

液晶分散型セラミック微粒子のフラクタル凝集機構とフラクタンス素子の開発

On the Fractal Aggregation Mechanism and the Fractance Device with Ceramic Dispersed LCP Complexes

中川匡弘

Masahiro NAKAGAWA

長岡技術科学大学工学部 電気系
Nagaoka University of Technology

In this work it is first presented that a CDLCP (ceramic dispersed liquid crystalline polymer) complexes with a ferroelectric alignment layer realizes a bistable switching in similar to the surface-stabilised ferroelectric liquid crystal display devices. Such a bistability is found to critically depend on the squareness parameter of the ferroelectric layer as well as such material properties of the dispersed nematics as the elastic and the dielectric constants. It is also found that there exists an appropriate elastic constant to improve the optical transmittance. The dependence of the distribution of the radii of the nematic droplets on the electro-optic bistability is also investigated in detail by means of the numerical computations assuming a fractal distribution. The fundamental electro-optic properties of the presently proposed CDLCP cells imply the advantage beyond the conventional CDLCP without any ferroelectric alignment layer.

1. 研究目的

最近、電気粘性流体が、新しい機能性材料として注目され広く研究されている。具体的には、電気流体クラッチ、流体充填エンジンマウントなどの振動制御装置、高速応答弁、アクチュエータがあげられ、電子制御装置と機械装置の間に迅速に応答するマン-マシンインターフェースへの応用が期待されている。一般に、電気絶縁性液体中に、ゼオライト、シリカゲル、チタン酸カリウムハウスカーなどのセラミック微粒子を分散させ外部印加電界によりその微粒子の凝集を制御することにより見掛けの粘性係数を制御することが出来ると考えられその実用化が渴望されている。また、凝集機構がフラクタル構造を有していることが指摘されているが、その凝集メカニズムに関しては今日まで殆ど解明されていないのが現状である。

我々は、これまで液晶の物性とコロイドなどの微粒子の凝集過程に関する基礎的な研究を行ってきた。液晶中のフラクタル構造に関する研究では、臨界点におけるエンブリオの分布 (On the Fractal Distribution of Embryos at Nematic- Isotropic Critical Point M. Nakagawa, K. Kobayashi, M. Hori, M. Okabe, and Y. Hori: *Mol. Cryst. & Liq. Cryst.* Vol.195(1991) pp.15-26), ならびに、スメクチック相のフォーカルコニックの分布に関してフラクタル次元をはじめ定量的に求めその構造を定量化した (Fractal Structure in Focal Conics M. Nakagawa: *Jpn.J. Appl. Phys.* Vol.28(1989) pp.1636-1638)。一方、微粒

子の凝集機構に関するシミュレーションにおいては、針状形状を有し電界誘起双極子をもつセラミックス拡散粒子の凝集機構を解析し、幾つかの研究成果をあげてきた (A Diffusion Limited Aggregation Model with Elongated Particles M. Nakagawa and H. Namikata: *J. Phys. Soc. Jpn.* Vol. 61 (1992) pp.1973-1978; A Diffusion-Limited Aggregation Model with a Fractional Brownian Motion: M. Nakagawa and K. Kobayashi *J. Phys. Soc. Jpn.* Vol.60 (1991) pp.3386-3391.), さらに、このようなフラクタル構造を有する素子が、従来の、抵抗、コイル、コンデンサでは実現不可能であった新規な特性を実現し得ることを、明らかにしてきた (Basic Characteristics of Fractance Devices M. Nakagawa and K. Sorimachi: *IEICE Trans. on Fundamentals* sVol.E-75A (1992) pp.1814-1819)。

本研究においては、液晶中に分散されたセラミックスの凝集機構を電気光学実験と計算機シミュレーションの両方から調べ、液晶の複屈折性による電気光学異方性を利用した新しい電気粘性流体の機能性材料としての可能性を探求することを主たる目的とする。さらに、そのようなフラクタル構造を電子回路素子として実現し、次世代の回路素子として注目される新規なアクティブ型フラクタンス素子を開発することを第2の目的とする。

2. 研究手法及び成果

2. 1 モデルと理論

セラミックス-液晶複合体の現象論的自由エネルギー密度 F_p は、次式で与えられる。 [1-6].

$$F_p = -\frac{K_f}{2} \cos^2(\phi - \phi_0) - P_s E_f \cos\phi. \quad (1)$$

ここで、 K_f は弾性定数、 ϕ は電極の法線から測った自発分極ベクトルの角度、 ϕ_0 はヒステリシス曲線の角形比を決める初期角度、 P_s は自発分極、 E_f はセラミック-液晶複合薄膜に印加される電界である。

