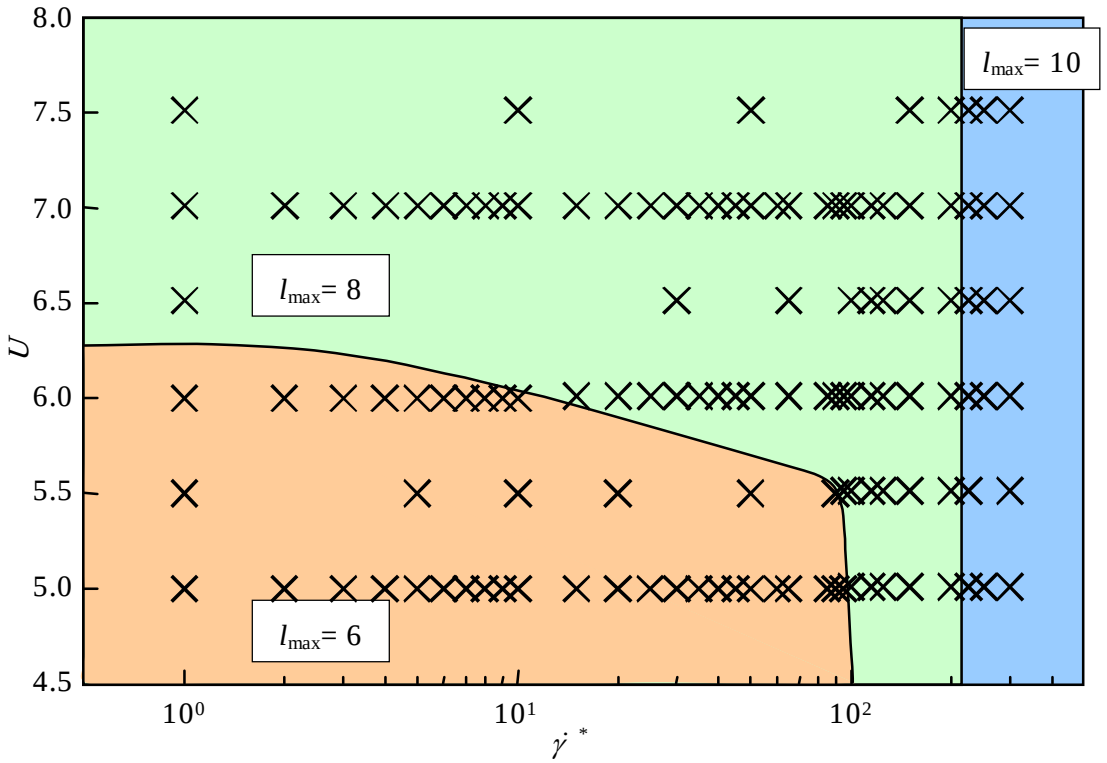


Fig.16 Values of l_{max} for qualitative accuracy

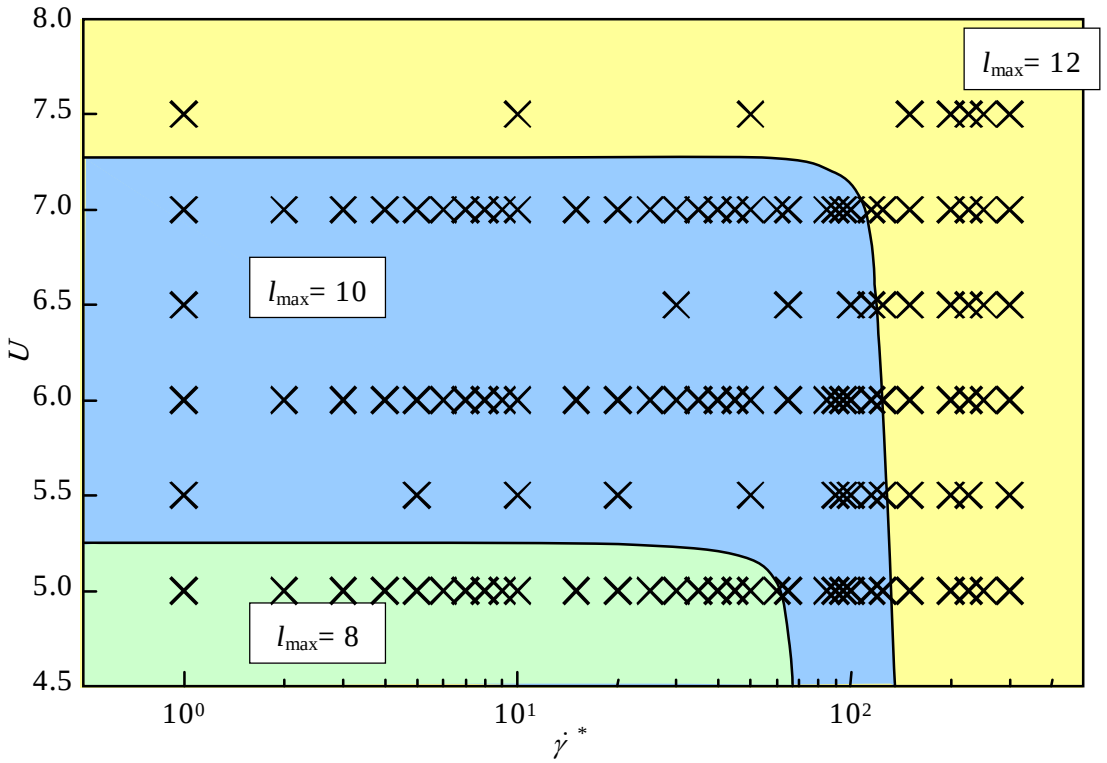


Fig.17 Values of l_{max} for quantitative accuracy

図 18 はタンブリング，ワギング，アライニング挙動の発生する遷移せん断速度から計算精度を検討した結果である．図の縦軸は$\dot{\gamma}^*$，横軸は各Uにおけるl_{max}である．U=5では，l_{max}=8 と 10 で各挙動が発生する遷移せん断速度はほぼ一致しているが，l_{max}=6ではワギング領域が若干長い．またl_{max}=4 ではアライニング挙動のみとなっている．従って定性的にはl_{max}=6, 定量的にはl_{max}=8 であり，これは図 16, 17 の結果と一致する．

U=6 の場合，l_{max}=10 と 12 はよく一致し，l_{max}=8 ではわずかにワギング領域が長く，l_{max}=6 では逆に短い．従って定量的精度としてはl_{max}=10 と断定できるが，定性的精度はl_{max}=6 または 8 のいずれかとなり，やはり図 16，17 の結果と整合する．

U=7 ではl_{max}≦6 で計算が発散しており，l_{max}=8 が定性的，l_{max}=10 が定量的精度となり，図 16，17 の結果と合う．

本研究のl_{max}はテンソル理論で用いられているテンソルの階数に相当することが明らかにされている[28][29]．図 16，17 で示したように定性的に満足な解でもl_{max}は 6 以上必要であり，従って 2 階や 4 階の配向テンソルで構築された理論には根本的に無理があると言える．従って，緒言で言及したようにテンソル理論に導入されている closure 近似には，本来，2 階や 4 階テンソルが表現できない内容を補足する役割が含まれていると考えられる．

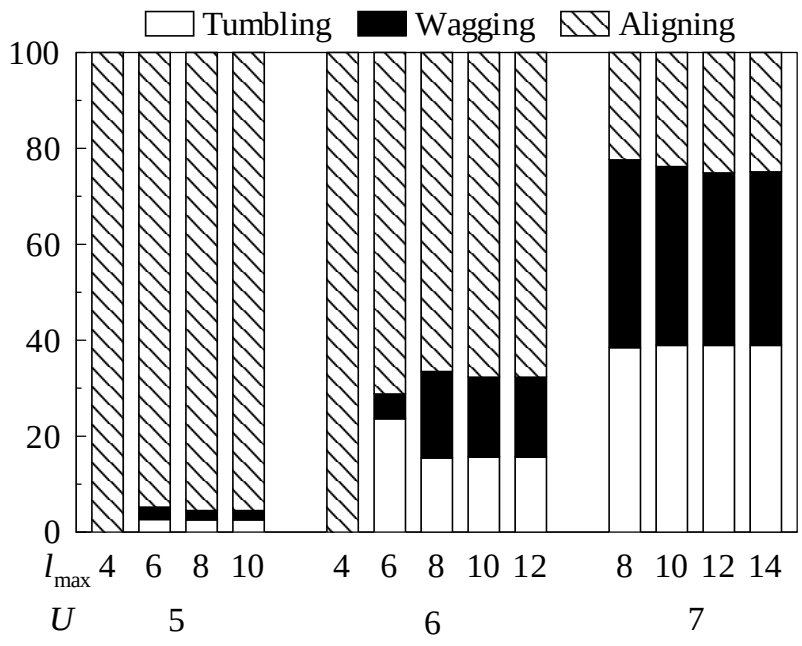


Fig.18 Critical shear rates as a function of l_{max} for U=5, 6 and 7

3・5 結　言

配向分布関数を球面調和関数による級数で近似した場合の打ち切り項数と計算精度について検討するため，土井理論を基礎式として数値解析を行った．得られた結果を以下に示す．

- ネマティックポテンシャル強度とせん断速度を与えれば，定性的および定量的に満足な展開項数を読み取ることができる線図を作成した．
- ネマティックポテンシャル強度またはせん断速度が増加すると，配向分布関数が急峻，且つ，一軸非対称となるので，配向分布関数の近似にはより多くの球面調和関数の展開項数が求められる．

第4章　欠陥対消滅が誘起する液晶流動の数値解析

4・1　研究背景および研究目的

本章では欠陥対消滅が誘起する液晶流動の数値解析についての議論を行う．

前述したように液晶製品の製造工程において電場や磁場，流動，および熱の印加にともない液晶欠陥[9]と呼ばれる分子配向場の空間的歪みがしばしば発生し，これが生産性や製品性能の低下の一因となっている．図 5(a)～(d)に示すような異なる分子配向（異符号の欠陥強度）をもつ液晶欠陥同士は互いに引き付け合い，最終的に消滅することが実験的に知られている[9]．この欠陥対消滅過程では分子配向が変化するため液晶流動の発生が予想される[6]．従って任意の場所に人為的に液晶欠陥を発生させれば（液晶欠陥領域の秩序度は低いので熱エネルギーの印加が液晶欠陥発生に繋がる）そこに液晶流動が誘起され，熱エネルギーを運動エネルギーに変換する新しいタイプの液晶アクチュエータを開発することが可能である．そこで，本研究では欠陥対消滅が誘起する液晶流動を応用して，熱を用いた新しいタイプの液晶アクチュエータを開発することを目的とする．

新たなマイクロアクチュエータを開発するにあたり，一対の液晶欠陥が対消滅する過程において誘起される液晶流動を数値的に解析する必要がある．Toth らは Beris 理論を用いて欠陥対消滅時の液晶流動について数値解析を行った．しかし彼らが用いた Beris 理論は分子配向状態を 2 階のテンソルで表現しており，結果の信頼性は低い．また彼らはアクチュエータとしての応用を目指しておらず，液晶流動よりも液晶欠陥挙動そのものに主眼を置いている．そこで本研究では，分子配向状態をより高精度で表すために配向分布関数で記述された土井理論に Marrucci らが提案したポテンシャルを適用した理論を，構成方程式として Feng らが提案した理論を用いて，欠陥対消滅過程において誘起される液晶流動を理論的に予測する．また本文 3 章において明らかにした配向状態と近似精度の関係を参考とする．

4・2　基礎方程式および数値計算

本章では図 19 に示すような一辺が長さ H である正方形領域を考え計算を行う．また領域内の P（=(0.3H ,0.5H)），Q（=(0.7H ,0.5H)）に図 5(a)，(b)で示した異なる分子配向状態を有する一対の液晶欠陥を発生させ初期値とした．図 19 中の線分は各位置での液晶分子の配向方向を示す．

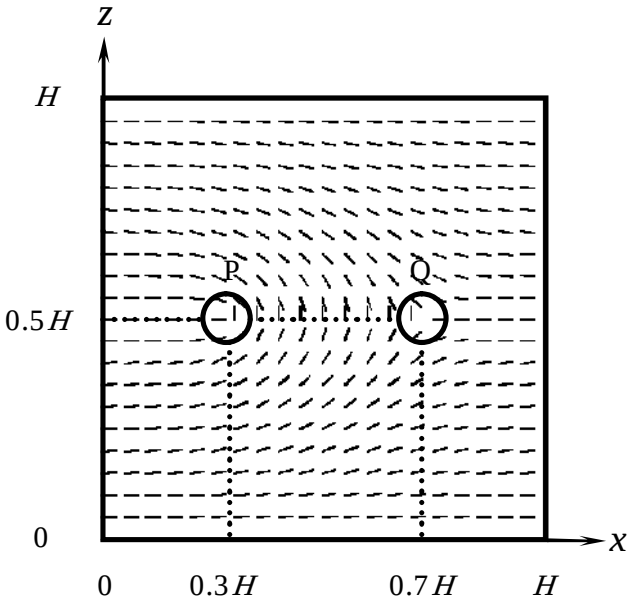


Fig.19 Coordinate systems and initial defect positions

本章では基礎方程式として式(1)～(7)を用いる．図 19 に示した計算領域の場合，式(4)の配向秩序パラメータテンソル**S** は式(10)と同様の成分となる．また式(3)中の速度こう配テンソル**κ** は以下のように成分表示される．

$$\boldsymbol{\kappa} = \begin{vmatrix} \kappa_{xx} & 0 & \kappa_{xz} \\ 0 & 0 & 0 \\ \kappa_{zx} & 0 & \kappa_{zz} \end{vmatrix} \tag{25}$$

本章では配向分布関数 f を球面調和関数 $Y_{lm}(\mathbf{u})$ の有限級数で次式のように近似する．

$$f(x,z,t,\mathbf{u}) = \sum_{l=0}^{l_{\max}} \sum_{m=-l}^{l} C_{lm}(x,z,t) Y_{lm}(\mathbf{u}) \left(= \sum_{lm} C_{lm} Y_{lm} \right) \tag{26}$$

式(4)，(6)，(7)を式(5)に代入し，時間に関しては $1/D_s$ を，空間に関しては H を用いて無次元化した後，式(10)，(12)～(14)，(25)，(26)を用いれば，C_{lm} の時間に関する連立微分方程式を得る．得られた連立微分方程式，構成方程式および運動方程式の展開は付録 A に掲載する．計算方法として式(5)の位相空間には球面調和関数を，実空間には 2 次精度中心差分法を，時間方向には 2 次精度 Runge-Kutta 法を用いた．次に式(2)の実空間には 4 次精度中心差分法を，時間方向にはオイラー法を用いた．また式(2)，(5)の対流項には 1 次精度上流差分法を用いた．緩和計算の収束条件として各格子点での相対誤差の平均が 10^{-5} 以下になれば解が収束したものとした．境界条件として周期境界条件を用いた．本研究では研究対象として U =5 の場合の MBBA を用い，$l_{\max}$ の値には欠陥対消滅過程

での速度こう配が十分小さいと予測されること, および計算精度と計算時間の関係から図 16 を参考にし $l_{\max}$ =6 と選定した．また $\rho = 10^{-3}\,\mathrm{kg/m^3}$，$T = 320\,\mathrm{K}$，$D_s = 5.2\times10^{3}\,\mathrm{s^{-1}}$，$c = 2.25\times10^{24}\,\mathrm{m^{-3}}$，$\xi_r = 8.89\times10^{-24}\,\mathrm{kg\cdot m^2/s}$，$H = 10^{-6}\,\mathrm{m}$ とした．l_i^* は液晶の物性値だが現在その値は明らかにされていない．そこで本研究では液晶分子の長さと H の兼ね合いより l_i^* =0.02～0.1 まで 0.01 刻みで計算を行うこととした．さらに予備計算より $\Delta x^*(=\Delta x/H)=\Delta z^*(=\Delta z/H)=10^{-2}$ とし, 時間刻み幅 Δt^* は l_i^* の変化にともない分子配向場の変化が異なることから各 l_i^* によって Δt^* を選定した．一例を挙げると l_i^* =0.1 の場合 $\Delta t^* = 5\times10^{-4}$ とした.

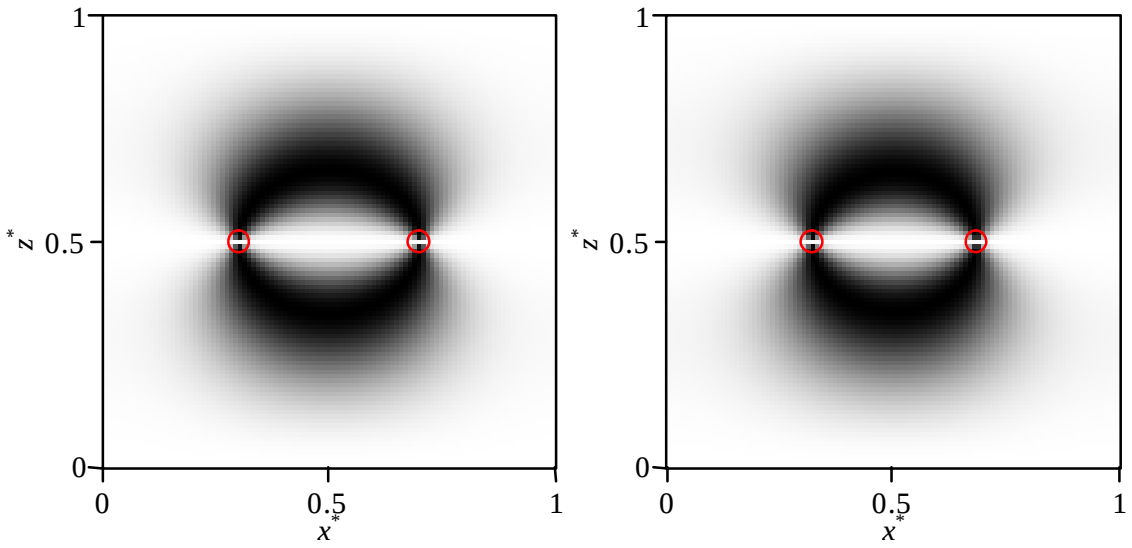
4・3　計算結果および考察

図 20(a)～(l)に l_i^* =0.1 の場合の t^* =0～6.05 までの Δt^* =0.55 間隔での分子配向場における配向方向の空間分布を示す．各図の横軸は x^*，縦軸は z^* であり，偏光方向および検光方向を図の下に示す．図は偏光顕微鏡下における透過光強度を模したものであり，配向方向が偏光方向に対して水平または垂直な方向に配向している領域では暗視野に，±45 ° 方向に配向している領域では明視野に，他の方向に配向している領域ではグレーとなる．ここで透過光強度 I は式(22)および以下の式より求められる．

