

平成 13 年度

卒業論文

2 階テンソルを用いたネマティック液晶の
構成方程式の検討

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

寺田 一秋

目次

第1章 緒言	
1-1 はじめに	1
1-2 研究目的	2
第2章 基礎式および数値計算	
2-1 土井理論	4
2-2 形状係数	5
2-3 数値計算	6
2-4 平行状態	8
第3章 計算結果および考察	
3-1 非定常特性	10
3-2 主配向角と秩序パラメータの時間変化	10
3-3 応力の時間変化	22
3-4 秩序パラメータと応力の変化	32
第4章 結言	37
参考文献	38
謝辞	39

第1章 緒言

1-1 はじめに

液晶は、結晶のもつ光学的異方性と液体のもつ流動性の両方を有する異方性流体である。液晶性物質は、さまざまな視点から分類⁽¹⁾されている。一部を除き一般に液晶性物質は棒状分子であり、この棒状分子が示す液晶状態をその分子の配向様式から分類すると、ネマティック液晶、スメクティック液晶、およびコレステリック液晶の3種類に大別される。この中でネマティック液晶は、ディスプレイ、自動車や飛行機の複合材（高性能エンブラ）等に最も広く利用されている。ネマティック液晶をディスプレイに注入する時や複合材料の成形時において流動が生じる。効率良く液晶を流動させるために液晶の流動特性を詳細に知る必要がある。液晶の流動と流動中の液晶分子の配向状態は密接な関係があり、液晶の流動を取り扱うためには、これらを同時に考える必要がある。

表示素子には、低分子ネマティック液晶が用いられているのに対して、一般に高性能エンブラには高分子液晶が利用されている⁽²⁾。しかし、高分子液晶の流動は、複雑である。例えば、せん断流中で第1法線応力差が負の値をとる場合もあるという高分子液晶の特異流動が実験によって知られている。また、せん断速度の大きさによって、タンブリング挙動、ワギング挙動やアライニング挙動が生じることも知られている⁽³⁾。タンブリング挙動は、液晶分子の主な方向である主配向方向が回転する（低せん断領域）。ワギング挙動は、主配向方向が振動する（中せん断領域）。アライニング挙動は、主配向方向が定常に至る（高せん断領域）。以上のように高分子液晶の流れが複雑なため成形条件の選択が困難である。そこで高分子液晶の流動を理論的に予測することが必要である。

1-2 研究目的

前節で述べたように、液晶の流動と流動中の液晶分子の配向状態は密接な関係があり、配向状態を調べるのが重要になる。高分子液晶の流動を表す理論として土井理論がある。土井理論は、液晶分子の配向状態を、配向分布関数 f を用いて表しており、前節で述べた特異流動を良好に示す⁽³⁾。図 1 に球面座標 (θ - 座標) を用いた配向分布関数を示す。図 1 は、 θ を直行軸として平面に展開したものであり、 f の値が大きいほど多くの液晶分子が配向していることを意味する。 xyz 空間のある 1 点の f を求めるためには、図 1 の位相空間において、 180×180 個の格子点 (θ は 0 から $\pi/2$ まで 180 個の点、 ϕ は $\pi/2$ から $\pi/2$ まで 180 個の点) について計算しなければならない。仮に高分子液晶が直方体 (幅 10mm, 高さ 10mm, 奥行き 50mm) の中を流れる場合の分子の配向状態を調べるとすると、1mm 間隔で f を求めるためには、 $180 \times 180 \times 10 \times 10 \times 50$ 個の計算をしなければならない。このように f を直接用いて xyz 空間の分子の配向状態を計算するには、多大な手間を必要とする。そのため、テンソル量を用いて液晶分子の配向状態を表す方法が提案されてきたが、 n 階テンソルの発展方程式中に $n+2$ 階のテンソルが現れる。そこで、 $n+2$ 階テンソル量を階のテンソル量で近似する closure 近似が必要となる。しかし、従来提案された closure 近似は上記の特異流動を示さない。近年、形状係数を考慮したテンソル式が提案され、タンブラリングやアライニング挙動の再現に成功したが、負の第 1 法線応力差といった応力挙動についての解析例は皆無である。

そこで本研究では、形状係数を加えたテンソル式を用いて高分子のネマティック液晶の単純せん断流れにおける主配向角 (液晶分子の主な方向を示す)、秩序パラメータ (分子の配向の度合を示す)、応力を数値計算し、 f を直接解いた場合と比較し、特異流動を示しているかどうかを検討する。また、本研究では λ の影響についても検討する。

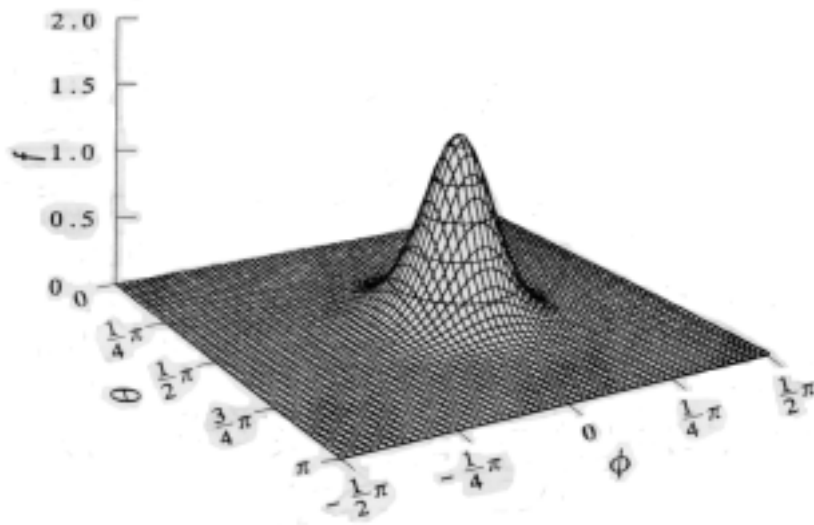


図1 配向分布関数

おもな記号

f : 配向分布関数

S : 秩序パラメータ

U : ネマティックポテンシャル強度

m : 主配向角

t^* : せん断ひずみ (無次元時間)

$\dot{\gamma}^*$: せん断速度

τ_{xy} : せん断応力

N_1 : 第1法線応力差

添字

* : 無次元量

第2章 基礎式および数値計算

2-1 土井理論

1本の棒状分子に着目し、これに平行な単位ベクトルを \mathbf{u} とする。分子は、ある確立分布に従って配向している。この確立分布において配向分布関数を用い、 \mathbf{u} の配向分布関数を $f(\mathbf{u}, t)$ とすれば、土井理論⁽⁴⁾は、以下のように表される。

$$\frac{\partial f}{\partial t} = \overline{D\nabla} \cdot \left(\nabla f + \frac{f}{kT} \nabla V \right) - \nabla \cdot \{ f(\cdot \mathbf{u} - \mathbf{u} \cdot \cdot \mathbf{u} \mathbf{u}) \} \quad (2-1-1)$$

$$D_{ij} = 3ckT \langle u_i u_j \rangle + c \langle u_i (- V)_j \rangle \quad (2-1-2)$$

ここで、 t は時間、 \mathbf{u} は速度こう配テンソル、 ∇ は単位球面上での微分演算子、 k はボルツマン定数、 T は絶対温度、 D_{ij} は偏差応力テンソル、 c は単位体積あたりの分子数である。

$\overline{D}(f)$ は回転拡散係数、 $V(\mathbf{u}, f)$ は着目した1本の棒状分子が周囲の棒状分子によって作用されると考えられるネマティックポテンシャルで、Maier-Saupe の平均場ポテンシャルを用いると、それぞれ以下のように与えられる。

$$\overline{D} = D_s (1 - 3\mathbf{S} : \mathbf{S}/2)^{-2} \quad (2-1-3)$$

$$V = -3UkT(\mathbf{u}\mathbf{u} - \mathbf{I}/3) : \mathbf{S}/2 \quad (2-1-4)$$

D_s は等方状態における回転拡散係数、 U は無次元のポテンシャル強度(溶液濃度)、 \mathbf{S} は単位テンソルである。 U は、値が大きいくほど液晶性を示す。秩序パラメータテンソルと呼ばれる S_{ij} は、液晶分子の配向の状態を表し、

$$S_{ij} = \langle u_i u_j - \delta_{ij}/3 \rangle \quad (2-1-5)$$

で定義される。

ここで、式(2-1-2)、(2-1-5)中の $\langle \dots \rangle$ は、 f によるアンサンブル平均 $\int_{|\mathbf{u}|=1} \dots f dA$ を意味する。

$\int_{|\mathbf{u}|=1} dA$ は単位球面上での面積分である。

式(2-1-1)には、回転拡散係数 \overline{D} と平均場ポテンシャル V を介して、配向分布関数 f によるアンサンブル平均が含まれているため、これを直接解くことは、困難である。そこで(2-1-1)を秩序パラメータテンソル S_{ij} の時間発展方程式に変形することにより、以後の解析を容易にする。以下の簡略化⁽⁵⁾を行う。

最初に、式(2-1-1)の両辺に $(u_i u_j - \delta_{ij}/3)$ を掛けて \mathbf{u} で積分すると、

$$\begin{aligned} S_{ij} / t = & -6\overline{D} S_{ij} + 6\overline{D} U \langle S_{ik} u_k u_j \rangle \\ & - \langle u_i u_j u_k u_l \rangle S_{kl} + \delta_{ik} \langle u_k u_j \rangle + \delta_{jk} \langle u_i u_k \rangle \\ & - 2 \delta_{kl} \langle u_i u_j u_k u_l \rangle \end{aligned} \quad (2-1-6)$$

となる。しかし上式の右辺には f の四次モーメント $\langle u_i u_j u_k u_l \rangle$ が含まれており、この式は S_{ij} に関して閉じていない。そこで、二次の closure 近似

$$\langle u_i u_j u_k u_l \rangle = \langle u_i u_j \rangle \langle u_k u_l \rangle \quad (2-1-7)$$

を用いる。

以上の結果、式(2-1-1)は、

$$\begin{aligned} S_{ij}/t = & -6\bar{D} S_{ij} + 2\bar{D} U (S_{ij} + 3S_{ik} S_{jk} - S_{ij} S_{kl}^2 \\ & - 3S_{ij} S_{kl}^2) + (S_{ij} + S_{ji})/3 + (S_{ik} S_{kj} + S_{jk} S_{ki} \\ & - 2S_{ij} S_{kl}/3) - 2S_{kl} S_{kl} S_{ij} \end{aligned} \quad (2-1-8)$$

となる。同様にして、式(2-1-2)の偏差応力テンソル σ_{ij} は

$$\sigma_{ij} = 3ckT \{ S_{ij} - U (S_{ij}/3 + S_{ik} S_{jk} - S_{kl}^2/3 - S_{ij} S_{kl}^2) \} \quad (2-1-9)$$

のように変形される。

2-2 形状係数

緒言で述べたように、式(2-1-7)を代入した式(2-1-6)は、高分子液晶の特異流動を示さない。そこで本研究では、従来の理論に分子形状に基づく形状係数を加える。

よって、式(2-1-1)中の速度こう配テンソル $\dot{\gamma}$ は、以下ようになる。

$$\dot{\gamma} = \mathbf{W} + \mathbf{A} \quad (2-2-1)$$

\mathbf{W} は渦度テンソル、 \mathbf{A} は歪み速度テンソルである。

形状係数 β は、

$$\beta = \frac{P^2 - 1}{P^2 + 1} \quad (2-2-2)$$

で表される。 P は1本の棒状分子におけるアスペクト比で、以下のように表される。

$$P = \frac{l}{d} \quad (2-2-3)$$

l は棒状分子の長さ、 d はその直径である。本研究では、形状係数 $\beta = 0.9, 0.95, 0.99$ とし、 β の影響を調べる。

2-3 数値計算

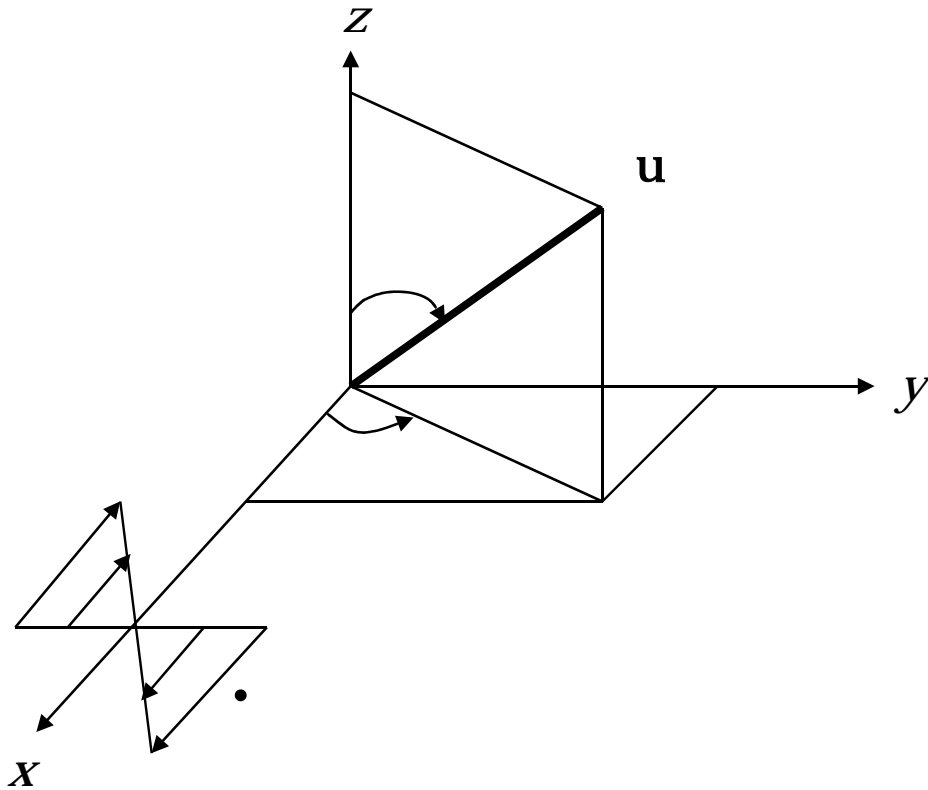


図 2-1 座標系

図 2-1 に示すように，本研究では， x - y 平面内の一様な単純せん断流れを考える．流れ方向に x 軸，速度こう配方向に y 軸，それらに垂直な方向に z 軸をそれぞれとり，棒状分子が z 軸となす角度（天頂角）を θ ，ならびに x - y 平面内での x 軸となす角度（方位角）を ϕ とする． $\dot{\gamma}$ はせん断速度である．

図 2-1 の場合，速度こう配テンソル $\dot{\gamma}_{ij}$ および秩序パラメータテンソル S_{ij} は

$$\dot{\gamma}_{ij} = \begin{vmatrix} 0 & \dot{\gamma} & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{vmatrix} \quad (2-3-1)$$

$$S_{ij} = \begin{vmatrix} S_{xx} & S_{xy} & 0 \\ S_{xx} & S_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & S_{zz} \end{vmatrix} \quad (2-3-2)$$

となる．速度こう配テンソルおよび秩序パラメータテンソルのゼロでない成分は $\dot{\gamma}_{xy} = \dot{\gamma}$ ， S_{xx} ， S_{yy} ， S_{zz} ， S_{xy} のみである．式(2-3-1)，(2-3-2)を式(2-1-1)に代入し，時間に関する量を $1/D_s$ で無次元化する．したがって式(2-1-8)は

$$\begin{aligned} \frac{\partial S_{xx}}{\partial t^*} = & -6E \{ S_{xx} (1 - U/3) - (S_{xx}^2 + S_{xy}^2)U + (C/3 + S_{xx} C)U \} \\ & + \dot{\gamma} * S_{xy} (1 + U/3 - S_{xx}) \end{aligned} \quad (2-3-3 \cdot a)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial S_{yy}}{\partial t^*} = & -6E \{ S_{xx} (1 - U/3) - (S_{xy}^2 + S_{yy}^2)U + (C/3 + S_{yy} C)U \} \\ & - \dot{\gamma} * S_{xy} (1 - U/3 + S_{yy}) \end{aligned} \quad (2-3-3 \cdot b)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial S_{zz}}{\partial t^*} = & -6E \{ S_{zz} (1 - U/3) - S_{zz}^2 U + (C/3 + S_{zz} C)U \} \\ & - 2 \dot{\gamma} * S_{xy} /3 - \{ -(\dot{\gamma} * S_{xx} S_{xy}) - \dot{\gamma} * S_{xy} S_{yy} \\ & + \dot{\gamma} * S_{xy} S_{zz} \} /2 \end{aligned} \quad (2-3-3 \cdot c)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial S_{xy}}{\partial t^*} = & -6E \{ S_{xy} (1 - U/3) - (S_{xx} S_{xy} + S_{xy} S_{yy})U + S_{xy} C U \} \\ & + \dot{\gamma} * /3 - \dot{\gamma} * S_{xx} /2 + \dot{\gamma} * S_{yy} /2 + (\dot{\gamma} * S_{xx} /2 + \dot{\gamma} * S_{yy} /2) \\ & - (\dot{\gamma} * S_{xx}^2 /2 + 5 \dot{\gamma} * S_{xy}^2 /2 + \dot{\gamma} * S_{xx} S_{yy} /2 + \dot{\gamma} * S_{yy}^2 /2) /2 \end{aligned} \quad (2-3-3 \cdot d)$$