対応する ϕ にたいするGinzburg-Landau方程式は、

$$\eta \frac{d\phi}{dt} = -\frac{\partial F_p}{\partial \phi}, \quad (2)$$

で与えられ、ここで、 η は分極スイッチングの粘性係数である。(2)を(1)に代入して、次式を得る。

$$\frac{d\phi}{dt} = -\frac{1}{\tau} \left\{ \sin(\phi - \phi_0) \cos(\phi - \phi_0) - \frac{V - V_{LC}}{V_{fc}} \sin\phi \right\}, \quad (3)$$

ここで、

$$E_f = -\frac{V - V_{LC}}{W}, \quad (4)$$

$$V_{fc} = E_{fc} W = \frac{K_f W}{P_s}, \quad (5)$$

$$\frac{1}{\tau} = \frac{K_f}{\eta}; \quad (6)$$

であり、 V は、印加電圧、 V_{LC} は、薄膜に印可される電圧、 W は膜厚である。

次に、高分子相の現象論的なエネルギー密度は、

$$F_{LC} = \frac{K_{LC}}{2} \frac{\pi^2}{d^2} (\theta - \theta_p)^2 - \frac{\Delta\epsilon}{2} \left(\frac{V_{LC}}{d} \right)^2 \sin^2\theta, \quad (7)$$

ここで、 K_{LC} は液晶の弾性定数、 d 液晶層の膜厚、 θ はセル基板法線から測ったダイレクタの方位角、 θ_p は界面でのプレチルト角、 $\Delta\epsilon$ は誘電率異方性である。

よって、時間依存Ginzburg-Landau方程式は、

$$\gamma \frac{d\theta}{dt} = -\frac{\partial F_{LC}}{\partial \theta}. \quad (8)$$

となり、(7)を(8)へ代入して、次式を得る。

$$\frac{d\theta}{dt} = -\frac{1}{T} \left\{ (\theta - \theta_p) - \left(\frac{V_{LC}}{V_{nc}} \right)^2 \sin\theta \cos\theta \right\}. \quad (9)$$

ここで、 T と V_{nc} は、

$$\frac{1}{T} = \frac{K_{LC}}{\gamma} \frac{\pi^2}{d^2}, \quad (10)$$

$$V_{nc} = \pi \sqrt{K_{LC} / \Delta\epsilon}, \quad (11)$$

となる。

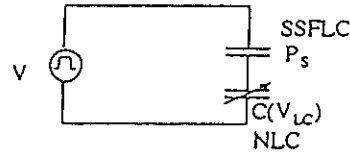


図1 薄膜セルの電気的等価回路

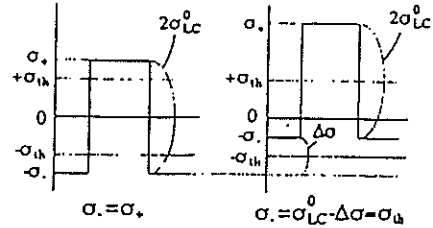


図2 スwitching条件

図1において、キルヒホッフの法則から、 S をセルの面積、薄膜の表面電荷密度を σ_{LC} と記して、変位電流密度

$$i_{LC} = S \frac{d\sigma_{LC}}{dt} \quad (12)$$

は、界面層を通過する電流、

$$i_p = S \frac{dP_s \cos\phi}{dt} = SP_s \sin\phi \frac{d\phi}{dt}. \quad (13)$$

に等しくなくてはならない。従って、次式を得る。

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma_{LC}}{dt} &= P_s \sin\phi \frac{d\phi}{dt} \\ &= -\frac{P_s}{\tau} \sin\phi \left\{ \sin(\phi - \phi_0) \cos(\phi - \phi_0) - \frac{V - V_{LC}}{V_{fc}} \sin\phi \right\} \end{aligned} \quad (14)$$

今、セラミック-液晶複合膜の静電容量を $C_{LC}(V_{LC})$ として、次式を得る。

$$\sigma_{LC} = C(V_{LC}) V_{LC}, \quad (15)$$

ここで,

$$C(V_{LC}) = \frac{\epsilon_{par} \sin^2 \theta + \epsilon_{per} \cos^2 \theta}{d} = \frac{\langle \epsilon \rangle}{d} \quad (16)$$