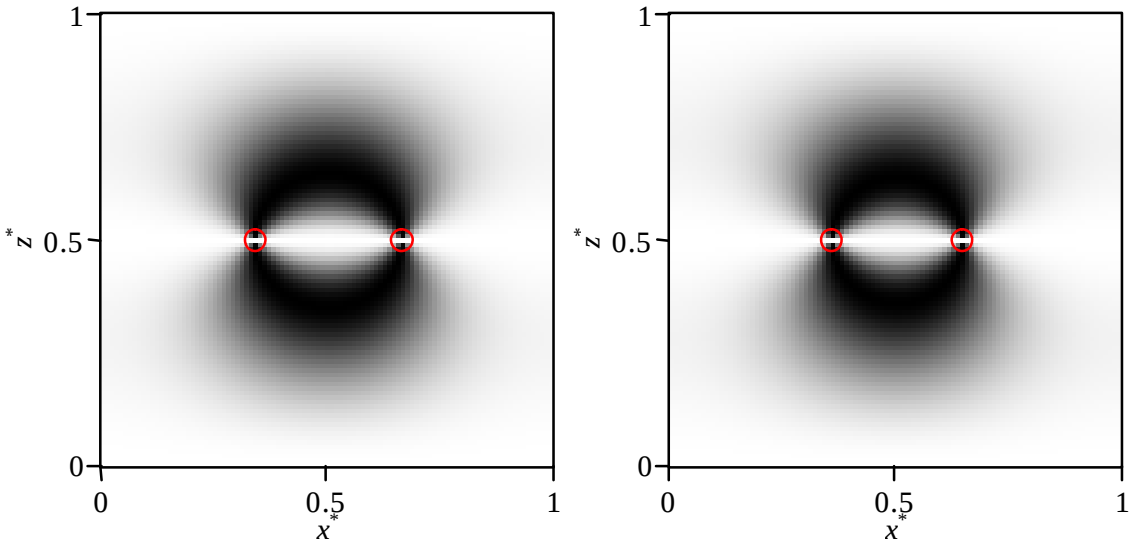
$$I = I_0 \sin^2(2\theta_m) \tag{27}$$

式中の I_0 は初期の透過光強度である．図中の○は欠陥核の位置を示す．図から計算領域内において液晶欠陥構造は常に上下対称であることが分かる．また時間の経過とともに一対の液晶欠陥が互いに引き付け合い（図 20(a)～(g)），最終的に消滅する（図 20(h)）様子が確認できる．さらに欠陥対消滅後（図 20(i), (l)）すぐに一様な分子配向状態にはならず，液晶欠陥が対消滅した領域の上下に配向方向の変化が見られる．

図 21(a)～(l)に図 20 と同パラメータ, 同時刻における配向秩序パラメータ S の空間分布を示す．図の横軸は x^*，奥行き方向の軸は z^* であり，縦軸に配向秩序パラメータの値を示す. 図から前述したように欠陥核の液晶分子は不連続に配向しているため欠陥核を中心として配向秩序パラメータの値が低くなっていることが分かる．さらに図 20 での液晶欠陥の挙動と比較することにより, 低配向秩序パラメータ領域は液晶欠陥の移動とともに移動し（図 21(a)～(g)），欠陥対消滅後（図 21(h)～(i)）には周りの領域と一様な値となることが分かる．また式(3)から分かるように，この配向秩序パラメータの変化にともない応力場の変化が発生し液晶流動が誘起される．



(a) t^* =0 (b) t^* =0.55



(c) t^* =1.1 (d) t^* =1.65

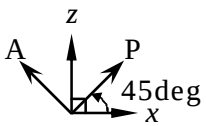
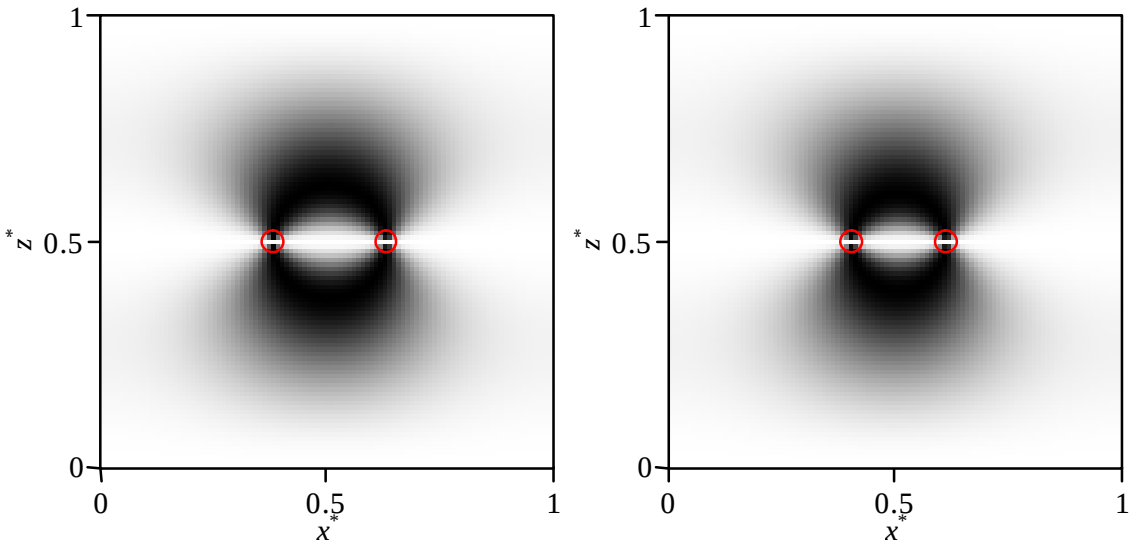
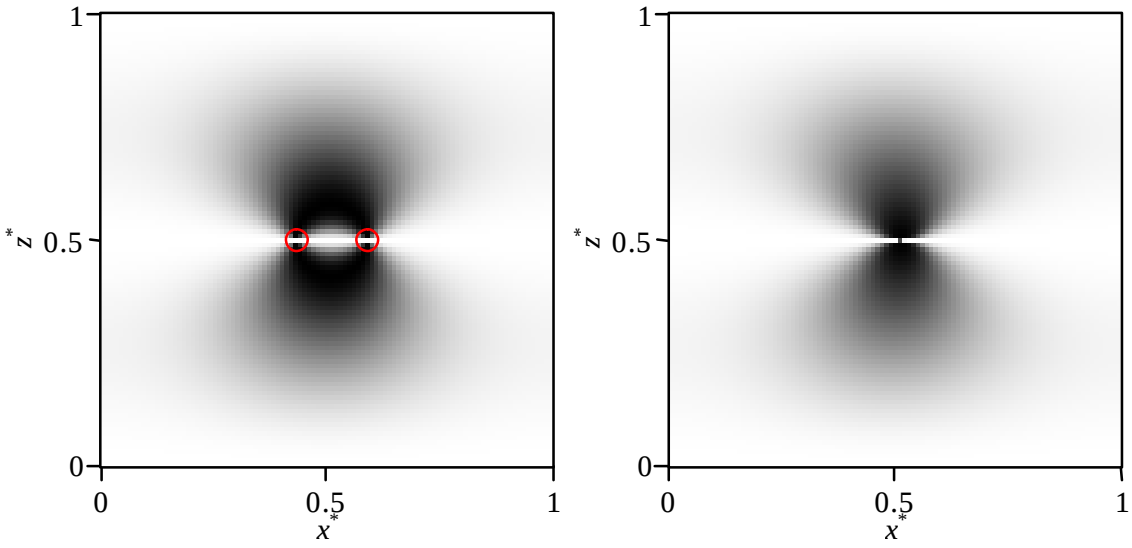


Fig.20 A time series of the molecular orientation field for l_i^* =0.1



(e) t^* =2.2 (f) t^* =2.75



(g) t^* =3.3 (h) t^* =3.85

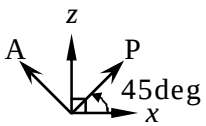
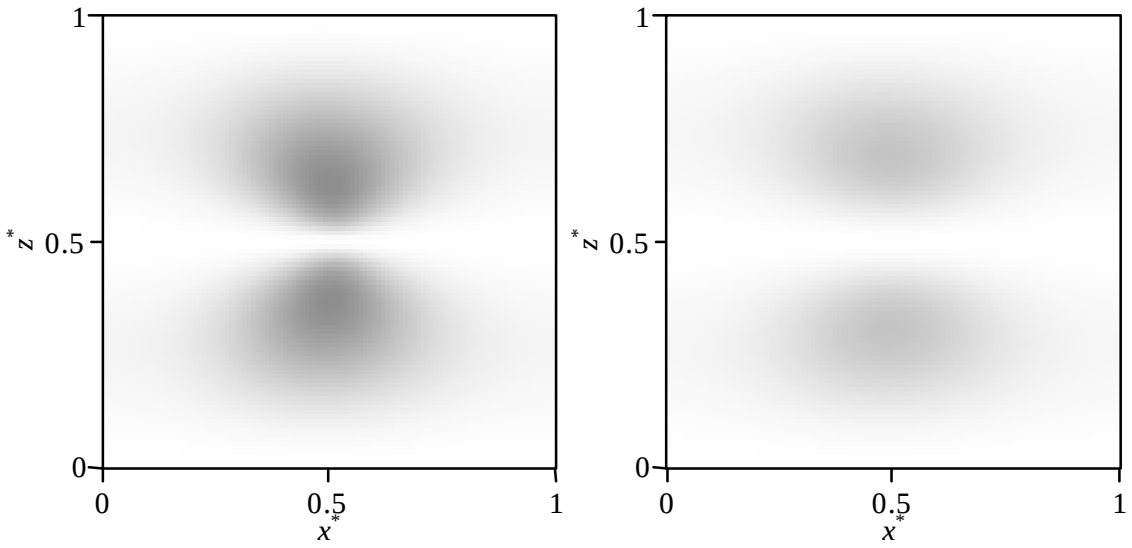
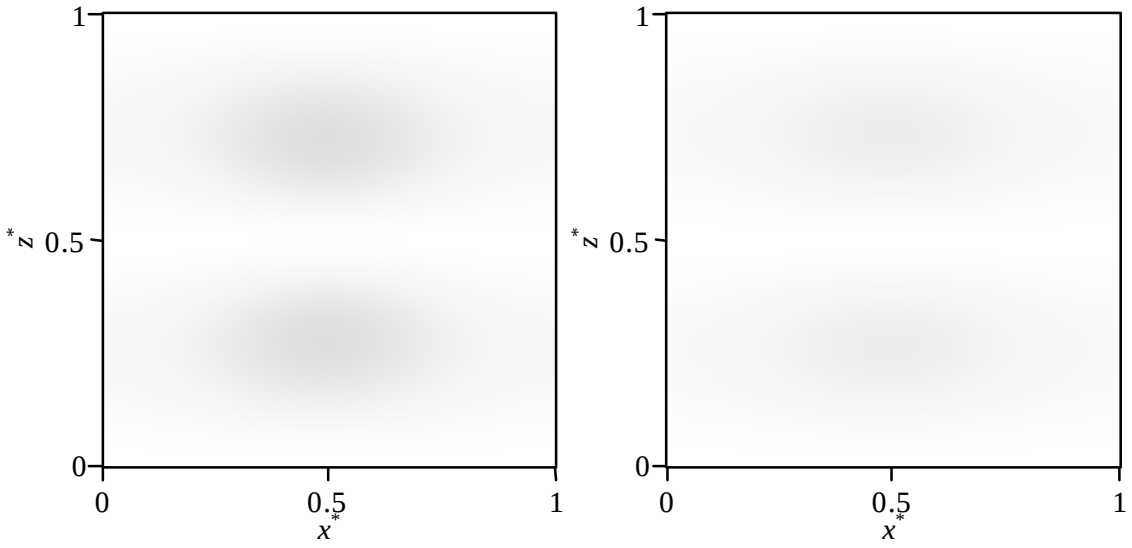


Fig.20 A time series of the molecular orientation field for l_i^* =0.1



(i) t^* =4.4 (j) t^* =4.95



(k) t^* =5.5 (l) t^* =6.05

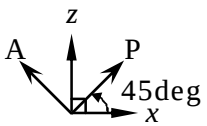
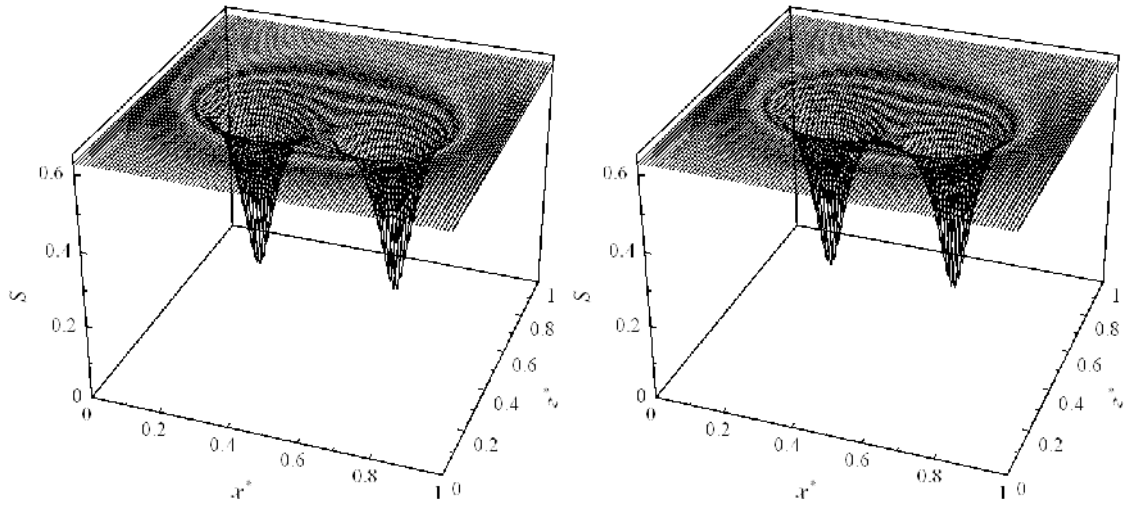
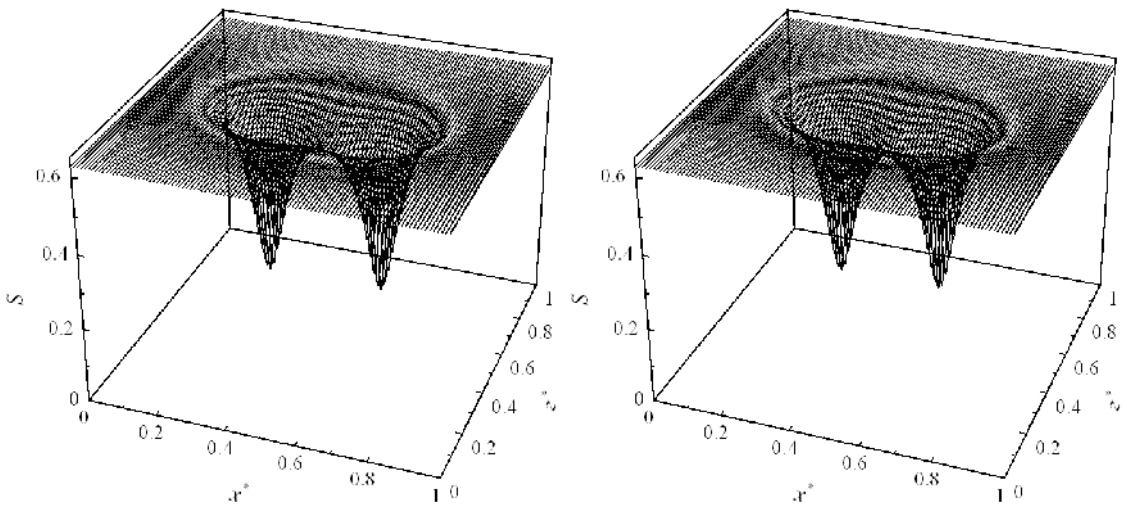


Fig.20 A time series of the molecular orientation field for l_i^* =0.1

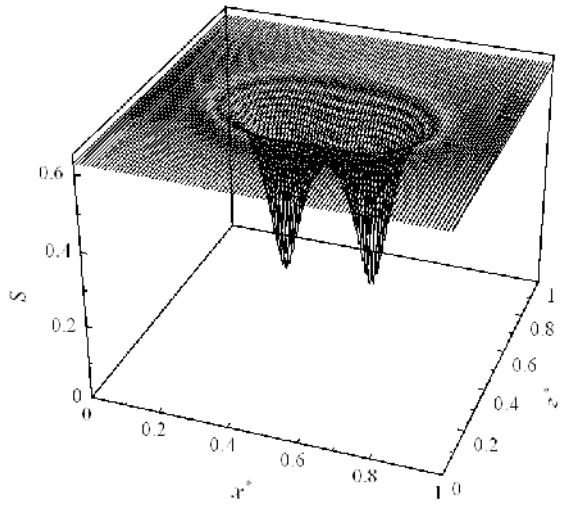


(a) t^* =0 (b) t^* =0.55

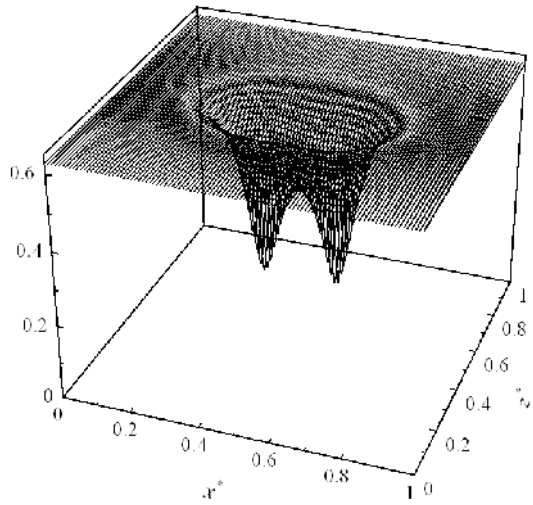


(c) t^* =1.1 (d) t^* =1.65

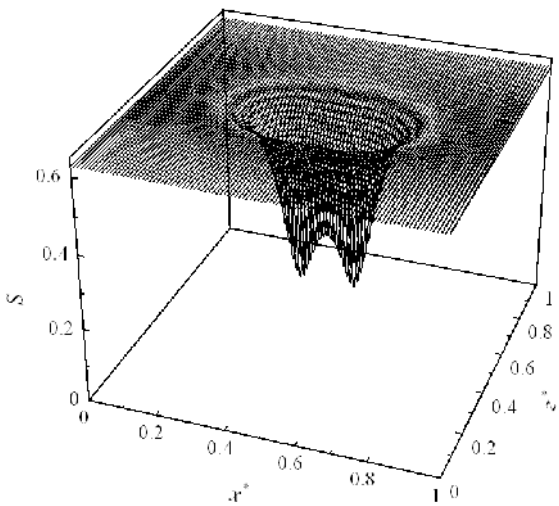
Fig.21 A time series of the orientation order parameter field for l_i^* =0.1



