

**「液晶トポロジカル乱流の構造決定と負粘性材料科学の開拓」**

研究期間：2018年10月～2022年3月

研究者：竹内 一将

## 1. 研究のねらい

トポロジカル欠陥は、磁性体や量子流体、液晶などの凝縮系から、場の理論や宇宙論、最近では生命現象まで、物理学を中心とする諸分野で現れる普遍的な概念である。中でも液晶系は、様々な光学観察法や制御手法が発達していることから、トポロジカル欠陥の物理学の発展に重要な役割を担ってきたが、標準的な3次元計測手法では欠陥位置を配向場から推定する必要があり、線欠陥ダイナミクスの3次元直接計測は困難であった。本研究では、近年報告された、液晶欠陥に蛍光色素が集積する現象を用いて、線欠陥の3次元ダイナミクスの直接計測に取り組む。特に、高密度のトポロジカル線欠陥からなる乱流状態に注目し、乱流からの緩和過程や、乱流の定常状態における線欠陥の3次元構造やダイナミクスを計測することで、トポロジカル線欠陥の構造や相互作用といった基本的特徴を明らかにするとともに、その集団であるトポロジカル欠陥乱流の理解を深める。液晶のトポロジカル欠陥乱流は、負の粘性という顕著な特性を示すことが近年報告されており、本研究で乱流中の欠陥3次元構造を計測することで、負粘性を生む特徴的な配向構造の理解へ端緒を開く。

また、3次元液晶では、特異な芯をもつ最も基本的な類の線欠陥に加えて、非特異な芯を持ち見かけ上の巻き数を有する「非特異欠陥」や、モノポールなど、様々な構造が存在する。本研究では、こうした非標準的なトポロジカル欠陥、特に非特異欠陥の探求も試みる。

以上に加えて、本研究では、液晶系に限らないトポロジカル欠陥の物理学への貢献も目指す。具体的には、液晶におけるトポロジカル欠陥ダイナミクスの3次元観察結果を、量子流体の量子渦をはじめとする他の物理系での知見と比較することで、異なる系に共通する欠陥の性質と、系固有の特徴について理解を深める。また、バクテリアの集団においても液晶的配向秩序とそれに伴うトポロジカル欠陥が生じることが知られており、そうした系に対して欠陥の3次元配向構造がもたらす効果についても研究を行う。

## 2. 研究成果

## (1) 概要

液晶トポロジカル欠陥への蛍光色素集積を用いた3次元動力学観察のモデルケースとして、トポロジカル欠陥乱流からの緩和過程に注目し、高速走査可能な共焦点顕微鏡を用いて提案手法の有効性を検証した。印可電圧を除去し、乱流緩和過程を引き起こすと、多数の線欠陥が撮影され、収縮しながら運動する様子が撮影された。特に、線欠陥のトポロジーに起因する特徴的現象である再結合過程の観測に成功し、本手法が線欠陥3次元ダイナミクスを正しく捉えていることが明らかとなった。再結合時の欠陥運動を解析したところ、欠陥間距離の時間変化に関する特徴的スケーリング則を見出した。観測されたスケーリング則

は、2次元液晶や3次元量子渦で知られているものと同一であり、線欠陥に広くみられる性質として興味深い。さらに、再結合時の2本の欠陥運動の対称性を調査したところ、2次元液晶で確立されている運動の非対称性が3次元では消失するという、意外な結果を得た。この機構として、2次元ではトポロジカルに区別される巻き数 $\pm 1/2$ の欠陥が、3次元ではトポロジカルに同一視できる(同相化する)事実に着目し、それによる非対称性消失の一般的機構と必要条件の提案を行うとともに、液晶系でそれが実現していることの実験的裏付けを得た(論文 2)。また、電圧印可の下での定常的な液晶乱流においても本手法による欠陥3次元観察が有効であることを確認し、間接的な実験結果に基づく先行研究からは予見が困難な、特徴的な欠陥構造を見出すことに成功した。

