

スメクチック液晶組織の光散乱特性

道 諾*・那波信彦**

Light Scattering Characteristics in Smectic A Liquid Crystals

by Dau Nou and Nobuhiko NAWA

The light scattering characteristics in smectic liquid crystals are investigated. The scattering texture for sample cells of various surface treatments is obtained through the electro-optic, thermo-optic and electro-thermo-optic effect. The integrated scattering intensity and the variation of scattering intensity with scattering angles are measured. Depending on the forming process of the texture, the scattering of light has different characteristics. In the electro-optic effect, the texture gives rise to the diffuse scattering patterns, whereas, the diffraction patterns clearly observed for the texture formed in the thermo-optic effect. The diffuseness is attributed to the disorder in the molecular alignment and the diffraction pattern depends on the size of the correlated structures. The scattering characteristics in nematic liquid crystals and smectic-cholesteric mixtures are also discussed.

1. ま え が き

スメクチック液晶はネマチックあるいはコレステリック液晶と比較して、多様な光学効果を示すため、その光学的性質が注目されている。液晶には透明な状態と光を散乱する状態があり、それぞれ固有な分子配列（これを液晶の組織という）をとることが知られている。電界の印加により散乱組織が形成されるとき、これを液晶の電気光学効果¹⁾といい、熱変化により散乱組織が形成されるとき、これを熱光学効果²⁾という。また電界と熱を用いるとき電気・熱光学効果³⁾とよんでいる。これらの諸効果においてそれぞれ異なる組織変化を経て散乱組織が形成されるが、スメクチック液晶の表示素子への応用を考えると、散乱組織の光学特性を明らかにすることが望まれる。

我々は、異なる光学効果で形成されるスメクチックA液晶の散乱組織を観察し、散乱特性を測定し、相互の比較を行ったのでその結果を報告する。⁴⁾

2. 実験方法と試料

本実験で用いた試料を Table 1 に示す。実験に適する相転移温度を得るために、p 型

* 中国内蒙古師範大学（物理学科研究員，1982年4月～1984年3月） 光学

** 理工学部物理学科教授 応用光学

スメクチック液晶 8CB (octyl-cyanobiphenyl) と 8COB (octyloxy-cyanobiphenyl) を混合した。これを試料 No. 1 とした。動的散乱を生じさせるために試料 No. 1 に 0.1% (重量比) の電解質 (tetra-butyl-ammonium-chloride) を混入し、試料 No. 2 にした。試料 No. 3 は n 型スメクチック液晶 (4HE07: チッソ製) である。スメクチック-コレステリック混合液晶の散乱組織を調べるために試料 No. 1 に 5% の CB15 (methyl-butyl-cyanobiphenyl) を入れて試料 No. 4 にした。試料 No. 5 はネマチック液晶 MBBA (methoxy benzylidene-butylaniline) である。 $T_{SN(Ch)}$ はスメクチック-ネマチック (コレステリック) 相転移温度であり、 $T_{N(Ch)I}$ はネマチック (コレステリック)-液体相転移温度である。

Table 1. Description of samples. *This sample shows cholesteric phase instead of nematic phase. $T_{SN(Ch)}$: Smectic to nematic (cholesteric), $T_{N(Ch)I}$: Nematic (Cholesteric) to isotropic.

No.	Liquid crystals	Phase transition temperatures	
		$T_{SN(Ch)}$	$T_{N(Ch)I}$
1	8CB+8COB 70 : 30	43.6°C	52.9°C
2	(1)+TBAC 99.9 : 0.1	43.2°C	52.8°C
3	4HEO7	36.5°C	69.3°C
4 *	(1)+CB15 95 : 5	38.0°C	49.7°C
5	MBBA	—	46.0°C

透明なガラス電極板 (In_2O_3) と Mylar フィルム (25 μm 厚) のスペーサーを用いてセルを作成した。電極板の表面に SiO_2 の斜方蒸着方法による平行配向処理, あるいはレンチンの塗布による垂直配向処理を施した。平行配向処理セルを記号 (||) で, 垂直配向処理セルを記号 (\perp) で示す。平行配向処理を施した電極板と垂直配向処理を施した電極板を用いて作成したセルを記号 (|| $\cdot\perp$) で示す。