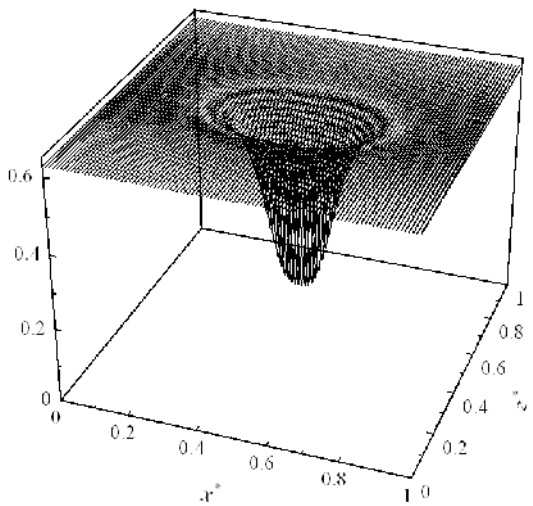
(e) t^* =2.2



(f) t^* =2.75

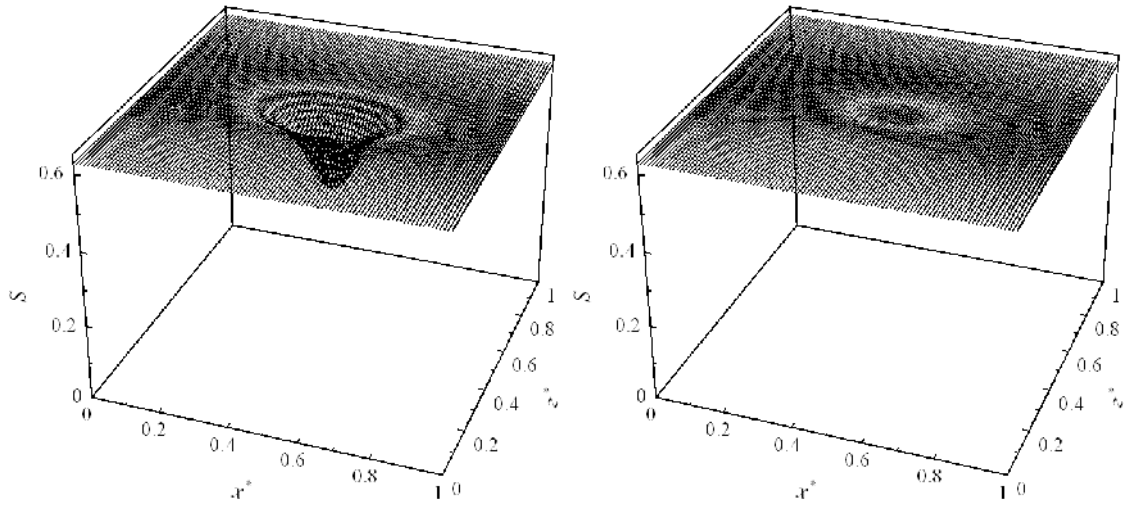


(g) t^* =3.3

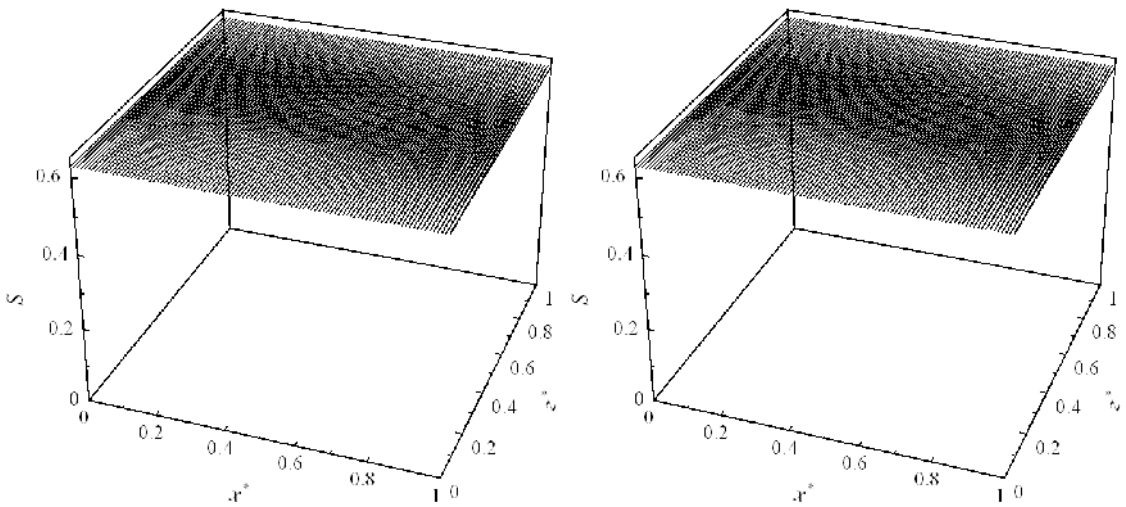


(h) t^* =3.85

Fig.21 A time series of the orientation order parameter field for l_i^* =0.1



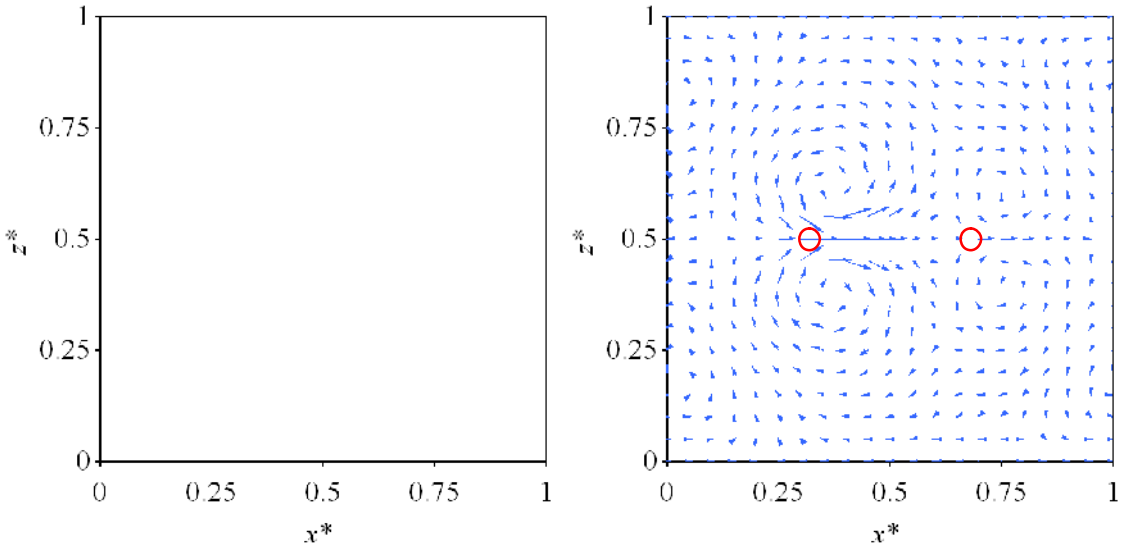
(e) t^* =4.4 (f) t^* =4.95



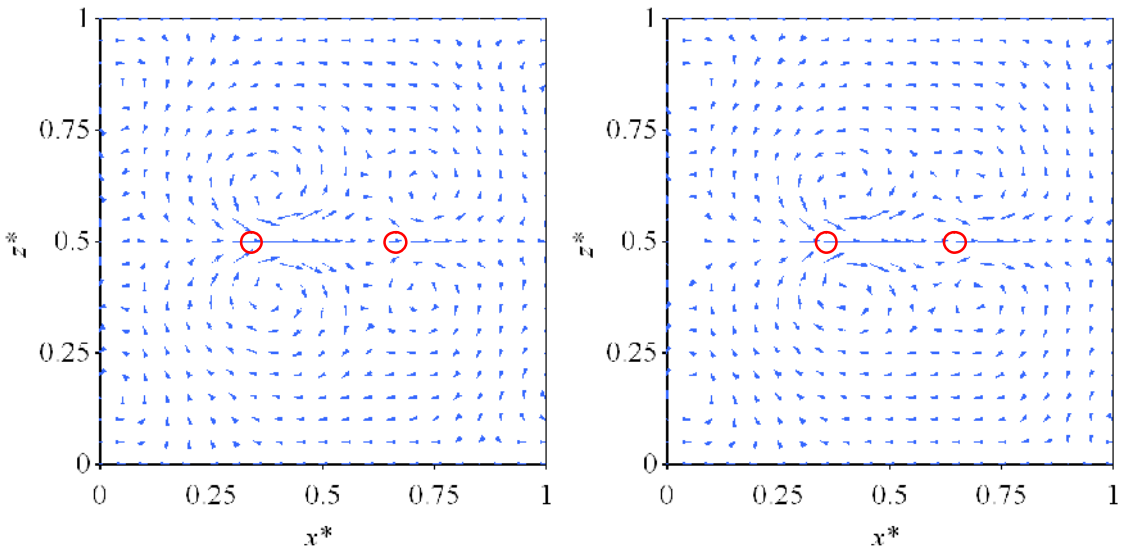
(g) t^* =5.5 (h) t^* =6.05

Fig.21 A time series of the orientation order parameter field for l_i^* =0.1

図 22(a)～(l)に図 20 と同パラメータ, 同時刻における速度分布を示す. 各図の横軸は x^* , 縦軸は z^* であり，速度ベクトルの基準となるベクトルを図の下に示す．また図中の○は欠陥核の位置を示す．図から液晶流動が誘起されていることが確認できる．また液晶欠陥構造は計算領域内において上下対称であるため速度分布も上下対称となっている．一方，左右欠陥核近傍の速度ベクトルを比較した場合明らかに左側欠陥核近傍の速度ベクトルが大きい．このことから液晶欠陥構造の違いにより欠陥核の周りに誘起される速度分布に違いが生じることが分かる. また左側欠陥核近傍の速度ベクトルは右側欠陥核方向に向いているのに対して，右側欠陥核近傍の速度ベクトルは左側欠陥核方向（負の x^* 軸方向）とは反対の方向（正の x^* 軸方向）を向いていることが分かる．さらに図 20 での液晶欠陥の挙動と比較することにより欠陥対消滅過程（図 22(a)～(h)）において速度ベクトルが発達していることが確認できる．加えて液晶欠陥間を結ぶ直線上（z^* =0.5 上）の速度ベクトルが最も発達しており, 液晶欠陥が対消滅する位置で最大となる速度ベクトルが発生していることが分かる. これらのことから欠陥対消滅過程で誘起される液晶流動をアクチュエータに用いる際には液晶欠陥間の直線上に誘起される液晶流動を用いれば最も効率的であると言える. また欠陥核の周りの液晶流動は渦状であり，図 22(b)では計算領域内に合計 6 個の渦が誘起されているが，図 22(h)では合計 4 個に，さらに図 22(l)では合計 2 個に減少するとともに渦形状も変化していることが分かる.



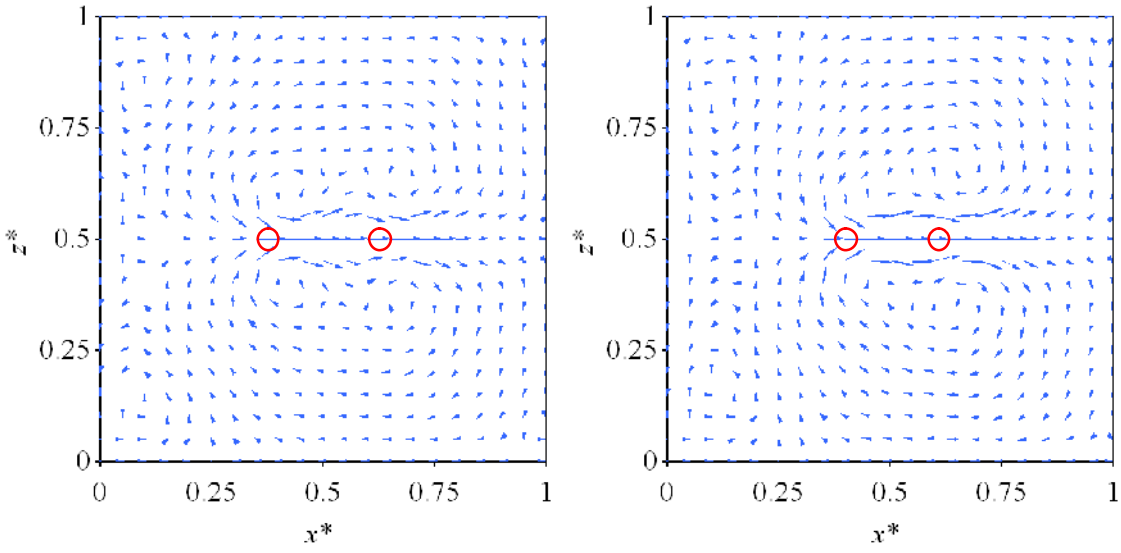
(a) t^* =0 (b) t^* =0.55



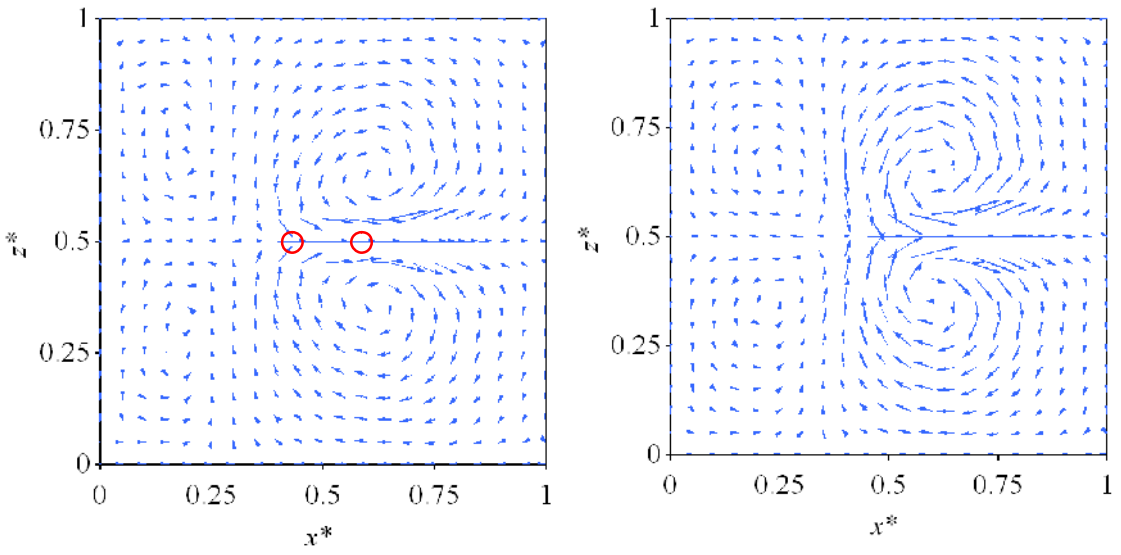
(c) t^* =1.1 (d) t^* =1.65

→ 40μm/s

Fig.22 A time series of the velocity field for l_i^* =0.1



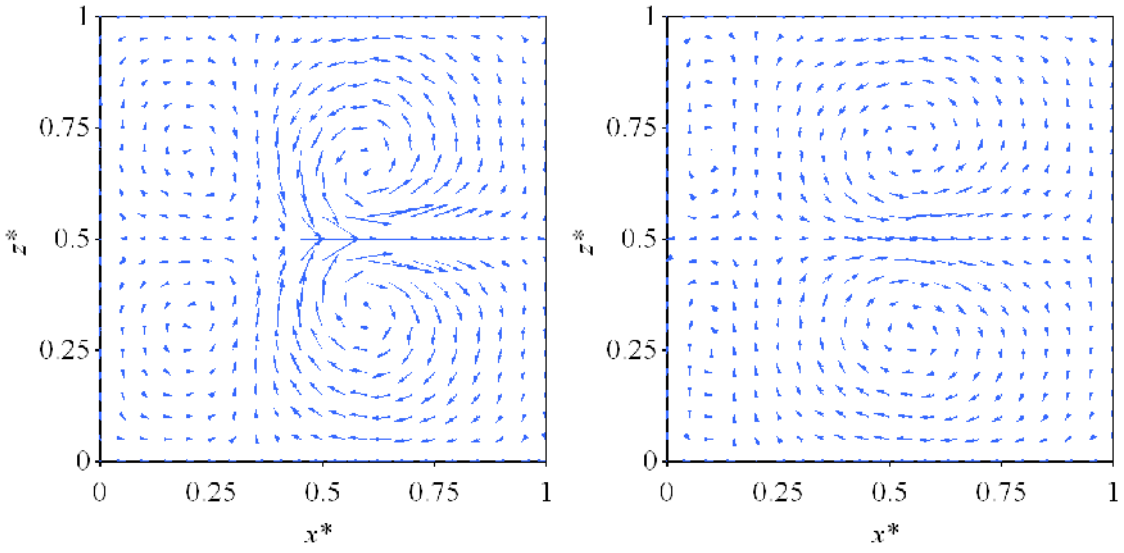
(e) t^* =2.2 (f) t^* =2.75



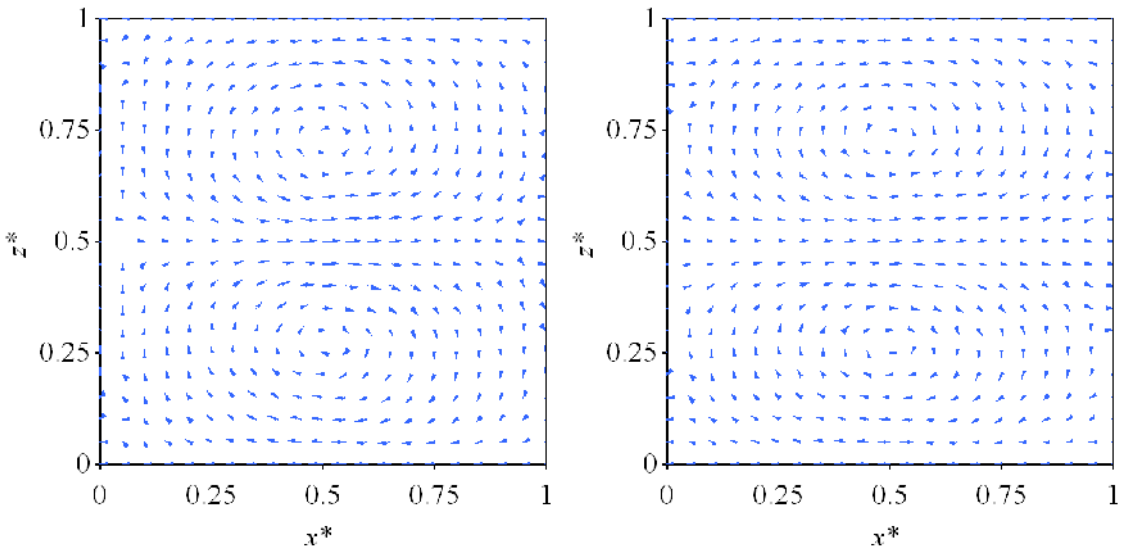
(g) t^* =3.3 (h) t^* =3.85

→ 40μm/s

Fig.22 A time series of the velocity field for l_i^* =0.1



(a) t^* =4.4 (b) t^* =4.95



(c) t^* =5.5 (d) t^* =6.05

→ 40μm/s

Fig.22 A time series of the velocity field for l_i^* =0.1

次に図 23(a)～(j)に l_i^* =0.02 の場合の t^* =0 および 0.2～217.2 までの Δt^* =27 間隔での分子配向場における配向方向の空間分布を示す．各図の横軸は x^*，縦軸は z^* であり，偏光方向および検光方向を図の下に示す．また図中の○は欠陥核の位置を示す．図から液晶分子の長距離効果の強度を表す物理量が小さくなったことにより一対の液晶欠陥がお互いを引き付け合う力が弱まり，l_i^* =0.1 の場合液晶欠陥が対消滅する時刻が t^* =3.85 であるのに対して l_i^* =0.02 の場合 t^* =190.2 と大幅に増加していることが分かる．しかし欠陥対消滅過程での液晶欠陥の挙動そのものには変化は見られない．

図 24(a)～(j)に図 23 と同パラメータ，同時刻における配向秩序パラメータ S の空間分布を示す．図の横軸は x^*，奥行き方向の軸は z^* であり，縦軸に配向秩序パラメータの値を示す．図から液晶分子の長距離効果の強度を表す物理量 l_i^* が小さくなったことにより液晶欠陥を中心とした配向秩序パラメータの値が低い領域が小さくなっていることが分かる．つまり l_i^* =0.1 の場合よりも配向秩序パラメータの変化が小さいため誘起される速度も小さくなると考えられる．