また、液晶中では一般に、特異な芯をもつ標準的な線欠陥に加えて、非特異な芯を持ち、見かけ上の巻き数を有する非特異欠陥やモノポールなど、様々な種類の欠陥等が存在していることが知られている。それらの探求や安定性の理解のため、本研究では光配向剤を用いたパターン配向制御系を新たに構築した。

最後に、バクテリア集団における液晶性のトポロジカル欠陥の役割を調べるため、非運動性の大腸菌集団の増殖過程における液晶配向秩序、トポロジカル欠陥と、菌集団の細胞流動や三次元成長との関係を調査した。結果、巻き数 $-1/2$ の欠陥に細胞が流入するという、従来の細胞系の知見と異なる現象を発見した。さらに、菌が高密度化により基板平面から傾くことで極性秩序が生じることを見出し、それに基づいてアクティブ液晶理論を拡張することで、極性秩序に起因する力が $-1/2$ 欠陥への細胞流入を生むことを示した。これらは、成長駆動のアクティブマターという新分野開拓につながりうる成果と期待している(論文 1)。

## (2) 詳細

### 課題1 「液晶トポロジカル欠陥の3次元動力学直接観察と乱流緩和過程における再結合解析」

本さがけ研究の要である、液晶トポロジカル欠陥への蛍光色素の集積現象を用いた、欠陥の3次元動力学の直接観察を実施した。欠陥への色素集積現象を報告した先行研究を参考に、本現象を動力学観察に利用した場合の時間分解能を推定し、共焦点顕微鏡や観察セルが満たすべき仕様を決定、導入した。

専用液晶セルに液晶試料を封入し、電圧印可によってトポロジカル欠陥乱流を生成したうえで、電圧除去で引き起こされる乱流の緩和過程を観察したところ、時間経過とともに紐状の構造が現れ、本手法で液晶トポロジカル欠陥を正しく観察できることが確認できた。特に、線欠陥どうしが衝突することで再結合(繋ぎ変え)が起こることの直接観測に成功した(図 1)。再結合は、トポロジカル線欠陥の特徴的現象であり、それが観察できたことは、本手法が欠陥運動を捉えていることの直接証拠と言って良い。

我々は、欠陥の再結合過程を繰り返し計測し、特に面内再結合について3次元データを詳細に解析した。結果、再結合前の欠陥間の距離 $\delta(t)$ が、 $\delta(t) \simeq C|t - t_0|^{1/2}$  のように変化する特徴的なスケーリング則を見出した( $t_0$ :再結合時刻、 $C$ :比例係数)。本スケーリング則は、2次元液晶の点欠陥に加え、3次元量子流体の量子渦で知られているスケーリング則とも同じであり、線欠陥に広くみられる性質として興味深い。我々はさらに、液晶欠陥の特徴

として知られている欠陥運動の非対称性について解析を行った。2次元液晶では、巻き数 $\pm 1/2$ の欠陥が支配的であり、欠陥の符号により、誘起される流れ場が異なるため、正負の欠陥の運動が非対称であることがよく知られている。3次元液晶の線欠陥に関する我々の結果も、実験室座標系では、2本の線欠陥は非対称な近づき方を示す。しかし我々は、実験室座標系での結果に影響を及ぼさず一様流の存在可能性に着目し、欠陥ペアの運動から一様流を推定して、一様流に乗った共進座標系で改めて解析を行ったところ、見かけの非対称性が完全に消失するという予期せぬ結果を得た。

非対称性の消失のメカニズムとして、我々は、2次元ではトポロジカルに区別される巻き数 $\pm 1/2$ の欠陥が、3次元では同相となり、連続変形で移り変わる事実に着目した。これら同相構造は、液晶弾性の異方性により、エネルギーコストが異なる。我々は、液晶試料の弾性率のうち未知のものを計測することで、様々な同相構造のうち、非対称性の消失したツイスト構造がエネルギー最小であることを示した。さらに、スケーリング則の係数 $C$ から、再結合する欠陥ペアの構造に対する実効的弾性係数 $K$ を推定できることを論じ、本手法で得られる弾性係数の値が、使用した液晶のツイスト弾性係数 $K_2$ と一致することを示した。これにより、非対称性の消失したツイスト構造が実際に実現していることの裏付けを得た。

