

液晶の電気流体力学的不安定性と散逸構造 の形成過程に関する研究

(2次元空間周波数フーリエ解析による液晶パターンの研究)

三池秀敏*・梅田智志**・古賀和利*・蛭名良雄*

The Study of the Electrohydrodynamic Instability and the Growing
Process of the Dissipative Structure in Liquid Crystal

(Two-dimensional Fourier analysis of the spatial pattern in liquid crystal)

Hidetoshi MIIKE, Chikashi UMEDA, Kazutoshi KOGA and Yoshio EBINA

Abstract

The electrohydrodynamic instability in liquid crystal is studied by Fourier analysis of the spatial pattern observed under polarizing microscope. The qualitative characteristics of the pattern is drawn out with this method. This method is applied to the dynamic phenomena: the growing process of the pattern after the external field is supplied. The "distance" between the pattern in stationary state and the one in the growing process is defined with use of the Fourier component of the respective pattern. The results of the analysis is consistent to the information from the microscopical observation and the measurement of the time dependence of the current density.

1. まえがき

近年、流体における種々の不安定性、たとえば Rayleigh-Bernard 不安定性¹⁾ や Taylor 不安定性²⁾ および乱流等の問題は、熱平衡から遠く離れた系の状態を明らかにする学問分野の重要なテーマであり、統計物理学をはじめ工学、生物学等多くの注目を集めている³⁾。液体の不安定性に伴う対流の発生は、一定の境界条件をもつ器の中に置かれていることにより、自己形成的にある種の流れのパターンを形作る。このパターンは、一般に散逸構造 (dissipative structure)⁴⁾ と呼ばれるものの一つであり、その名は平衡から遠く離れた開放系で、常にエネルギーの散逸を伴う動的な構造であることに由来している。

サンドイッチ状のセルに封入した液晶においては、このような不安定性は電界の印加により容易に発生させることが出来る。負の誘電異方性を持ち、homo-

geneous 配列⁵⁾ をさせたネマチック液晶セルでは、ある閾値以上の低周波交流電圧 (約数十 Hz) 下で対流が発生し、Williams Domain (WD)⁶⁾ と呼ばれるストライプ状のパターンが形成される。このパターンは、電圧の上昇に伴って Fluctuating Williams Domain (FWD: 摂動を受けた WD), Grid Pattern (GP: 格子状パターン), Dynamic Scattering Mode (DSM: 乱流状パターン) と呼ばれるより複雑な散逸構造へと逐次的に転移してゆくことが知られている⁷⁾。

従来、非平衡系 (特に平衡から遠く離れた系) の問題は主として定常状態についての研究が広く行なわれて来たが⁷⁾、定常状態への移行過程を取りあげた研究は、一、二⁸⁾を除いてほとんど見受けられない。また、各定常状態における散逸構造の特徴は、ある場所での透過光の揺らぎの時間変化を調べ、その統計的性質に関する解析から促えられて来た⁹⁾。本論文では、まず各散逸構造のパターンを直接定量的に把握するために二次元の空間フーリエ解析を実行し、特徴抽出を行なった。さらにパターン間の距離の概念を導入することにより、パターンの時間変化を定量的に表現する方法

* 電気工学科

** 電気工学科学生 (現在 NHK)

を試みた。合わせて、電界印加後の電流の時間変化を同時観測した結果、定常状態のパターン間の移行過程に伴う異常現象を見出し、パターンの変化との対応が明らかとなったのでここに報告する。

2. 実験装置と方法

2.1 試料

試料は市販（東京化成）の4-*n*ブチルベンジリデン、4'-*n*ブチルアニリン（MBBA）を用いた。MBBAの液晶相一等方相転移温度は約46°Cであった。この液晶をサンドイッチ状の⁹⁾透明ガラス電極（SnO₂コート）セルに封入し用いた。セルの厚みは、約90μm程度のスペーサ（テフロン・シート）により調整した。又、homogeneous配列を得る為、電極面はラビング処理を施している。

2.2 偏光顕微鏡観察及びパターン撮映

観察は主に偏光顕微鏡（ニコンMD-2）を用いて行ない、同時に写真撮映を行なった。polarizer, analyzerの偏光方向は平行に保ち、セルのラビング方向もこれに対して平行に設置している。一方写真撮映は、電界印加直後から定常状態へ至るパターンの動的な変化を、時間を追って行なった。撮映したパターンを空間フーリエ解析に用いるわけであるが、この際、透明電極作成時の吹き付けの不均一等に基づく電界の不均一や、場所による透過率の違い及び電極面のキズ等は、液晶が大きな比抵抗を持つことや、偏光顕微鏡下の測定であることからほとんど問題とならない。

2.3 電流測定回路

電界印加後、液晶セルに流れる電流の時間変化を測

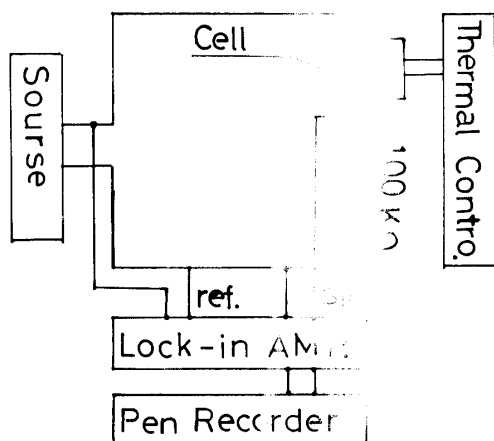


Fig. 1 The electrical circuit for the measurement of the current density in liquid crystal cell.