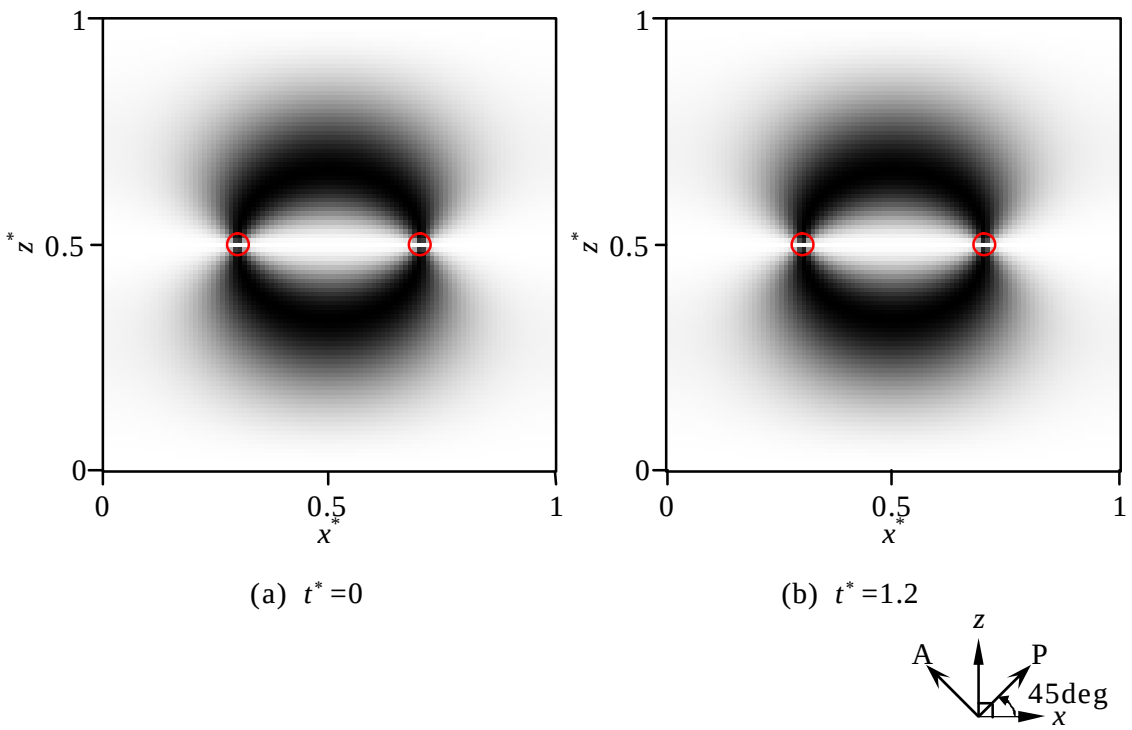
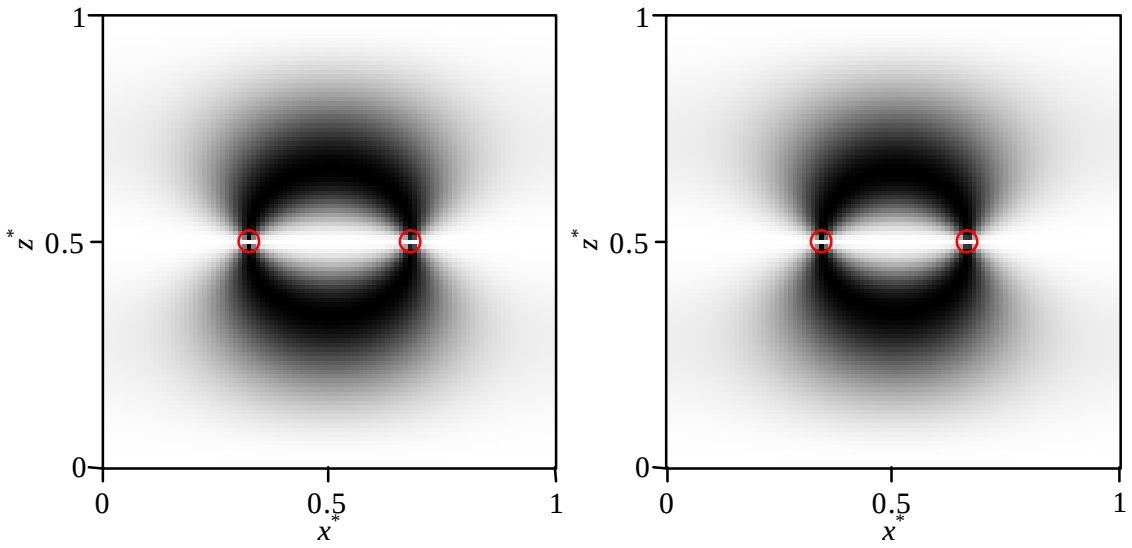
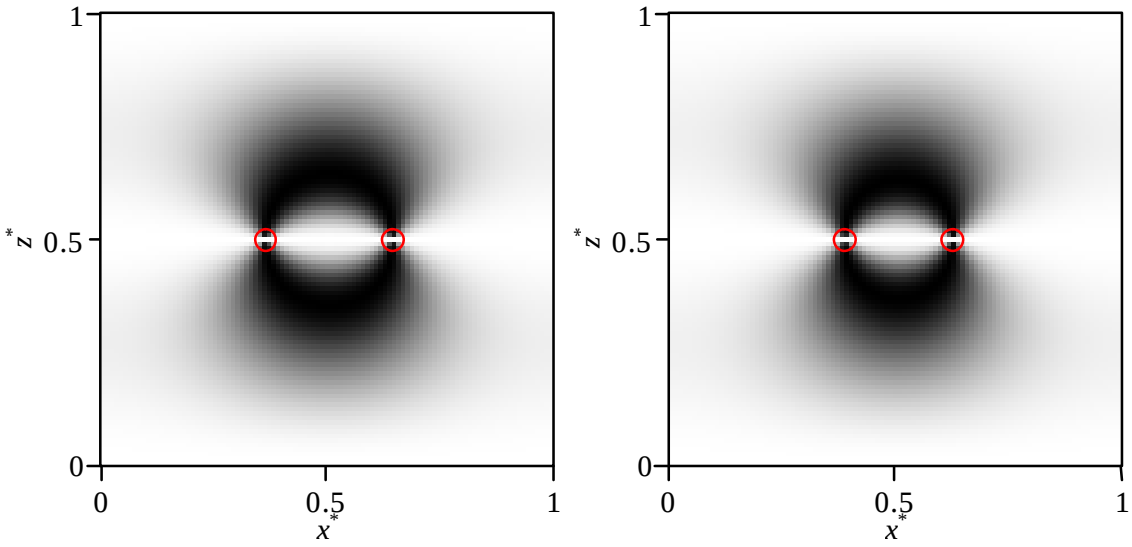


Fig.23 A time series of the molecular orientation field for l_i^* =0.02



(c) t^* =28.2 (d) t^* =55.2



(e) t^* =82.2 (f) t^* =109.2

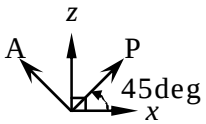
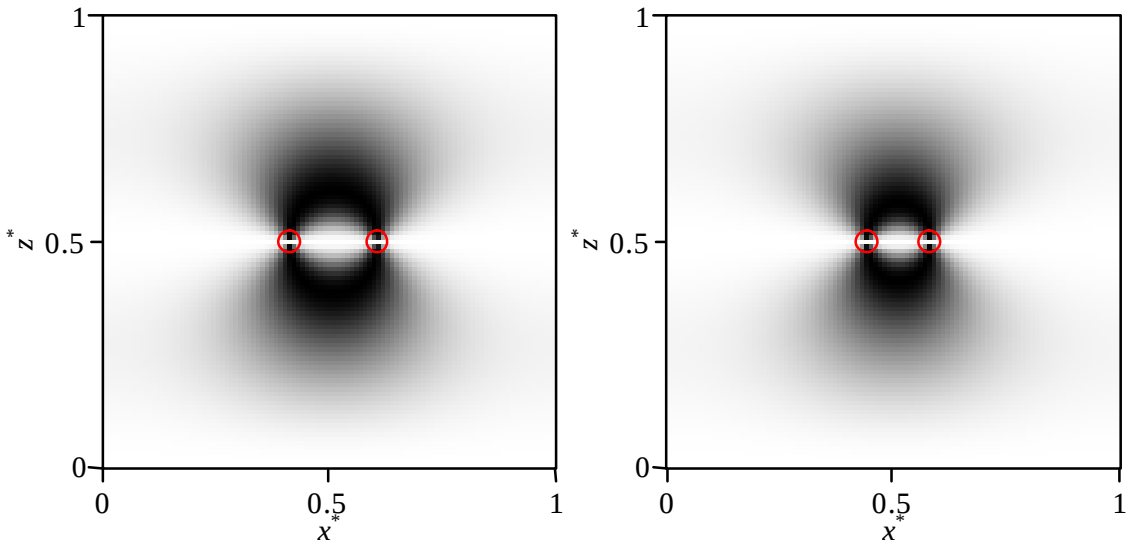
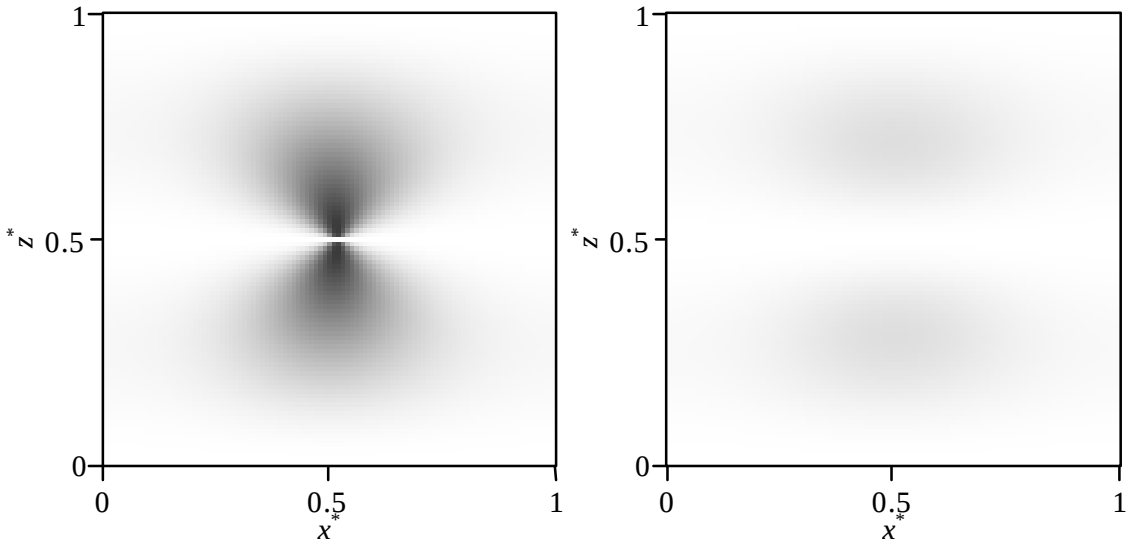


Fig.23 A time series of the molecular orientation field for l_i^* =0.02



(g) t^* =136.2 (h) t^* =163.2



(g) t^* =190.2 (h) t^* =217.2

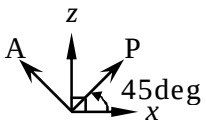
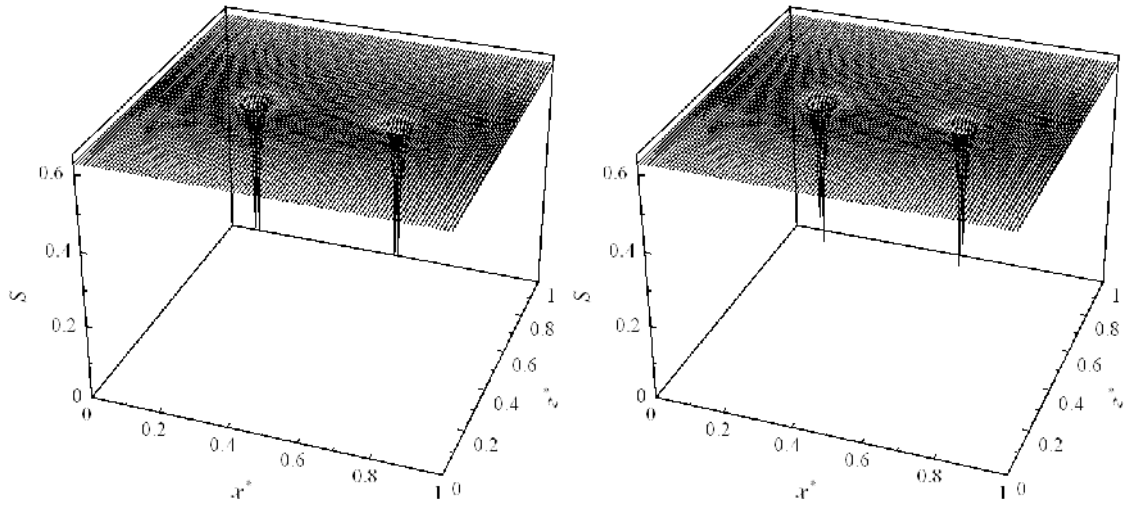
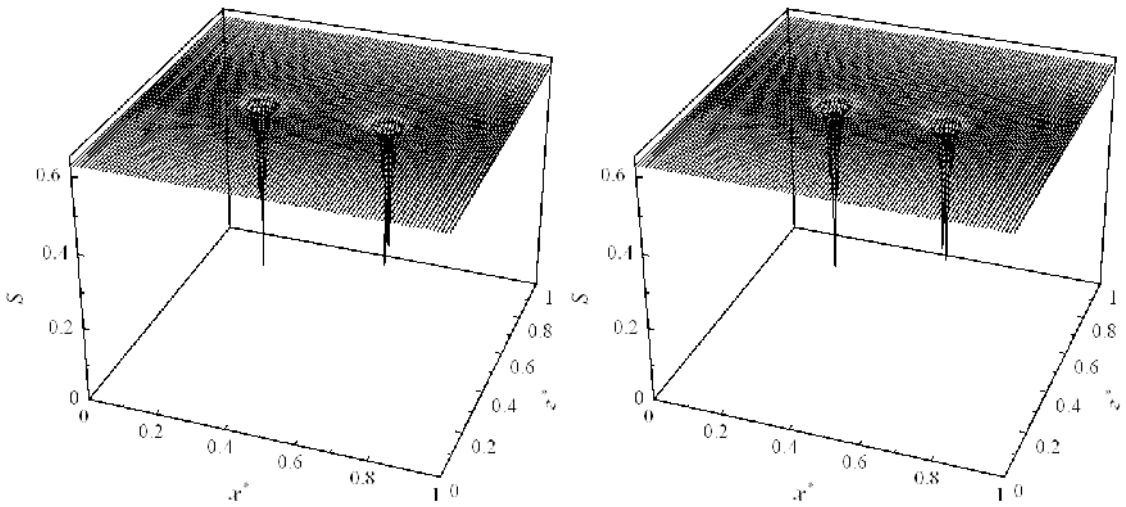