本研究で明らかになった非対称性の消失機構(図2)は、液晶欠陥以外にも例がありうる、一般的なものと考えられ、専門家と議論を始めている。

### 課題2 「液晶トポロジカル欠陥乱流の定常状態の3次元欠陥観察」

課題1で開発した手法を用い、液晶トポロジカル欠陥乱流の定常状態における欠陥の3次元観察も試みたところ、観察条件によるが線欠陥が十分解像され、運動も追えることが明らかとなった。これにより、液晶トポロジカル欠陥乱流中の欠陥集団の数密度や構造、運動の様子を初めて明らかにすることができた。

### 課題3 「異種欠陥の観察を目指したパターン配向実験系構築」

液晶中では一般に、特異な芯をもつ標準的な線欠陥に加えて、非特異な芯を持ち、見か

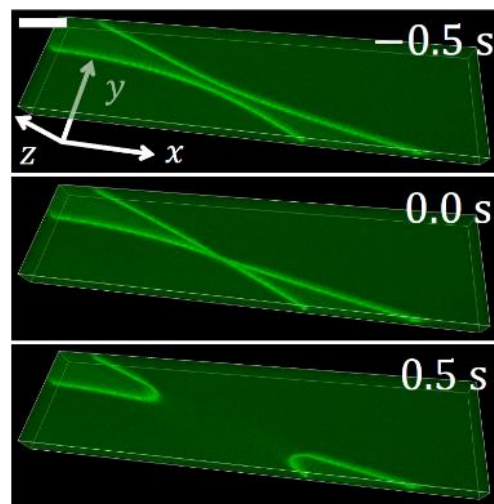


図1：提案手法による欠陥再結合過程の3次元観察結果(論文2から転載)

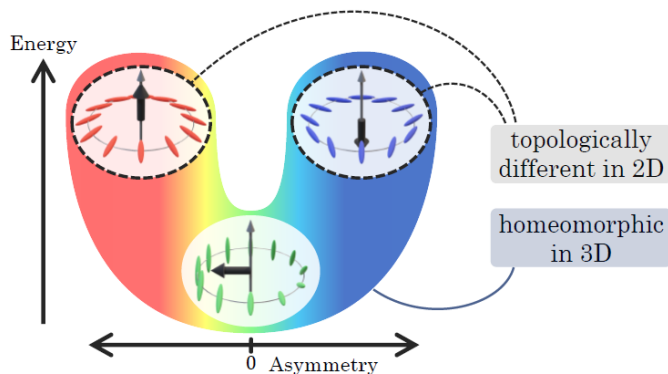


図2：自発的な対称性の回復(論文2から転載)

け上の巻き数を有する「非特異欠陥」やモノポールなど、様々な種類の欠陥等が存在していることが知られている。それらの探求や安定性の理解のため、本研究では光配向剤を用いたパターン配向制御系を新たに構築した。光配向剤を調達し、液晶プロジェクタを活用したパターン照射光学系(Kobashi et al. Nature Photonics 2016)を実装して、フォトリソグラフィ技術を組み合わせ、パターン配向制御可能な実験系を構築した。本手法により、特異欠陥や非特異欠陥が関わる特徴的な構造を生成することに成功した。

#### 課題4 「非平衡液晶としてのバクテリア集団とトポジカル欠陥の役割」

本さきがけ研究の主たる対象は分子性の液晶材料であるが、他にも液晶秩序を示す材料は様々に存在する。特に桿菌(棒状のバクテリア)は、栄養条件下で成長し、菌株によっては運動性も示すなど、内在的に非平衡性を有する液晶材料として興味深い。桿菌等の細胞集団における液晶秩序やトポジカル欠陥は、近年アクティブマター物理学の文脈で大変注目を集めているが、そこで扱われるのは運動性を有する細胞が主であり、運動せず細胞成長のみに起因する非平衡性の効果についてはあまり理解が進んでいない。