定する回路を Fig. 1 に示す。電源電圧の変動は、約0.01%以内におさえられており、液晶セル（約100 MΩ）に直列な抵抗体（100 kΩ）での電圧降下により電流値を求めた。信号は Lock-in Amp を周波数選択増幅器として用い、交流実効値を直流出力として取り出し、直接ペンレコーダに出力させた。測定に際し、液晶セルの温度は、温度制御装置¹⁰⁾により35±0.05°Cに保った。

2.4 パターンの読み取り装置及び処理方法

2.4.1 読み取り装置

撮映したパターンは、印画紙上に引き伸ばされ（10 cm×10 cm：約200倍）Fig. 2に示すような簡易型読み取り装置により、電気信号へと変換し、アナログ量の形でテープに記録される。Fig. 2. aより、写真の濃淡の変化を反射光の強度変化として捉える為、発光ダイオード（LED）とフォト・トランジスタ（PHT）で構成した読み取りアダプターを示す。これにより写真上の濃淡の変化を電気信号へと変換することができる。

Fig. 2. bは、フォト・トランジスタを動作させる為の

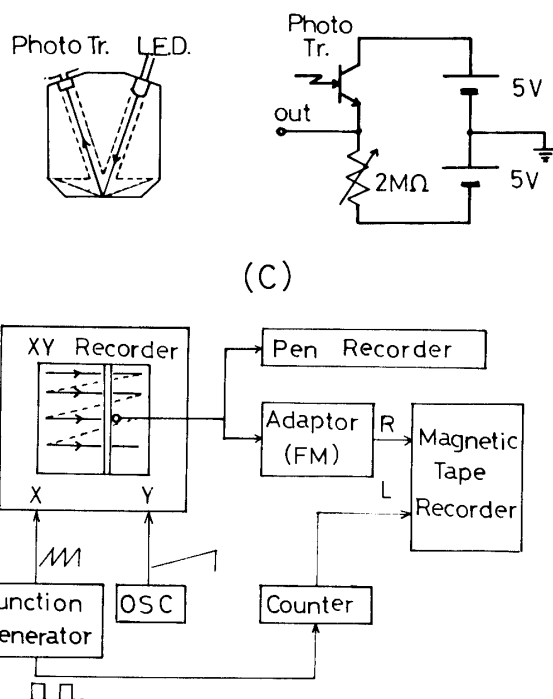
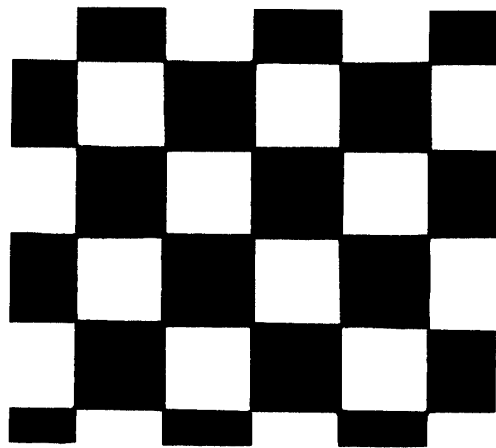
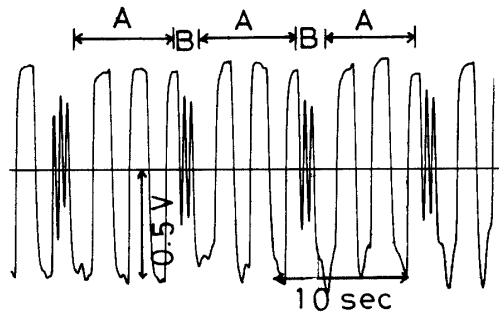


Fig. 2 The apparatus and method of analysis for pattern recognition

- Adapter of the pattern recognition constructed by light emitting diode (LED) and photo transistor (PHT).
- The electrical circuit for PHT.
- The method of scanning and recording.



Test Pattern



Output Wave

Fig. 3 The examples of recorded raw-signal.

