

(様式 5)

2022 年 11 月 26 日
Year Month Day

学位（博士）論文要旨

(Doctoral thesis abstract)

論文提出者 (Ph.D. candidate)	工学府博士後期課程 機械システム工学専攻 (major) 2017 年度入学(Admission year) 学籍番号 17833005 氏名 坂本 道昭 (student ID No.) (Name)
主指導教員氏名 (Name of supervisor)	花崎 逸雄
論文題目 (Title)	液晶の分子描像からの粗視化に基づくスケーリング理論の構築と粘弾性座屈遷移機構の解明
論文要旨（2000 字程度）（Abstract (400 words)） 層状構造を持つスメクチック液晶は、固体とは異なるソフトマター特有の光学的・機械的特性を発現することができるため、フレキシブルデバイスとして広く注目されている。その機械的挙動は粘弾性的であり、各層は面外方向に弾性的に振る舞うが、層内部では二次元流体として振る舞う。そのため、粘弾性特性を規定する結合定数である弾性定数や粘弾性係数は、非線形ゆらぎによる波数依存性、周波数依存性を持つ。また、外部からの機械的摂動により座屈遷移が起こり、結合定数が発散し、トポロジカル欠陥を伴って層が融解する。そのため、弾性定数や粘性係数の特異な波数依存性や周波数依存性を分子構造から予測し、座屈不安定性のメカニズムを分子レベルで解明することは重要な課題である。本論文では、粗視化分子動力学法（Coarse-grained molecular dynamics, 以下、CGMD）と繰り込み群変換を用いて、スメクチック液晶の粘弾性を、実験的に検証可能な低周波領域から現在の実験では到達できない高周波領域までの幅広いスケールで、分子構造を考慮しながら正確に推定する方法を提示する。さらに、振動や電場などの外部摂動に対する配向安定性の材料設計指針を示す。これにより、特に高周波領域での配向安定性を制御した材料設計が可能となり、超音波を用いた可変焦点液晶レンズや音響光学結合を用いた液晶光変調器など、スメクチック液晶を用いたディスプレイ以外の新しい産業応用が期待される。各章の内容は以下の通りである。 第 1 章では上記の概要、及び本論文の構成を示す。 第 2 章ではスメクチック液晶の弾性挙動を従来の方の理論の立場から説明する。その弾性結合定数を、揺動散逸定理により微視的描像と繋げる。また、座屈遷移を臨界現象と捉えて繰り込み群を適用することでその結合定数にスケール依存性を持たせる手法を説明する。従来の弾性理論では歪み変形による層内流動を考慮しないために弾性挙動を表す結合定数に歪み速度依存性がないことを述べる。 第 3 章ではスメクチック液晶の微視的な粘弾性座屈遷移挙動を CGMD により探求するために、実際の微細構造に基づいて座屈遷移に最適化した粗視化力場を求めた結果を述べる。液晶として、代表的なスメクチック液晶材料である 4'-octyl-4-biphenylcarbonitrile, いわゆる 8CB を用いる。CGMD は、分子構造を考慮した上で、10-100nm 程度、1 μ s 程度の	

比較的大きな時空間スケールをカバーすることが可能であり、座屈現象を分子的レベルで取り扱うための有望な手法である。しかし、粗視化力場のわずかな違いがスメクチック液晶の座屈不安定性に影響を与えるため、変形していない状態の構造特性から抽出する粗視化力場では、スメクチック液晶の座屈不安定性を再現することは困難である。本研究では Pareto 集合に基づく多目的最適化機械学習法により、スメクチック液晶の液晶分子の詳細を考慮しつつ、トポロジカル欠陥を伴う座屈変形を再現する十分な精度を持つ粗視化力場を開発した。秩序変数、層融解の臨界角、および動径分布関数を目的関数として、それらの応答曲面を Gauss 過程により推定した。すべての目的関数を同時に最適化できるわけではないため、得られた応答曲面を探索空間として遺伝的アルゴリズムを使用して最適解の Pareto 集合を計算した。Pareto 最適解集合から、液晶変形を評価するのに適した分子対称性の高い粗視化力場と分子対称性の低い粗視化力場を特定した。得られたモデルは、座屈変形、スメクチック層の融解、トポロジカル欠陥を伴う変形特性に関して既知の理論や実験を再現する。また、分子の対称性は生成するトポロジカル欠陥の種類を決定する。