スメクチック相の光散乱組織の形成過程を直交偏光状態にした偏光顕微鏡で観察した。液晶セルの温度は顕微鏡用ホット・ステージで調節した。対物レンズと偏光板をはずした顕微鏡の接眼部に光電子増倍管を置き, 液晶セルを透過する直進光の透過率変化を測定した。1 cm^2 の大きさのセルを用いて, 散乱組織の散乱光強度を積分球で測定した。散乱組織にレーザ光 (ビーム直径 2 mm, $\lambda=6328 \text{ \AA}$) を照射し, 透過光の散乱特性を観察した。レーザ光の直進方向からの角度を散乱角度 (θ) とし, 散乱光の角度依存性を Si フォトセル (2 \times 2 mm^2) で測定した。

3. 実験結果と考察

電気光学効果における透過率の変化を Fig. 1 に示す。試料 No. 1 (||) と試料 No. 3 (\perp) には 1 kHz の交流電圧を印加し, 試料 No. 2 (||) には直流電圧を印加した。これ

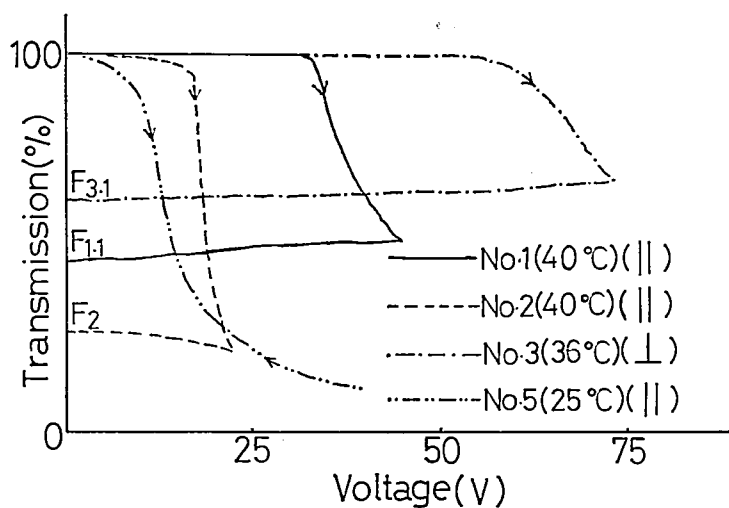


Fig. 1 Typical voltage dependence of light transmission of smectic and nematic liquid crystals.

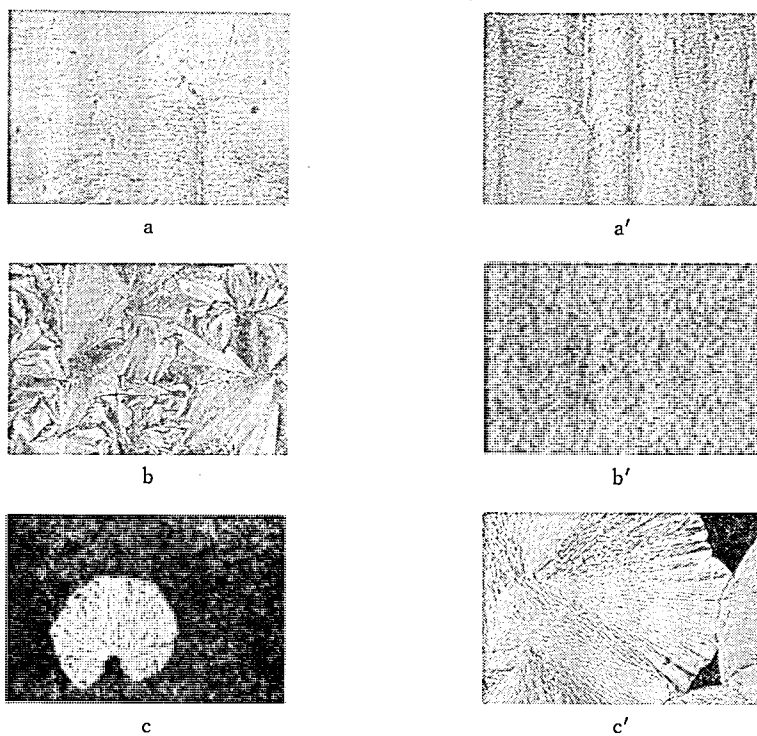


Fig. 2 Texture change in electro-optic effect. (a) and (a'): texture change from planar to focal-conic texture (b) and (b'): formation of scattering texture through dynamic scattering mode. (c) and (c'): texture change from homeotropic to planar texture.