回路を示している。Fig. 2.c に示すように、二次元写真面の走査は、テレビジョンの画像における電子ビームと同様に XYレコーダーを利用して行なった。すなわち、XYレコーダーのペンの代わりに作製した読み取りアダプターを取り付け、X軸にのこぎり波、Y軸にランプ波を入力し、走査の制御を行なった。PHTからの出力は、Fig. 3 (市松模様テストパターンの場合) のような形で得られ、FM 変調されて磁気テープのチャンネル R に記録される¹¹⁾。この時、必要なデータは、約7秒をかけて走査した A の部分のみで、B の部分は次の行へ移行する為の不必要なデータである。後にデータの必要部分 A だけの読み出しを行なうのに必要なトリガパルスを磁気テープの別のチャンネル (L) に同時に記録している。

2.4.2 サンプリグ及び処理装置

磁気テープに読み取られた写真の濃淡のアナログ電気信号は、デジタル量に変換して処理される。変換装置のブロック図を Fig. 4 に示す。磁気テープの R-チャンネルから取り出された PHT の信号は、FM 復調

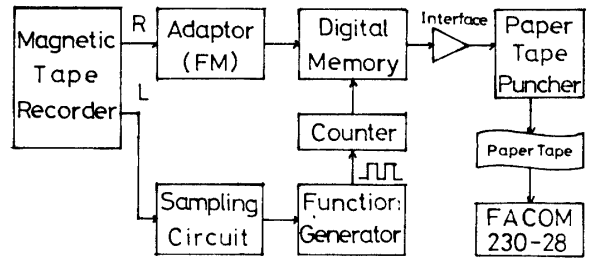


Fig. 4 The block diagram of the sampling circuit.

され、デジタルメモリに入る。ここで、L-チャンネルに入れられているトリガパルスをデータの必要部分だけをサンプルするクロックパルス (7秒間に64周期の矩形波) に変換してデジタルメモリ (DM-301: 8ビット 1KWord: 岩通) の外部クロックに入力する。これにより、一行につき64点のサンプリグが出来る。この操作を64回くり返し、64×64=4096点のサンプル値で二次元画像を量子化 (8ビット) したデータ行列が得られる。このデータは、インターフェイスを通し、紙テープにさん孔され計算機 (FACOM 230-28) により処理される。クロックパルス等の発生方法等詳細については文献 No. 12 を参照されたい。

2.4.3 二次元フーリエ解析の原理

連続量の二次元フーリエ変換は次式により与えられる。

$$A(w_x, w_y) = \iint a(x \cdot y) \exp[-i(w_x x + w_y y)] dx dy \quad (1)$$

ここで、 $a(x \cdot y)$ は濃淡の二次元空間分布を示し、 $A(w_x, w_y)$ はそのフーリエ成分である。サンプル後得られたデータは離散量であるがこの場合も

$$a(x \cdot y) = \sum_i \sum_j a(i \cdot j) \delta(x-i) \delta(y-j) \quad (2)$$

と考えると (1) 式により二次元フーリエ変換を行なうことが出来る。さらに、 x と y が互いに独立であれば、(1) 式は、

$$A(w_x, w_y) = \int \left[\int a(x \cdot y) \exp(-i w_y y) dy \right] \exp(-j w_x x) dx \quad (3)$$

とかけ、

$$A' = \int a(x \cdot y) \exp(-i w_y y) dy \quad (4)$$

とおけば、

$$A(w_x, w_y) = \int A' \exp(-j w_x x) dx \quad (5)$$

となる。これは、まず y 方向について一次元フーリエ変換を行ない、次に x 方向について一次元フーリエ変換を行なうことにより、二次元フーリエ変換が実行できることを示している。以上により得られたデータ行列 (64×64) をもとに、コンピュータを用いて上述の

計算を実行し、二次元空間周波数スペクトルを求めた。この際、各パターン間の比較の為データ行列の標準化が必要である。今、データ行列の平均値を m 及び分散を δ^2 とすると、

$$Z(i \cdot j) = [a(i \cdot j) - m] / \delta \quad (6)$$

により標準化されたデータ行列が得られる。

3. 結果と議論

3.1 定常状態について

3.1.1 パターンの観測結果 (典型的パターン)

ネマチック液晶 **MBBA** の低周波電界下におけるパターンについては、Kai⁷⁾ らによる詳しい報告がなされている。印加する電圧の範囲に応じた質の異なる特徴的なパターンが知られており、ここでは二次元フーリエ解析に用いる為に撮映した交流 70Hz の電界下における各々のパターンの一例を Fig. 5 に示している。(A) はストライプ状の静的な **WD**—パターンを示す。このパターンの出現する電圧範囲は $V_c \lesssim V \lesssim 1.1 \cdot V_c$ である。(B) は **WD** の状態が時間とともに摂動を受けて変化する **FWD**—パターン ($1.1 \cdot V_c \lesssim V \lesssim 1.5 \cdot V_c$)。 (C) は格子状の準静的な **GP**—パターン ($1.5 \cdot V_c < V < 2.3 \cdot V_c$)、及び (D) は、乱れた **DSM-like** パターン

