

モノの拡がりに潜む普遍法則：実験証拠を発見

竹内 一将 (物理学専攻 博士課程3年),
佐野 雅己 (物理学専攻 教授)

伝染病や火災、水の浸透など、「モノの拡がり」に潜むとされてきた普遍法則の初めての実験証拠が、液晶中の乱流の拡がりにおいて発見された。これは異方的浸透現象 (Directed Percolation) の普遍挙動とよばれ、モノが拡がるさいの臨界的な状態で広く見られることが理論的に確立しているが、実験では長らく証拠が見つからず、重要な未解決問題とされてきた。今回の発見は、「モノの拡がり」という本質的に不可逆・非平衡の現象でも、臨界状態は統一的に理解できるという実例であり、マクロ非平衡系の普遍構造を探る上で重要な成果である。

何らかのモノ—物体とは限らない—が拡がるという現象はわれわれの身の回りの至る所に存在している。新型インフルエンザで注目された伝染病の拡大をはじめとして、森林火災や噂の伝播、軽石に垂らした水の浸透も、想像しやすい例であろう。このような現象は、学術的にも、触媒反応、細胞の信号伝達、銀河の形成など、あらゆる分野で目にするものである。これら一般に「モノの拡がり」と総称される現象は、当然ながらそれぞれがまったく別の物理過程であり、それを記述する物理法則も異なる。しかし、それにもかかわらず、モノが拡がるか拡がれずに消えてしまうかの臨界的な状態においては、そのほとんどが同じ普遍法則に従って活動していることが、理論やシミュレーションにより明らかにされてきた。これは異方的浸透現象 (Directed Percolation) クラスの普遍挙動とよばれ、現在では理論的によく理解されている。

では、果たして、現実の「モノの拡がり」もこの普遍法則に従っているのだろうか？これは学術的にも実用的にも重要な問題であり、過去30年近くにわたって多くの実験がなされてきたが、どういうわけか理論の予言する普遍挙動は最良でも部分的にし

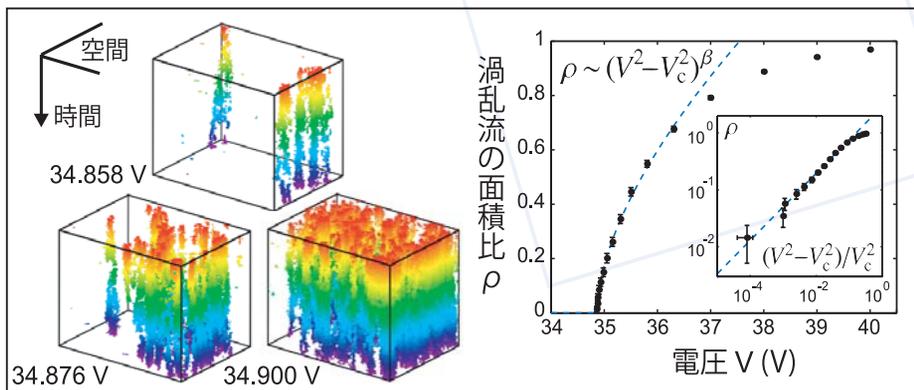
か確認されず、重要な未解決問題とされてきた。これに対し、われわれは液晶乱流の拡がりや臨界現象の測定に理想的な性質を備えていることを見出し、普遍挙動の包括的な実験検証を行った。

ある種のネマチック液晶は電圧を印加すると対流が起こり、高電圧で乱流状態が実現する。この乱流には、位相欠陥の渦の多寡により2状態が存在し、電圧が高いと渦乱流が拡がるが、低いと拡がれずに消えてしまう。そして、その境目である臨界状態近傍においては、渦乱流の伝搬はまさに軽石の中を水が下方に浸透するかのように行われていることが判明した (図左)。われわれは、渦乱流の拡がり・消滅・分布などを特徴づける臨界指数を総計12個、直接に測定し (例：図右)、そのすべてにおいて、異方的浸透現象の普遍挙動との一致を確認した。これにより、実験証拠の不在という根本的問題を解決することに成功した。