Fig.23 A time series of the molecular orientation field for l_i^* =0.02

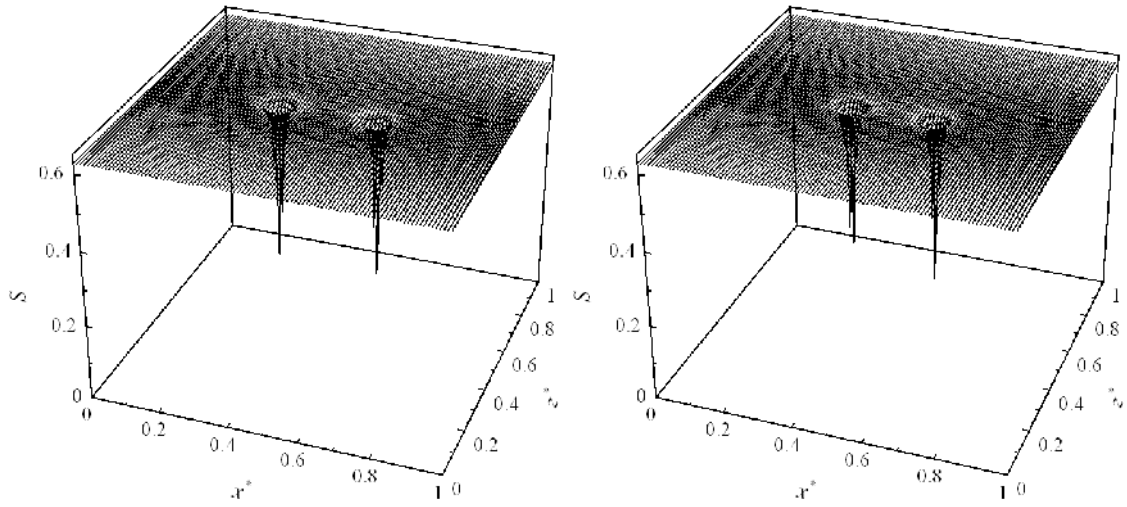


(a) t^* =0 (b) t^* =1.2

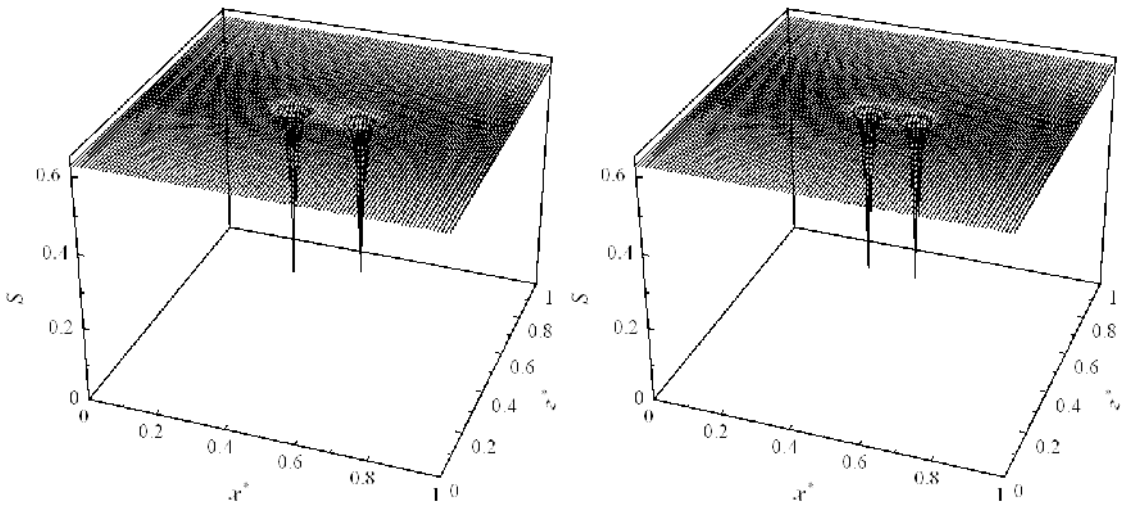


(c) t^* =28.2 (d) t^* =55.2

Fig.24 A time series of the orientation order parameter field for l_i^* =0.02

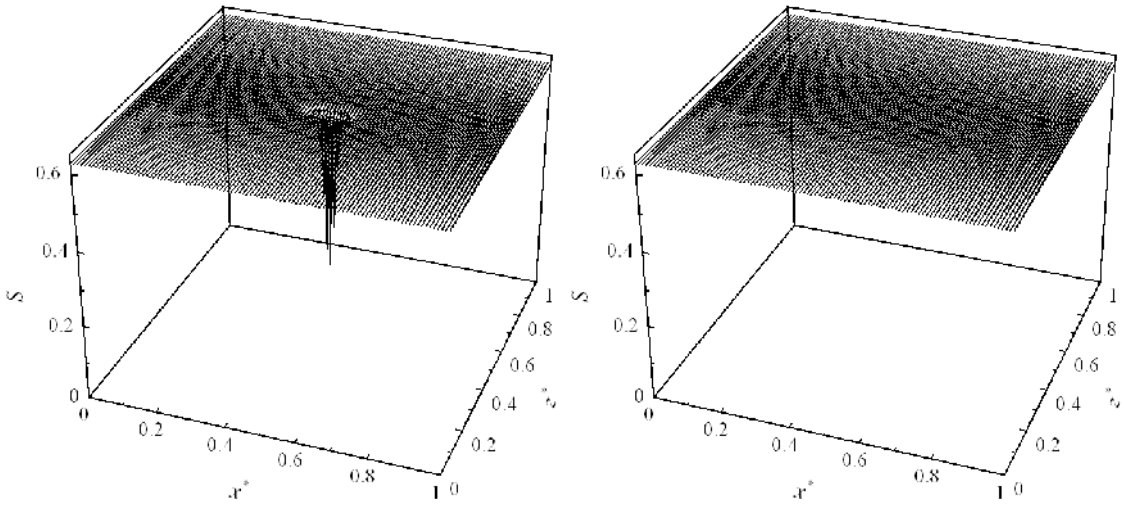


(a) t^* =82.2 (b) t^* =109.2



(c) t^* =136.2 (d) t^* =163.2

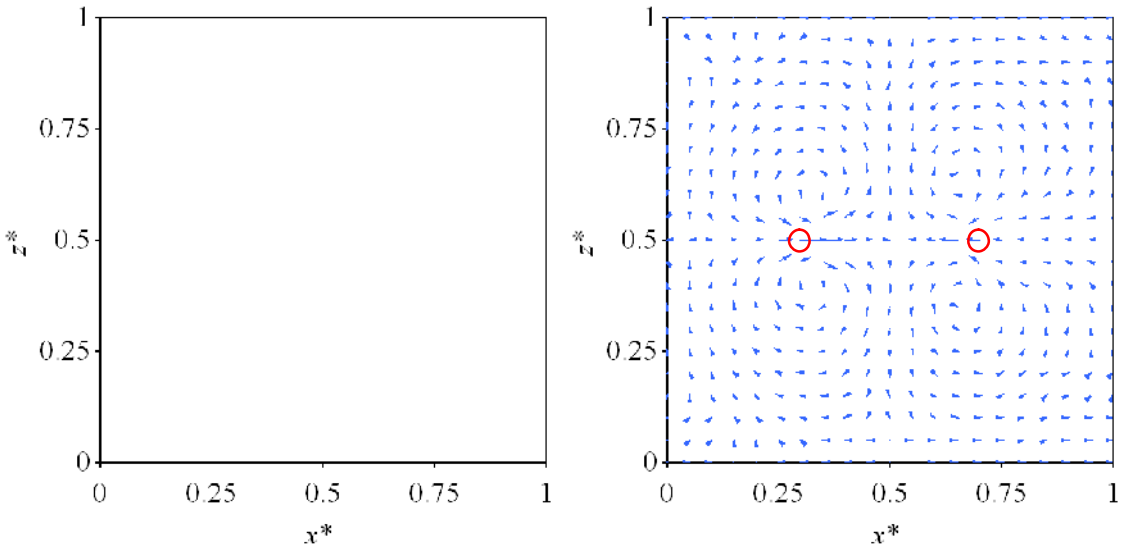
Fig.24 A time series of the orientation order parameter field for l_i^* =0.02



(c) t^* =190.2 (d) t^* =217.2

Fig.24 A time series of the orientation order parameter field for l_i^* =0.02

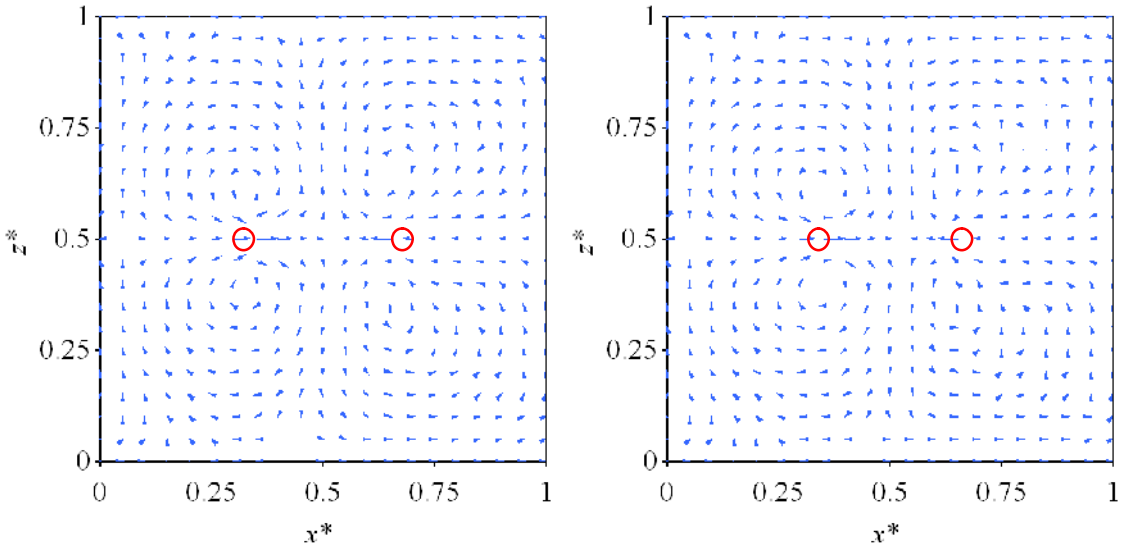
図 25(a)～(j)に図 23 と同パラメータ，同時刻における速度分布を示す．速度ベクトルの基準となるベクトルを図の下に示す．また図中の○は欠陥核の位置を示す．図から図 24 において述べたようにl_i^* =0.1 の場合よりも配向秩序パラメータの変化が小さいため誘起された速度ベクトルはl_i^* =0.1 の場合よりも小さくなっていることが確認できる．またl_i^* =0.1 の場合左側欠陥核近傍の速度ベクトルは右側欠陥核方向を，右側欠陥核近傍の速度ベクトルは左側欠陥核方向（負のx^*軸方向）とは反対の方向（正のx^*軸方向）を向いていたのに対して，l_i^* =0.02 の場合右側欠陥核近傍の速度ベクトルは左側欠陥核方向を向いていることが分かる．またt^* =1.2 では計算領域内に合計 4 個の渦が誘起されているが，t^* =217.2 では合計 2 個に減少するとともに渦形状も変化していることが分かる．図 22，25 から液晶欠陥構造だけではなくl_i^*の値によっても欠陥核近傍に発生する流動に違いが生じることが分かった．



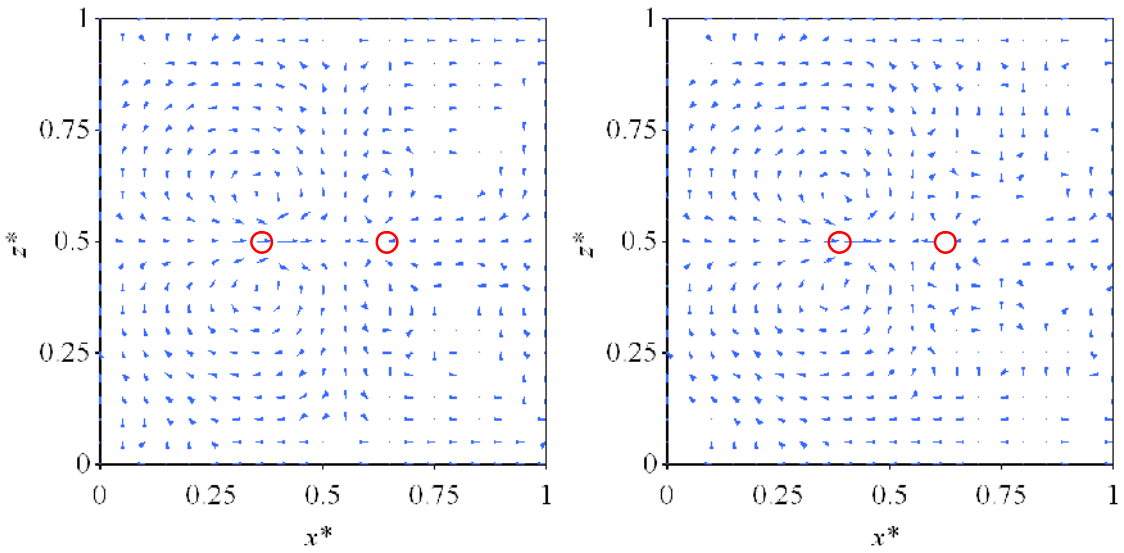
(a) t^* =0　　(b) t^* =1.2

⟶ 1μm/s

Fig.25 A time series of the velocity field for l_i^* =0.02



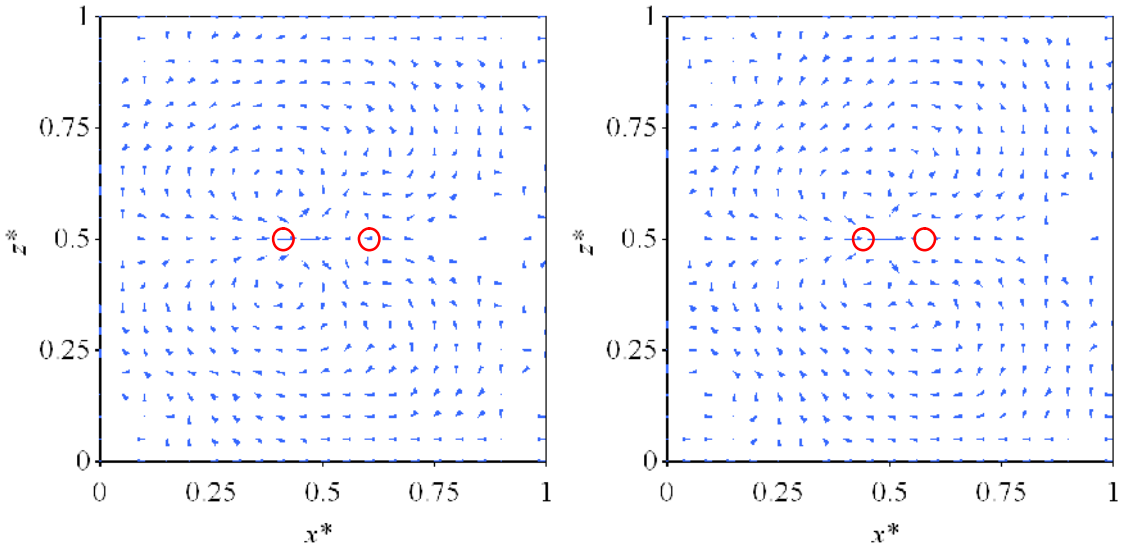
(c) t^* =28.2 (d) t^* =55.2



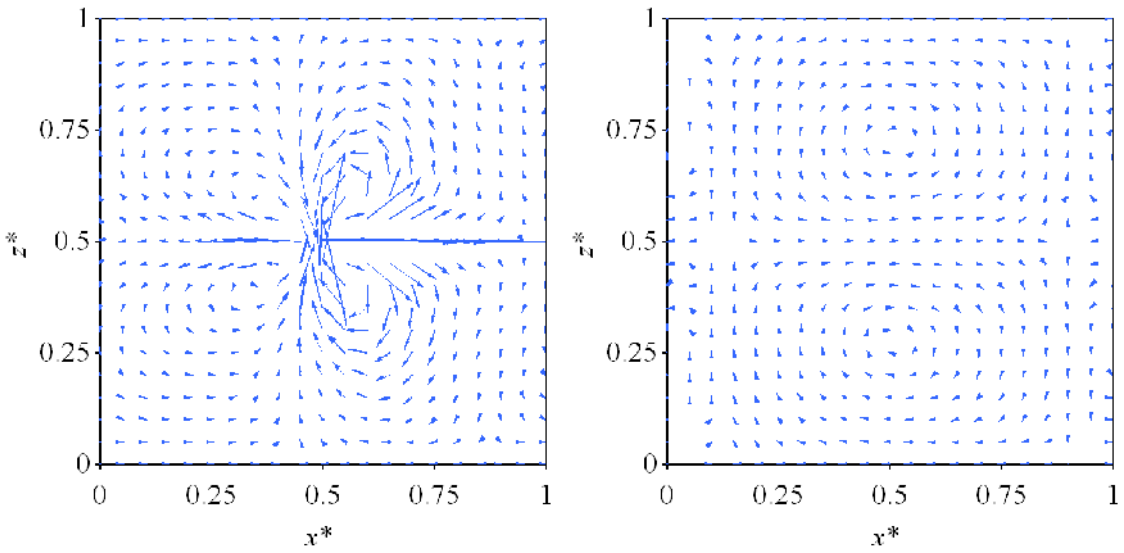
(e) t^* =82.2 (f) t^* =109.2

→ 1μm/s

Fig.25 A time series of the velocity field for l_i^* =0.02



(c) t^* =136.2 (d) t^* =163.2



(g) t^* =190.2 (h) t^* =217.2

→ 1μm/s

Fig.25 A time series of the velocity field for l_i^* =0.02

次にl_i^*と一対の液晶欠陥が対消滅に至るまでに要する時間の関係を図 26 に示す．図の横軸はt^*，縦軸は一対の液晶欠陥の位置（x^*軸座標）を示し，図中の各線はl_i^*=0.02～0.1 までの 0.02 刻みでの結果である．図からl_i^*が小さくなるとともに液晶欠陥が対消滅に至るまでに要する時間が対数的に長くなることが分かる．これはl_i^*が液晶分子間の相互作用力に相当するためであり，l_i^*が大きい場合液晶欠陥がお互いを引き付け合う力が強くなり欠陥対消滅に至るまでに要する時間が短く，逆にl_i^*が小さい場合長くなる．また図 22，25 で示したように液晶欠陥構造の違いにより左右液晶欠陥核近傍の速度分布が異なり，左側液晶欠陥核近傍の速度ベクトルが右側液晶欠陥核近傍の速度ベクトルよりも大きかった．そのため液晶欠陥は上下対象の挙動を示すものの領域中央（x^*=0.5）を軸として左右非対称な挙動を示すことが分かる．

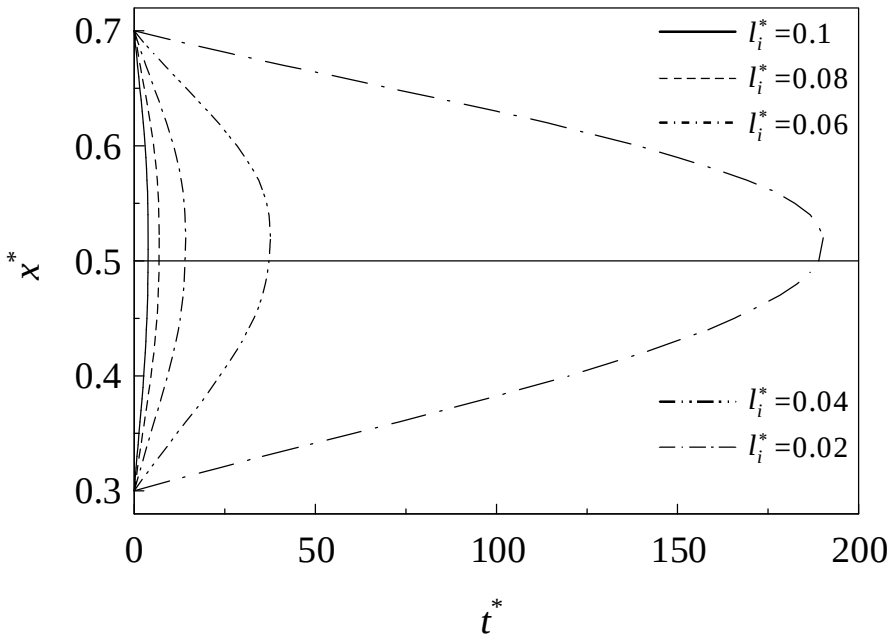


Fig.26 Relationship between l_i^* and behavior of a pair of defects

図 27 に最大速度$V_{\max}$が誘起される時刻t_m^*と液晶欠陥が対消滅する時刻t_a^*との関係を様々なl_i^*に対して示す．図から液晶欠陥が対消滅する時刻と最大速度が誘起される時刻はほぼ一致することが分かる．

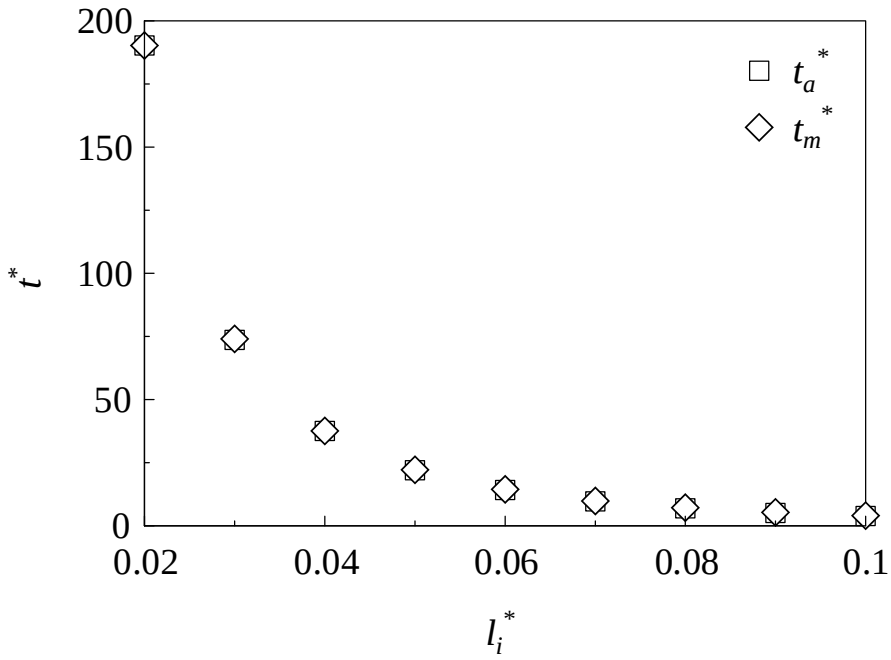


Fig.27 Relationship between t_m^* when the fluid velocity becomes the maximum and t_a^* when a pair of defects annihilated

次にV_{max}とl_i^*の関係を図 28 に示す．図からl_i^*が小さくなるとともに誘起される最大速度も小さくなることが分かる．図 26 ではl_i^*が小さくなるとともに液晶欠陥が対消滅に至るまでに要する時間は対数的に長くなっていた．しかし誘起される最大速度はl_i^*が小さくなるとともにほぼ線形的に減少していることが分かる．

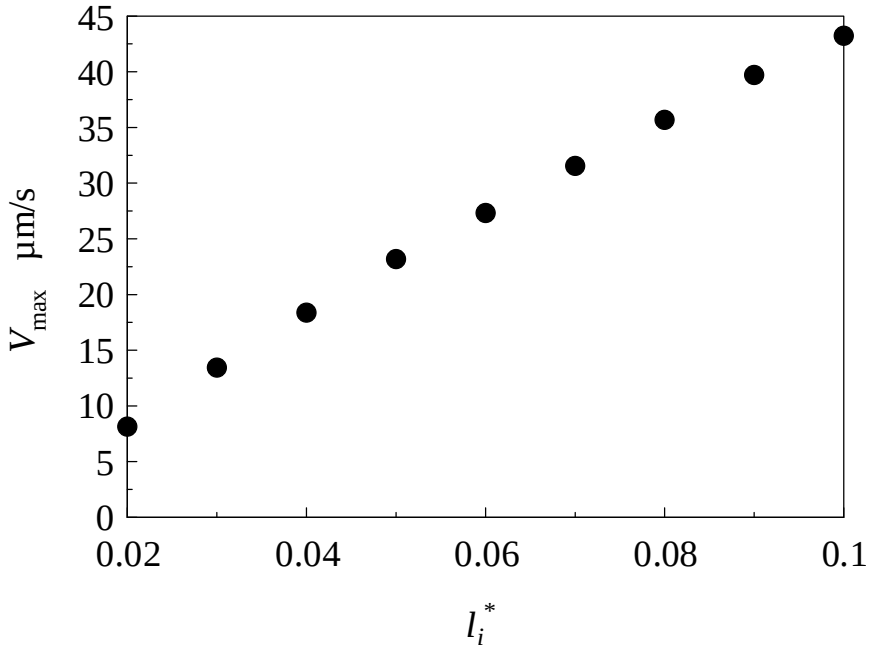


Fig.28 Relationship between maximum velocity and l_i^*

アクチュエータとして欠陥対消滅が誘起する液晶流動を応用するためには熱による影響を検討する必要がある. 本研究において熱の影響を表すパラメータはネマティックポテンシャル強度Uである．そこでUの変化が分子配向場に及ぼす影響を示すため, 図 29 にU=5，5.5，6 の場合の液晶欠陥が対消滅に至るまでに要する時間を示す. 図からUが大きくなるとともに液晶欠陥が対消滅に至るまでに要する時間が線形的に短くなっていることが分かる.