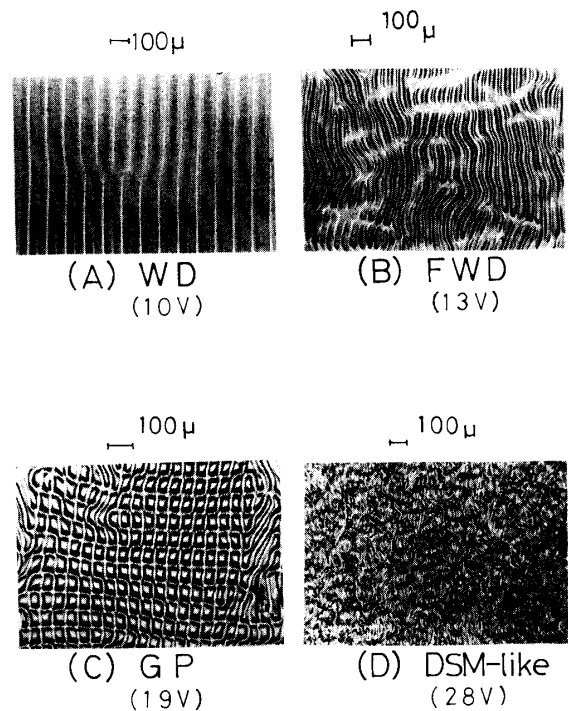
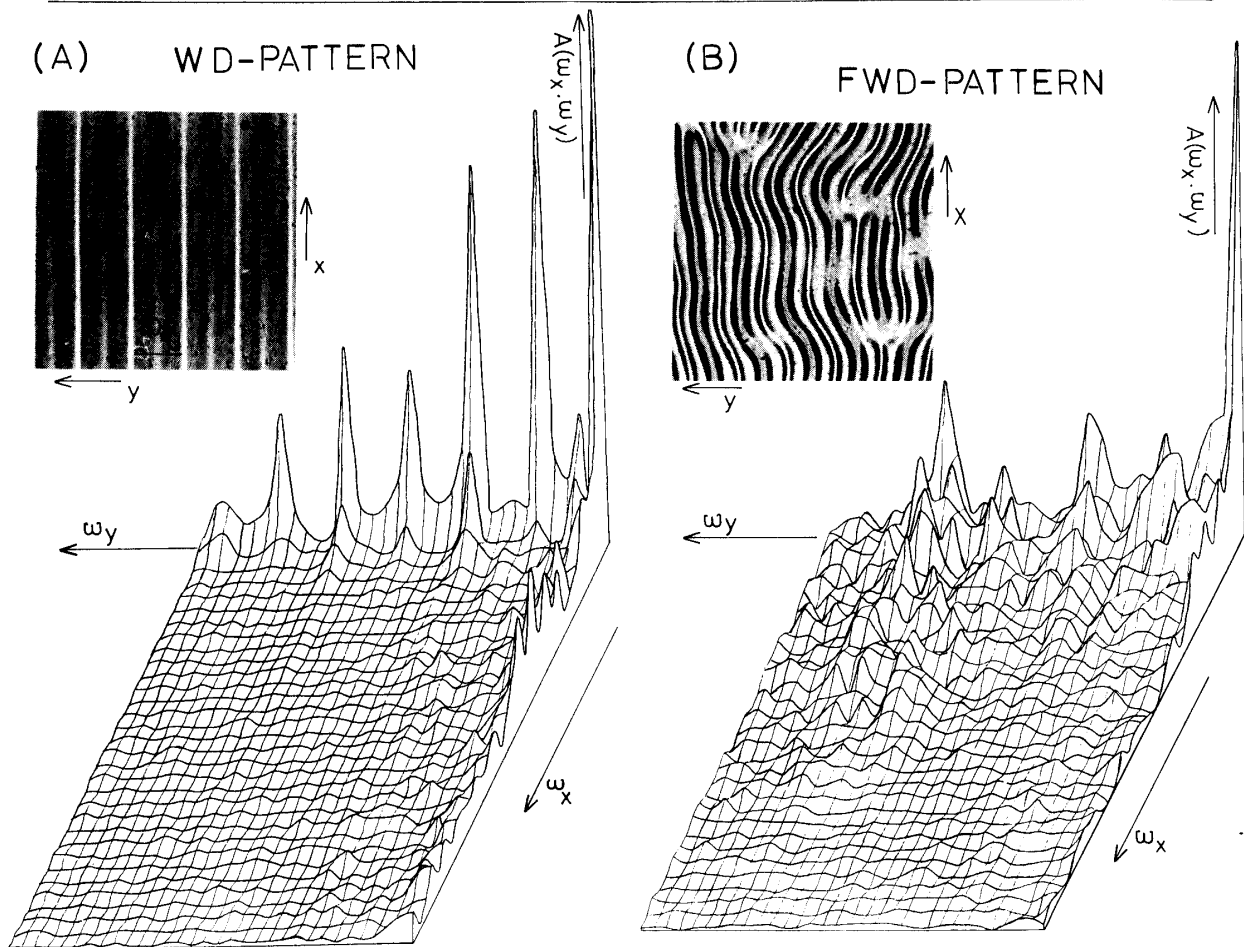


Fig. 5 The typical pattern of nematic liquid crystal under steady state of 70Hz electric field. (A) Williams Domain, (B) Fluctuating Williams Domain, (C) Grid Pattern and (D) Dynamic Scattering Mode.