らの試料の初期組織は透明組織であり、印加電圧が増大し閾値を越えると透過率が減少した。透過率が最低になった後、印加電圧を除去しても透過率はほとんど変化しなかった。この結果は、電圧を印加すると透明組織が散乱組織に変化し、電圧除去後も散乱組織が保持されることを示している。試料 No. 1 (||), 試料 No. 2 (||) と試料 No. 3 (⊥) に対する散乱組織をそれぞれ $F_{1,1}$, F_2 , $F_{3,1}$ とする。試料 No. 5 (||) を用いたネマチック液晶の電気光学効果 (直流印加) も Fig. 1 に併せて示す。

組織変化の観察結果を Fig. 2 に示す。試料 No. 1 では、印加電圧の増大に従い、プレーナ組織にディスクリネーションが形成された。ディスクリネーションは直線状に移動し、フォーカル・コニック組織を形成した (Fig. 2a)。印加電圧がさらに大きくなると、ディスクリネーションが増加し透過率が減少した。電圧除去後の散乱組織 (フォーカル・コニック組織) $F_{1,1}$ を Fig. 2a' に示す。試料 No. 2 では、印加電圧の増大に従い、プレーナ組織が変化した (Fig. 2b)。印加電圧がさらに大きくなると、液晶分子が激しく動く動的散乱状態が生じ透過率が減少した。電圧を除去すると擾乱は静まるが散乱組織 F_2 が残存した (Fig. 2b')。試料 No. 3 では、印加電圧の増大に従い、ホメオトロピック組織の中にフォーカル・コニック組織が形成された (Fig. 2c)。印加電圧がさらに大きくなると、フォーカル・コニック組織が成長し透過率が減少した。電圧除去後の散乱組織 (フォーカル・コニック組織) $F_{3,1}$ を Fig. 2c' に示す。

電気・熱および熱光学効果における透過率の変化を Fig. 3 に示す。試料 No. 1 (||) と試料 No. 3 (⊥) をネマチック相まで加熱し、電圧を印加しながら $1^\circ\text{C}/\text{min}$ の速さで冷却した。これらの試料では、ネマチック-スメクチック相転移温度近傍で透過率が急激に変化するが、スメクチック相での透過率は印加電圧に依存した。透過率が最小になる電圧を印加したときの測定結果を Fig. 3 に示した。試料 No. 1 (||・⊥) では電圧を印加しなく

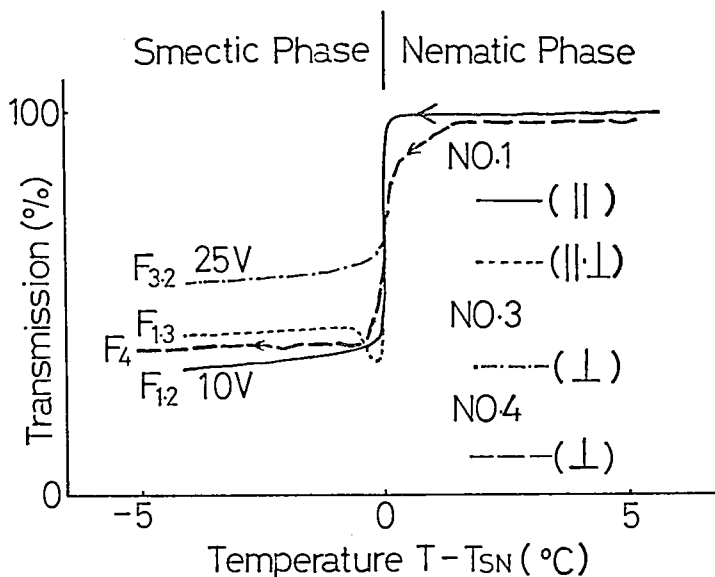


Fig. 3 Typical temperature dependence of light transmission of smectic and smectic-cholesteric mixed liquid crystals.