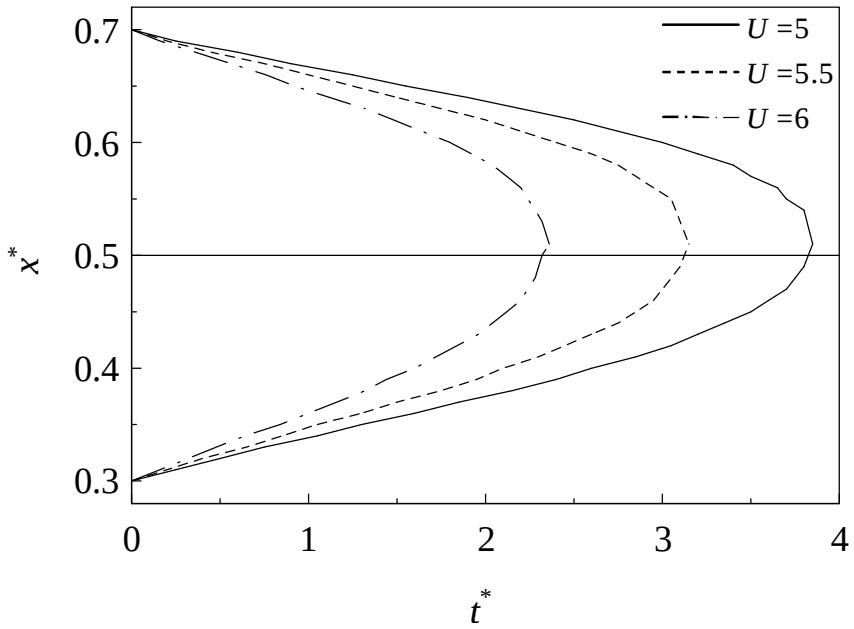


Fig.29 Relationship between nematic potential strength and behavior of a pair of defects

次に図 30 にV_{max}とUの関係を示す．図よりUが大きくなるとともに誘起されるV_{max}が線形的に大きくなることが分かる．

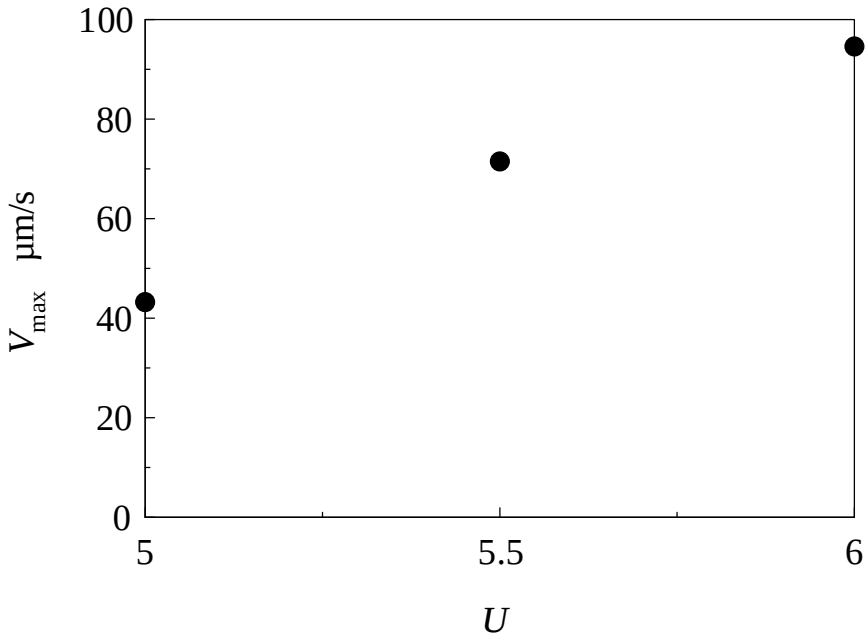


Fig.30 Relationship between nematic potential strength and maximum velocity

4・4 結　言

本研究では，Marrucci らが提案したポテンシャルを適用した土井理論、および Feng らが提案した構成方程式を基礎式として一対の液晶欠陥が対消滅する過程において誘起する液晶流動について数値計算を行った．得られた結果を以下に示す．

(1) 一対の液晶欠陥が互いに引き付け合い，最終的に対消滅する過程において渦状の液晶流動が誘起されることを数値解析により明らかにした．

(2) 液晶分子の長距離効果の強度を表す物理量によって液晶欠陥が対消滅に至るまでに要する時間が異なることが分かった．

(3) 誘起される液晶流動は液晶欠陥構造および液晶分子の長距離効果の強度を表す物理量の大きさによって異なることが分かった．

(4) 液晶欠陥が対消滅する時に最大となる液晶流動が誘起されることが分かった．

(5) ネマティックポテンシャル強度が大きくなるとともに液晶欠陥が対消滅に至るまでに要する時間が線形的に長くなるとともに誘起される最大速度も線形的に大きくなることが分かった．

第 5 章　欠陥対消滅が誘起する液晶流動の実験的測定

5・1　研究背景および研究目的

液晶アクチュエータを開発するために一対の液晶欠陥が対消滅する過程において誘起される液晶流動の大きさを数値解析によって明らかにした．しかしながら，液晶アクチュエータを開発するためには実験結果と数値解析結果の比較検討が当然必要である．そこで本章では一対の液晶欠陥が対消滅する過程において誘起される液晶流動を解明することを目的として，欠陥対消滅過程において誘起される液晶流動を実験により測定した．

5・2　実験

5・2・1　実験装置

実験装置の概要を図 31 に示す．実験装置はおもにスライドガラス，カバーガラス，真球状ポリスチレン微粒子，温度制御装置および加熱ステージ，偏光顕微鏡，動画撮影用カメラ，PC から構成されている．用いた機器および試薬を以下に示す．

- スライドガラス：　松浪硝子工業株式会社製　MICRO SLIDE GLASS 76×26×0.9～1.2 mm，プレクリン水縁磨
- カバーガラス：　松浪硝子工業株式会社製　MICRO COVER GLASS 20×20×0.12～0.17mm
- ポリスチレン微粒子：　株式会社積水化学社製　ポリスチレン微粒子 φ2.5μm，φ50μm
- 温度制御装置　METTLER TOLEDO 株式会社製 FP900 コントロールユニット
- 加熱ステージ：　METTLER TOLEDO 株式会社製 顕微鏡用加熱ステージ FP82HT
- 偏光顕微鏡：　Nicon ECLIPSE E600 POL
- 動画撮影用カメラ：　MINTRON MTV-6368
- MBBA：　東京化成工業株式会社製　試薬

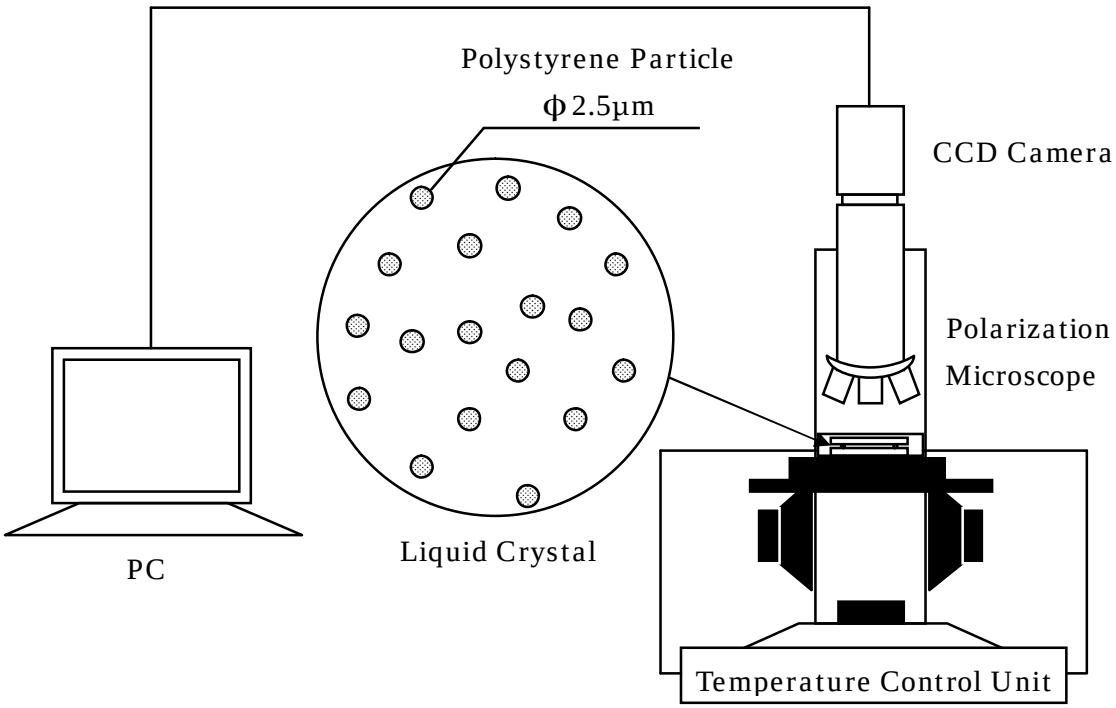


Fig.31 Structure of experimental sets

5・2・2　可視化

欠陥対消滅過程において誘起される液晶流動を可視化するために，直径 2.5μm の微粒子を以下の手順で液晶中に混入した.

1. 0.085cc の液晶に直径 2.5μm の微粒子を 0.01g 混入し，さらにスペーサとして直径 50μm の微粒子を 0.005g 混入する.
2. 1.で作成した微粒子の混入された液晶を攪拌し，可視化用液晶とする.

ここで図 32 に示すように微粒子の相互作用長さをl_p，微粒子の半径をrとすると液晶内に存在する微粒子の体積分率はl_p/rで得られる. 本調整において微粒子と液晶の密度を$1\mathrm{g/cm^3}$とすると，l_p/rの計算値はおよそ 34.2 である．ここで本研究における偏光顕微鏡視野サイズは 240×180μm である. このことから視野内にはおよそ 32 個程度の微粒子が存在することになる．実際の実験では視野内に 16，17 個程度と計算値よりも少なかったが，空間的に相互の影響を受けない距離で存在しているため，この体積分率で実験を行うこととした.

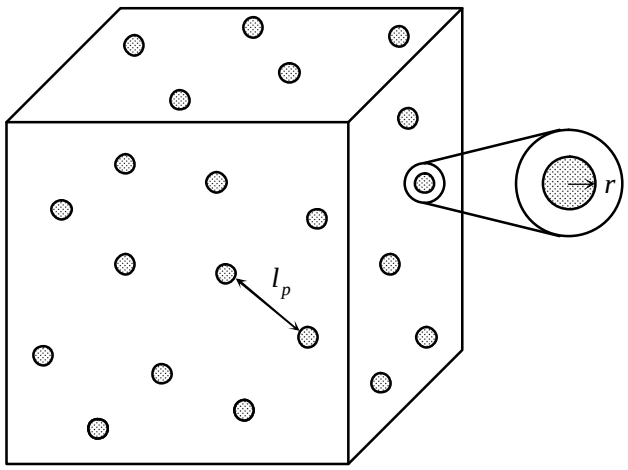


Fig.32 Volume fraction of particles

5・2・3　実験方法

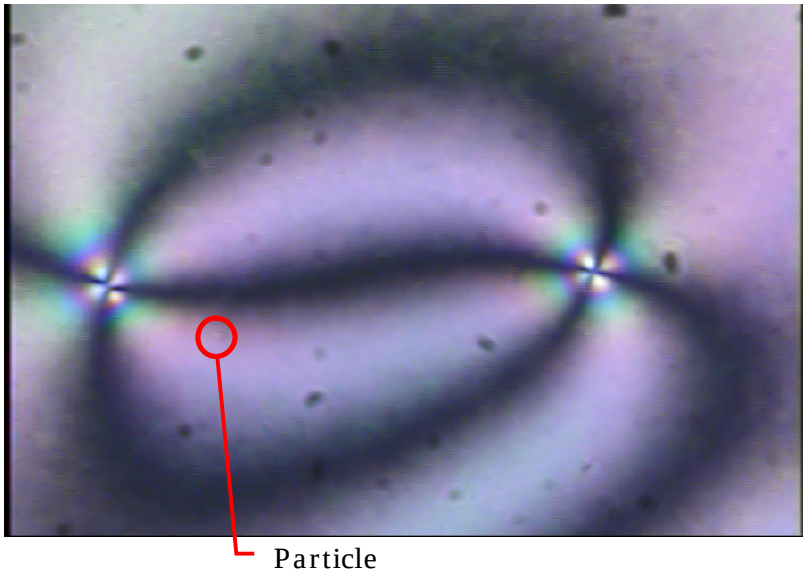
本研究では最も代表的なサーモトロピック型ネマティック液晶である MBBA を用いる．MBBA の化学構造は図 3 に示されている．また MBBA は等方相からネマティック相へ 320K で相転移する．

欠陥対消滅過程において誘起される液晶流動の測定は以下の手順によって行う．

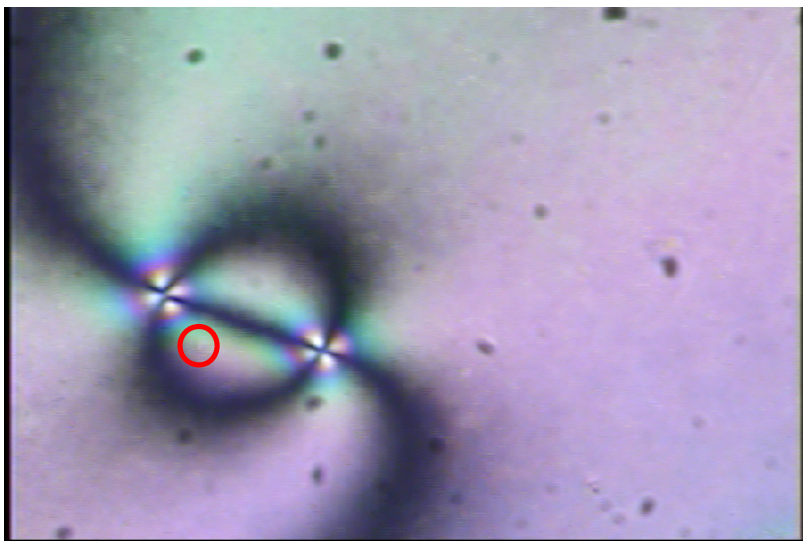
1. スライドガラス上に攪拌した微粒子入りの液晶を 10μℓ 滴下し，その上にカバーガラスを置き 1 セットとした（スライドガラス，カバーガラスの内側表面には液晶分子を任意に配向させることのできる表面処理はしていない）．
2. 上記処理後の 1 セットを加熱ステージに取り付けた後顕微鏡ステージ上に設置し，液晶にピントを合わせる．
3. 温度制御装置を用いて等方－液晶相転移温度付近にまで冷却し，液晶欠陥を発生させる．
4. 相転移温度を維持しつつ，加熱ステージ内のスライドガラスを水平方向，および奥行き方向にトラバースさせることによって一対の液晶欠陥を視野内に納める．
5. 一対の液晶欠陥周辺に存在する微粒子の運動を撮影する．撮影時のフレームレートは 30 フレームとし，観測開始から欠陥対消滅後 7s 間撮影を行った．

5・2・4　解析方法

図 33(a), (b)に実験で撮影した動画から抜き出した画像の一例を示す．図から微粒子が移動していることが確認できる．この動画を画像解析することにより微粒子の時間に対する移動量が得られる．



(a) Before moving particle

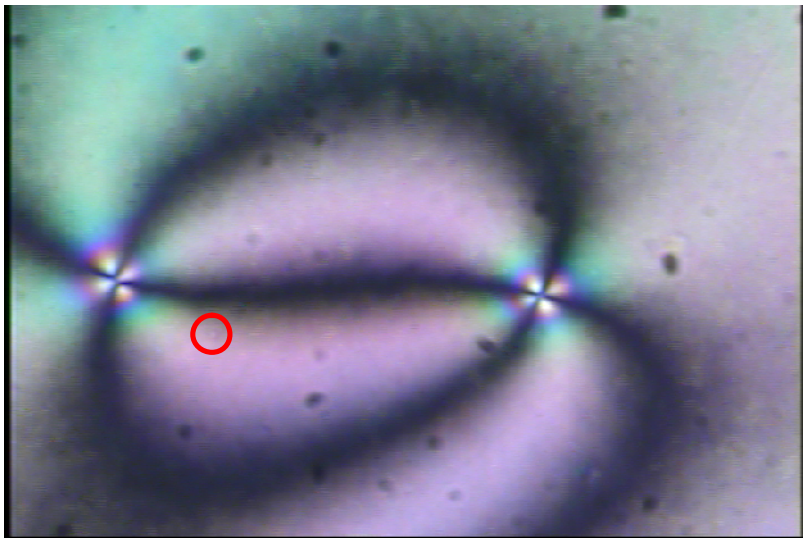


(b) After moving particle

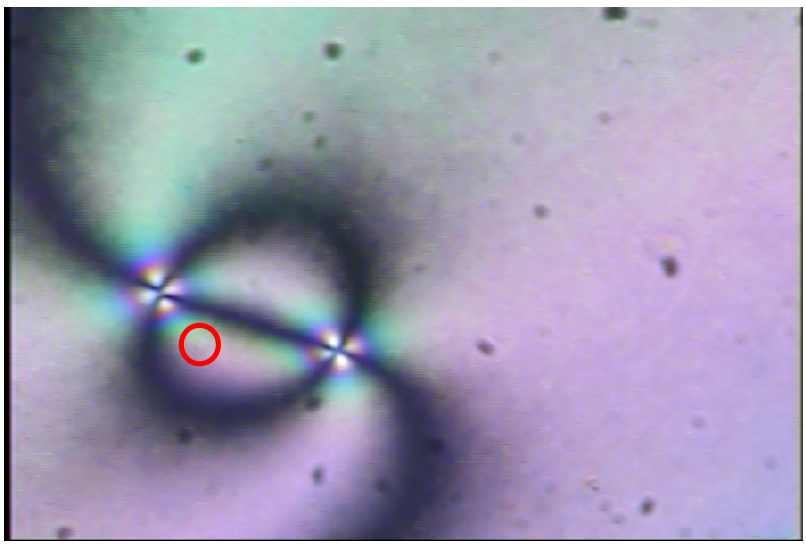
Fig.33 Experimental images

5・3　実験結果および考察

図 34(a)～(d)に観測開始時間を t =0 s とした場合の t =0～15s の t =5s 間隔での液晶欠陥および微粒子の偏光顕微鏡観測画像を示す. 暗視野領域の交差する部分が液晶欠陥であり，○で示す部分に混入した微粒子が存在している．図から一対の液晶欠陥がお互いに引き付け合い，最終的に消滅する様子が確認できるとともに，液晶欠陥の挙動に付随して微粒子が移動していることも確認できる．液晶欠陥は t =10s で対消滅している.