($2.3 \cdot V_c < V$) を示している。この場合対流の発生する閾値電圧 V_c は $9.5V$ であった。

3.1.2 パターンのフーリエ解析

2.4.1 で説明した読み取り装置及び処理方法を用いることにより、二次元空間フーリエ解析を行なった結果を Fig. 6 に示す。同図内に対応する typical pattern 及びスケール方向等を合わせて示している。(A) に示した **WD**-パターンについては、 X 方向の $\omega_x=0$ の面において ω_y がある基本波数 ($\omega_y=6$) の整数倍となっているところに鋭いピークが見られる。その他の所にはピークらしきものは認められない。これは **WD**-パターンが Y 方向に対しては周期性をもつが、 X 方向に対してはほとんど一様であるということと consistent である。(B) の場合、ピークは不明瞭になるが、**WD** と同様 y 方向に比較的強い周期性が見られる。ここで注目すべき点は、**WD** の基本空間周波数を示す ($0, \omega_y=6$) のピークの約 4 倍 ($\omega_y=24$) の周波数の所に強いピークが見られることである。これは **FWD**-パターンにおいて、**WD** の周期と一致する二本の輝線の中に 3 本の明線が出現している事実と良く一致して

いる。(C) に示した **GP** の場合、格子状のパターンに対応して x 方向及び y 方向、さらにその周波数 (ω_y, ω_x) のところにもピークが見られる。対称性も良く現れている。(D) の **DSM-like** については、際立ったピークが見られず、どちらかと言えば、白色雑音的でパターン (写真) に周期性が見られないことと一致している。以上のように、二次元空間フーリエ解析を行ない、各々のパターン (写真) のもつ特徴の抽出を試み、妥当な結果が得られた。

3.2 パターン形成過程 (動的振舞い)

3.2.1 電流密度の時間変化及び対応するパターンの変化

電圧印加後、対流パターンが形成される過渡的過程について、電流密度の時間変化とパターンの顕微鏡下の写真撮映を同時に行なった結果を Fig. 7 (a~d) に示す。(a) は **WD**-パターンが形成する過程を示し、この場合、励起されるモードはストライプ状のモード一つだけである。これに対応して電流値は、電圧印加後、一度準定常な状態 (流れのない状態) を経た後あ