臨界現象の普遍挙動は、正味のエネルギーやり取りのない平衡系で発見され、20世紀中盤の統計物理学にパラダイムシフトを起こした概念である。いっぽう、「モノの拡がり」という現象はその範疇になく、本実験のようにエネルギー注入により駆動された、いわゆる非平衡系に固有のものである。基本物理法則がほとんど未知の非平衡系に、普遍法則を見出す努力は多方面で行われており、その1つが今回初めて確認されたことは重要な学術的意義をもつ。

本研究成果は K. A. Takeuchi *et al.*, *Physical Review Letters* **99**, 234503 (2007) および K. A. Takeuchi *et al.*, *Physical Review E* **80**, 051116 (2009) に掲載され、米国物理学会 *Physics* 誌にハイライト紹介されている。

(2009年12月8日プレスリリース)



左：定常状態において渦乱流が伝搬する様子 (空間: 1.2mm × 0.9mm, 時間 6.6秒)
右：渦乱流の占める面積 ρ (オーダーパラメータ) と印加電圧 V の関係。転移点から冪的に増大し、その指数 β は異方的浸透現象の値 0.583... と一致する。

迅速・高感度水分透過率測定装置の開発

島田 敏宏 (化学専攻 准教授^{注)})

有機電界発光素子、有機太陽電池など、フレキシブル有機デバイスを製造するにあたって、水分や酸素は有機半導体を劣化させ寿命を著しく縮めることが知られている。そこで、素子を構成する基板や側面シール材には高性能の水蒸気バリア性をもつ封止材料を用いる必要があるが、これまでガスバリア性の評価装置には、感度・測定時間の点で不足があった。とくに、測定時間が数日～数ヶ月かかるため、材料や素子の生産管理に用いることは不可能であった。われわれは、有機電界発光素子に必要とされるレベルのガスバリア性の測定を、短時間でできる測定装置を開発した。

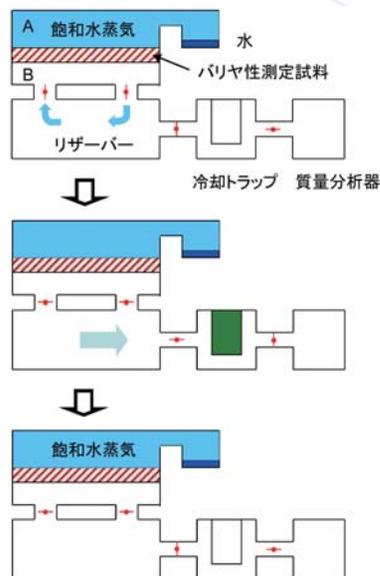
測定原理を図に示す。試料を透過してきた水蒸気を、液体窒素冷却したトラップに捕集し、水蒸気以外は排気する。その後トラップを超高真空におかれた質量分析計に接続し、決められた温度シーケンスで水蒸気を脱離させて定量する。この方式は、大気圧下の試料空間と超高真空中の質量分析計の間で、水蒸気を冷却トラップを介して受け渡すという新しい原理に基づくものであり、質量分析計を用いているため、水蒸気以外の気体に対しても容易に適用可能である。また迅速な測定のためには、装置内壁の水蒸気吸着を極力少なくする必要があることが開発中に判明し、材料・加工法の吟味により対応した。試料測定後に全系を排気・加熱ベーキングすることにより迅速にバックグラウンド水分を下げて次の試料の測定を行うことができる。

これまでさまざまな原理に基づく水分透過率測定装置が知られていたが、大気圧の気体中の水分をそのまま定量しようとするものばかりであり、感度が低いために定量可能な水分量を透過させるまでの時間が長くなっていった。また、試料測定後の装置の処理や材料・加工に、超高真空対応のノウハウを用いていないため、バックグラウンド水分の除去にかかる時間が長いという欠点もあった。新装置は、短時間でくりかえし測定が行える利点があり、デバイス封止のための材料開発や生産管理だけでなく、まだ謎の多いソフトマテリアル（高分子以外にも溶融塩や液体など）と気体との相互作用の基礎研究に用いることが可能である。