以上の背景のもと、我々は、非運動性の大腸菌集団の増殖過程における液晶配向秩序、トポジカル欠陥と、菌集団の細胞流動や、菌の集団構造形成との関係を調査した。菌集団が、増殖に伴って2次元的な成長から3次元的な成長に切り替わる際の配向構造を観察したところ、図 3(a)のように明瞭な液晶秩序と、トポジカル欠陥が観察された。そこで、欠陥周囲の細胞流動を調べたところ、従来の細胞集団の研究で報告されていた巻き数+1/2の欠陥への細胞流入に加えて、巻き数-1/2の欠陥にも細胞が流入するという、新奇な現象を発見した。我々は、菌集団の共焦点観察によって、菌が高密度化により基板平面から傾くことで極性秩序が生じることを見出し(図 3(b))、それに基づいて液晶的なアクティブマターの理論を拡張することで、極性秩序に起因する力が-1/2欠陥への細胞流入を生むことを示した(図 3(c))。これらは、成長駆動のアクティブマターという新分野開拓につながりうる成果と期待している。

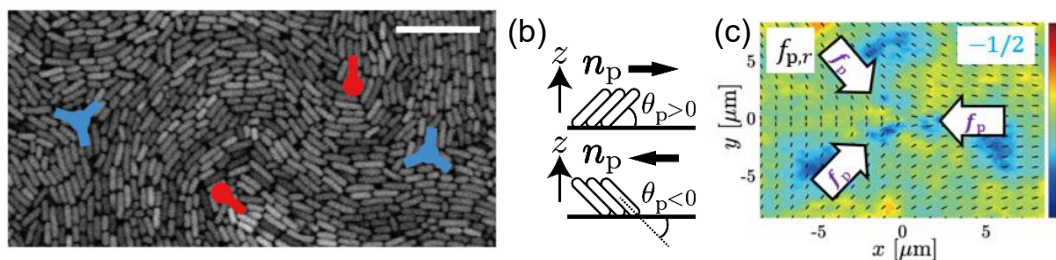


図 3 : 大腸菌集団における液晶トポジカル欠陥と極性秩序。(a)菌集団の三次元成長後の最下層の共焦点観察画像。赤青の記号は、それぞれ巻き数+1/2, -1/2のトポジカル欠陥を示す。(b) 菌の傾きによる極性秩序。(c) -1/2 の周囲の極性傾き角  $\theta_p$  から評価した極性誘起の駆動力  $f_p$ 。(論文 1 から転載)

### 3. 今後の展開

液晶トポロジカル欠陥乱流の3次元構造と負粘性については、欠陥の3次元構造と配向場の3次元構造の両面から特徴づけることが重要と思われる。特に、負粘性の起源と思われる、液晶の電場由来応力の理論的評価には配向場の3次元構造が必要であり(Orihara et al. PRE 2019)、3次元配向場計測の主要手段である蛍光共焦点偏光顕微鏡法(FCPM)を使う場合、それが有効な薄い液晶セルを使う必要がある。また、粘性は、応力と剪断率の関係で決まるので、液晶に剪断を印可した状態で欠陥構造や配向場を観察する実験も重要である。負の粘性に関しては、アクティブマター系でもそれを示唆する先行研究があり、負粘性材料科学の開拓に向け、重要な対象の1つであると考えている。こうした負粘性研究を発展させ、効果的に負粘性を生み出す実験系が構築できれば、応用研究に繋がる可能性もあるかもしれない。また、課題3に記載した非特異欠陥等に関する研究も、本さきがけで得た予備的成果を基に、研究を継続したい。

課題4に記載した、非平衡液晶としてのバクテリア集団、特に成長に起因するアクティブマターの新現象の開拓は、今後も力を入れるべき課題と考えている。課題4に記載の成果は、トポロジカル欠陥や基板処理を介して、バイオフィームや、菌集団のその他の集団構造を制御できる可能性を示唆するものと考えている。バイオフィームは、医療や産業面でも強い関心もたれている対象であり、表面を介した細胞集団制御の可能性を模索したい。細胞の増殖は、複数細胞種の競合過程や進化においても重要な要素であり、そのような側面も含めて研究を展開していく予定である。