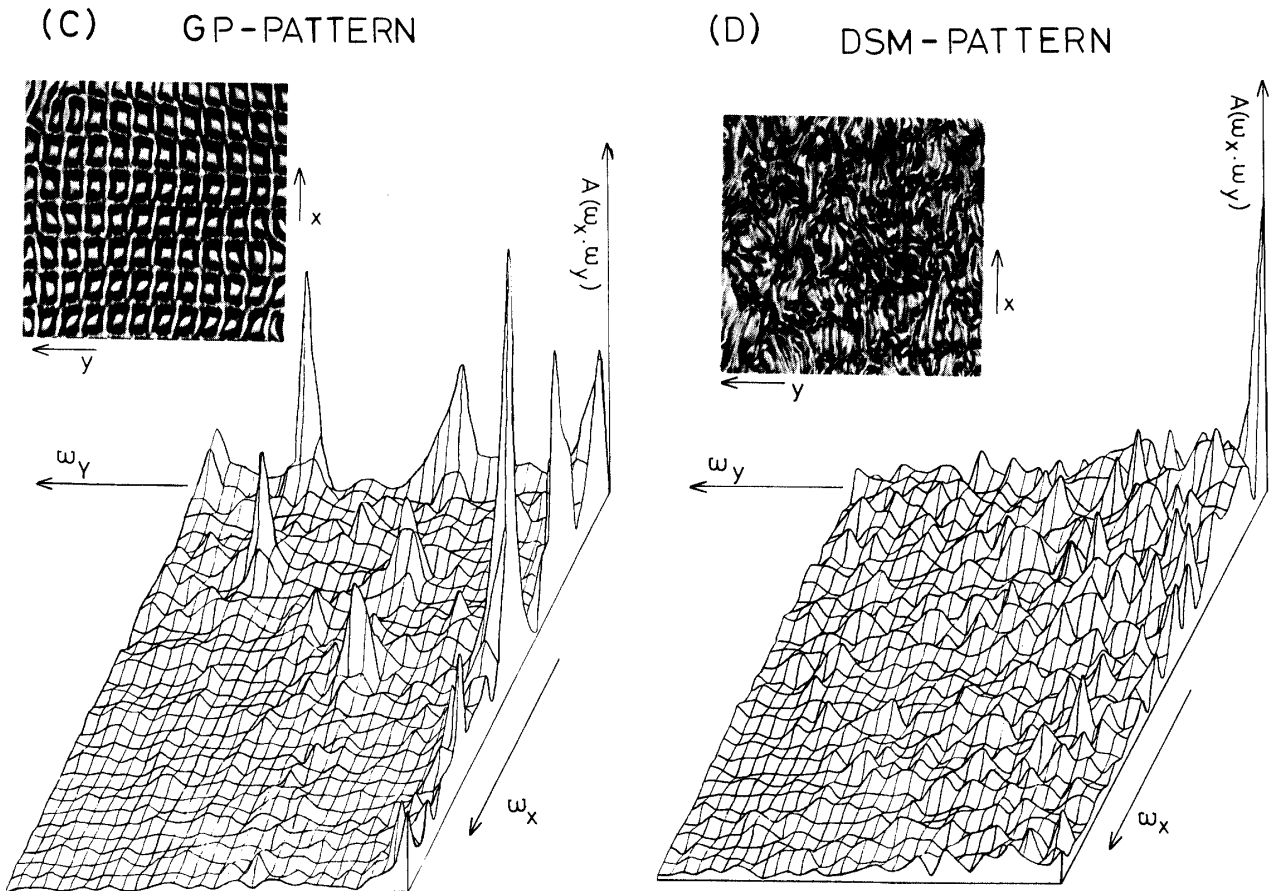


Fig. 6 The results of the spatial Fourier analysis of typical pattern in Fig. 5. Analyzed areas are also inserted.

(A) **WD**-Pattern, (B) **FWD**-Pattern, (C) **GP**-Pattern and (D) **DSM**-Pattern.

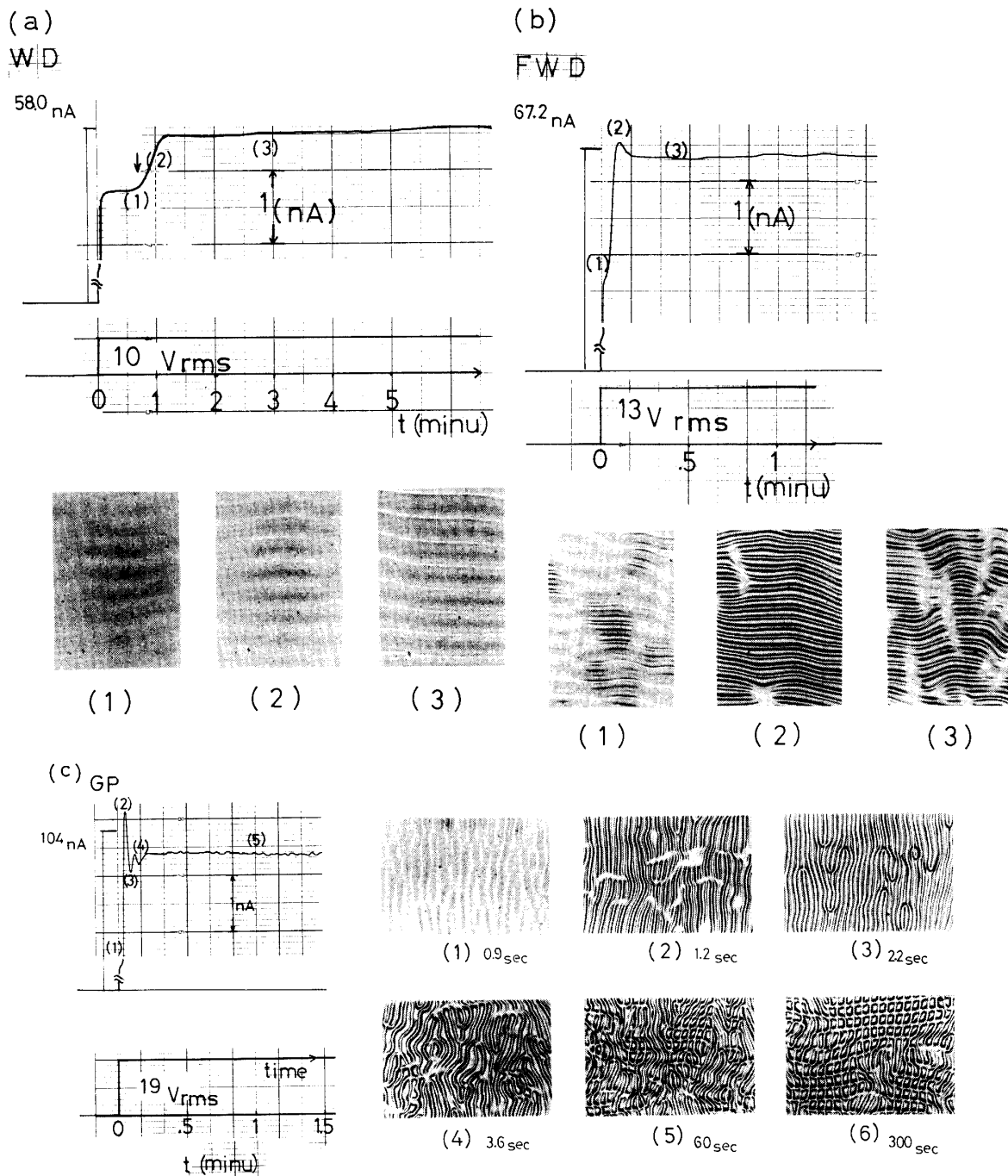
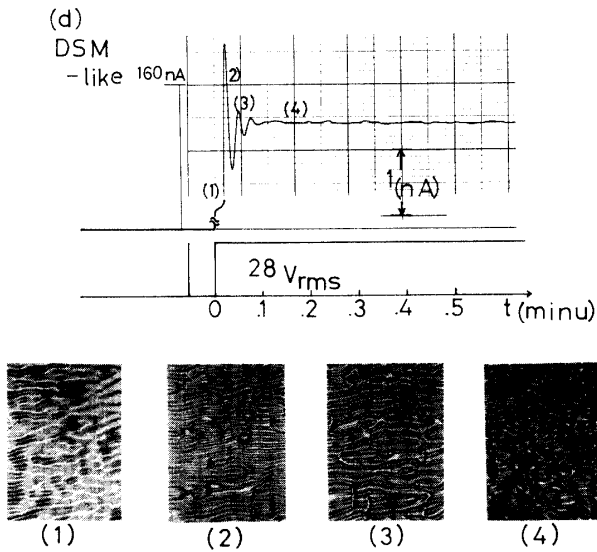