であり, $\epsilon_{par}, \epsilon_{per}$ は, それぞれ, ダイレクタに平行と垂直の方向の誘電率である. 方程式 (14) と (15) から, 最終的に,

$$\frac{dV_{LC}}{dt} = -\frac{P_s}{\tau C(V_{LC})} \sin \phi \left\{ \sin(\phi - \phi_0) \cos(\phi - \phi_0) - \frac{V - V_{LC}}{V_{fc}} \sin \phi \right\} \quad (17)$$

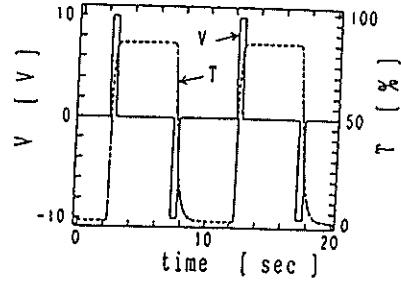
(3), (9), (17) 式から, θ, ϕ, V_{LC} を求めることが出来る.

3. 研究成果

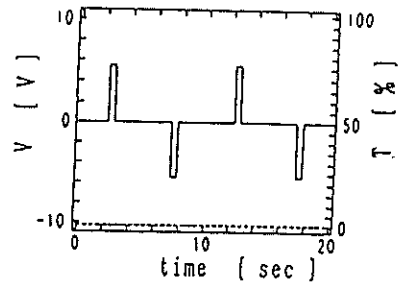
本節では, セラミック分散型高分子液晶複合薄膜の基本的特性について述べる.

1. 双安定スイッチングの実現

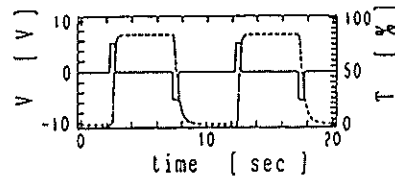
まず, 角物性定数は, 測定結果を参考に, $\tau = 0.01$, $\gamma = 0.1$ PaS, $\epsilon_{\parallel} = 15$, $\epsilon_{\perp} = 5$, $K_{LC} = 10^{-12}$ N, $\theta_p = 3$ degs を用いて, 波高値, $V_m = 10$ V, パルスデューティ比, $\gamma_0 = 0.1$ で自発分極のプレチルト角 $\phi_0 = 3$ degs とした. 図3(a)は双極性パルスを印加した場合の双安定性動作の一例である. 初期のOFF状態では, 印過電圧 V は 0 V にセットされており, また, 光の透過率 T は 0 % である. 正の曲正の書き込みパルス, $V = 10$ V, を印加すると, 透過率は上昇し, $T = 86.3$ % となる. このとき, 高分子液晶のダイレクタは, 電界方向に揃っている. この状態は, 負の消去パルス $V = -10$ V が印加されるまで, 保持される. この消去パルスの印加後, 液晶の復元力で初期状態に戻る. しかし, 低い印加パルス $V_m = 5.5$ V に対しては, 図3(b)に観られるように, 双安定性は実現されない. しかしながら, ϕ_0 を 3 degs から 15 degs に変化させれば, 図3(c)に示すように, 双安定性は再び実現される. 更に, もし, パルス幅を $\gamma_0 = 0.01$ とすれば, $V_m = 5.5$ V, $\phi_0 = 3$ degs では, 双安定性は, 図3(d)に示されるように不可能となる. これから分かるように, 双安定性が実現されるためには, ϕ_0 に加えて, パルスの波高値と幅が, 重要なパラメータとなる.



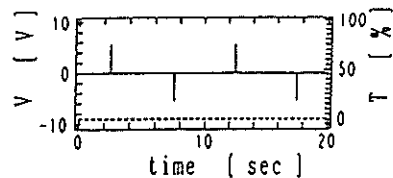
(a) $V_{th} = 10, \gamma_0 = 0.1, \phi_0 = 3$ degs



(b) $V_{th} = 5.5, \gamma_0 = 0.1, \phi_0 = 3$ degs



(c) $V_{th} = 5.5, \gamma_0 = 0.1, \phi_0 = 15$ degs



(d) $V_{th} = 5.5, \gamma_0 = 0.01, \phi_0 = 15$ degs

図3 双安定性メモリー特性

2. しきい値特性

図4に, 幾つかの ϕ_0 に対するパルスデューティ比に対するしきい値特性が示されている. ここで, $\epsilon_{\parallel} = 15$, $\epsilon_{\perp} = 5$, $K_{LC} = 10^{-12}$ N, $\theta_p = 3$ degs. 図4において, それぞれの特性曲線は, 与えられた γ_0 に対する最小の V_m を与える. しきい