となる。また式(2-1-9)より、せん断応力 S_{xy} および第1法線応力差 $N_1 (= S_{xx} - S_{yy})$ はそれぞれ

$$S_{xy} = 3ckT \{ 1 - U (1/3 + S_{xx} + S_{yy} - C) \} S_{xy} \quad (2-3-4)$$

$$N_1 = 3ckT \{ 1 - U (1/3 + S_{xx} + S_{yy} - C) \} (S_{xx} - S_{yy}) \quad (2-3-5)$$

となる。ただし、

$$t^* = tD_s \quad (2-3-6)$$

$$\dot{\gamma} * = \dot{\gamma} / D_s \quad (2-3-7)$$

$$C = S_{xx}^2 + S_{yy}^2 + S_{zz}^2 + 2S_{xy}^2 \quad (2-3-8)$$

$$E = (1 - 3C/2)^{-2} \quad (2-3-9)$$

である。また、式(2-1-5)、(2-3-2)より

$$S_{xx} = \langle \sin^2 \cos^2 \rangle - 1/3 \quad (2-3-10 \cdot a)$$

$$S_{yy} = \langle \sin^2 \sin^2 \rangle - 1/3 \quad (2-3-10 \cdot b)$$

$$S_{zz} = \langle \cos^2 \rangle - 1/3 \quad (2-3-10 \cdot c)$$

$$S_{xy} = \langle \sin^2 \sin \cos \rangle \quad (2-3-10 \cdot d)$$

となる。

S_{ij} は、計算方法として式(2-3-3)の時間微分を、二次ルンゲクッタ法を用いて求めた。ただし、時間刻み幅 t^* については、 $t^* = 10^{-7} / \dot{\gamma} *$ とした。ネマティックポテンシャル強度は、 $U = 6$ とした。初期条件として、主配向角は $\theta = \pi/2$ 、 $\phi = 0$ (x 軸方向) とした。

2-4 平衡状態

せん断流特性の結果を示す前に、平衡状態($\dot{\gamma}^* = 0$)での配向の様子を示すことでネマティックポテンシャル強度 U の影響について調べる。平衡状態における配向分布関数 f は一軸対称性であることから、式(2-1-5)の秩序パラメータテンソルは

$$S_{ij} = S(n_i n_j - \delta_{ij} / 3) \quad (2-4-1)$$

と表される⁽⁶⁾。ここで、 \mathbf{n} はディレクターと呼ばれる分子の平均配向方向を表す単位ベクトルである。 \mathbf{n} に垂直な面に関して反射対称性である。したがって、 \mathbf{n} によって示される状態は $-\mathbf{n}$ によって示される状態と同じである。 S は配向の度合を示し、等方状態でゼロ完全配向状態で 1 となる無次元量である。式(2-4-1)を(2-1-8)に代入し、時間に関する量を $1/D_s$ で無次元化すると、

$$\frac{\partial S_{ij}}{\partial t^*} = -6ES_{ij} \left[\left(1 - \frac{U}{3}\right) - \frac{U}{3}S + \frac{2}{3}US^2 \right] \quad (2-4-2)$$

となる。さらに、平衡状態ではディレクターは変化しないので式(2-4-2)は

$$\frac{\partial S}{\partial t^*} = -6ES \left[\left(1 - \frac{U}{3}\right) - \frac{U}{3}S + \frac{2}{3}US^2 \right] = -6E \frac{\partial A}{\partial S} \quad (2-4-3)$$

となる。ただし

$$A(S, U) = \frac{1}{2} \left(1 - \frac{U}{3}\right) S^2 - \frac{U}{9} S^3 + \frac{U}{6} S^4 \quad (2-4-4)$$

式(2-4-3)は S における変化が A の減少する方向に向かうことを指し示す。特に、 S の平衡値は A の最小値から定義される。従って、 A は自由エネルギーの役割を果たす。与えられた U によって A は図 2-2 のようになる。

(1) $U < 8/3$ において、 A は $S = 0$ でただ一つの極小値をもち、等方相が唯一の解となる。

(2) $8/3 < U < 3$ において、もう一つの極小値である液晶相

$$S = \frac{1}{4} + \frac{3}{4} \left(1 - \frac{8}{3U}\right)^{1/2} \quad (2-4-5)$$

が現れる。

(3) $U > 3$ において、等方相が不安定になり液晶相のみが安定に存在する。

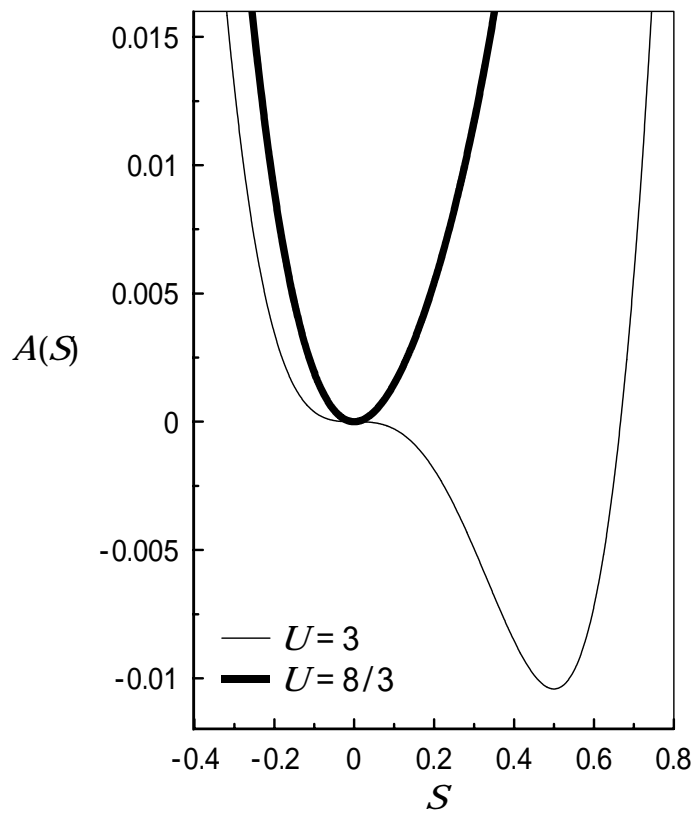


図 2-2 U の各々の値に関する S に対して描かれた A

以上のことから U に対する S は図 2-3 のようになる．等方相 ($S=0$) のみが安定に存在するのは $U < 8/3$ で，液晶相のみが安定に存在するのは $U > 3$ の場合である． $8/3 < U < 3$ は，両相が安定または準安定に存在する共存領域である．

このように土井理論では， U によって，等方相と液晶相の両方を記述することができる．

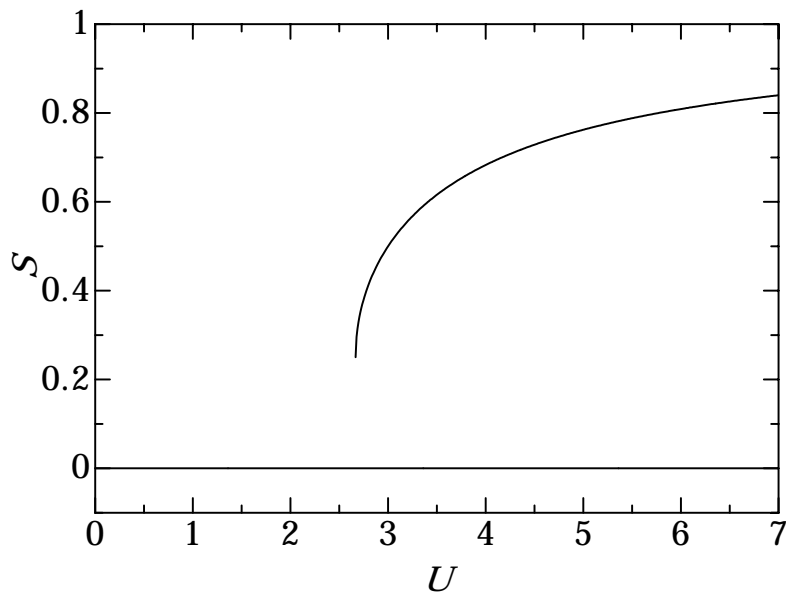


図 2-3 U に対して描かれた秩序パラメータ S

第3章 計算結果および考察

3-1 非定常特性

本研究では図 2-1 に示したような x - y 平面内 ($\theta = \pi/2$) の流れを仮定しているので、液晶分子の平均配向方向は x - y 平面内に存在する。そこでこの平均配向方向を主配向角 θ_m とすると、 θ_m は秩序パラメータテンソルの最大固有値に対する固有ベクトルから、

$$\tan 2\theta_m = 2S_{xy} / (S_{xx} - S_{yy}) \quad (3-1-1)$$

より求められる。また秩序パラメータ S は式(2-3-8)より

$$S = \sqrt{3C/2} \quad (3-1-2)$$

で求められる。 S は配向の度合を表すスカラー量であり、ランダム配向で 0、完全配向で 1 である。

3-2 主配向角と秩序パラメータの時間変化

緒言で述べたように、配向分布関数 f を直接解いた場合、せん断速度の増加に伴って、タンプリング挙動（低せん断領域）、ワギング挙動（中せん断領域）、アライニング挙動（高せん断領域）が示される。次にテンソル量を用いた場合の結果が特異流動を示すかどうかを検討する。

図 3-1(a~b) に、ポテンシャル強度 $U = 6$ 、形状係数 $\beta = 0.9$ の場合の、各々のせん断速度 $\dot{\gamma}^*$ における、 θ_m と S の時間変化を示す。横軸には、その時刻までに流体が受けたせん断ひずみ ($= t \dot{\gamma}^*$: 無次元時間に相当) をとっている。図 3-1(a) のように $\dot{\gamma}^*$ が小さいとき ($\dot{\gamma}^* = 10, 20$)、 θ_m は 0° から単調に減少しており、タンプリング挙動が得られている。初期値の影響は $\dot{\gamma}^* = 25$ あたりの比較的初期のうちに取り除かれ、それ以後、規則正しい周期運動が見られる。回転周期は $\dot{\gamma}^*$ の増加に伴って若干長くなる。 θ_m の変化は $\theta_m = 0^\circ$ の辺りで緩やかになっている。それは液晶分子が流体から受ける回転トルクが $\theta_m = 0^\circ$ で最小になるためである。タンプリング領域で、 S は θ_m の回転運動に伴って振動挙動を見せている。 $\dot{\gamma}^* = 10$ では、 S は平衡状態での値 ($= 0.809$) のあたりで振動している。 $\dot{\gamma}^* = 20$ に増加させると、平衡状態での値を超える時間が短くなって、さらに S は急激に減少している。 $\dot{\gamma}^*$ が高いほど S は平衡状態から急激に減少するが、平衡状態からの増加はどの $\dot{\gamma}^*$ でもあまり変わらない。図 2-1 の座標系において、速度こう配テンソルは $\theta = 45^\circ$ 方向に伸張を引起し、 $\theta = -45^\circ$ 方向に圧縮を引起す。よって θ_m がマイナスのとき、せん断流は配向分布を広げる方向に働き、結果的に S は減少する。一方 θ_m がプラスのとき、せん断流は広がった配向分布を伸張するため、 S は回復する。

$\dot{\gamma}^*$ が増加すると ($\dot{\gamma}^* = 40, 50$)、図 3-1(b) のように θ_m はタンプリング挙動からワギング挙動へと変化する。ただし、タンプリング領域においても振動は規則的であるが、 θ_m の周期は $\dot{\gamma}^*$ の増加に伴って若干短くなる。また振幅も小さくなっている。 θ_m の増加時の変化は減少時の変化に比べて短い時間で起こっており、この傾向は $\dot{\gamma}^*$ が顕著に見られる S の変化はタンプリング領域の $\dot{\gamma}^* = 20$ とあまり変わらない。ただしタンプリング領域では、 $\dot{\gamma}^*$ が

高いほど S の変化は大きい、反対にワギング領域では $\dot{\theta}^*$ が高いほど S の変化は小さい。これは、タンプリング領域では、 $\dot{\theta}^*$ が高いほど配向分布を大きく変化させることができることに起因しているのに対し、ワギング領域では、 $\dot{\theta}^*$ が高いほどタンプリング傾向よりアライニング傾向が大きくなることに起因している。

さらに $\dot{\theta}^*$ が増加すると ($\dot{\theta}^* = 60, 100$)、図 3-1(c) のように、 θ_m は最初振動するが振動は徐々に小さくなり定常値に漸近しており、アライニング挙動が見られる。 $\dot{\theta}^*$ が大きいほど定常に達する時間は短い。定常値は $\dot{\theta}^* = 100$ のほうが 0° に近い値をとっている。 S も θ_m と同じような挙動が見られる。 S の定常値はせん断速度の大きいほうが高いが、 $\dot{\theta}^* = 60$ と $\dot{\theta}^* = 100$ の両方が平行状態の値より小さい。

図 3-2(a~b) に、 $U = 6$ 、 $\beta = 0.95$ の場合の、各々の $\dot{\theta}^*$ における θ_m と S の時間変化を示す。図 3-2(a) のように $\dot{\theta}^*$ が小さい場合 ($\dot{\theta}^* = 10, 20$)、上記の $\beta = 0.9$ の場合と同様に、 θ_m は 0° から単調に減少しており、タンプリング挙動が見られる。 θ_m の回転周期は $\dot{\theta}^*$ が大きい方が長い。 $\dot{\theta}^* = 10$ では、 S は平行状態での値 (0.809) のまわりで振動しているが、 $\dot{\theta}^*$ が 20 に増加すると、平行状態の値を超える時間は短くなり、 S の急激な減少が見られる。 $\beta = 0.9$ と $\beta = 0.95$ の場合を比較すると、 θ_m の回転周期は $\beta = 0.95$ の方が長く、 $\dot{\theta}^* = 20$ では、 $\beta = 0.95$ の方がより急激な減少が見られる。

図 3-2(b) のように $\dot{\theta}^*$ を増加させると ($\dot{\theta}^* = 40, 50$)、 θ_m は 0° から減少し定常値に至っておりタンプリング挙動は見られず、アライニング挙動が見られる。 $\dot{\theta}^*$ が大きいほど θ_m は、 0° に近い値をとっている。 S は平行状態の値 (0.809) から減少し定常値に至っている。 S の定常値は $\dot{\theta}^*$ が大きいほうがより高い。 $\dot{\theta}^* = 40, 50$ とともに S の定常値は、平行状態の値 (0.809) を下回っている。

図 3-2(c) のように $\dot{\theta}^*$ をさらに増加させると ($\dot{\theta}^* = 60, 100$)、 θ_m は 0° から減少して定常値に至っておりアライニング挙動が見られるが、 θ_m は $\beta = 0.9$ の場合 (図 3-1(c)) のように振動挙動から定常値に至る変化は見られない。このときの S は平行状態から減少し定常値に至っている。 $\beta = 0.9$ と $\beta = 0.95$ の場合を比較すると、 θ_m は $\beta = 0.95$ の方が 0° に近い値をとっている。また S も $\beta = 0.95$ の方が平行状態の値 (0.809) に近い値をとっている。