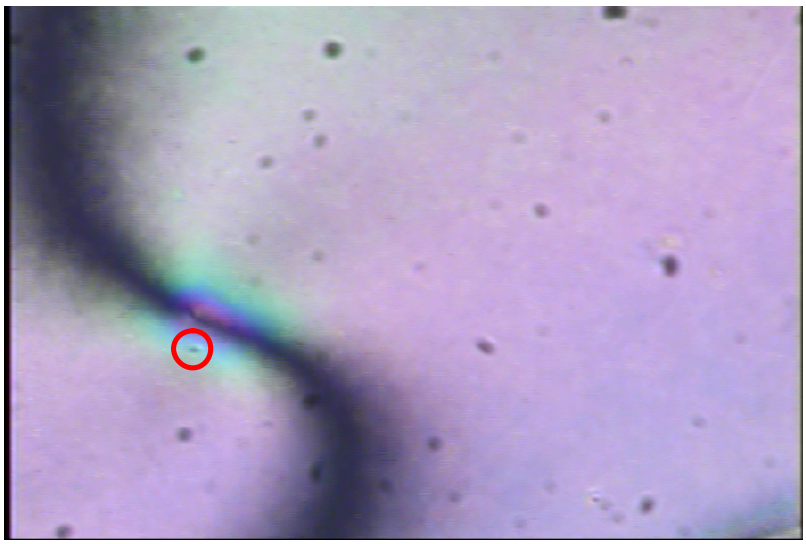


(a)　t =0s

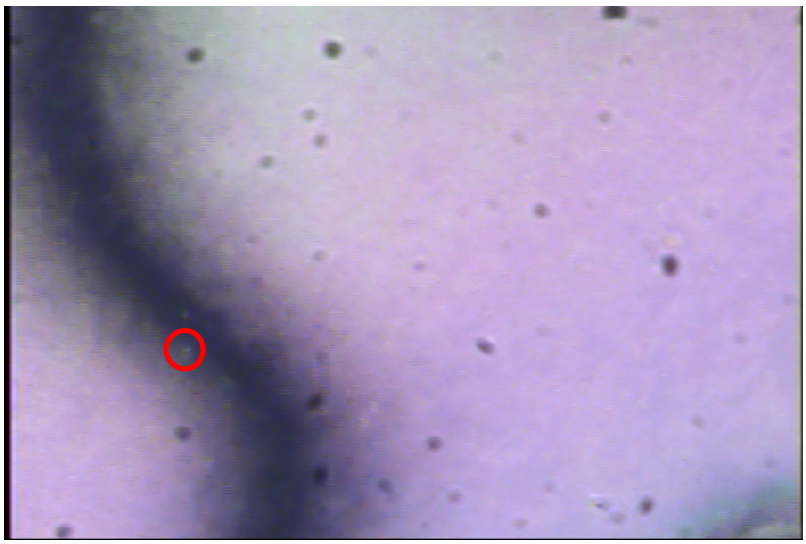


(b)　t =5s

Fig.34 Observation of moving particle



(c) t=10s



(d) t=15s

50μm

Fig.34 Observation of moving particle

図 35 にt=0s での微粒子の位置からの時間tに対する微粒子の移動量l_dを示す．図の横軸は時間t, 縦軸は微粒子の移動量l_dである．図から$t \leq$8s では微粒子の移動量は徐々に増加し，液晶欠陥が対消滅するt=10s 付近（t=8～12s）で微粒子の移動量が大幅に増加していることが分かる．そして$t \geq$12s では微粒子の移動量は徐々に減少していることが分かる．この結果から液晶欠陥が対消滅する過程において液晶流動が誘起されることが確認できるとともに，液晶流動は欠陥対消滅時に最も大きくなることが確認できる．誘起された液晶流動の瞬間最大速度は 19.8μm/s であった．

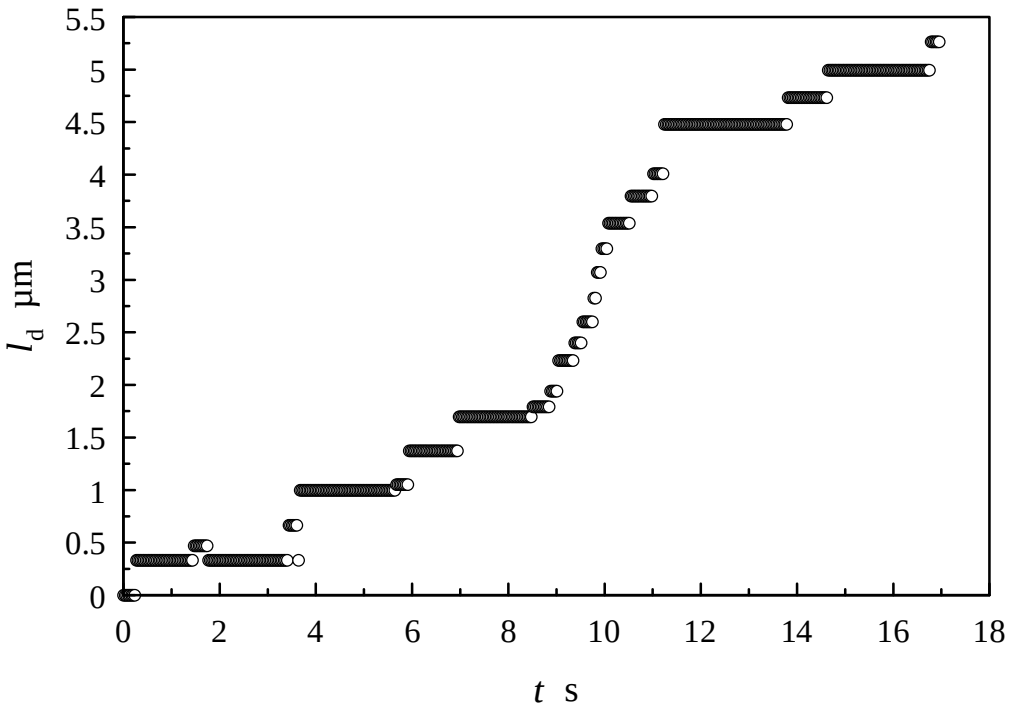


Fig.35 Movement distance of the particle

5・4 結　言

本研究は一対の液晶欠陥が対消滅する過程において誘起される液晶流動を解明することを目的とし，欠陥対消滅が誘起する液晶流動を実験により測定を行なった．得られた結果を以下に示す．

- 一対の液晶欠陥が対消滅する過程において液晶流動が誘起されることを実験により確認できた．
- 液晶流動は液晶欠陥間の距離が小さくなるにつれて大きくなり，欠陥対消滅時に最も大きくなること，そして欠陥対消滅後液晶流動は徐々に小さくなることが分かった．
- 欠陥対消滅過程で誘起される液晶流動の実験観測結果と数値解析結果が大まかに一致することが分かった．

参考文献

(1) Nakagawa, M., *Liquid crystal phase transition*, (2001), 1, Springer-Verlag Tokyo.

(2) Leslie, F. M., *Arch. Ration. Mech. Anal.*, **28** (1968), 265.

(3) Leslie, F. M., *Adv. Liq. Cryst.*, **4** (1979), 1.

(4) Tsuji, T. and Rey, A. D., *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, **73** (1997), 127.

(5) Tsuji, T. and Chono, S., *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*, Vol. 68, (2002), 3012.

(6) Chono, S. and Tsuji, T., *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*, Vol. 72, (2006), 656.

(7) Editors for dictionary of liquid crystals, *Dictionary of liquid crystals*, (1989), 9, Baifukan.

(8) Orihara, H., *Physics of liquid crystals*, (2004), 1, Utidaroukakuho.

(9) Editors for handbook of liquid crystals, *Handbook of liquid crystals*, (2000), 68, Maruzen.

(10) Ericksen, J. L., *Arch. Ration. Mech. Anal.*, **4** (1960), 231.

(11) Ericksen, J. L., *Trans. Soc. Rheol.*, **5** (1961), 23.

(12) Doi, M., *J. Poly. Sci., Poly. Phys. Ed.*, **19** (1981), 229.

(13) Doi, M. and Edwards, S. F., *The Theory of Polymer Dynamics*, (1986), Oxford Univ. Press.

(14) Beris, A. N. and Edwards, B. J., *Thermodynamics of Flowing Systems*, (1994), Oxford Univ. Press.

(15) Marrucci, G. and Greco, F., *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, **206** (1991), 17.

(16) Tsuji, T. and Chono, S., *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*, Vol. 71, (2005), 1775.

(17) Shimada, T., Doi, M. and Okano, K., J. Chem. Phys., 88(1988), 7181.

(18) Feng, J.J., Sgalari, G. and Leal, L. G., *J. Rheol.*, **44**, (2000), 1085.

(19) Liu, C. et al., *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*, Vol. 72, (2006), 2235.

(20) Tóth, G., Denniston, C. and Yeomans, J. M., *Phys. Rev. Lett.*, **88**, 10 (2002), 105504-1.

(21) Chono, S. and Tsuji, T., *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*, Vol. 62, (1996), 600.

(22) Larson, R. G. and Ottinger, H. C., *Macromolecules*,24, (1991), 6270.

(23) Kuroiwa, M. et al., *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*, Vol. 73, (2007), 1585.

(24) Doi, M. and Edwards, S. F., *J. Chem. Soc. Faraday Trans.*, II, **74** (1978), 918.

(25) Larson, R. G., *Macromolecules*, **23** (1990), 3983.

(26) Sasaki, R., *Physical Mathematics*, (1996), 298, Baifukan.

(27) Moriguchi, S. et al., *Formulae for Mathematics III*, (1998), 103, Iwanami Shoten.

(28) Van Gurp, M., *J. Rheol.*, **42**, (1998), 1269.

(29) Chandrasekhar, S., *Liquid Crystals, 2nd Ed.*, (1992), 48, Cambridge Univ. Press.

付録 A　配向分布関数の時間発展方程式の展開

A・1　はじめに

本論文では配向分布関数 f を球面調和関数 $Y_{lm}(\mathbf{u})$ の級数を用いて近似した．そして式(4), (6), (7)を式(5)に代入した後時間に関しては $1/D_s$ を，空間に関しては H を用いて無次元化し，式(10), (12)〜(14), (25), (26)を用いて係数 C_{lm} の時間に関する連立微分方程式を得た．しかし本論文では C_{lm} の時間に関する連立微分方程式を得るための過程を大まかに述べるだけに止めた．そこで本付録では f の $Y_{lm}(\mathbf{u})$ の級数を用いた近似から C_{lm} の時間に関する連立微分方程式を得るまでの過程を詳細に述べる．また構成方程式および運動方程式の展開について述べる．

A・2　配向分布関数の時間発展方程式の展開

本論文では配向分布関数 f を球面調和関数 $Y_{lm}(\mathbf{u})$ の有限級数を用いて式(26)のように近似した．式中で未知数は C_{lm} である． C_{lm} を求めれば f を求めることができる．そこで C_{lm} の時間に関する連立微分方程式を求める．

式(4), (6), (7)を式(5)に代入した後時間に関しては $1/D_s$ を，空間に関しては H を用いて無次元化すると以下のように表される．

$$\frac{Df}{Dt}=\left(1-\frac{3}{2}\mathbf{S}:\mathbf{S}\right)^{-2}\nabla_u\cdot\left\{\nabla_u f-\frac{3}{2}f\nabla_u U\left(\mathbf{S}+\frac{l_i^2}{24}\nabla^2\mathbf{S}\right):\mathbf{uu}\right\} \\ -\nabla_u\cdot\left\{f\left(\boldsymbol{\kappa}\cdot\mathbf{u}-\boldsymbol{\kappa}:\mathbf{uuu}\right)\right\} \tag{B 1}$$

ここで上式を含めアスタリスクがなくとも無次元化されているものとする．式(26)を(B1)に代入した後両辺の左から

$$Y_{lm}^{*}=(-1)^m Y_{l-m} \tag{B 2}$$

をかけ f に関するアンサンブル平均をとる．

まず式(B1)の左辺について式(26)を用いて f に関するアンサンブル平均をとると以下の式を得る．

$$\left\langle Y_{lm}^{*}\frac{Df}{Dt}\right\rangle=\frac{D}{Dt}\sum_{l'm'}C_{l'm'}\int_{|\mathbf{u}|=1}Y_{lm}^{*}Y_{l'm'}\,d\boldsymbol{\Omega} \tag{B 3}$$

ここで式(14)を用いると式(B3)は

$$\left\langle Y_{lm}^{*}\frac{Df}{Dt}\right\rangle=\frac{DC_{lm}}{Dt} \tag{B4}$$

となる．

次に式(B1)の右辺の各項について f に関するアンサンブル平均をとる．まず式(B1)の右辺第 1 項について f に関するアンサンブル平均をとると以下の式を得る．

$$\left(1-\frac{3}{2}\mathbf{S}:\mathbf{S}\right)^{-2}\left\langle Y_{lm}^{*}\nabla_u\cdot\nabla_u f\right\rangle=\left(1-\frac{3}{2}\mathbf{S}:\mathbf{S}\right)^{-2}\int_{|\mathbf{u}|=1}Y_{lm}^{*}\nabla_u\cdot\nabla_u f d\mathbf{\Omega} \tag{B5}$$

ここで ∇_u を着目した液晶分子に平行な単位ベクトル $\mathbf{u}$ を用いて表す．図 12 から $\mathbf{u}$ は

$$\mathbf{u}=i\sin\theta\cos\varphi+j\sin\theta\sin\varphi+k\cos\theta \tag{B6}$$

と表される．そのため ∇_u は

$$\nabla_u=i\left(\cos\theta\cos\varphi\frac{\partial}{\partial\theta}-\frac{\sin\varphi}{\sin\theta}\frac{\partial}{\partial\varphi}\right)+j\left(\cos\theta\sin\varphi\frac{\partial}{\partial\theta}+\frac{\cos\varphi}{\sin\theta}\frac{\partial}{\partial\varphi}\right)-k\sin\theta\frac{\partial}{\partial\theta} \tag{B7}$$

となる．また以下のように表される角運動量演算子を用いる．

$$L^2=L_x^2+L_y^2+L_z^2 \tag{B8}$$

$$L_x=i\sin\varphi\frac{\partial}{\partial\theta}+i\cot\theta\cos\varphi\frac{\partial}{\partial\varphi} \tag{B9}$$

$$L_y=-i\cos\varphi\frac{\partial}{\partial\theta}+i\cot\theta\sin\varphi\frac{\partial}{\partial\varphi} \tag{B10}$$

$$L_z=-i\frac{\partial}{\partial\varphi} \tag{B11}$$

上式において L は角運動量，L_x， L_y， L_z は L の x， y， z 成分であり，L は式(B7)から

$$L^2=-\nabla_u\cdot\nabla_u \tag{B12}$$

と表される．また式(B12)を Y_{lm} にかけると以下のようになる．

$$L^2Y_{lm}=l(l+1)Y_{lm} \tag{B13}$$

以上の得られた式(B12), (B13)を式(B5)に代入し，式(B1)の右辺第 1 項について f に関するアンサンブル平均をとると

$$\left(1-\frac{3}{2}\mathbf{S}:\mathbf{S}\right)^{-2}\left\langle Y_{lm}^{*}\nabla_u\cdot\nabla_u f\right\rangle=-l(l+1)\left(1-\frac{3}{2}\mathbf{S}:\mathbf{S}\right)^{-2}C_{lm} \tag{B14}$$

となる．ここで式中に含まれる配向秩序パラメータテンソル $\mathbf{S}$ について考える．本論文中において用いられる $\mathbf{S}$ の成分は式(10)から xx， yy， zz， xz の 4 成分である．式(4)のように表される $\mathbf{S}$ の各成分を Y_{lm} を用いて表すと

$$S_{xx}=\sum_{l'm'}C_{l'm'}\int_{|\mathbf{u}|=1}\left(u_x^2-\frac{1}{3}\right)Y_{l'm'}d\mathbf{\Omega} \tag{B15}$$

$$S_{yy}=\sum_{l'm'}C_{l'm'}\int_{|\mathbf{u}|=1}\left(u_y^2-\frac{1}{3}\right)Y_{l'm'}d\mathbf{\Omega} \tag{B16}$$

$$S_{zz}=\sum_{l'm'}C_{l'm'}\int_{|\mathbf{u}|=1}\left(u_z^2-\frac{1}{3}\right)Y_{l'm'}d\mathbf{\Omega} \tag{B17}$$

$$S_{xz}=\sum_{l'm'}C_{l'm'}\int_{|\mathbf{u}|=1}\left(u_xu_z\right)Y_{l'm'}d\mathbf{\Omega} \tag{B18}$$

と表される．ここでY_{lm}**は**

$$Y_{lm}(\theta,\varphi)=(-1)^{\frac{m+|m|}{2}}\sqrt{\frac{2l+l}{4\pi}\frac{\left(l-|m|\right)!}{\left(l+|m|\right)!}}P_l^m\left(\cos\theta\right)e^{im\varphi} \tag{B19}$$

と表され，式中の$P_l^m(\cos\theta)$**はルジャンドル陪関数で以下のように表される．**

$$P_l^m(\cos\theta)=\left(-1\right)^{l+m}\frac{\sin^m\theta}{2^m}\sum_{r=0}^{l-m}\left(-1\right)^r\frac{\left(l+m+r\right)!}{r!\left(m+r\right)!\left(l-m-r\right)!}\cos^{2r}\frac{\theta}{2} \tag{B20}$$

式(B2)**,** (B3) **,** (B6)**,** (B19)**,** (B20)**を用いると式**(B15)～(B18)**は**

$$S_{xx}=\sqrt{\frac{2\pi}{15}}\left(C_{22}+C_{2-2}-\sqrt{\frac{2}{3}}C_{20}\right) \tag{B21}$$

$$S_{yy}=-\sqrt{\frac{2\pi}{15}}\left(C_{22}+C_{2-2}+\sqrt{\frac{2}{3}}C_{20}\right) \tag{B22}$$

$$S_{zz}=\sqrt{\frac{16\pi}{45}}C_{20} \tag{B23}$$

$$S_{xz}=-\sqrt{\frac{2\pi}{15}}\left(C_{21}-C_{2-1}\right) \tag{B24}$$

と表される．式(23)**,** (B21)～(B24)**を式**(B14)**の右辺に代入することにより以下のように**C_{lm}**で表される式**(B1)**の右辺第** 1 **項についての展開式を得る．**

$$\left(1-\frac{3}{2}\mathbf{S}:\mathbf{S}\right)^{-2}\left\langle Y_{lm}^*\nabla_u\cdot\nabla_u f\right\rangle=-l\left(l+1\right)\left(1-S^2\right)^{-2}C_{lm} \tag{B25}$$