値 V_m は、 γ_0 が 1 に近づき、 ϕ_0 が 45 degs になるとき最小となる。本研究で提案された複合膜では、液晶のダイレクタ配列は、自発分極の反転により実現されることは重要である。

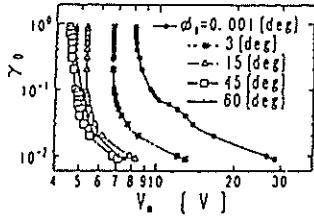


図4 セラミック-液晶複合膜セルのしきい値特性。

次に、セラミックス凝集体のフラクタル構造を利用したフラクタンデバイスを作成する。電子回路が、図5に示されている。ここで、F1とF2はフラクタル次元 $D(2 \leq D \leq 3)$ をもってランダムに分布するセラミック-液晶複合薄膜 (Ceramic Dispersed Liquid Crystalline Polymer: CDLCP) を表す。また、実際の入出力応答が、図6に示されている。

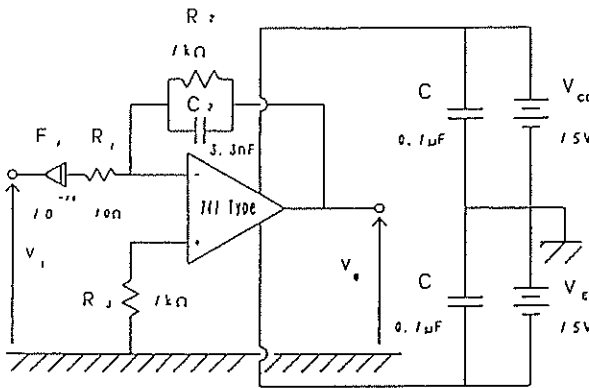
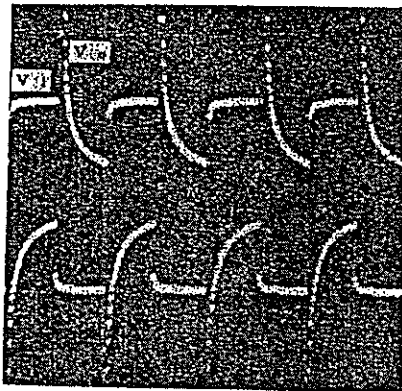


図5. フラクショナル演算回路



(a) 観測結果

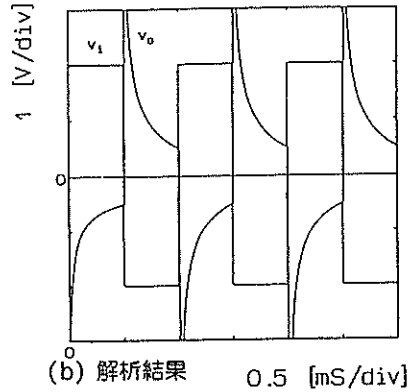


図6. フラクショナル演算結果
(1/2階微分回路)

4. 今後の課題

本研究では、セラミック-液晶複合薄膜で実現される双安定性スイッチングとそれを能動回路に組み込み、フラクショナル演算が可能であることを初めて明らかにした。

今後の課題としては、次世代の液晶材料として注目されている、反強誘電性液晶と組み合わせることにより、さらに、新規な3安定スイッチングを実現することが挙げられる。また、分子論的なレベルからの相転移現象[8]の解明も今後の重要な課題である。

【参考文献】

- [1] M. Schadt and W. Helfrich: Appl. Phys. Lett. **18**, 127 (1971).
- [2] H. Nomura, S. Suzuki and Y. Atarashi: Jpn. J. Appl. Phys. **29**, 522 (1990).
- [3] K. Yoshino, A. Tagawa, Y. Sadohara, M. Ozaki, T. Munezawa and Y. Nomura: Technol. Rep. Osaka Univ. **41**, 111 (1991).
- [4] J.Y. Kim and P. Palffy-Muhorey: J. Appl. Phys. **66**, 362 (1989).
- [5] N.A. Clark and S.T. Lagerwall: Appl. Phys. Lett. **36**, 899 (1980).
- [6] M. Nakagawa: Jpn. J. Appl. Phys. **30**, 1759 (1991); Jpn. J. Appl. Phys. **39**, 4068 (2000).
- [7] T. Matsumoto, A. Fukuda, M. Johno, Y. Motoyama, T. Yui, S.-S. Seomun and M. Yamashita: J. Mater. Chem. **9**, 2051 (1999).
- [8] M. Nakagawa: Molecular Theoretical Approaches in Liquid Crystalline Phase Transitions, (2001, Springer-Verlag).