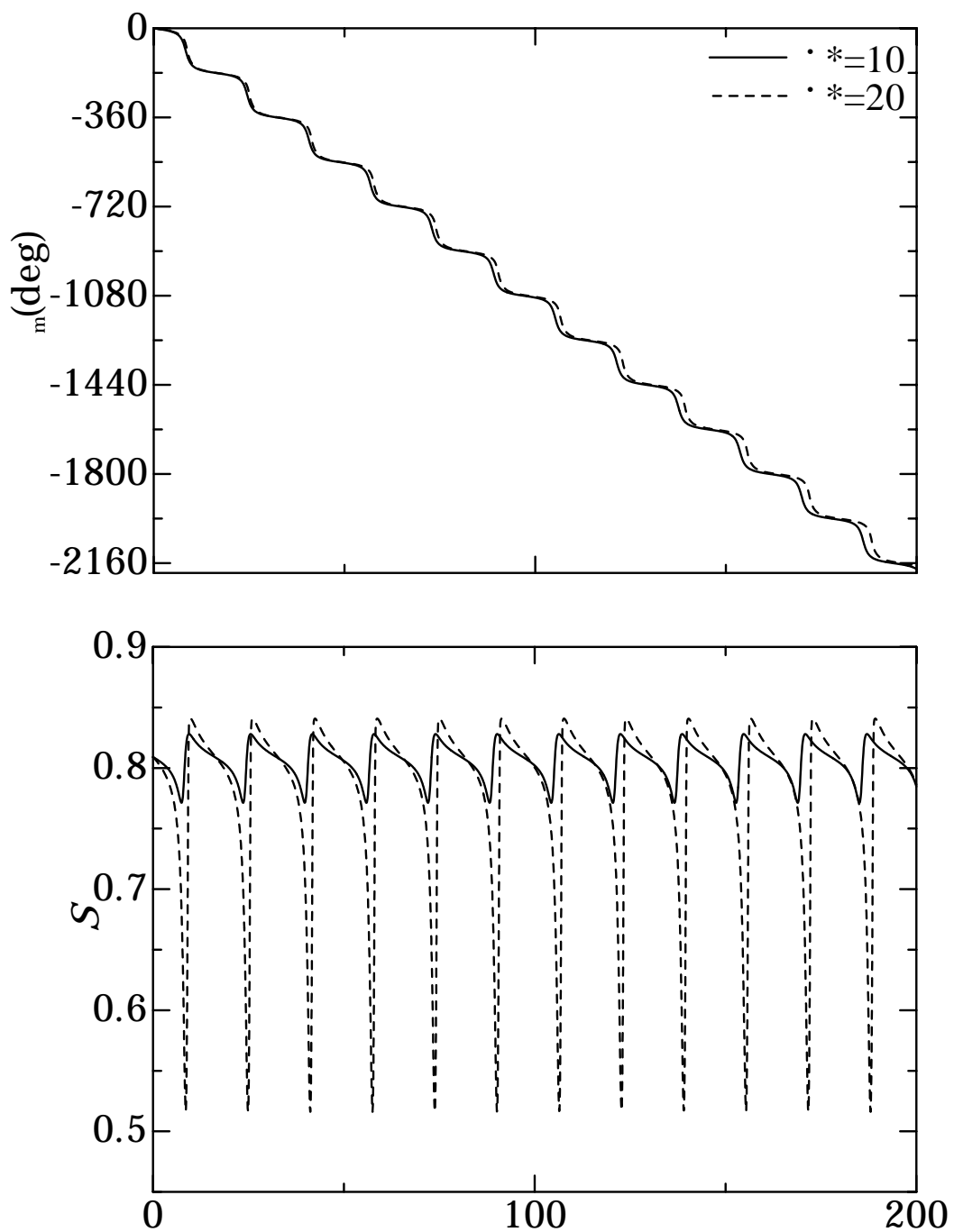
図 3-3(a~b) に、 $U = 6$ 、 $\beta = 0.99$ の場合の、各々の $\dot{\theta}^*$ における θ_m と S の時間変化を示す。図 3-3(a) のように $\dot{\theta}^*$ が小さい場合 ($\dot{\theta}^* = 10, 20$)、 θ_m は 0° から増加して定常値に至っており、 $\beta = 0.9, 0.95$ の場合のように、タンプリング挙動は見られず、アライニング挙動が見られる。 θ_m は $\dot{\theta}^*$ が大きいほど 0° に近い値をとっている。このときの S は平行状態の値 (0.809) から増加して定常値に至る。 θ_m 、 S とともに $\dot{\theta}^*$ が大きいほど定常値に至る時間は短くなる。 $\dot{\theta}^*$ が大きいほど S の定常値は大きい。

図 3-3(b) のように $\dot{\theta}^*$ を増加させると ($\dot{\theta}^* = 40, 50$)、 θ_m は単調に定常値に至り、ワギング挙動は見られず、アライニング挙動が見られる。 $\dot{\theta}^*$ が大きいほど 0° に近い値をとっている。このときの S も単調に増加しており、 $\dot{\theta}^*$ が大きいほど S の定常値は大きい。

図 3-3(c) のようにさらに $\dot{\theta}^*$ を増加させると ($\dot{\theta}^* = 60, 100$)、 θ_m は単調に定常値に至り

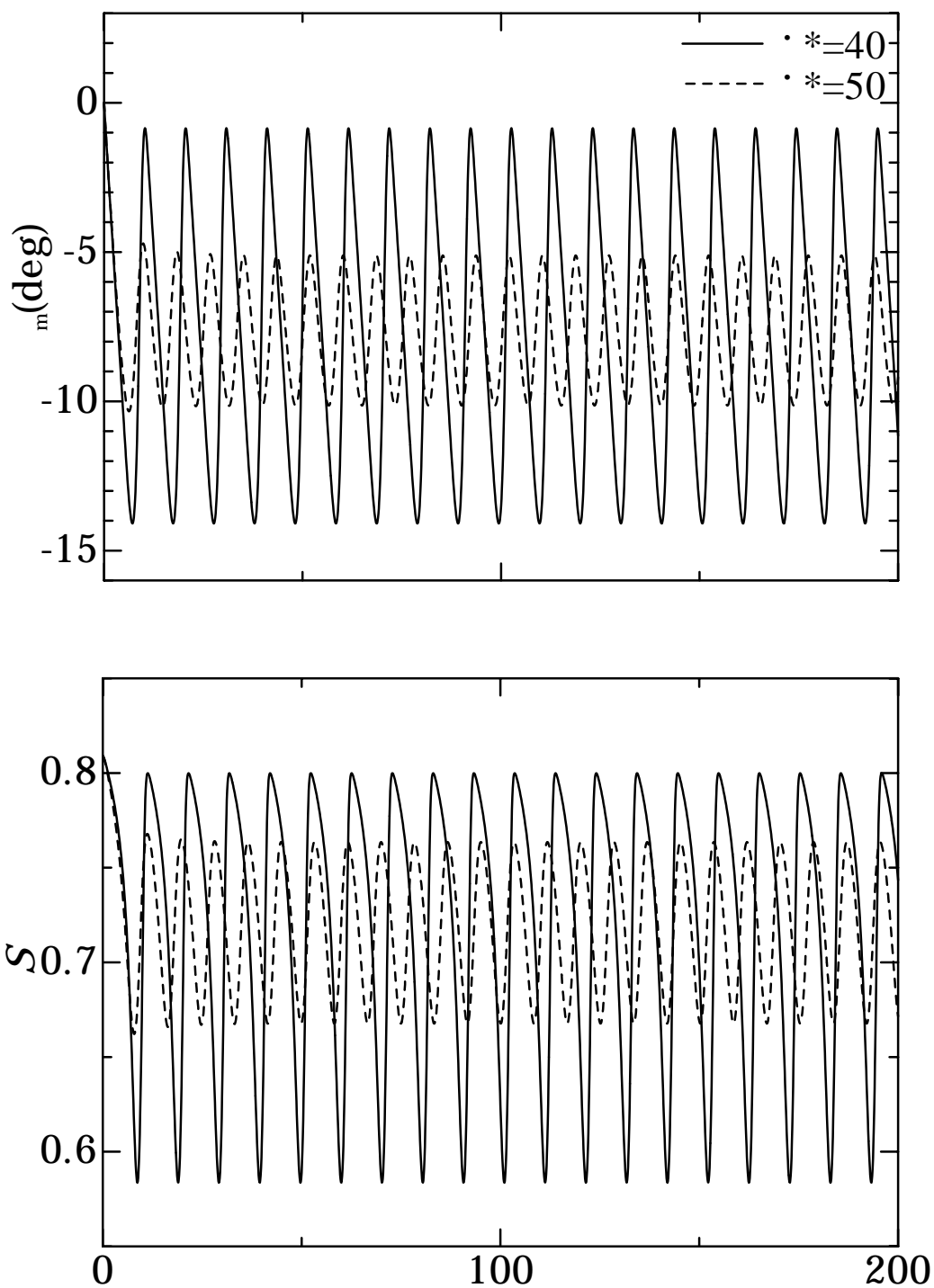
アライニング挙動が見られるが、 $\beta = 0.9$ の場合(図 3-1(c))のように、 η_m は振動挙動から定常値に至る変化は見られない。このときの S も単調に定常値に至り、 $\dot{\gamma}^*$ が大きいほど S の定常値は大きい。

以上のように、 $\beta = 0.9$ の場合においては、 η_m は $\dot{\gamma}^*$ の増加に伴って高分子液晶の特異流動であるタンブリング挙動、ワギング挙動、アライニング挙動が良好に示される。 $\beta = 0.95$ 場合においてタンブリング挙動、アライニング挙動は示されるが、ワギング挙動は示されない。また、 $\beta = 0.99$ の場合において、タンブリング挙動、ワギング挙動は示されず、アライニング挙動のみ示される。