本研究は、学会の懇親会での議論をきっかけとして、(株)TI および (株)MORESCO との共同研究として行われ、最後は休日返上で製品化にこぎつけることができた。研究費不足を補うために始めたが、ソフトマテリアルと気体との相互作用は奥が深いことがわかり、従来よりも桁違いに高感度の測定器ができたので新しい研究が可能になり楽しみである。装置の原理と基礎データについては、T. Shimada *et al.*, *Applied Physics Express* 3, 021701 (2010) に掲載された。

(2009年12月15日プレスリリース)

注) 2010年4月より北海道大学教授



被測定試料であるフレキシブルフィルムの両側に2つの空間A,Bを設け、Aを水蒸気で飽和した1気圧の不活性ガス中に暴露します。他の側Bは水蒸気を含まない1気圧の不活性ガスで満たし、気体を循環させます。

一定時間後にリザーバー中の気体を冷却トラップに接続し、水蒸気を完全に吸着させます。

トラップを含む空間を高真空排気系に接続し、不活性ガスを排気し、質量分析計を動作させて水蒸気分圧を測定しながら徐々に冷却トラップの温度を上げます。質量分析計により水蒸気分圧を測定し、あらかじめ測定した水分透過量との関係を比較することにより水分透過量を求めます。

■ 今回開発したガスバリア性測定装置の測定原理 (水蒸気測定の例)

地球温暖化でインド洋の気候モードがシフト

中村 修子 (地球惑星科学専攻 特任研究員),
茅根 創 (地球惑星科学専攻 教授)

インド洋ダイポールモード現象 (IOD) の過去 115 年間の発生頻度と規模を、ケニアのサンゴ年輪解析から復元した。その結果、西インド洋の温暖化によって 10 年周期だった IOD が 2 年前後に短周期化し、エルニーニョ/南方振動現象 (ENSO) に代わってインド洋気候を支配していることを発見した。

山形俊男教授らが 1999 年に発見したインド洋ダイポール現象 (IOD) は、太平洋の ENSO と類似の、しかし ENSO とは独立して起こるインド洋の海洋気候変動で、インド洋のみならず世界各地の気候に大きな影響を及ぼす。正のダイポールモード時にはインド洋東側のインドネシアやオーストラリアが乾燥し、西側のケニアなど東アフリカでは大雨となる。1994 年の日本の猛暑や 1997 年のマレーシアの山火事、2006 年の東アフリカの大洪水、あるいは 2009 年初めのオーストラリアの森林火災など、多くの異常気象現象が、最近頻発するダイポール現象に関係していることがわかってきた。IOD が原因となって起こる干ばつや洪水は、社会経済的に脆弱なアジア・アフリカ諸国に甚大な被害をもたらすため、IOD の正確な発生予測が熱望されている。しかし IOD は最近 40 年間の観測記録の解析研究から発見され、長期変動の実態は不明だった。地球温暖化に伴う未来の気候状態を知るためにも、より長期にわたる過去の IOD 発生記録の復元が切望されていた。

われわれはこれを、西インド洋のサンゴ年輪を用いて解決した。ハマサンゴは石灰質骨格に年輪を刻んでおり、この年輪の解析によって過去の水温や降水量の変動を復元することができる。2002 年 10 月にケニアのマリンディ海洋公園で採取された全長 180 cm のハマサンゴのコアは、115 年分の年輪をもっていることが確認され、およそ月単位 (1.5 mm 間隔) で年輪の酸素同位体比を解析した。ケニアでは正のダイポールの年には 9-11 月にかけて高い降水量が観測され、これを IOD のシグナルとすることができる。われわれはサンゴ年輪の同位体比記録から 9-11 月の降水偏差を抽出して、過去 115 年間 (1887-2002 年) の降水復元 = IOD 復元に成功した。