### 4. 自己評価

研究目的の達成状況・当初計画では想定されていなかった展開や成果について

液晶トポロジカル欠陥乱流の負粘性に関わる研究課題は、当初は本さきがけ研究の主要部分と位置付けていたものの、研究実施により明らかとなった課題があり、当初計画を変更せざるを得なかった。しかし、負粘性に関する今後の研究方針の見通しを立てることができ、研究としては前進できたと考えている。また、再結合における非対称性の消失という予期せぬ成果、自発的対称性の回復という他の物理系に波及しうる概念の提案、バクテリア集団におけるトポロジカル欠陥の役割の発見など、当初は全く予期していなかった重要な成果を複数挙げることに成功した。これらは、本さきがけ研究なくして達成し得なかった成果である。

研究の進め方(研究実施体制及び研究費執行状況)について

本さきがけ研究の研究費は、約 3/4 を本研究の要である共焦点顕微鏡の購入費用に充てた。本顕微鏡は、レゾナントスキャナ・ピエゾドライブ搭載により高速走査が可能であり、動力学観察に最適である。本さきがけ研究者の研究室では、本さきがけ課題の他にも非平衡物理学に関する様々な研究課題を実施しており、それら課題でも本共焦点顕微鏡は有効活用されている。同様に、本さきがけ研究費の追加予算を配分頂き導入したクリーンブースは、本さきがけ研究において清浄環境で液晶試料を調製し、観察セルを製作するのに必要であったが、それは本さきがけ研究のパターン配向実験でも活かされたほか、やはり研究室の他課

題でも有効利用されている。研究実施体制については、各課題とも、領域内外の研究者と議論等を行いながらも、本さがけ研究者単独または研究室学生との協力体制により達成されたものである。

#### 研究成果の科学技術及び社会・経済への波及効果について

本研究で提案、実現した、液晶トポロジカル欠陥の3次元動力学の直接観察手法は、分子性液晶の特異欠陥に一般的に使える手法と期待でき、本研究以外にも様々な研究で活用されることと期待している。また、既に述べたように、トポロジーに基づく自発的な対称性の回復機構(図 2)は、液晶系に限らない一般性を有すると期待しており、超流動の専門家らと議論を始めている。これらは、基礎科学分野における直接的な波及効果が見込まれる。

社会・経済への波及効果について、負粘性に関しては短期的な波及効果を望むのは現実的でないが、本取り組みによって課題を明らかにすることができたため、社会・経済への波及効果も念頭に長期的に取り組む下地作りに貢献できたと考える。一方、バクテリア集団におけるトポロジカル欠陥の役割(課題4)については、より直接的な波及効果を期待できる。3.で述べたように、高密度バクテリア集団は、バイオフィルムをはじめ、医療・産業の観点から理解と制御が求められる対象である。バクテリアや培養細胞系であっても、基板配向制御によってトポロジカル欠陥を誘導できるという研究が近年複数報告されており、そのような技術と本成果を組み合わせることで、菌集団の3次元構造の制御や成長抑制など、新技術創成に繋がる可能性があると考えている。

#### 研究者としての飛躍につながるような成果について

本さがけ研究者は、これまでも液晶トポロジカル欠陥乱流に関する実験研究を行ってきたものの、それらは全てマクロスケールで見られる非平衡スケール則に関するものであり、個々の欠陥が関わるメゾスケールでの研究に取り組むのは初めてであった。その結果、実験技術としては共焦点顕微鏡や光配向剤を用いたパターン配向制御法など新たな経験を複数積むことができた他、学問的題材としても欠陥動力学、非特異欠陥や、ホモトピー群、また磁性体 skyrmion との関係など、多彩な話題と関わり、研究に活かすことができた。これにより、今後研究を展開していく際の新たな軸や方向性を獲得できた手応えを感じている。

## 5. 主な研究成果リスト

### (1) 代表的な論文(原著論文)発表

研究期間累積件数:0件

1. T. Shimaya and K. A. Takeuchi, 3D-induced polar order and topological defects in growing bacterial populations. *Physical Review X* 誌に投稿・査読中, プレプリント arXiv:2106.10954.