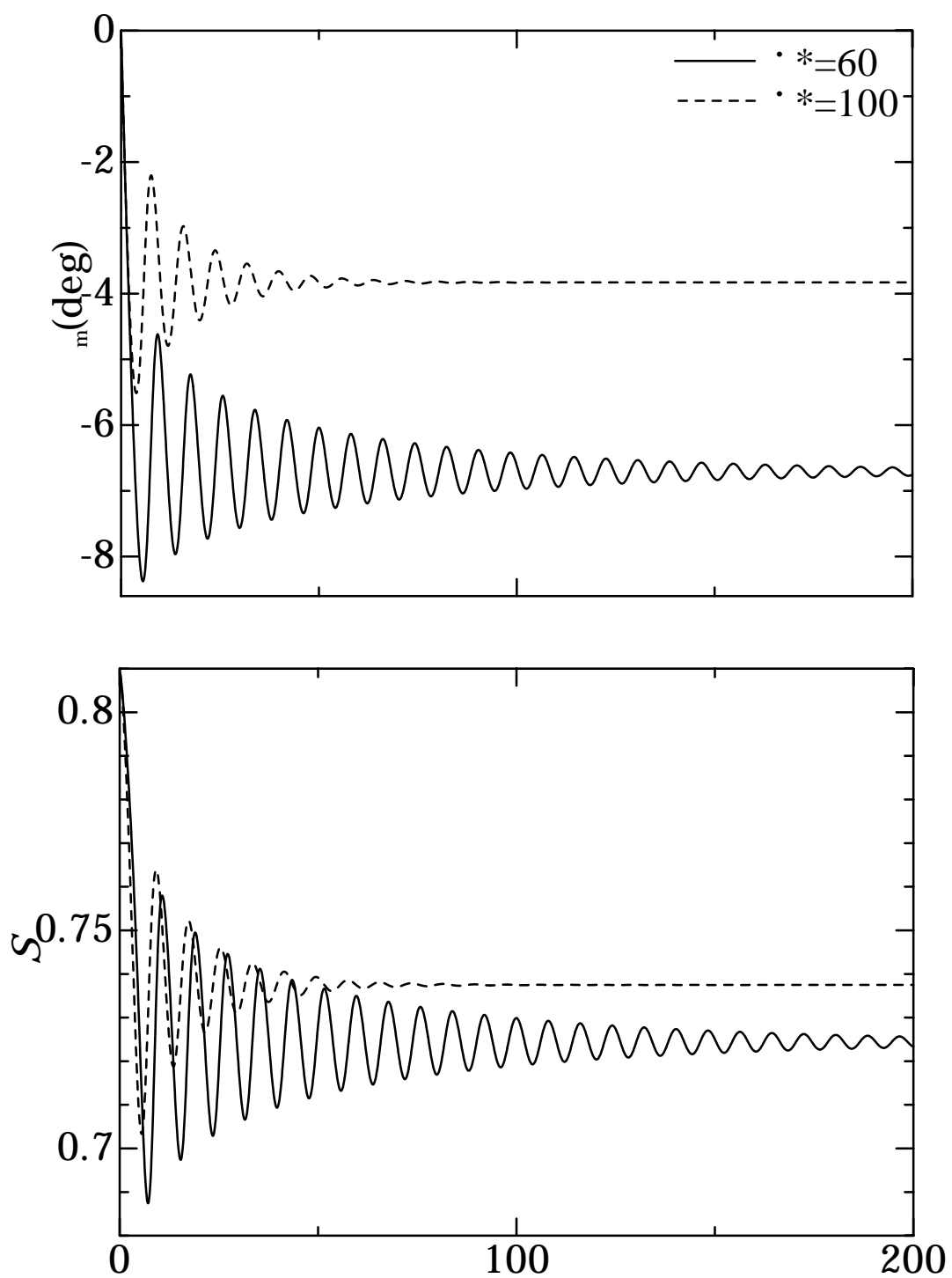
タンプリング

図 3-1(a) $U=6$, $\beta=0.9$ の場合の主配向角と秩序パラメータの時間変化



ワギング

図 3-1(b) $U=6$, $\beta=0.9$ の場合の主配向角と秩序パラメータの時間変化



アライニング

図 3-1(c) $U=6$, $\beta=0.9$ 場合の主配向角と秩序パラメータの変化

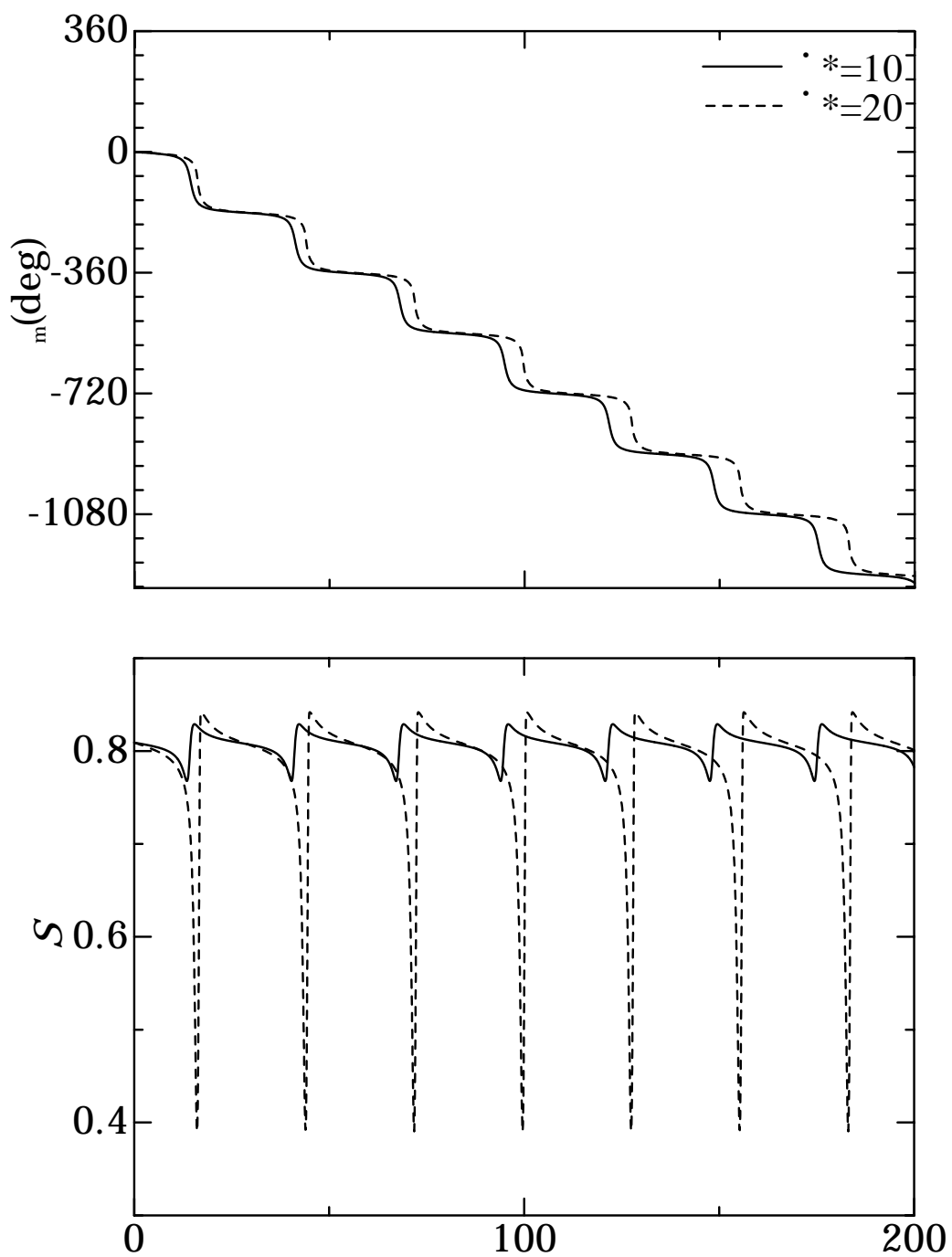


図 3-2(a) $U=6$, $\beta=0.95$ 場合の主配向角と秩序パラメータの変化

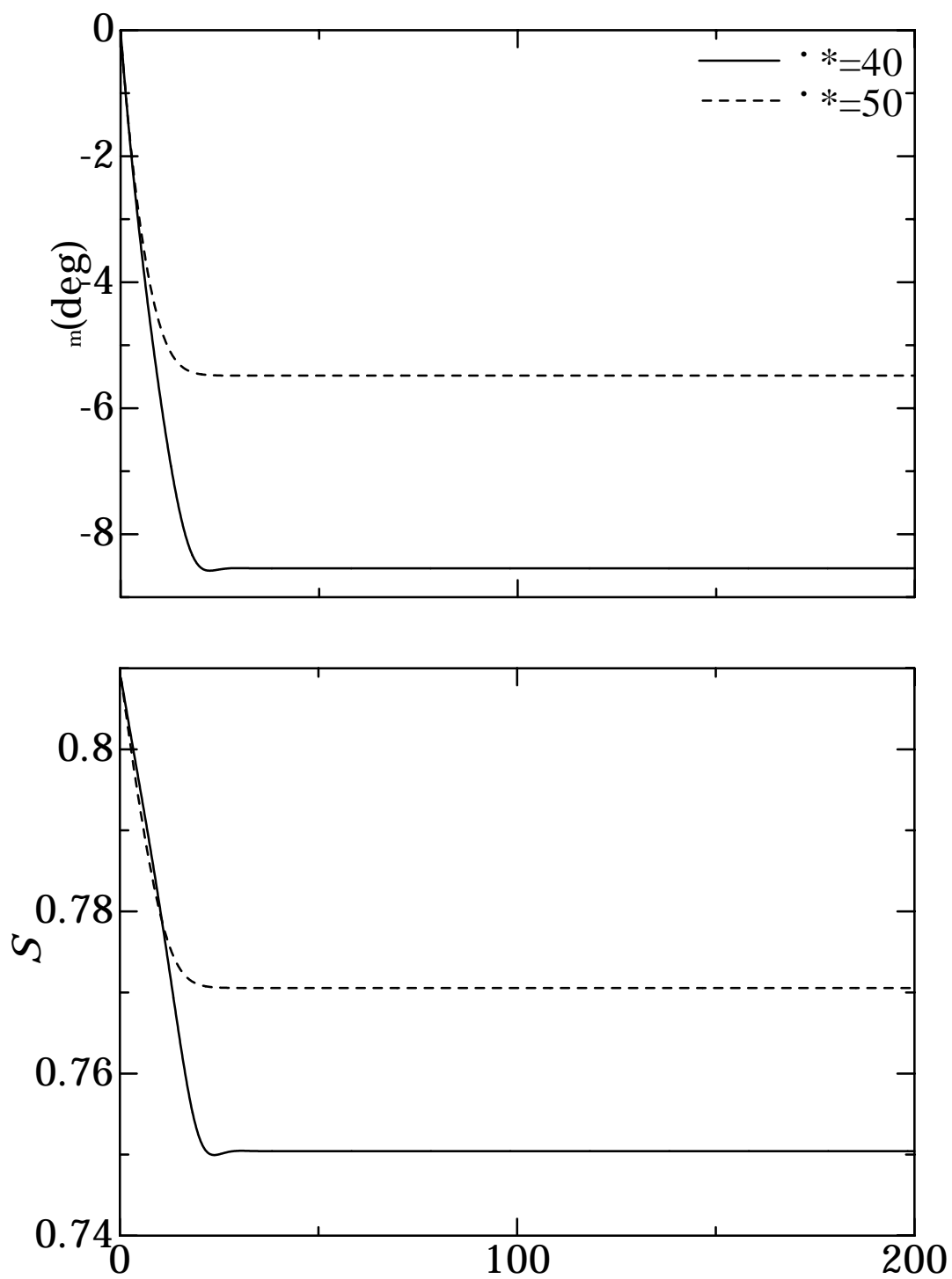


図 3-2(b) $U=6$, $\beta=0.95$ 場合の主配向角と秩序パラメータの変化

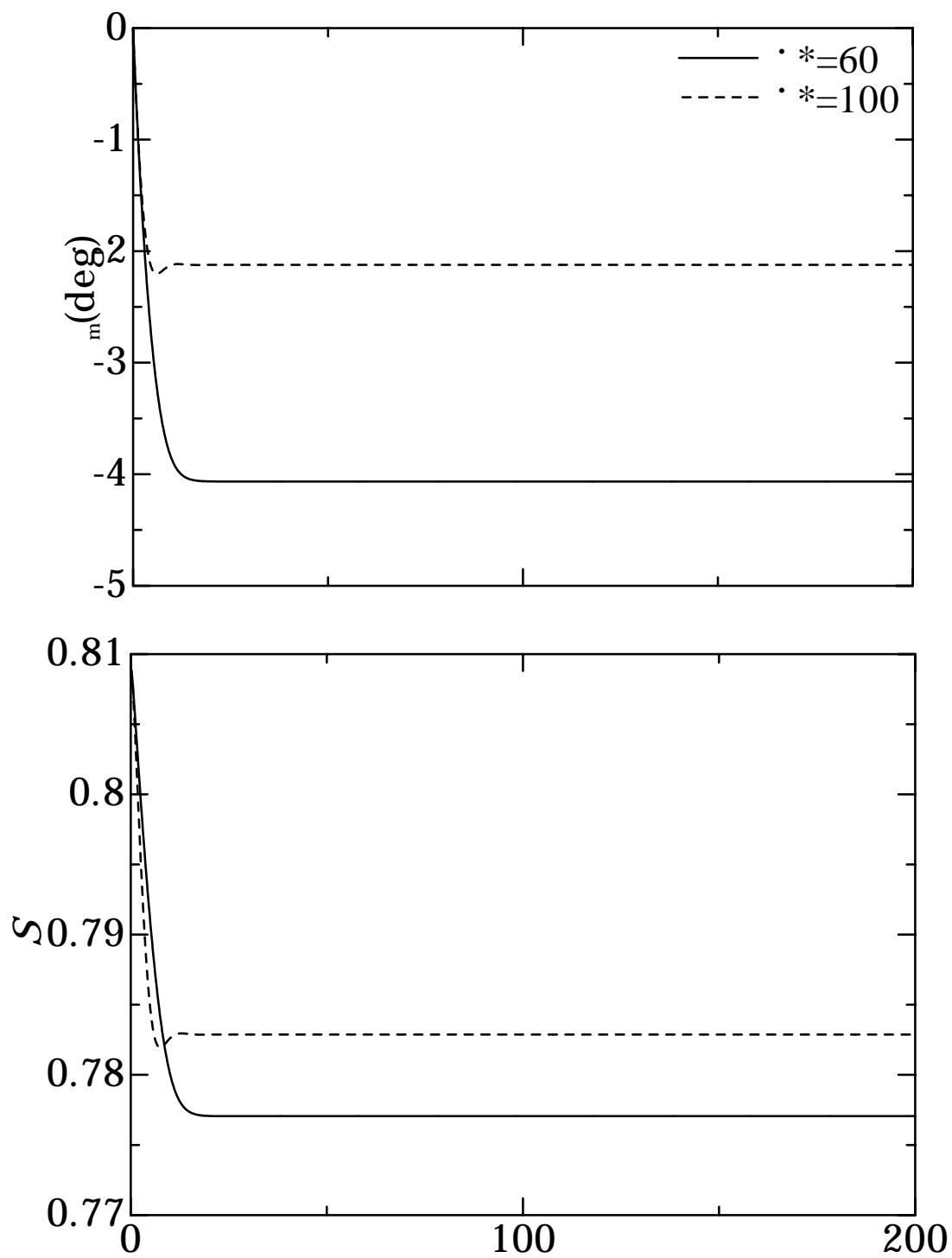


図 3-2(c) $U=6$, $\beta=0.95$ の場合の主配向角と秩序パラメータの変化

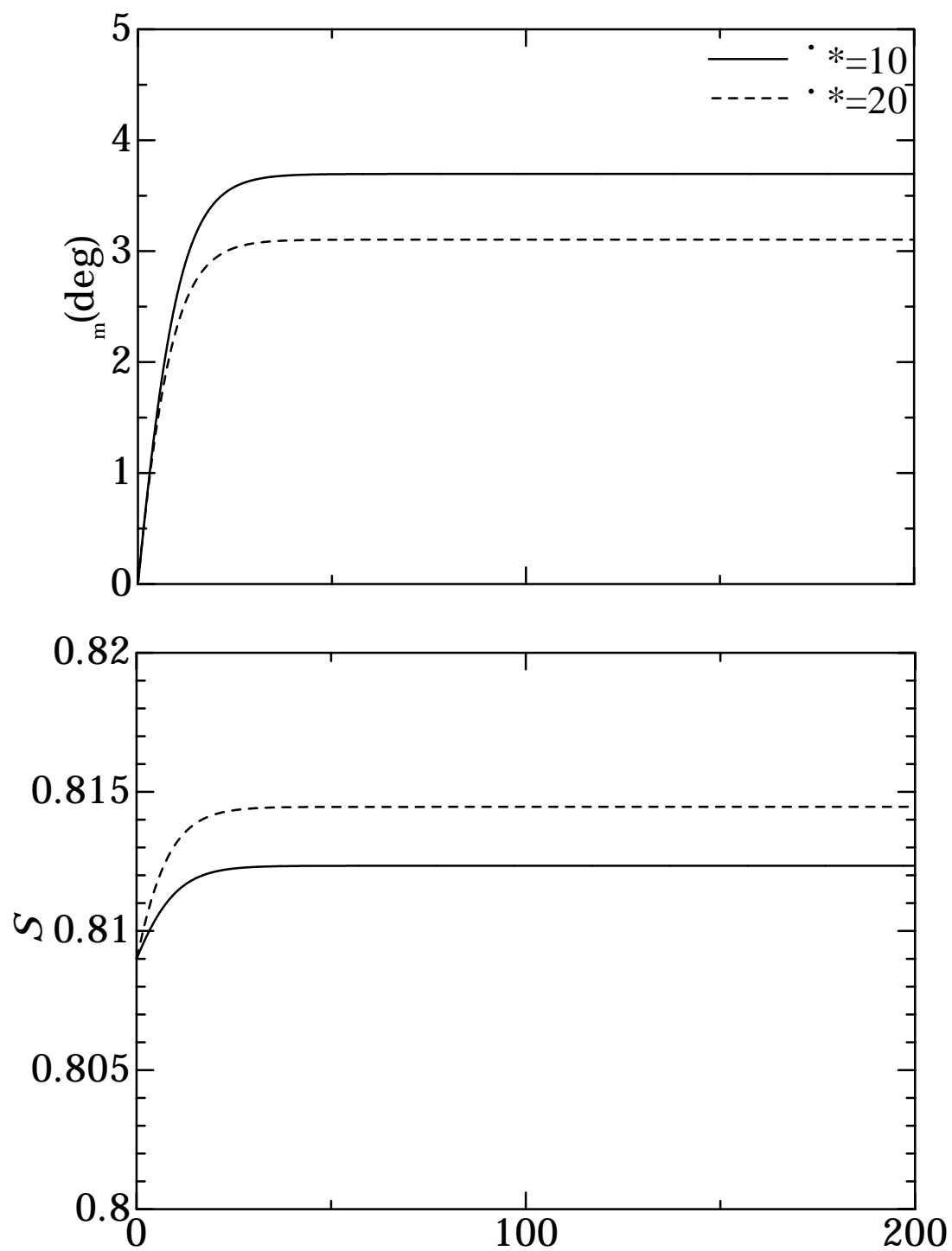


図 3-3 (a) $U=6$, $\beta=0.99$ の場合の主配向角と秩序パラメータの変化

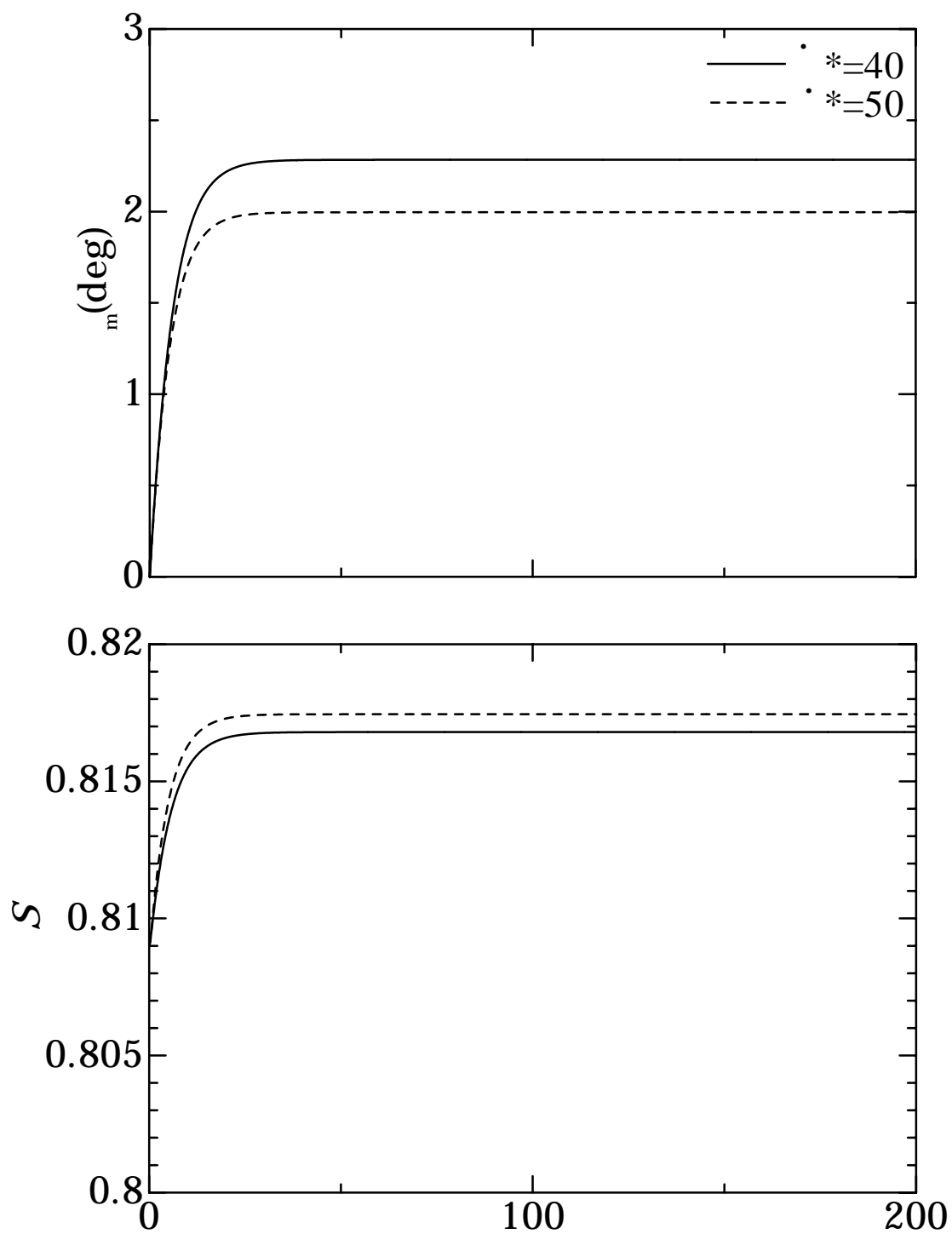


図 3-3 (b) $U=6$, $\beta=0.99$ の場合の主配向角と秩序パラメータの変化

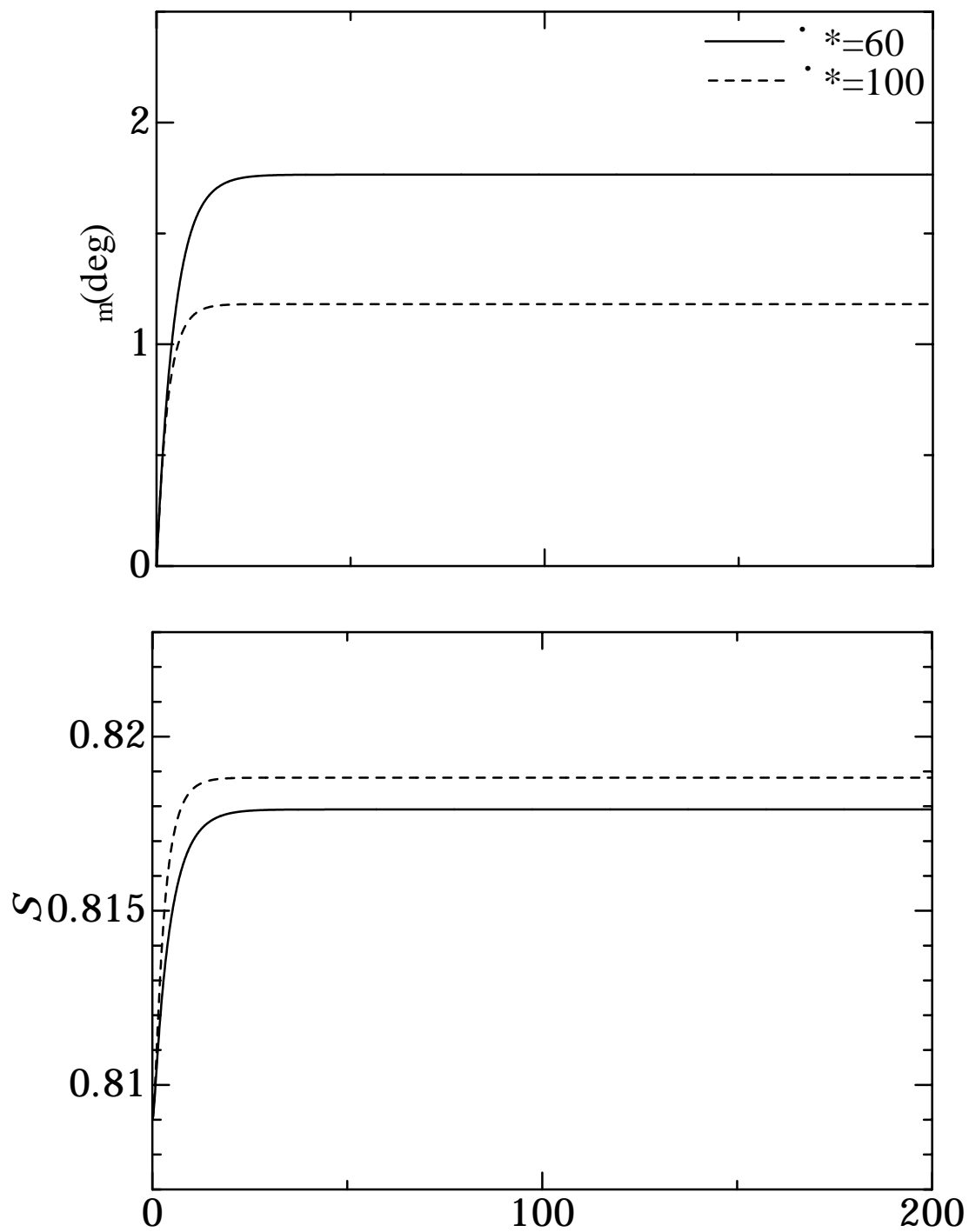


図 3-3 (c) $U=6$, $\beta=0.99$ の場合の主配向角と秩序パラメータの変化

3-3 応力の時間変化

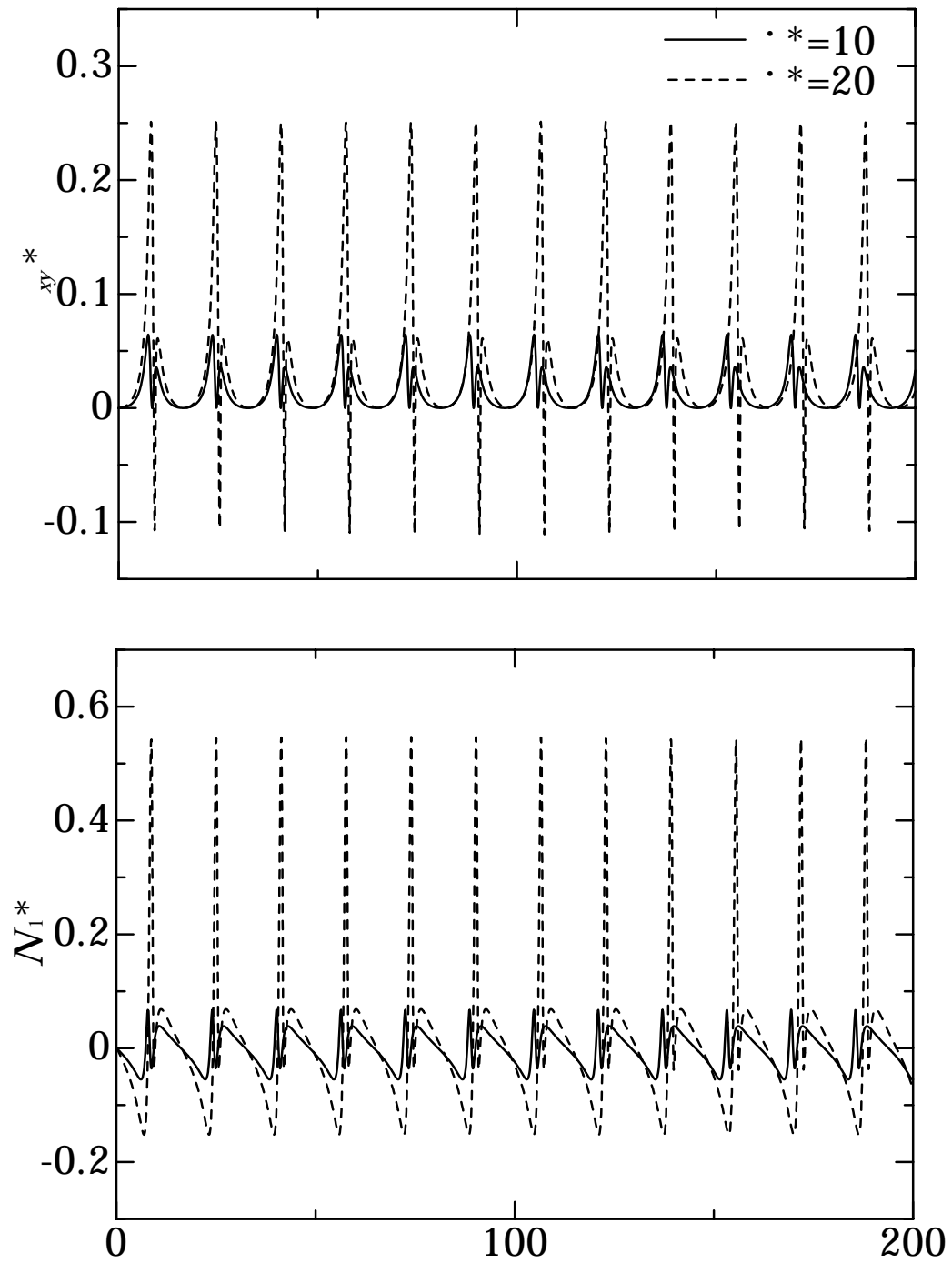
図 3-4(a~c)に、 $3ckT$ で無次元化したせん断応力 σ_{xy}^* と N_1^* ($N_1^* = \sigma_{xx} - \sigma_{yy}$)を示す。選択した U と β^* は、図 3-1(a~c)と同様である ($U=6$, $\beta^*=0.9$)。図 3-4(a)のタンブリング領域において、応力は S のような単純な変化ではなく、複雑な振動挙動が見られる。 