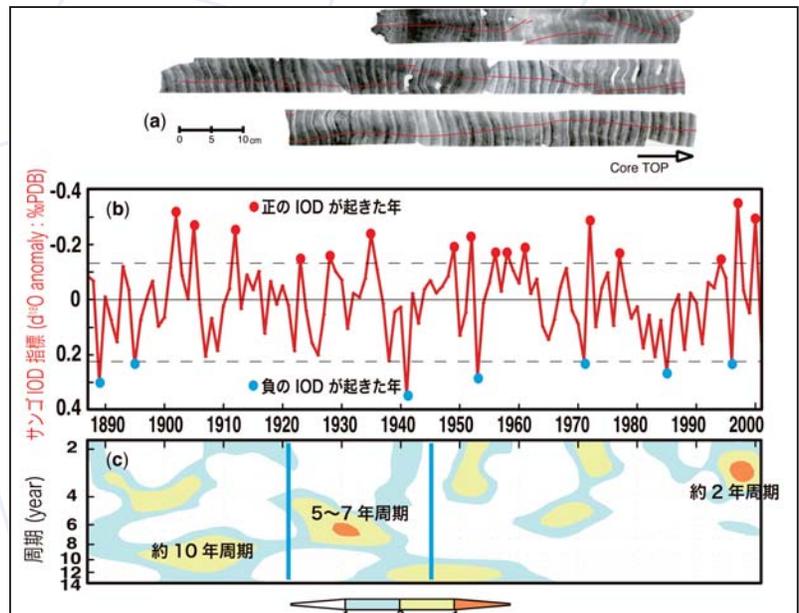
その結果、1924 年以前には 10 年に 1 回程度だったダイポールモードの周期が 1924 年以降は

短くなり、1990 年代以降は約 2 年に 1 回と頻発し、規模も大きくなっていることが確認された。これは西インド洋の水温上昇と対応しており、この水温上昇が最近の IOD の頻発の引き金になっていると筆者らは考えた。IOD の活発化に伴って、20 世紀前半には太平洋の ENSO がインドモンスーンなどインド洋と周辺の気候を支配していたのに代わって、インド洋ダイポールモードが支配勢力となってきていることもわかった。

これまで世界のさまざまな異常気象は、ENSO との関連で説明されてきたが、最近そうした説明が成り立たない異常気象 (たとえば 2009 年のオーストラリアの乾燥) が頻発していることも、20 世紀後半以降 IOD が活発になったためと考えると、理解できる。

本研究は東京大学地球惑星科学専攻で、フィールドワークを研究手法とする茅根創教授らのチームと、モデル解析を研究手法とする山形俊男教授らのチームとの、分野横断型共同研究成果として得られ、N. Nakamura *et al.*, *Geophysical Research Letters*, 36, L23708 (2009) に掲載され、米国地球物理連合 (AGU) Journal Highlight に選出された。

(2009 年 12 月 22 日プレスリリース)



(a) サンゴ年輪の軟 X 線写真, (b) ほぼ月単位の酸素同位体比から抽出したサンゴ IOD 指標および (c) 周期解析結果

原子核の力の解明とエキゾチック原子核

大塚 孝治 (物理学専攻 教授)

原子核を構成する陽子や中性子の間に働く、テンソル力など、核力の未知の性質を見出した。それにより、原子核の存在限界、質量、形状、スピンなどを決めるシェル構造や魔法数が、陽子や中性子の数とともにいかに進化するかを示した。陽子に比べ中性子がきわめて多いエキゾチック原子核での構造進化が統一的に予言、あるいは、説明され、安定核で半世紀にわたり信じられてきた魔法数パラダイムがエキゾチック原子核では成り立たないことがわかった。*Physical Review Letters* に掲載され、全論文の2%程度が選ばれる Viewpoint 欄で紹介された。