Fig. 7 The growing process of the respective pattern. Corresponded time-dependence of the current is also shown.

(a) **WD**, (b) **FWD**, (c) **GP** and (d) **DSM-like**.

る遅れ時間をもって急増し始め、定常状態へと単調に移行している。図中矢印部分は、対流の発生に伴い電流密度が増大し始めた時点を示している。一方(b)は、**FWD**—パターンの形成過程を示す。この場合特徴的なこととして、(1) 電流値が極大値をもつ。(2) 電流極大の時点で**WD**的パターンから**FWD**的パターンへと移り変わることが挙げられよう。この傾向は、(c)の**GP**、(d)の**DSM-like**パターンへの移行の際にも見

受けられる。**GP**、**DSM-like**の場合、いずれもまず**WD**的パターン [(c)-1, (d)-1] が出現しその後、**FWD**的パターン [(c)-2, (d)-2] へ変化し、さらに**GP**、**DSM-like**なパターンと成長していく。これらの場合、各々の移り変わりの時点に対応して電流の極大値が、2~3ヶ所出現しており、オーバー・シュートした電流が減衰振動する様子が見られる。以上のように、**GP**等のパターンが形成される比較的高い電圧を



印加した場合、必ず **WD** 的なパターンがまず励起され、時間経過と共にそのパターンは不安定化し、次の **FWD** 的なパターンの励起が始まる。時間がさらに経過すると、前のパターンの不安定化とより複雑な新しいパターンの励起を繰り返して各々の電圧下の最終的なパターンへと移行してゆくことが明らかとなった。ここで注目されるのは移行過程において、電流密度が極大値を示すことである。注意深い観察を行なった結果、あるパターンの励起に伴う電流の増大とパターンの不安定化に伴う電流の減少の傾向が認められるようである。別の見方をすれば、対流発生に伴い散逸エネルギー（あるいは消費電力）が急増すると系は自制的により散逸度の少ない状態へと対流構造を次々と変化させてゆく能力を持っていると考えることが可能であろう。Prigogine¹³⁾の指摘している非平衡定常状態における「散逸エネルギー極少の原理」は、このような現象を理解する上で重要な示唆を与えているように思われる。

3.2.2 GP への形成過程に伴うパターン変化のフーリエ解析

ここでは特に **GP** パターンの形成過程に伴う対流構造の時間変化に着目し、その成長の度合いを定量的に表現することを目標に解析を行なった。今、定常状態の **GP** パターン (Fig. 5 (C)) と電圧印加後時間 τ の形成過程にあるパターンとの距離 $D(\tau)$ を次の様に定義する。

$$D(\tau) = \sqrt{\sum_i \sum_j (K(\tau)_{ij} - K(\infty)_{ij})^2} \quad (7)$$

ただし、 $\{K(\tau)_{ij}\}$: 経過時間が τ の成長過程におけるパターンの空間周波数スペクトル。 $\{K(\infty)_{ij}\}$: 定常