σ_{xy}^* は 1 周期に二つのピークが現れる。一つのピークは θ_m が -45° あたりのとき、もう一つのピークは、 45° あたりのときに現れる。二つのピークを比較すると、一つめのピークの方が値は大きく、 β^* の増加に伴い一つめのピークは増加するのに対し、二つめのピークはあまり増加しない。また、 N_1^* も σ_{xy}^* と同様に二つのピークを持つ。

ワギング領域において、 σ_{xy}^* と N_1^* とともにタンブリング領域で現れたの二つめのピークは、現れなくなる。 N_1^* はほとんど零以下で振動しており、 $\beta^*=40, 50$ のときの N_1^* は常に 0° 以下で振動している。 σ_{xy}^* , N_1^* とともに、 β^* が大きいほど振幅は小さくなる。

アライニング領域において、応力は θ_m や S の変化と同様に減衰振動し、定常値に至る。応力についても β^* が大きいほど定常に達する時間は短い。せん断が S を下げる方向に働くとき、第 1 法線応力差は負の値をとる。

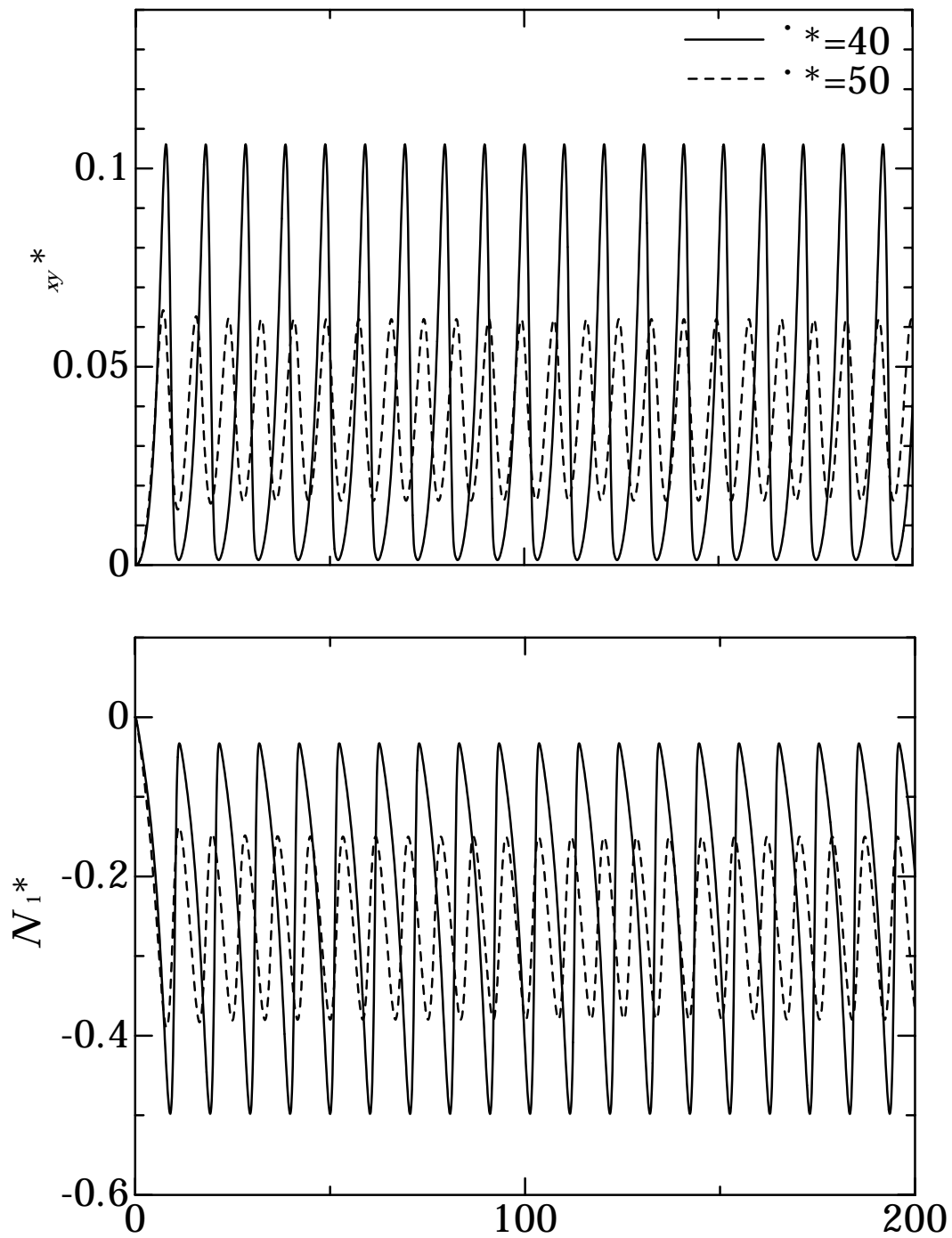
図 3-5(a~c)に、 $U=6$, $\beta^*=0.95$ の場合の、各々の β^* における応力の時間変化を示す。図 3-5(a)において、応力は、 $\beta^*=0.9$ の場合と同様に、1 周期に二つのピークが現れる。図 3-5(b~c)において、 σ_{xy}^* は、単調に増加して定常値に至り、複雑な振動挙動は見られない。 β^* が大きいほど、 σ_{xy}^* の定常値は小さく、 N_1^* の定常値は大きくなる。

図 3-6(a~c)に、 $U=6$, $\beta^*=0.99$ の場合の、各々の β^* における応力の時間変化を示す。図 3-6(a~c)において、 σ_{xy}^* , N_1^* とともに単調に増加し定常値に至る。図 3-6(a~c)において、 β^* の増加に伴って N_1^* の値は大きくなる。図 3-6(a)において、 β^* が大きいほど σ_{xy}^* は、大きくなる。しかし、図 3-6(b~c)において、 β^* が大きいほど σ_{xy}^* は小さくなる。