次に式(B1)**の右辺第** 2 **項について式**(7), (23)**を代入した後** f **に関するアンサンブル平均をとると以下の式を得る．**

$$\left(1-\frac{3}{2}\mathbf{S}:\mathbf{S}\right)^{-2}\left\langle Y_{lm}^{*}\nabla_u\cdot\left(\frac{f}{kT}\nabla_u V\right)\right\rangle$$
$$=-\frac{3}{2}U\left(1-S^2\right)^{-2}\left(\mathbf{S}+\frac{l_i^2}{24}\nabla\mathbf{S}\right):\int_{|\mathbf{u}|=1}Y_{lm}^{*}\nabla_u\cdot\left\{f\,\nabla_u(\mathbf{uu})\right\}d\mathbf{\Omega} \tag{B26}$$

また

$$Y_{lm}^{*}\nabla_u=-\nabla_u Y_{lm}^{*} \tag{B27}$$

および式(26)を式(B26)に代入すると

$$\left(1-\frac{3}{2}\mathbf{S}:\mathbf{S}\right)^{-2}\left\langle Y_{lm}^{*}\nabla_u\cdot\left(\frac{f}{kT}\nabla_u V\right)\right\rangle$$
$$=\frac{3}{2}U\left(1-S^2\right)^{-2}\left(\mathbf{S}+\frac{l_i^2}{24}\nabla\mathbf{S}\right):\sum_{l'm'}C_{l'm'}\int_{|\mathbf{u}|=1}\nabla_u Y_{lm}^{*}\cdot\left\{\nabla_u(\mathbf{uu})\right\}Y_{l'm'}d\mathbf{\Omega} \tag{B28}$$

を得る．ここで

$$L_{\pm}=L_x\pm iL_y \tag{B29}$$

と表される演算子$L_{\pm}$を用いることにより以下の式を得る．

$$L_{+}Y_{lm}^{*}=(-1)^m\sqrt{(l+m)(l-m+l)}\,Y_{l-m-1} \tag{B30}$$

$$L_{-}Y_{lm}^{*}=(-1)^m\sqrt{(l-m)(l+m+l)}\,Y_{l-m-1} \tag{B31}$$

$$L_zY_{lm}^{**}=(-1)^{m+1}mY_{l-m} \tag{B32}$$

さらに関数g，hを定義した場合，L，L_{+}，L_{-}の関係は

$$\nabla_u g\cdot\nabla_u h=iLg\cdot iLh \tag{B33}$$

$$(Lg)\cdot(Lh)=\frac{1}{2}\left(L_{+}gL_{-}h+L_{-}gL_{+}h+2L_zgL_zh\right) \tag{B34}$$

と表される．式(B30)～(B34)を式(B28)に代入すると

$$\left(1-\frac{3}{2}\mathbf{S}:\mathbf{S}\right)^{-2}\left\langle Y_{lm}^{*}\nabla_u\cdot\left(\frac{f}{kT}\nabla_u V\right)\right\rangle$$
$$=-\frac{3}{4}U\left(1-S^2\right)^{-2}\left(\mathbf{S}+\frac{l_i^2}{24}\nabla\mathbf{S}\right):\sum_{l'm'}C_{l'm'}\int_{|\mathbf{u}|=1}\left[\left(L_{+}Y_{lm}^{*}\right)\left\{L_{-}\left(\mathbf{uu}-\frac{1}{3}\mathbf{\delta}\right)\right\}\right. \tag{B35}$$
$$\left.+\left(L_{-}Y_{lm}^{*}\right)\left\{L_{+}\left(\mathbf{uu}-\frac{1}{3}\mathbf{\delta}\right)\right\}+2\left(L_zY_{lm}^{*}\right)\left\{L_z\left(\mathbf{uu}-\frac{1}{3}\mathbf{\delta}\right)\right\}\right]Y_{l'm'}\,d\mathbf{\Omega}$$

を得る．さらに式(B2)，(B30)～(B32)を式(B35)に代入すると

$$\left(1-\frac{3}{2}\mathbf{S}:\mathbf{S}\right)^{-2}\left\langle Y_{lm}^{*}\nabla_u\cdot\left(\frac{f}{kT}\nabla_u V\right)\right\rangle=-\frac{3}{2}\sqrt{\frac{2\pi}{15}}(-1)^m U\left(1-S^2\right)^{-2}$$
$$\times\left[\left\{S_{xx}+\frac{l_i^2}{24}\left(\frac{\partial S_{xx}}{\partial x^2}+\frac{\partial S_{xx}}{\partial z^2}\right)\right\}\right.$$
$$\times\left\{A\left\|Y_{l-m+1}(Y_{21}-Y_{2-1})Y_{l'm'}\right\|-B\left\|Y_{l-m-1}(Y_{21}-Y_{2-1})Y_{l'm'}\right\|-2m\left\|Y_{l-m}(Y_{22}-Y_{2-2})Y_{l'm'}\right\|\right\}$$
$$-\left\{S_{yy}+\frac{l_i^2}{24}\left(\frac{\partial S_{yy}}{\partial x^2}+\frac{\partial S_{yy}}{\partial z^2}\right)\right\}$$
$$\times\left\{A\left\|Y_{l-m+1}(Y_{21}+Y_{2-1})Y_{l'm'}\right\|+B\left\|Y_{l-m-1}(Y_{21}+Y_{2-1})Y_{l'm'}\right\|-2m\left\|Y_{l-m}(Y_{22}-Y_{2-2})Y_{l'm'}\right\|\right\}$$
$$+\left\{S_{zz}+\frac{l_i^2}{24}\left(\frac{\partial S_{zz}}{\partial x^2}+\frac{\partial S_{zz}}{\partial z^2}\right)\right\}\left(A\left\|Y_{l-m+1}Y_{2-1}Y_{l'm'}\right\|+B\left\|Y_{l-m-1}Y_{21}Y_{l'm'}\right\|\right)$$
$$-2\left\{S_{xz}+\frac{l_i^2}{24}\left(\frac{\partial S_{xz}}{\partial x^2}+\frac{\partial S_{xz}}{\partial z^2}\right)\right\}$$
$$\left.\times\left\{B\left\|Y_{l-m-1}\left(Y_{22}-\sqrt{\frac{3}{2}}Y_{20}\right)Y_{l'm'}\right\|-A\left\|Y_{l-m+1}\left(Y_{2-2}-\sqrt{\frac{3}{2}}Y_{20}\right)Y_{l'm'}\right\|-m\left\|Y_{l-m-1}(Y_{21}-Y_{2-1})Y_{l'm'}\right\|\right\}\right] \quad \text{(B36)}$$

を得る．ただし式中の$\|\cdots\|$**，** A**，** B**は**

$$\|\cdots\|=\sum_{l'm'}C_{l'm'}\int_{|\mathbf{u}|=1}\cdots d\mathbf{\Omega} \quad \text{(B37)}$$

$$A=\sqrt{(l+m)(l-m+1)} \quad \text{(B38)}$$

$$B=\sqrt{(l-m)(l+m+1)} \quad \text{(B39)}$$

である．また式中においてY_{lm}**を 3 回かけている項がある．この項は**

$$\int_{|\mathbf{u}|=1}Y_{l_1m_1}Y_{l_2m_2}Y_{l_3m_3}d\mathbf{\Omega}=\left[\frac{(2l_1+1)(2l_2+1)(2l_3+1)}{4\pi}\right]^{\frac{1}{2}}\begin{pmatrix}l_1 & l_2 & l_3\\ 0 & 0 & 0\end{pmatrix}\begin{pmatrix}l_1 & l_2 & l_3\\ m_1 & m_2 & m_3\end{pmatrix} \quad \text{(B40)}$$

と表され，ラカーの公式より式(B38**)の一部は**

$$\begin{pmatrix}a & b & c\\ \alpha & \beta & \gamma\end{pmatrix}=(-)^{a-b-\gamma}\sqrt{\Delta(abc)}\sqrt{(a+\alpha)!(a-\alpha)!(b+\beta)!(b-\beta)!(c+\gamma)!(c-\gamma)!}$$
$$\times\sum_t(-)^t\left[t!(c-b+t+\alpha)!(c-a+t-\beta)!(a+b-c-t)!(a-t-\alpha)!(b-t-\beta)!\right]^{-1} \quad \text{(B41)}$$

と表される．ただし，

$$\alpha+\beta+\gamma=0 \quad \text{(B42)}$$

$$|a-b|\le c\le a+b \quad \text{(B43)}$$

$$\Delta(abc)=\frac{(a+b-c)!(b+c-a)!(c+a-b)!}{(a+b+c+1)!} \tag{B44}$$

とする．

最後に式(B1)の右辺第 3 項について f に関するアンサンブル平均をとる．その前段階として式(B1)の右辺第 3 項を $\mathbf{u}$ と ∇_u の性質

$$\mathbf{u}\cdot\nabla_u=0 \tag{B45}$$

を用いて以下のように展開する．

$$\nabla_u\cdot\{f(\boldsymbol{\kappa}\cdot\mathbf{u}-\mathbf{u}\cdot\boldsymbol{\kappa}\cdot\mathbf{uu})\}=f(\nabla_u\cdot\boldsymbol{\kappa}\cdot\mathbf{u}-2\mathbf{u}\cdot\boldsymbol{\kappa}\cdot\mathbf{u})+(\boldsymbol{\kappa}\cdot\mathbf{u})\cdot\nabla_u f \tag{B46}$$

上式について式(25)，(B6)，(B8)〜(B11)，(B19)，(B20)および式(B29)〜(B32)を用いて f に関するアンサンブル平均をとると

$$\begin{aligned}
&\langle\nabla_u\cdot\{f(\boldsymbol{\kappa}\cdot\mathbf{u}-\mathbf{u}\cdot\boldsymbol{\kappa}\cdot\mathbf{uu})\}\rangle \\
&=\sqrt{\frac{\pi}{30}}\kappa_{xx}\Big[A'\left\|Y_{lm}^*(Y_{21}-Y_{2-1})Y_{l'm'-1}\right\|-B'\left\|Y_{lm}^*(Y_{21}-Y_{2-1})Y_{l'm'+1}\right\| \\
&+\left\|Y_{lm}^*\{2\sqrt{6}Y_{20}-2m'(Y_{22}-Y_{2-2})-6(Y_{22}+Y_{2-2})\}Y_{l'm'}\right\|\Big] \\
&+\frac{2}{3}\sqrt{\frac{\pi}{5}}(\kappa_{xz}+\kappa_{zx})\Big[B'\left\|Y_{lm}^*Y_{20}Y_{l'm'+1}\right\|-A'\left\|Y_{lm}^*Y_{20}Y_{l'm'-1}\right\| \\
&+\sqrt{\frac{3}{2}}\left\|Y_{lm}^*\{m'(Y_{21}+Y_{2-1})+3(Y_{21}-Y_{2-1})\}Y_{l'm'}\right\|\Big] \\
&+\left(\frac{1}{6}\kappa_{xz}-\frac{1}{3}\kappa_{zx}\right)(AC_{lm-1}-BC_{lm+1}) \\
&-\sqrt{\frac{2\pi}{15}}\kappa_{zz}\left(A'\left\|Y_{lm}^*Y_{21}Y_{l'm'-1}\right\|+B'\left\|Y_{lm}^*Y_{2-1}Y_{l'm'+1}\right\|+2\sqrt{6}\left\|Y_{lm}^*Y_{20}Y_{l'm'}\right\|\right)
\end{aligned} \tag{B47}$$

を得る．ただし式中の A'，B' は

$$A'=\sqrt{(l'+m')(l'-m'+1)} \tag{B48}$$

$$B'=\sqrt{(l'-m')(l'+m'+1)} \tag{B49}$$

である．以上の得られた式(B4)，(B25)，(B36)，および式(B47)から C_{lm} の時間に関する連立微分方程式が得られる．

A・3　構成方程式および運動方程式の展開

式(3)は時間に関しては$1/D_s$を，空間に関してはHを，また$3ckT$を用いて無次元化すると以下のように表される．

$$\boldsymbol{\tau}=\mathbf{S}+\frac{\boldsymbol{\delta}}{3}-U\left\{\mathbf{S}\cdot\mathbf{S}+\frac{\boldsymbol{\delta}}{3}-\left(\mathbf{S}+\frac{\boldsymbol{\delta}}{3}\right):\langle\mathbf{uuuu}\rangle\right\}$$
$$-\frac{Ul_i^2}{24}\left\{\left(\mathbf{S}+\frac{\boldsymbol{\delta}}{3}\right)\cdot\nabla^2\mathbf{S}-\langle\mathbf{uuuu}\rangle:\nabla^2\mathbf{S}+\frac{(\nabla\mathbf{S}):(\nabla\mathbf{S})^{\mathrm{T}}-\nabla\nabla\mathbf{S}:\mathbf{S}}{4}\right\}+\frac{D_s\zeta_r}{6kT}\boldsymbol{\kappa}:\langle\mathbf{uuuu}\rangle \tag{B50}$$

ここで式(2)について本研究では図 9 に示すような一辺が長さHである正方形領域を考え計算を行うためx，z成分を考慮すればよい．ゆえに式(2)は以下のように表される．

$$\rho\left(\frac{\partial u}{\partial t}+u\frac{\partial u}{\partial x}+w\frac{\partial u}{\partial z}\right)=-\frac{\partial p}{\partial x}+\frac{\partial \tau_{xx}}{\partial x}+\frac{\partial \tau_{zx}}{\partial z} \tag{B51}$$

$$\rho\left(\frac{\partial w}{\partial t}+u\frac{\partial w}{\partial x}+w\frac{\partial w}{\partial z}\right)=-\frac{\partial p}{\partial z}+\frac{\partial \tau_{xz}}{\partial x}+\frac{\partial \tau_{zz}}{\partial z} \tag{B52}$$

上式中のu，wは速度ベクトル$\mathbf{v}$のx，z成分，τ_{xx}，τ_{xz}，τ_{zx}，τ_{zz}は偏差応力テンソル$\boldsymbol{\tau}$のxx，xz，zx，zz成分である．よって式(B50)のxx，xz，zx，zz成分を求めればよい．そこで$\langle\mathbf{uuuu}\rangle$について求める．$\langle\mathbf{uuuu}\rangle$のとりうる成分は$xxxx$，$xxyy$，$xyyz$，$xxxz$，$xxzz$，$xzzz$，$yyzz$，$zzzz$の 8 成分である．この 8 成分について式(14), (B6)を用いて$\langle\mathbf{uuuu}\rangle$を展開すると以下の式を得る．

$$\langle u_x u_x u_x u_x\rangle=\frac{1}{3}\sqrt{\frac{2\pi}{35}}(C_{44}-C_{4-4})-\frac{2}{21}\sqrt{\frac{2\pi}{5}}(C_{42}-C_{4-2})+\frac{6}{7}\sqrt{\frac{2\pi}{15}}(C_{22}-C_{2-2})$$
$$+\frac{2\sqrt{\pi}}{35}C_{40}-\frac{4}{7}\sqrt{\frac{\pi}{5}}C_{20}+\frac{2\sqrt{\pi}}{5}C_{00} \tag{B53}$$

$$\langle u_x u_x u_y u_y\rangle=-\frac{1}{3}\sqrt{\frac{2\pi}{35}}(C_{44}+C_{4-4})+\frac{2\sqrt{\pi}}{105}C_{40}-\frac{4}{21}\sqrt{\frac{\pi}{5}}C_{20}+\frac{2\sqrt{\pi}}{15}C_{00} \tag{B54}$$

$$\langle u_x u_y u_y u_z\rangle=\frac{1}{3}\sqrt{\frac{\pi}{35}}(C_{43}-C_{4-3})+\frac{1}{21}\sqrt{\frac{\pi}{5}}(C_{41}-C_{4-1})-\frac{1}{7}\sqrt{\frac{2\pi}{15}}(C_{21}-C_{2-1}) \tag{B55}$$

$$\langle u_x u_x u_x u_z\rangle=-\frac{1}{3}\sqrt{\frac{\pi}{35}}(C_{43}-C_{4-3})+\frac{1}{7}\sqrt{\frac{\pi}{5}}(C_{41}-C_{4-1})-\frac{3}{7}\sqrt{\frac{2\pi}{15}}(C_{21}-C_{2-1}) \tag{B56}$$

$$\langle u_x u_x u_z u_z\rangle=\frac{2}{21}\sqrt{\frac{2\pi}{5}}(C_{42}+C_{4-2})+\frac{1}{7}\sqrt{\frac{2\pi}{15}}(C_{22}+C_{2-2})$$
$$-\frac{8\sqrt{\pi}}{105}C_{40}+\frac{2}{21}\sqrt{\frac{\pi}{5}}C_{20}+\frac{2\sqrt{\pi}}{15}C_{00} \tag{B57}$$

$$\langle u_x u_z u_z u_z \rangle = -\frac{4}{21}\sqrt{\frac{\pi}{5}}(C_{41} - C_{4-1}) - \frac{3}{7}\sqrt{\frac{2\pi}{15}}(C_{21} - C_{2-1}) \tag{B58}$$

$$\begin{aligned}\langle u_y u_y u_z u_z \rangle = &-\frac{2}{21}\sqrt{\frac{2\pi}{5}}(C_{42} + C_{4-2}) - \frac{1}{7}\sqrt{\frac{2\pi}{15}}(C_{22} + C_{2-2}) \\ &+ \frac{8\sqrt{\pi}}{105}C_{40} + \frac{2}{21}\sqrt{\frac{\pi}{5}}C_{20} + \frac{2\sqrt{\pi}}{15}C_{00}\end{aligned} \tag{B59}$$

$$\langle u_z u_z u_z u_z \rangle = \frac{16\sqrt{\pi}}{105}C_{40} + \frac{8}{7}\sqrt{\frac{\pi}{5}}C_{20} + \frac{2\sqrt{\pi}}{5}C_{00} \tag{B60}$$

以上の式および式(24), (B21)～(B24)を用いれば偏差応力テンソルτの各成分の展開式が得られる.

次に式(B51), (B52)について考える. まず, 両式を連立し圧力 p を除した後,

$$u(x,z) = \frac{\partial \psi(x,z)}{\partial z} \tag{B61}$$

$$w(x,z) = -\frac{\partial \psi(x,z)}{\partial x} \tag{B62}$$

と定義される流れ関数ψ を用いることにより, 流れ関数の時間に関する以下の連立微分方程式を得る.

$$\frac{D}{Dt}\left(\frac{\partial^2 \psi}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \psi}{\partial z^2}\right) = \frac{3ckT}{\rho H^2 D_s^2}\left(\frac{\partial^2 N_1}{\partial x \partial z} + \frac{\partial^2 \tau_{zx}}{\partial z^2} - \frac{\partial^2 \tau_{xz}}{\partial x^2}\right) \tag{B63}$$

式中の N_1 は第 1 法線応力差で以下のように表される.

$$N_1 = \tau_{xx} - \tau_{zz} \tag{B64}$$

ここで本来であれば式(B64)を

$$\omega(x,z) = -\left(\frac{\partial^2 \psi}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \psi}{\partial z^2}\right) \tag{B65}$$

と表される渦度ωを用いることにより, 渦度の時間に関する連立微分方程式を導出する. しかし偏差応力テンソルτの各成分について弾性項と粘性項を分けた後式(B63)に代入した場合, 偏差応力テンソルの粘性項を空間微分することによって導出される全ての流れ関数を渦度で表すことができなかった. そこで本研究では偏差応力テンソルの弾性項に関しては式(B63)の式形状をとり, 偏差応力テンソルの粘性項に関しては式(B63)に代入した後渦度を用いず流れ関数のみを用いて表すこととした.

謝辞

本研究を行うにあたり, 終始多大なるご指導を賜りました高知工科大学知能機械システム工学コース蝶野成臣教授, ならびに辻知宏准教授に対し, 深く御礼申し上げます. また高知工科大学知能機械システム工学科知能流体力学研究室の皆様方にはご援助, お協力賜りましたことを重ねて御礼申し上げます.