状態のパターンの空間周波数スペクトルを示す。そこで、Fig. 5 (C) の定常パターンと Fig. 7 (C) に示した 6 つのパターンとについて二次元空間フーリエスペクトルを求め、(7) 式により $D(\tau)$ を計算機を用いて計算した。結果を Fig. 8 に示す。この図からパターン間の距離 $D(\tau)$ は時間の経過とともに単調に減少するのではなく、約 2.2sec 後ある特異な状態を経て定常状態へと移行していることがわかる。この特異な状態は先に、測定から電流密度が一度極大を経た後極小を取るパターンの質の変化時点に対応しており矛盾のない結果であるといえよう。Fig. 7 (c) の写真からも (1) の 0.9sec 後は **WD** 的なパターン、(2) の 1.2sec 後は **FWD** 的なパターンと変化した後 (3) の 2.2sec の時点で初めて **GP** 的なパターンが励起され始めていることがわかり、電圧印加直後、直ちに **GP** 的なパターンが励起され、 $D(\tau)$ が単調に減少するのではなく、先の解析と一致した結果を示している。

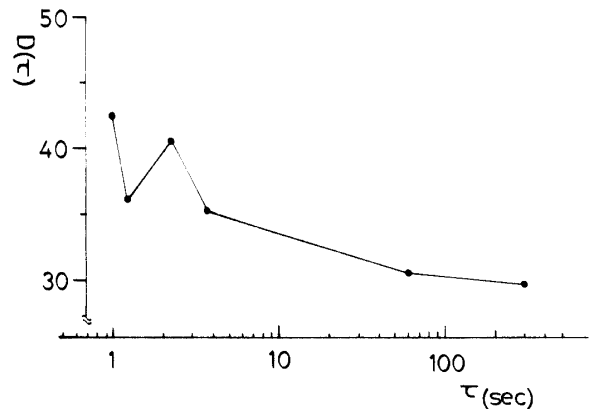


Fig. 8 The calculated results of $D(\tau)$ from eq. (7).

4. まとめ

以下、本研究で得られた結果を要約する。

- (1) 定常状態における典型的な液晶のパターンについて、二次元空間フーリエにより解析した結果、各々のパターンの特徴を抽出することが出来た。
- (2) 電圧印加後、定常状態に至る過程を、電流値の時間変化及び偏光顕微鏡写真撮影の同時観測により捉え、以下の様な知見を得た。
 - (i) **WD** が励起される様な電圧 ($V_c \leq V < 1.1 \cdot V_c$) を印加した場合、ある遅れ時間を持って徐々にパターンが出現し、次第に明確なパターンとなる。電流の変化もこれに対応して単調な増加と飽和の傾向を示す。
 - (ii) 定常状態で **FWD** 以上の高次なパターンを形成す

る電圧 ($1.1 \cdot V_c < V$) を印加した場合, 必ず **WD** 的パターンがまず励起され, その後 **FWD**, **GP**, **DSM** と最終状態のパターンに至るまで, 対応するパターン不安定化と励起が次々に繰り返される. 電流はパターンの励起に伴う増大と不安定に伴う減少の傾向により減衰振動を示す.

- (3) パターン間の距離 $D(\tau)$ を導入し, 定常状態に至るまでのパターンの変化を定量的に捉える試みを行ない, (2) の知見と矛盾のない結果を得た.

おわりに

二次元空間フーリエ解析により, パターンを定量的に捉えることが可能であることが判明したが, 人の目が実空間でパターンを捉え得るより以上の知見を得る為には画像のサンプル点の数を飛躍的増大さす等の微細な解析が必要となろう. 今後 **DSM** のような乱流状態の理解に本研究で用いた手法を適用してゆくことを検討している. 終りに, 本研究を進めるにあたり, 実験の手助けや種々の討論及び意見を寄せて下さった当研究室の諸氏に深謝する.

References

- 1) Christiane Normand and Yves Pomeau: Rev. Mod. Phys. **49**, 581 (1977)
- 2) J.S. Whitehead, Jr: "Fluctuations, Instabilities, and Phase Transitions." Plenum Press, (1975) p. 153.
- 3) H. Haken: Rev. Mod. Phys. **47**, 67 (1975)
- 4) 妹尾学, 岩元和敏: 数理科学, **10**, 17 (1975)
- 5) 例えば河野辰彦, 三池秀敏, 古賀和利, 児玉洋二, 蛭名良雄: 山口大学工学部研究報告, **28**, 73 (1977)
- 6) R. Williams: J. Chem. Phys., **39**, 384 (1963)
- 7) S. Kai and K. Hirakawa: Mem. Fac. Engin. Kyushu Univ., **36**, 269 (1976)
- 8) H. Miike, T. Kohno, K. Koga and Y. Ebina: J. Phys. Soc. Japan, **42**, 1419 (1977)
- 9) S. Kai, M. Araoka H. Yamazaki and K. Hirakawa: Mem. Fac. Engin. Kyushu Univ., **36**, 243 (1976)
- 10) 西田一夫: 山口大学卒業論文 (1977年度 電気工学科)
- 11) 古賀, 橋本, 香田, 森近, 三池, 高浪, 蛭名: 山口大学工学部研究報告, **27**, 95 (1977)
- 12) 梅田智志: 山口大学卒業論文 (1977年度 電気工学科)
- 13) P. Glansdorff, I. Prigogine: Thermodynamic Theory of Structure, Stability and Fluctuations, Interscience.

(昭和53年4月15日 受理)