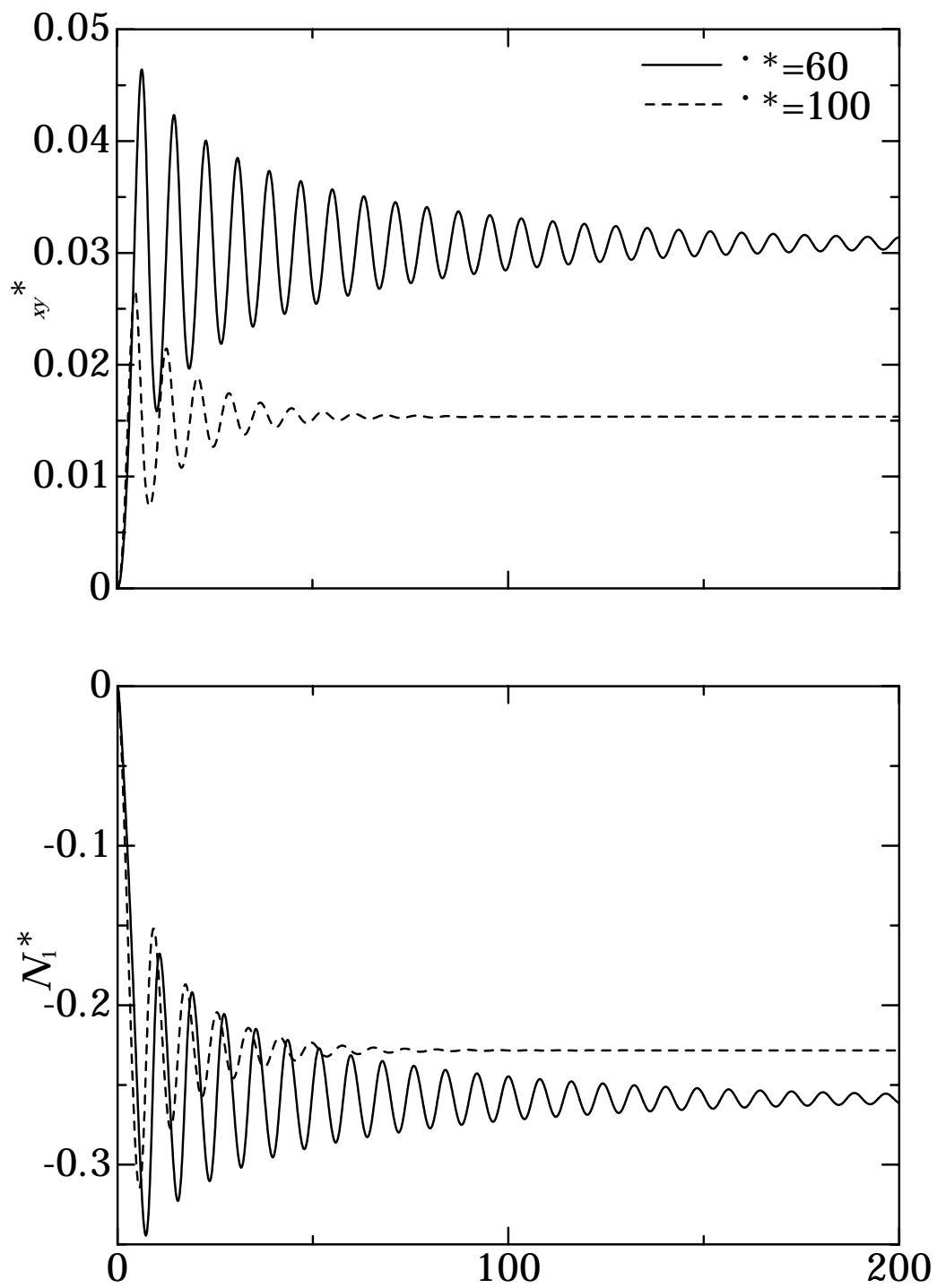
タンプリング

図 3-4(a) $U=6$, $\nu^*=0.9$ の場合の, 応力の時間変化



ワギング

図 3-4(b) $U=6$, $\nu^* = 0.9$ の, 場合の応力の時間変化



アライニング

図 3-4(c) $U=6$, $\nu^*=0.9$ の場合の, 応力の時間変化

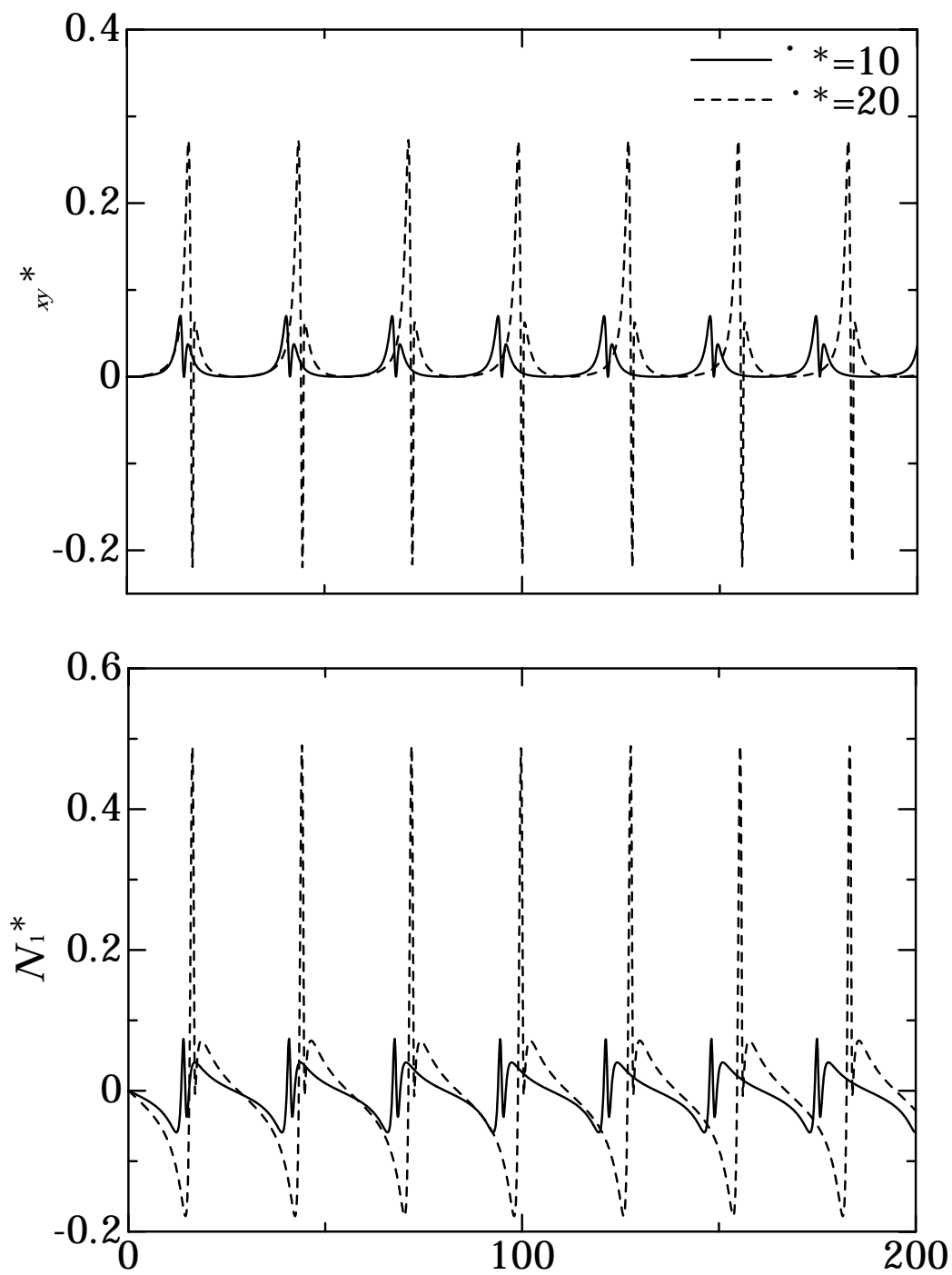


図 3-5(a) $U=6$, $\nu^*=0.95$ の場合の, 応力の時間変化

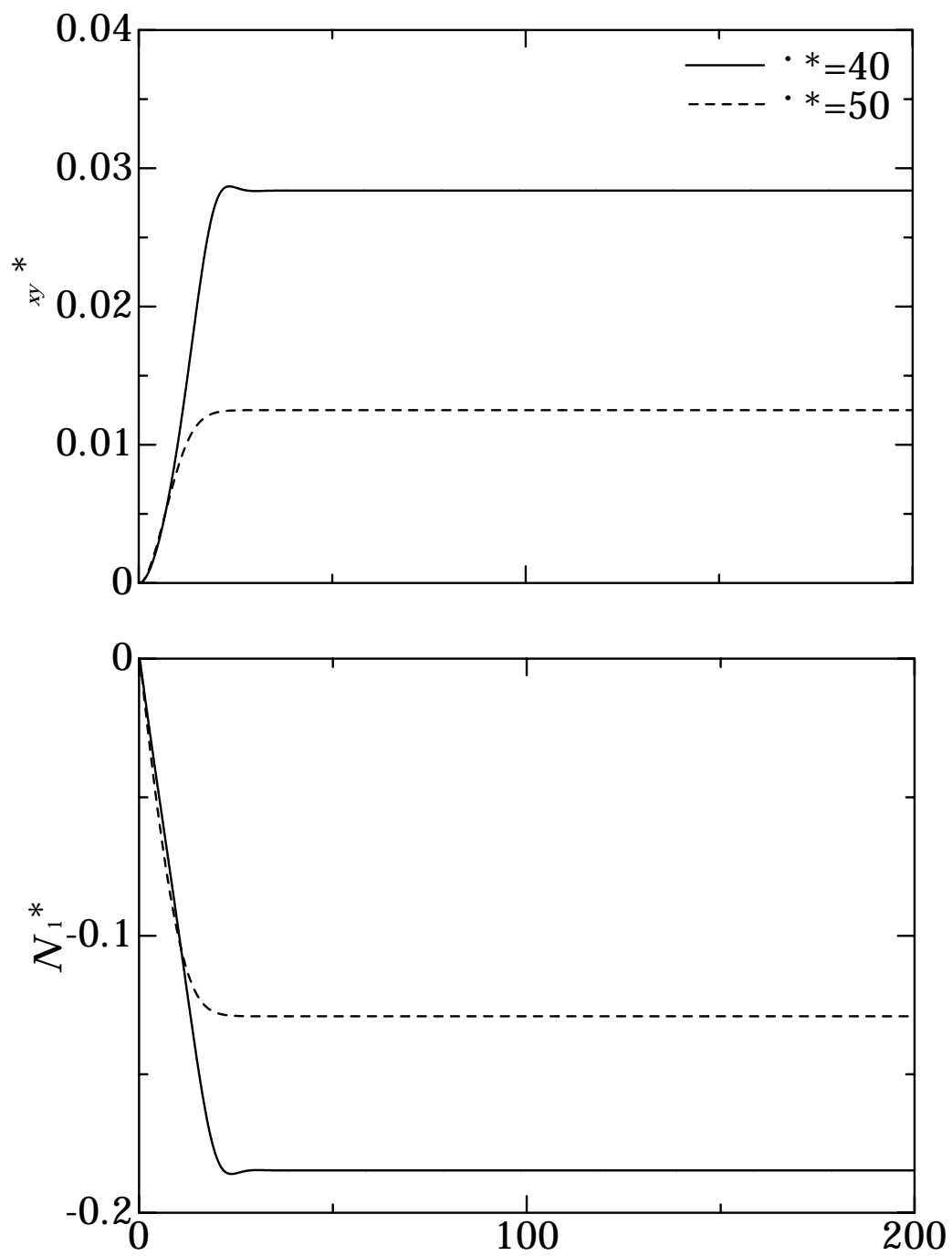


図 3-5(b) $U=6$, $\nu^*=0.95$ の場合の, 応力の時間変化

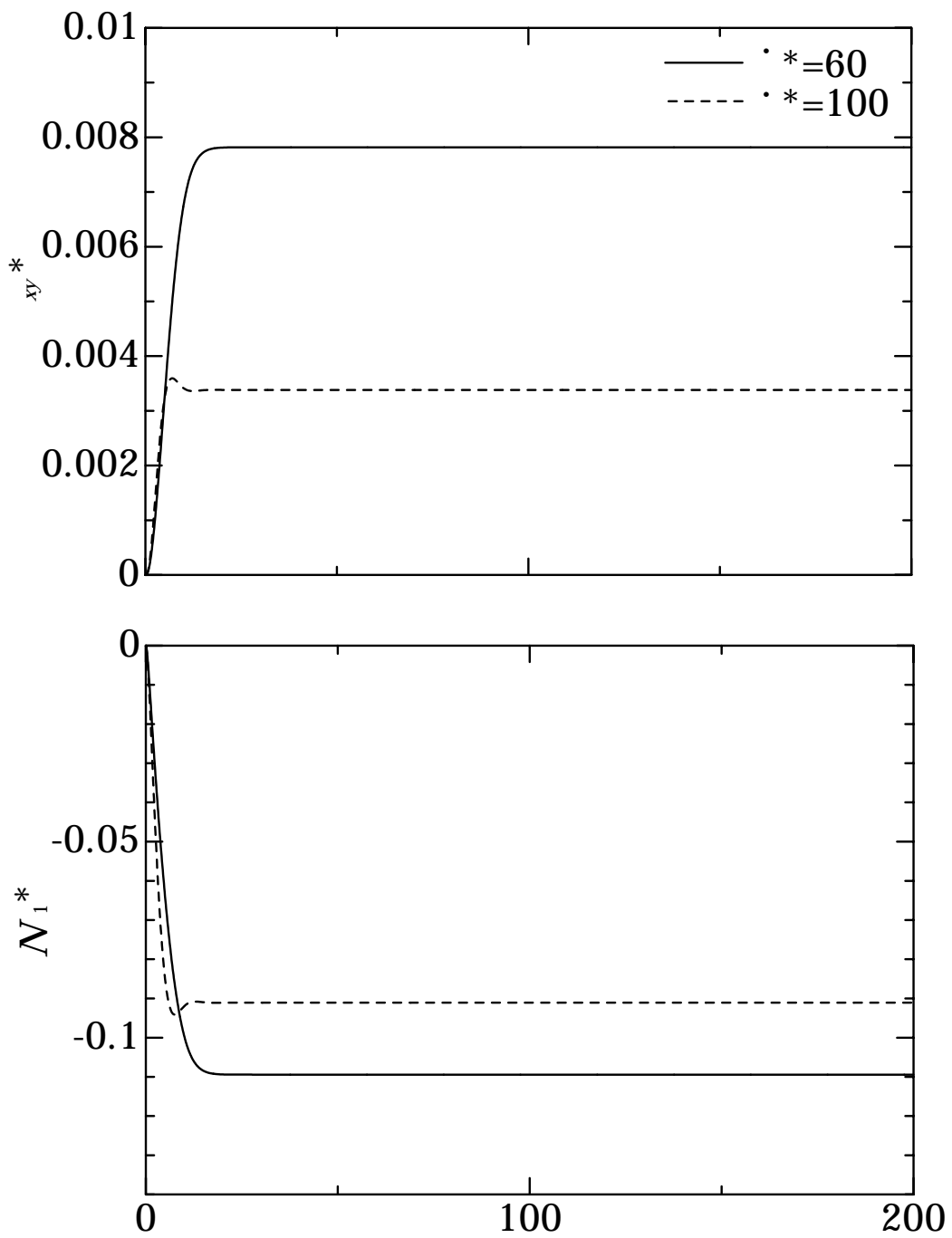


図 3-5(c) $U=6$, $\nu=0.95$ の場合の, 応力の時間変化

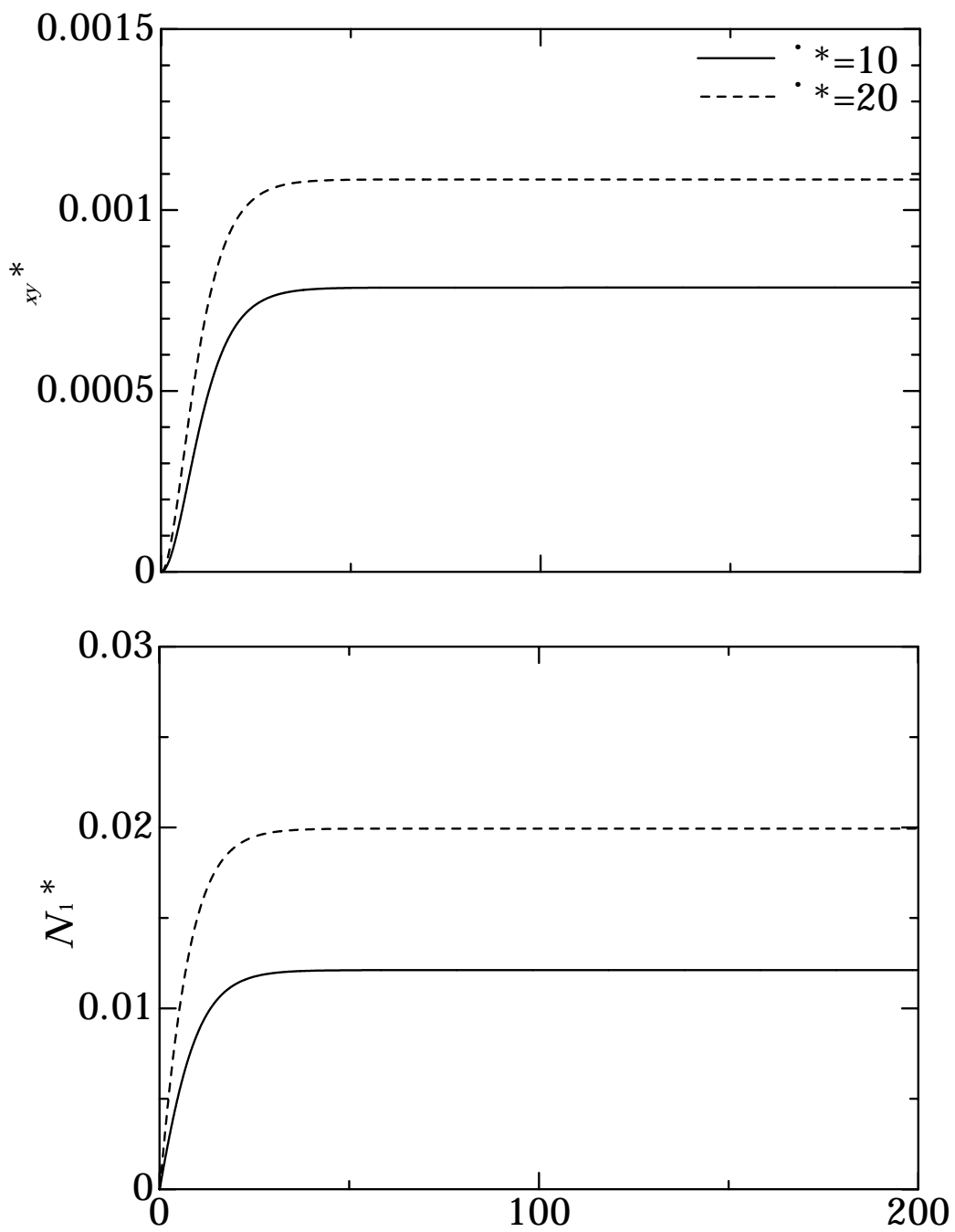


図 3-6(a) $U=6$, $\beta=0.99$ の場合の, 応力の時間変化

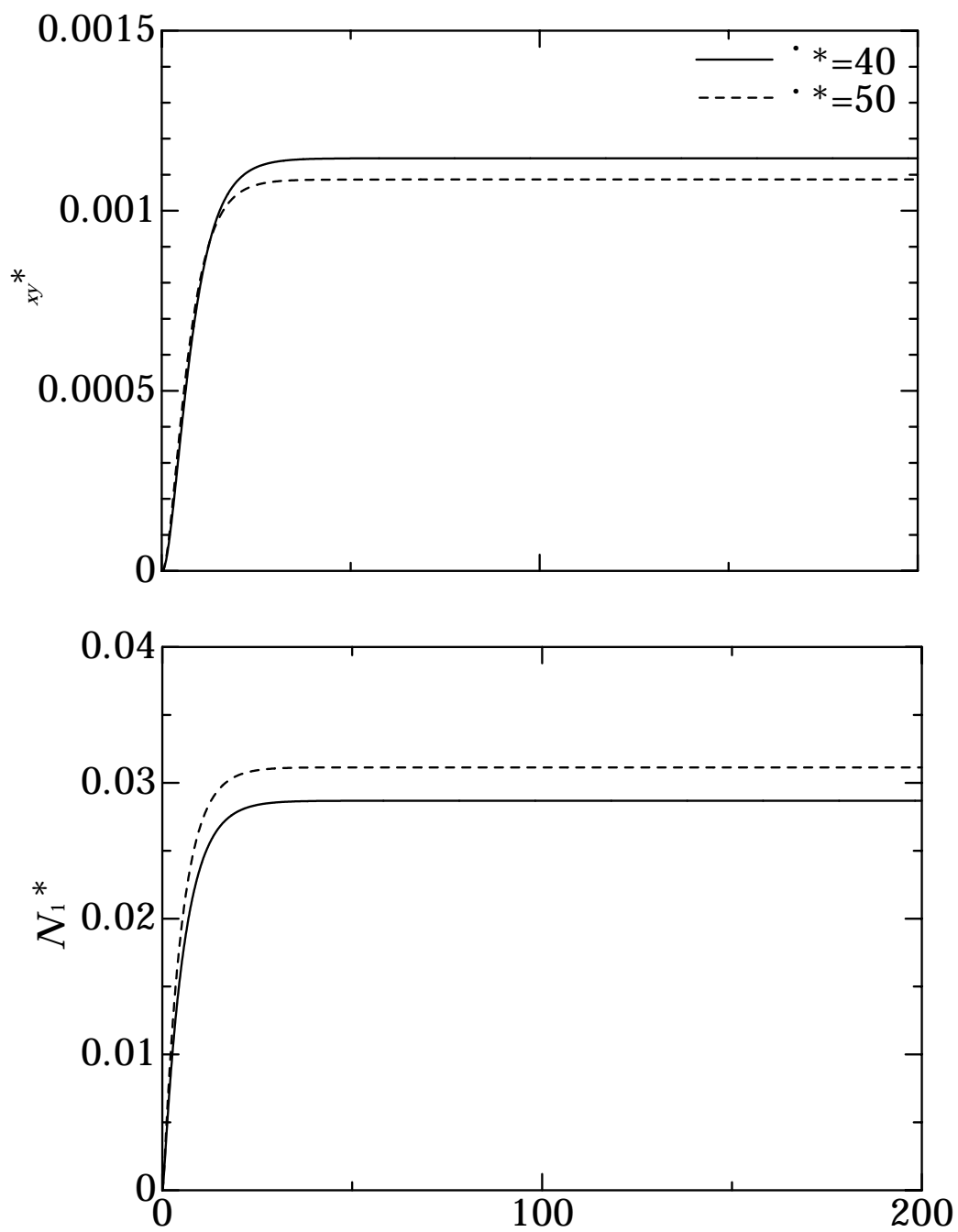


図 3-6(b) $U=6$, $\nu=0.99$ の場合の , 応力の時間変化

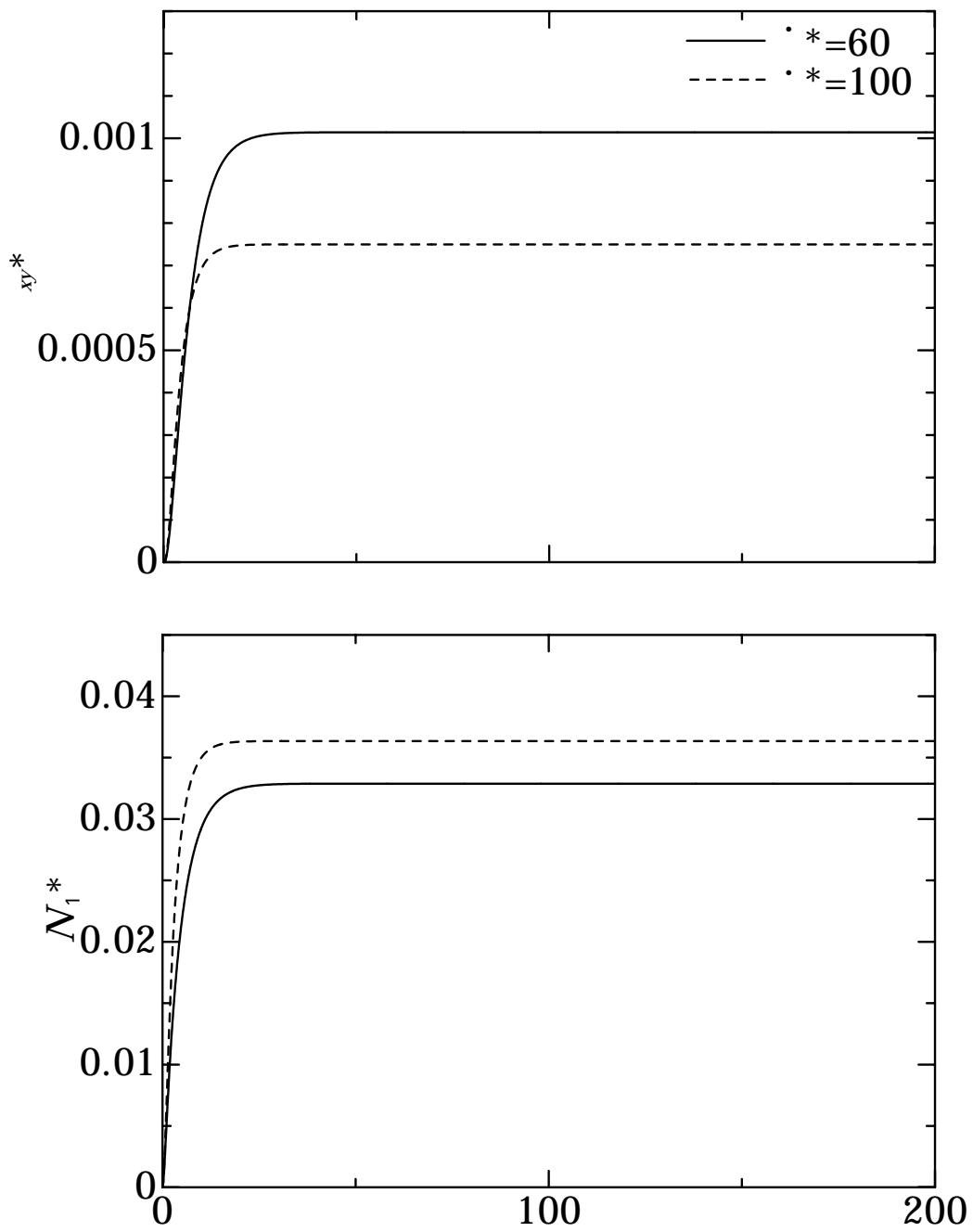


図 3-6(c) $U=6$, $\nu=0.99$ の場合の、応力の時間変化

3-4 秩序パラメータと応力の変化

図 3-7(a~c)は、ポテンシャル強度 $U=6$ 、形状係数 $\beta=0.9, 0.95, 0.99$ の場合の、秩序パラメータ S の定常値を、せん断速度 $\dot{\gamma}^*$ に対してプロットした結果である。 $\dot{\gamma}^*=200$ で S が定常値に至らず、振動挙動を示している場合、最後の 1 周期の平均値から求めた。

図 3-7(a)の $U=6$ 、 $\beta=0.9$ の場合において、 S は平行状態の値($=0.809$)からゆるやかに減少し、 $\dot{\gamma}^*=15$ 付近から急減に減少する。 S は $\dot{\gamma}^*=47$ 付近で最小値($S=0.717$)をとった後増加し、定常値($S=0.744$)に至る。タンブリング領域は約 $\dot{\gamma}^*=25.0$ でワギング領域に変わり、ワギング領域は約 $\dot{\gamma}^*=57.0$ でアライニング領域に変わる。

図 3-7(b)の $U=6$ 、 $\beta=0.95$ の場合において、 S は平行状態の値($=0.809$)からゆるやかに減少し、 $\dot{\gamma}^*=15$ 付近から急激に減少する。 S は $\dot{\gamma}^*=33$ 付近で最小値($S=0.721$)をとった後増加し、定常値($S=0.785$)に至る。

図 3-7(c)の $U=6$ 、 $\beta=0.99$ の場合において、 S は単調に増加し定常($S=0.82$)に至る。

高分子液晶は低いせん断速度の領域においてポリドメイン構造をとるため、応力などの巨視的量は各ドメイン間の平均値として現れる。ポリドメイン構造は⁽⁷⁾、液晶がある領域内で局所的に配向し、そのような領域が多数存在する状態をいう。エルゴード性が成り立つとすると⁽⁸⁾、タンブリング領域およびワギング領域での応力は、初期値に依存しない 1 周期の時間平均値に等しい。