第4章では、第3章で得た粗視化力場を用いて CGMD によるスメクチック液晶の臨界座屈シミュレーションを行う。CGMD により計算した臨界歪みや弾性率を繰り込み群変換によりスケールリングすることで、実験で検証可能な低周波領域から現在の実験では到達できない高周波領域まで、幅広いスケールでスメクチック液晶の粘弾性座屈構造遷移を正確に推定できることを示す。CGMD により計算された臨界歪みや弾性率は、歪み速度や層数に依存する特異的な粘弾性挙動を示す。第2章で示した通り、従来の弾性体及び粘弾性モデルは、粘弾性特性の歪み速度依存性を説明できない。CGMD が明らかにした粘弾性座屈挙動の原因を、歪み速度が誘起する非散逸的な流動に起因することを突き止め、流れ場と層揺らぎの結合を自己エネルギーとして従来の液晶モデルに取り込んだ。このモデルでは歪み速度による圧縮誘起流の抑制効果と歪みによる層のうねりの揺らぎとの競合が臨界座屈挙動を決定する。特に、液晶の緩和周波数に近い高周波数領域では、圧縮に誘起された流動が各層をランダムに動かし、各層間でうねりの大きな位相ずれが発生する。その結果、歪み速度と層数の増加に伴い、複数層の協調座屈が抑制される。この新たな液晶の粘弾性モデルに対して、繰り込み群を用いてモデルの結合定数にひずみ速度依存性や層数依存性、ドメインサイズ依存性を考慮した。このスケールリングモデルによる CGMD 結果の低周波領域の圧縮弾性率と臨界歪みの推定値は、既存文献の実験値および理論値と整合する。

第5章ではまとめを述べる。すなわち、第3章で開発した分子構造を精密に反映した粗視化力場を用いた CGMD シミュレーションと第4章で構築した液晶粘弾性スケールリングモデルを組み合わせることで、実験で検証可能な低周波領域から現在の実験では到達できない高周波領域まで、幅広いスケールでスメクチック液晶の粘弾性座屈構造遷移を正確に推定することが可能になる。

(英訳) ※和文要旨の場合(400 words)

Mechanical behavior of smectic liquid crystals (LCs) is viscoelastic in a sense that each layer behaves elastically in the out-of-plane direction and behaves as a two-dimensional fluid inside the layer. The viscoelastic coupling constants such as elastic constants and viscosity coefficients have wavenumber and frequency dependences due to nonlinear fluctuations. External perturbation induces a buckling transition, causing the coupling constants to diverge near the critical point, and the layer to melt with topological defects. Therefore, it is important to predict the anomalous wavenumber and frequency dependence of elastic constants and viscosity coefficients from the molecular structure, and to elucidate the mechanism of the buckling instability at the molecular level.

In this thesis, a method is proposed to estimate the viscoelasticity of smectic LCs from molecular structure over a wide range from low-frequency to high-frequency regimes, by coarse-grained molecular dynamics (CGMD) and renormalization group transformations. A material design guideline for the orientational stability against external perturbations due to vibration and electric field is also proposed. The contents of each chapter are as follows.

Chapter 1 explains the overall structure of the thesis.

Chapter 2 explains the critical elastic behavior of smectic LCs from the conventional LC field theories, which cannot explain the strain-rate dependence of the buckling behavior.

Chapter 3 explains the multi-objective optimization of the coarse-grained force field (CG force field) for the buckling transition based on the actual microstructure of LCs. The obtained model reproduces known theories and experiments on buckling deformations, melting of smectic layers, and topological defects. It also reveals that molecular symmetry determines the types of topological defects generated.

Chapter 4 explains the CGMD simulation for the critical buckling of smectic LCs CGMD using the CG force field obtained in Chapter 3. CGMD reveals that critical strain and elastic modulus show anomalous viscoelastic behavior depending on strain rate. Therefore, the viscoelastic model is proposed including the compression-induced flow with strain rate. The renormalization group transformation is applied to this analytical model to make the coupling constants strain-rate dependent.

Chapter 5 presents a summary. By combining the CGMD simulation using the CG force field that accurately reflects the molecular structure and the viscoelastic scaling model, the framework can accurately estimate the viscoelastic buckling structural transition of smectic LCs over a wide range of scales, from the low-frequency regimes that can be verified experimentally to the high-frequency regimes that cannot be reached by current experiments.