ても、スメクチック相で透過率が減少した。これらの結果は、液晶相が変化するとき透明組織から散乱組織への変化が生じたことを示している。試料 No. 1 (||), 試料 No. 3 (⊥) と試料 No. 1 (||・⊥) に対する散乱組織をそれぞれ $F_{1,2}$, $F_{3,2}$, $F_{1,3}$ とする。

試料 No. 1 (||) および試料 No. 3 (⊥) はネマチック相でそれぞれホモジニアス組織およびホメオトロピック組織を示した。これらの組織に電圧を印加すると、分子の誘電率異方性に従い、いずれの試料においても電極面に対して傾斜した分子配列が得られる。特に、試料 No. 3 (⊥) の場合は明瞭なシェリーレン組織が観察された。試料 No. 1 (||・⊥) では、上下の壁面の配向効果が競合するために、電圧を印加しなくても、ネマチック相で傾斜した分子配列が得られる。試料が冷却され、これらの傾斜した分子配列がスメクチック相に持込まれると T_{SN} 近傍でまず縞状組織が現れた。次いで、試料 No. 1 (||) と試料 No. 1 (||・⊥) の場合には縞状組織から球状散乱組織 $F_{1,2}$ と $F_{1,3}$ (Fig. 4a と Fig. 4b) が形成され、試料 No. 3 (⊥) の場合には縞状組織が網目状散乱組織 $F_{3,2}$ (Fig. 4c) に変化した。壁面配向処理が異なると、散乱組織の模様が異なることがわかる。

試料 No. 4 (⊥) を用いたスメクチック-コレステリック混合液晶の熱光学効果も Fig. 3 に併せて示す⁵⁾。コレステリック相のスクロール組織を $3^{\circ}\text{C}/\text{min}$ の速さで冷却すると、相転移温度近傍で擾乱に似た分子の動きが生じ、スメクチック相で散乱組織 (F_4) が形成

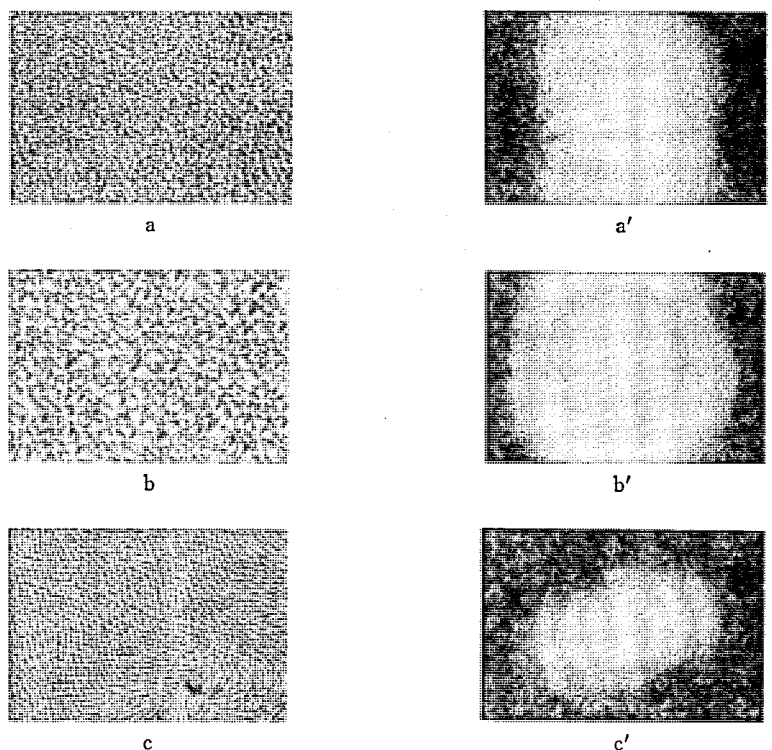


Fig. 4 Scattering textures formed in electro-thermo-optic effect (a and c) and thermo-optic effect (b). (a'-c'): light scattering patterns obtained from corresponding textures (a-c).