図 3-8(a~c)に、 $U=6$ 、 $\beta=0.9, 0.95, 0.99$ の場合の、 $\dot{\gamma}^*$ に対するせん断応力 σ_{xy}^* と第 1 法線応力 N_1^* の変化を示す。図 3-8(a)の $U=6$ 、 $\beta=0.9$ において、 $\dot{\gamma}^*$ が 21 を超えたあたりで σ_{xy}^* が減少する結果が得られている。実験でも同様の現象が確認されているが、詳細については明らかにされていない。Marrucci ら⁽⁸⁾ はタンブリングからワギング領域への遷移に起因していると述べている。 σ_{xy}^* は $\dot{\gamma}^*=45$ 付近で最大値をとった後減少する。配向分布関数 f を直接解いた、 $\dot{\gamma}^*$ に対する σ_{xy}^* の変化を示した図 6⁽³⁾ は、アライニング領域において σ_{xy}^* は増加するが、図 3-8(b)の σ_{xy}^* は、アライニング領域において減少する。 N_1^* について見ると、 N_1^* は $\dot{\gamma}^*$ の増加とともに、ほぼ 0 に近い負の値から最初わずかに減少するが、 $\dot{\gamma}^*=21$ 付近で正の値の最大値をとった後急激に減少し、正から負へと変化する。さらに $\dot{\gamma}^*$ を増加させると、 N_1^* は $\dot{\gamma}^*=53$ 付近で極小を示した後再び増加し、負の定常値に至る。

ここで、図 3-8(a)と配向分布関数 f を直接解いた場合⁽³⁾ の図と比較する。まず、通常の高分子の第 1 法線応力差は、せん断流れにおいて常に正の値をとり、せん断速度の増加により第 1 法線応力差の値も増加する。それに対して、高分子液晶の第 1 法線応力差は緒言で述べたように負の値をとることが実験的に知られている。配向分布関数 f を直接解いた場合の高分子液晶の第 1 法線応力差は、せん断速度が低いとき、正の値をもつ増加関数である。しかし、せん断速度を増加させると、第 1 法線応力差は減少し負の値をとる。さらにせん断速度を増加させると、第 1 法線応力差は再び負から正の値へと変化し、単調に増加する。第 1 法線応力差のタンブリング領域とワギング領域において、図 3-8(a)と配向分布関数 f を直接解いた場合の結果は、ほぼ定性的に一致する。しかし、アライニング領域に

において、配向分布関数 f を直接解いた場合の第 1 法線応力差は正の値へと単調に増加するのに対して、図 3-8(a)の第 1 法線応力差は単調に増加するが、負の値で定常に至り正の値まで増加しない。

図 3-8(b)の $U=6$ 、 $\nu=0.95$ において、 σ_{xy}^* は $\dot{\gamma}^*=19$ 付近で減少するが再び増加し、 $\dot{\gamma}^*=33$ で最大値をとった後、0 に近づく。このときの N_1^* は、0 にほぼ近い負の値からわずかに減少し、 $\dot{\gamma}^*=19$ 付近で極大値をとった後急激に減少する。そして、 N_1^* は、 $\dot{\gamma}^*=33$ 付近で最小値をとった後増加し負の定常値に至る。

図 3-8(c)の $U=6$ 、 $\nu=0.99$ において、 σ_{xy}^* は最初増加し、 $\dot{\gamma}^*=30$ 付近で最大値をとった後減少し 0 に近づく。 N_1^* は単調に増加し定常値に至る。