密集した大腸菌集団に生じる液晶性のトポロジカル欠陥と、菌集団の細胞流動や三次元成長との関係を調査した。従来の細胞系の知見と異なり、非運動性の大腸菌を用いた本実験では、巻き数 $-1/2$ の欠陥に細胞が流入することを発見した。さらに、菌が高密度化により基

板平面から傾くことで極性秩序が生じることを見出し、それに基づいてアクティブ液晶理論を拡張することで、極性秩序に起因する力が $-1/2$  欠陥への細胞流入を生むことを明らかにした。

2. Y. Zushi and K. A. Takeuchi, Scaling and Spontaneous Symmetry Restoring in Reconnecting Nematic Disclinations. Proc. Natl. Acad. Sci. (USA) 誌に投稿・査読中, プレプリント arXiv: 2110.00442.

液晶トポロジカル欠陥への蛍光色素の集積現象を用い、欠陥の3次元ダイナミクスを直接観察結果を報告した。特に、欠陥乱流からの緩和過程に着目し、トポロジカル線欠陥に特徴的な再結合のスケーリング則を報告した。また、2次元系で確立されているダイナミクスの非対称性が、3次元では消失していることを発見し、その機構をトポロジーと液晶物性に基づいて提案した。

## (2) 特許出願

研究期間全出願件数: 0 件 (特許公開前のもも含む)

## (3) その他の成果 (主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

招待講演 1. 液晶 Gordon 会議での招待講演: K. A. Takeuchi, “Disclination turbulence – from defect dynamics to macroscopic scaling laws –”, invited talk at 2019 Gordon Conference on Liquid Crystals: Soft Order and Topology Motives in Biomedicine, Nanoscience, Cosmology, Living Matter and Emergent Industries, 2019/07/10, New London (USA).

液晶の基礎研究分野で権威ある Gordon 会議から招待を受け、講演を行った。講演では、液晶トポロジカル欠陥乱流について、マクロスケールで観察される非平衡スケーリング則と、そこから類推される個別の欠陥ダイナミクスとの関係等について論じた。また、液晶分野で世界的に著名な研究者らと交流が生まれ、さきがけ課題を念頭に様々な議論を行い、共同研究の種を複数得ることができた。

招待講演 2. 量子渦国際研究会での招待講演: K. A. Takeuchi, “Dynamic scaling of liquid crystal defects: microscopic and macroscopic views”, invited talk at Quantized vortices and nonlinear waves (量子渦と非線形波動), 2021/2/19, online.

量子渦が中心的話題の国際研究会から招待を受け、さきがけ成果である液晶欠陥の3次元動力学観察について講演を行った。再結合スケーリング則や欠陥の間の相互作用について複数の重要な示唆を得て、その後のさきがけ研究に大変有益であった。

招待講演 3. 韓国物理学会での招待講演: K. A. Takeuchi, “3D-induced polar order and topological defects in growing bacterial populations”, invited talk at 2021 The Korean Physical Society Fall Meeting, 2021/10/22, online.

韓国物理学会から招待を受け、シンポジウムセッション “Pioneer: Seeking Novel Physics in

Living Matter I”にて、本さがけ研究の副課題として取り組んだ「非平衡液晶としてのバクテリア集団とトポロジカル欠陥」に関する成果(論文 1)を発表した。本セッションでは、他にも細胞集団におけるトポロジカル欠陥に関する複数の講演があり、関連研究を把握し議論する貴重な機会となった。

総説 1. 日本液晶学会誌における総説記事出版: 竹内一将、「液晶が切り拓く非平衡統計力学の普遍法則 —液晶乱流(動的散乱モード)を中心に—」、日本液晶学会誌, **24**(4), 218–227 (2020).

日本液晶学会誌から招待を受け、液晶トポロジカル欠陥乱流に関する非平衡スケールリング則についての総説記事を執筆した。今後の課題として、マクロスケールの非平衡スケールリング則と、個々の欠陥ダイナミクスを含む、よりミクロスケールな液晶の物理学との関係を理解することの意義を強調し、本さがけ課題を含む、液晶欠陥の研究推進の重要性が伝わるよう心掛けた。