された。コレステリック相のフォーカル・コニック組織を同じ速さで冷却しても散乱組織は得られなかった。この結果は、混合液晶においては散乱組織の形成が初期組織にも依存することを示している。

Fig. 1 と Fig. 3 の測定は微小領域で行われているので、光透過率が測定箇所によって異なることがある。組織の不均一さの影響をさけて、各組織の散乱の強さを比較するために、セル全体的前方散乱光から直進光を除いた散乱光の強度 I_d を積分球で測定し、透明組織の透過光強度 I との比、 $I_d/I=T_d$ で散乱の強さを比較した。透明組織の透過光強度と散乱組織の前方散乱光強度はほぼ等しく、後方散乱光強度は前方散乱光強度の 2% 程度である。測定結果を Table 2 に示す。散乱が強い組織は、p 型スメクチック液晶の電気・熱光学効果による散乱組織 $F_{1,2}$ 、熱光学効果による散乱組織 $F_{1,3}$ 、動的散乱を経て形成される散乱組織 F_2 とスメクチック-コレステリック混合液晶の熱光学効果で形成される散乱組織 F_4 である。スメクチック液晶の散乱組織の散乱の強さは 0.4~0.75 程度であり、これはネマチック液晶に 20V~40V の電圧を印加したときに生じる動的散乱状態の散乱の強さと同じ程度であることがわかる。

Table 2. Comparison of integrated scattering intensities for sample cells of various scattering textures.

No.	Scattering Texture	Scattering Intensity (T_d)
1	$F_{1,1}$	0.45
1	$F_{1,2}$	0.75
1	$F_{1,3}$	0.75
2	F_2	0.75
3	$F_{3,1}$	0.45
3	$F_{3,2}$	0.45
4	F_4	0.75
5	20V	0.45
5	40V	0.75

散乱組織にレーザ光を照射し散乱光の分布をスクリーン上で観察した。電気光学効果で得られる散乱組織 $F_{1,1}$, F_2 , $F_{3,1}$ (Fig. 2a'-2c') は散乱に方向性を示さなかった。これらの組織の散乱光強度分布を Fig. 5 に示す。ここで、横軸は散乱角度であり、縦軸は透明組織の直進光の強度に対する散乱光の相対強度である。いずれの場合も、散乱光は角度が増加すると単調に減少する。この結果は、電気光学効果における散乱組織は拡散性の散乱特性を持つことを示している。分子配列が乱れ、多重散乱の効果が大きくなると、散乱光が拡散性を示すことが知られている⁶⁾。したがって、電気光学効果においては、光軸の方向が空間的に激しく揺れている組織が形成されていることがわかる。

ネマチック液晶の動的散乱状態においても、方向性のない散乱が観察された。40V 印加したときの散乱光強度分布を Fig. 5 に示す。散乱に方向性がないとき、 $\theta=0^\circ$ での光強度が小さく、大きな角度に光を散乱するものほど拡散性が強い組織である。スメクチック

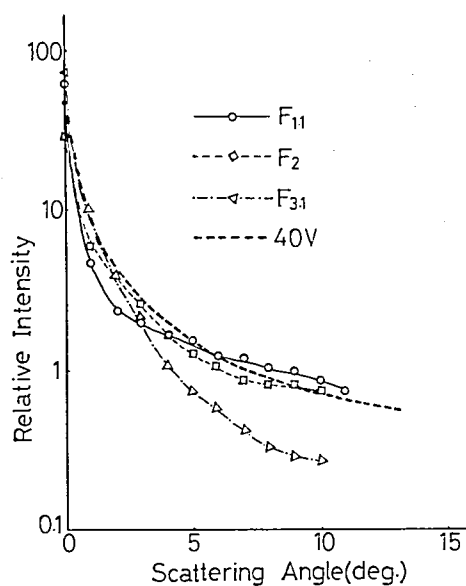


Fig. 5 Scattering light intensity versus scattering angles for various scattering textures formed in electro-optic effect. Dynamic scattering mode in nematic liquid crystal is produced by an application of DC 40 V.