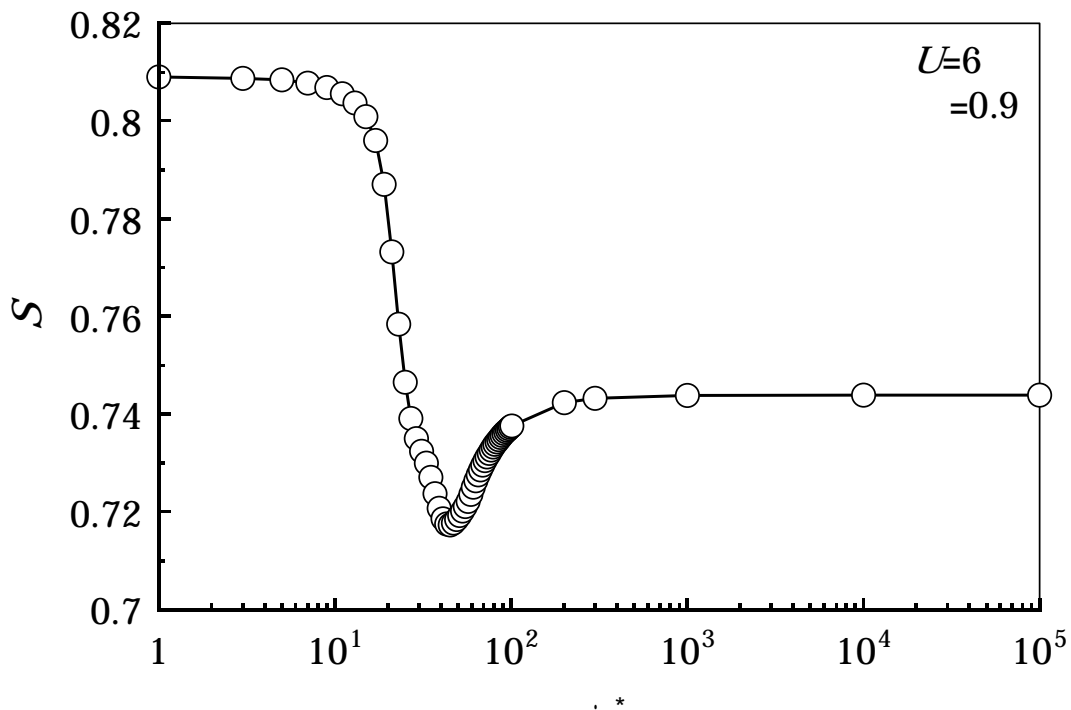


図 3-7(a) $U=6$, $=0.9$ の場合の, せん断速度の関数に対する秩序パラメータ

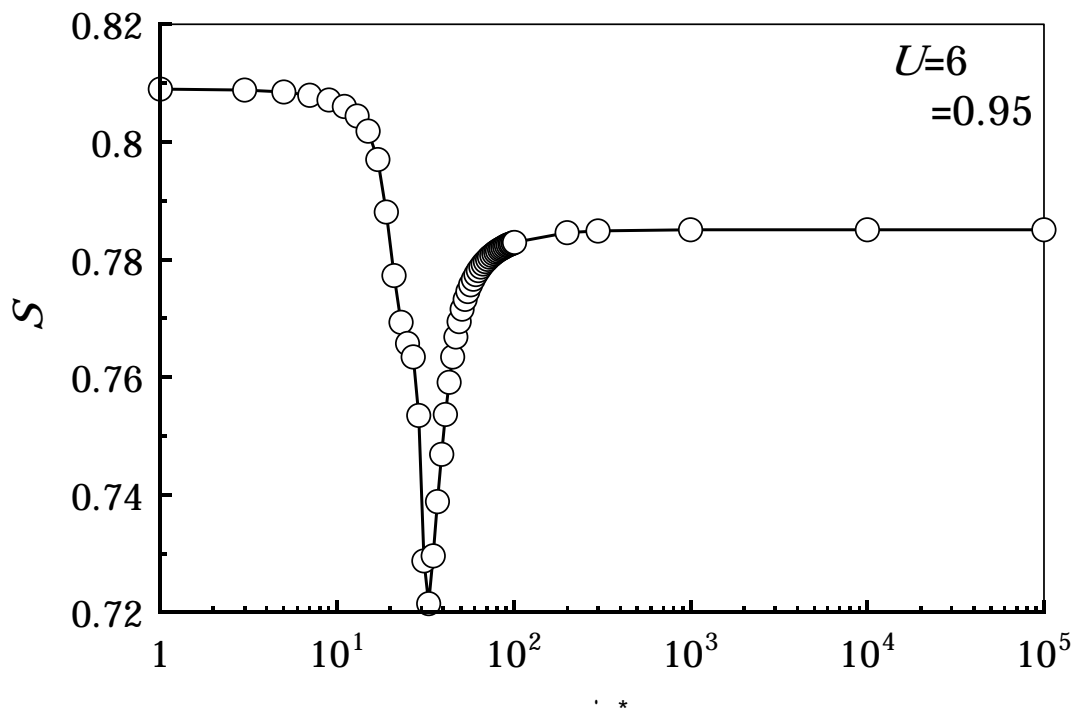


図 3-7(b) $U=6$, $=0.95$ の場合の, せん断速度の関数に対する秩序パラメータ

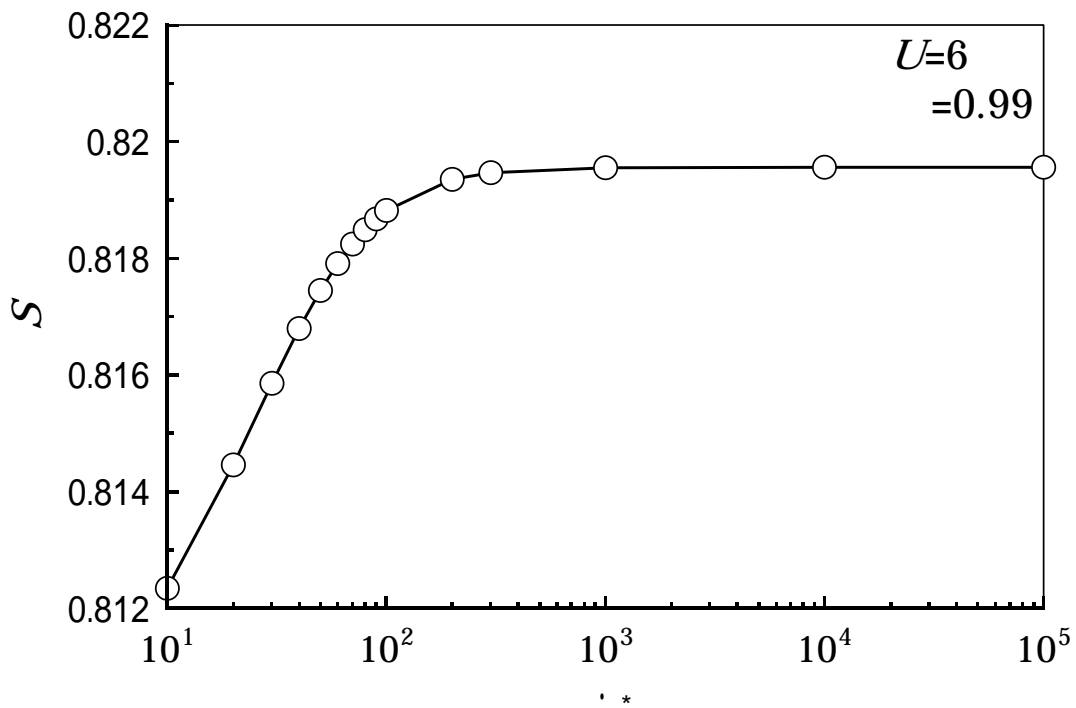


図 3-7(c) $U=6$, $\beta=0.99$ の場合の, せん断速度の関数に対する秩序パラメータ

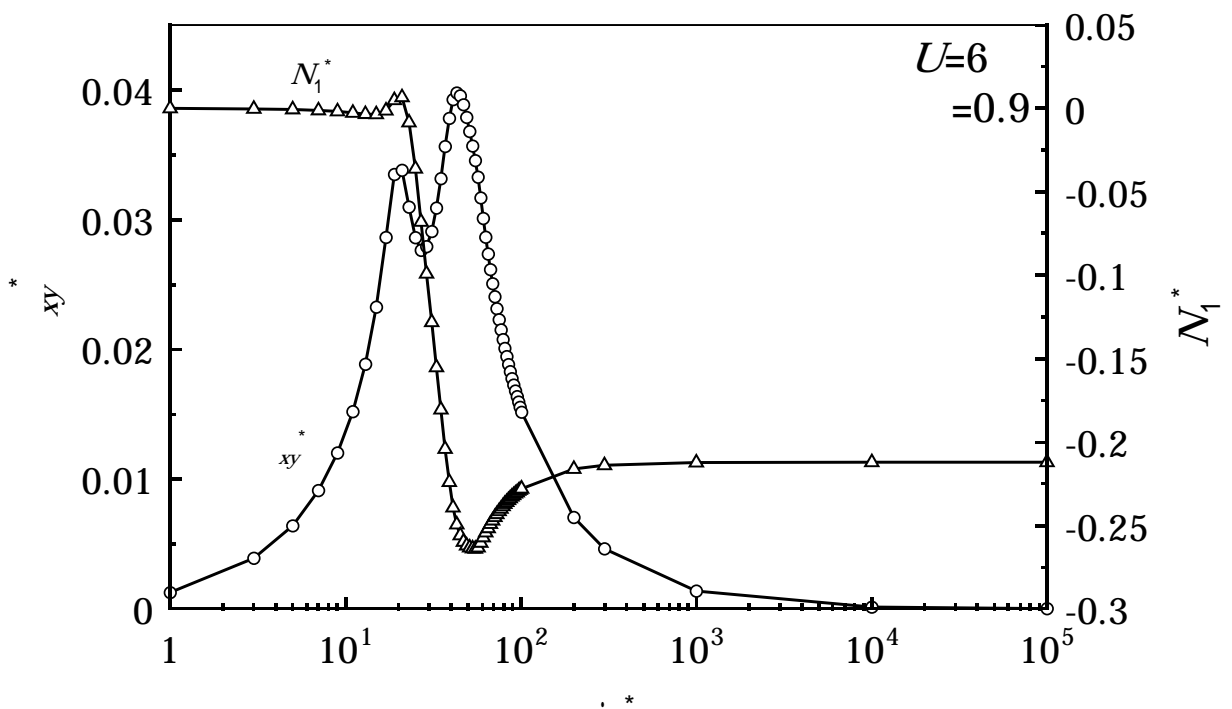


図 3-8(a) $U=6$, $\beta=0.9$ の場合の, せん断速度の関数に対する応力

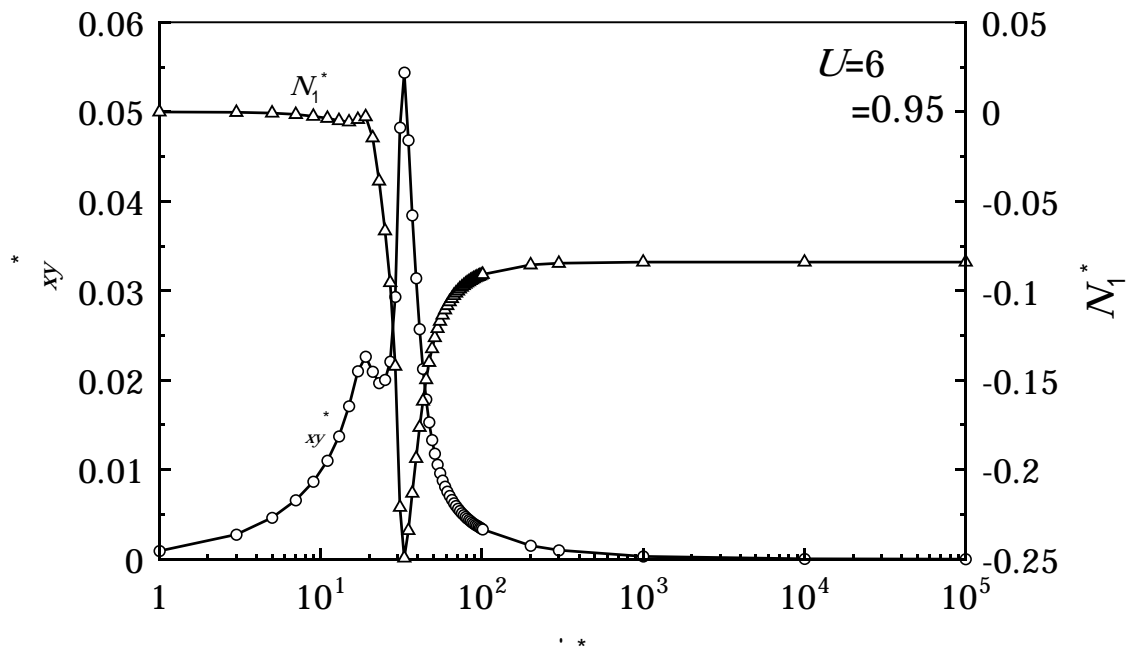


図 3-8(b) $U=6$, $\beta=0.95$ の場合の,せん断速度の関数に対する応力

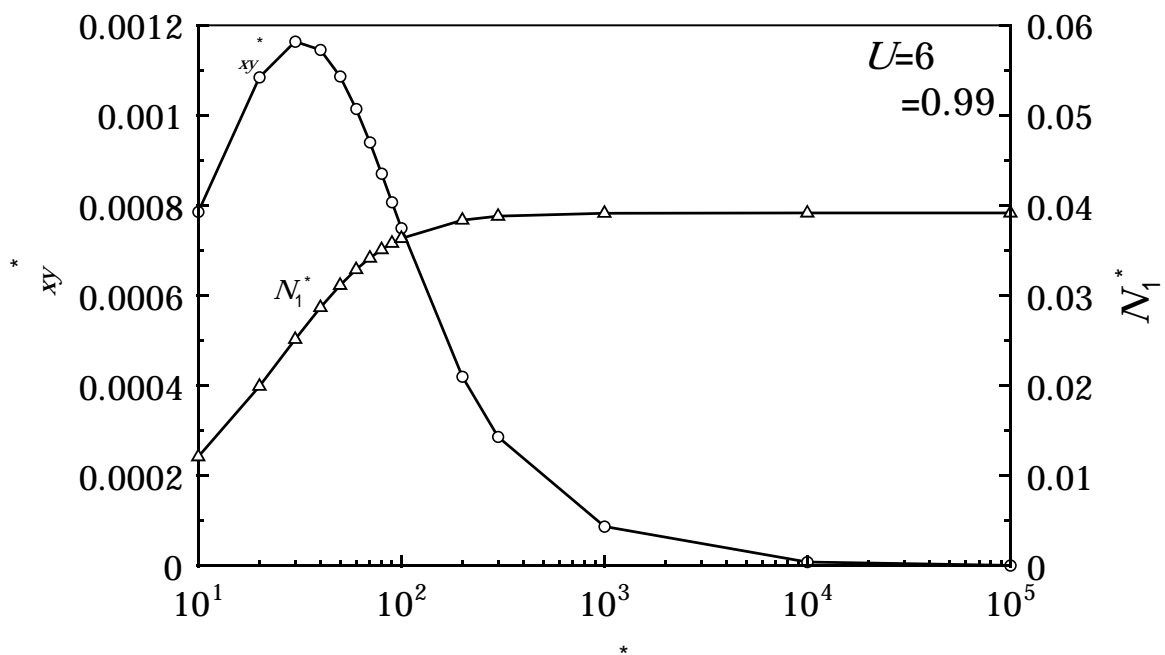


図 3-8(c) $U=6$, $\beta=0.99$ の場合の,せん断速度の関数に対する応力

第4章 結言

本研究では、2階テンソルを用いたネマティック液晶の構成方程式が配向分布関数 f を直接解いた場合と同様に特異流動を示すかどうかを検討した。得られた結果の概要を以下に示す。

- (1) ネマティックポテンシャル強度 $U=6$ 、形状係数 $\beta=0.9$ の場合、 β^* に依存して、 β_m はタンプリング挙動、ワギング挙動、アライニング挙動を示す。 β^* のタンプリング領域からワギング領域への遷移およびワギング領域からアライニング領域への遷移は、それぞれおおよそ 25, 57 である。図 3-8(a) の β^* に対する β_{xy}^* と第 1 法線応力 N_1^* は、タンプリング領域とワギング領域において配向分布関数 f を直接解いた場合⁽³⁾ と定性的にほぼ一致するが、アライニング領域において、図 3-8(a) と配向分布関数 f を直接解いた場合は一致しない。
- (2) $U=6$ 、 $\beta=0.95$ の場合、 β_m はタンプリング挙動、アライニング挙動を示すが、ワギング挙動は示さない。
- (3) $U=6$ 、 $\beta=0.99$ の場合、 β_m はアライニング挙動を示すが、タンプリング挙動、ワギング挙動は示さない。

参考文献

- (1) 液晶若手研究会, 液晶材料研究の基礎と新展開, (1986), シグマ出版.
- (2) 蝶野成臣・谷口聡, 日本機械学会論文集, **59**-567, B(1993), 3319.
- (3) 蝶野成臣・谷口聡, 日本機械学会論文集, **62**-594, B(1996), 601.
- (4) Doi, M., *J. Poly. Sci., Poly. Phys. Ed.*, 19(1981), 229.
- (5) 蝶野成臣・ほか 3 名, 日本機械学会論文集, **58**-55, B(1992), 3257.
- (6) Doi, M. and Edwards, S.F., *The Theory of Polymer Dynamics*, (1986), 350.
- (7) Wissbrun, K.F., *J. Rheol.*, **25**(1981), 619.
- (8) Marrucci, G. and Maffettone, P.L., *J. Rheol.*, 34(1990), 1231.

謝辞

本研究を行うにあたり，蝶野成臣教授ならびに辻知宏助手には絶えずご指導を賜りましたことを深く感謝し，厚く御礼申し上げます．

また，本学知能流体力学研究室の皆さんからは多大なるご援助をいただきあわせて感謝します．