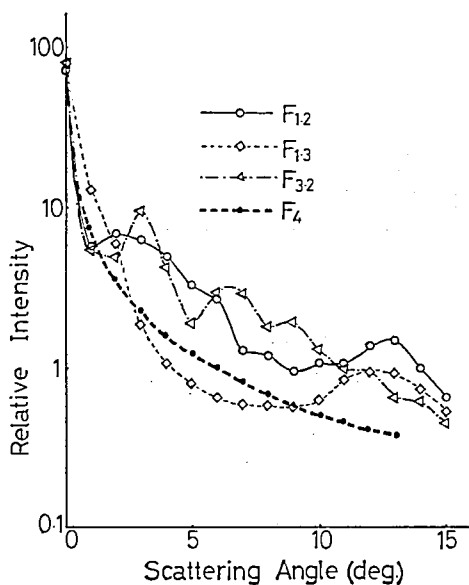


Fig. 6 Scattering light intensity versus scattering angles for various scattering textures formed in electro-thermo-optic effect and thermo-optic effect.

ク液晶の電気光学効果により形成される散乱組織の散乱特性は、ネマチック液晶の動的散乱状態のときの散乱特性に類似している。いずれの場合も、 $\theta=7^\circ$ 以上では散乱光がほとんど存在しないことがわかる。

スメクチック液晶の電気・熱および熱光学効果で得られる散乱組織 $F_{1,2}$, $F_{1,3}$, $F_{3,2}$ (Fig. 4a-4c) の散乱光の分布を Fig. 4a'-4c' に示す。これらの組織はそれぞれ固有の散乱光の分布を示すことがわかる。散乱光の強度の強い方向に沿って測定した散乱特性を Fig. 6 に示す。散乱強度は角度により変化している。一方、スメクチック-コレステリック混合液晶の熱光学効果で得られる散乱組織 F_4 は散乱の分布に方向性を示さず、拡散性のある散乱特性を示した (Fig. 6)。スメクチック液晶では、ネマチック相からの徐冷過程で周期的な模様を示す散乱組織が形成され、混合液晶ではコレステリック相からの冷却過程で周期性のない乱雑な組織が形成された。したがって、上述の散乱特性の相異は組織の幾何学的形状に起因すると考えられる。スメクチック液晶の散乱では回折効果が支配的であり、混合液晶の散乱では多重散乱が支配的であることがわかる。

4. 結 論

スメクチック液晶の光学的特性を明らかにするため、散乱組織の形成と散乱特性の測定を行い次の結果を得た。

散乱組織の幾何学的形状は組織の形成過程と壁面配向処理に大きく依存する。

組織により散乱される散乱光の積分強度はネマチック液晶の動的散乱状態の散乱光の積分強度とほぼ等しい。

電気光学効果における組織は拡散性のある散乱特性を示し、電気・熱および熱光学効果における組織は回折効果を顕著に示す。

5. 謝 辞

本研究は、明星大学特別研究費の助成のもとで行われた共同研究である。道諾内蒙古師範大学講師（日本私立大学協会と中国内蒙古自治区政府との間の学術交流協定による派遣研究員）に研究の機会を与えられた児玉三夫学長ならびに御援助いただいた山岡義人理工学部長、鈴木辰三郎物理学科主任教授に深謝します。

参考文献

- 1) F. Dazai, T. Uchida and M. Wada: Mol. Cryst. Liq. Cryst. 34 (1977) 197.
- 2) W.H. Chu and D.Y. Yoon: Mol. Cryst. Liq. Cryst. 54 (1979) 245.
- 3) H.P. Hinov: J. Phys (France) 42 (1981) 307.
- 4) 道諾, 那波信彦: 第 44 回応用物理学会講演会予稿 (1983) 36.
- 5) A. Uejima, K. Ogura, H. Hirabayashi, K. Nakamura and N. Nawa: Jpn. J. Appl. Phys. 21 (1982) 666.
- 6) W.H. Chu and J.T. Jacobs: IBM J. Res. & Dev. 22 (1978) 40.