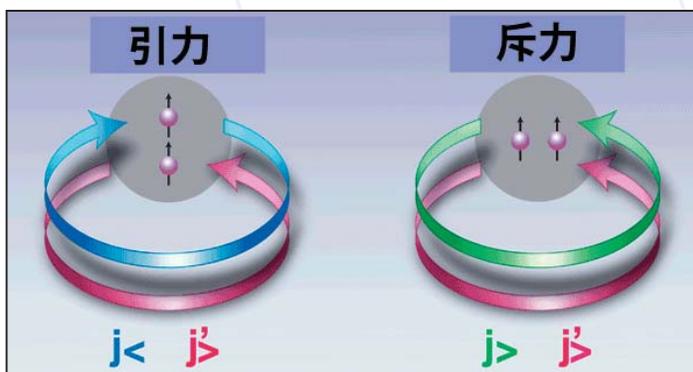
原子核は陽子と中性子から成り、核力によってひとつの塊となる。核力はきわめて複雑で、いまだに全貌は明らかでない。さらに、原子核中で働く核力には媒質中であることによる補正も加わり、いっそう未知である。核力の複雑さは理学系研究科イメージバンク ph0004 (<http://www.s.u-tokyo.ac.jp/imagebank/?mode=show&id=ph0004>) を見ると実感できる。しかし、自然には往々にして外見上の複雑さからは想像できない単純さがあり、本論文ではその一例を示した。すなわち、本論文ではまず実験を再現する現象論的核力に内包されている単純な性質を見出した。この性質は力のモノポール成分に関するもので、モノポール成分は魔法数やシェル構造を直接変える。そのような核力のモノポール成分が中心力とテンソル力の2種類でほぼ表わされ、各々が別々の単純な性質をもつことを示した。テンソル力は、パイ中間子の媒介などにより発生し、2粒子のスピンが揃った場合にだけ働く。2粒子の位置のずれの方向とスピンの方向が揃っていると引力、直角だと斥力という特異な性質をもつ。それが原子核内の軌道上を運動する2粒子間でどのように働くかを先行論文で示したが(図参照)、本論文では原子核内での強さが、原子核外の自

由な空間で同じように運動する陽子と中性子の間のテンソル力と、ほぼ同じであることを理論的に示した。この「同じ」というのは一見当り前のようであるが、短距離斥力芯や媒質効果の観点からすればまったく自明でなく、この単純さは大きな意味をもつ。いっぽう、中心力は重力やクーロン力のような簡単な力に代表されるように、2粒子間の距離だけで決まるもので、原子核内の核力の場合、上のイメージバンクの図よりもさらに複雑なプロセスをすべて含んだものである(繰りこみ)。その結果はむしろ単純な形に書ける、というのが2番目の帰結である。

テンソル力は、図にあるように2つの粒子の軌道(の合成角運動量 j) の組み合わせによって、引力にも斥力にもなる。その効果は中性子の配位などの変化に敏感に反応し、一粒子エネルギーを上げることもあれば下げることもある。いっぽう、中心力の効果は中性子数などの変化にゆるやかに反応し、単調である。このような、性格のまったく異なる2つの成分が原子核のシェル構造を決めており、そのためにエキゾチック原子核の魔法数は、安定原子核の旧来のルールからずれてしまい、新たな魔法数が生まれる。魔法数やシェル構造は原子核の構造を決める基本的な要素であり、重い元素の宇宙での創成史にも影響する。そこで、それらの探究のための実験を、世界中の大型重イオン加速器が競って行っており、本論文に至る一連の研究はわが国の理研 RI ビームファクトリー (RIBF) を初めとする世界の研究の方向性にも大きな影響を与えてきた。

本論文は、物理学専攻の角田直文 (M2)、月山幸志郎 (D2)、および外部の鈴木俊夫 (日大)、本間道雄 (会津大)、宇都野穰 (原研)、M. H.-Jensen (オスロ) との共同研究で、T. Otsuka *et al.*, *Physical Review Letters* 104, 012501 (2010) として掲載された。

(2010年1月5日プレスリリース)



原子核中の軌道を回る陽子や中性子に働くテンソル力の効果。軌道上の運動が帯状の矢印で表わされている。すれ違いの場合(左)は引力で、並行の場合(右)は斥力となる。上向き黒い小さな矢印はスピンを表わす。図は Carin Cain 作成, J.P. Schiffer, *Physics* 3, 2 (2010) より転載 (一部和訳)。

反発しそうなケイ素原子同士の化学結合の構築

狩野 直和 (化学専攻 准教授),
川島 隆幸 (化学専攻 教授)

ケイ素化合物は一般にケイ素が四つの原子と結合した状態が安定である。今回、五つの原子と結合したケイ素原子同士が直接つながるといふ、新しい結合をもつジアニオン性化学種を合成した。この新種の結合は、ケイ素の5配位状態の不安定性に加えて、ケイ素の近傍に局所的に原子が密集することで立体反発と、二つの負電荷同士の静電反発によって容易に切れてしまいそうであるにもかかわらず、きわめて安定であった。局所的に高密度な新しいケイ素材料の基本骨格としての利用が期待される。

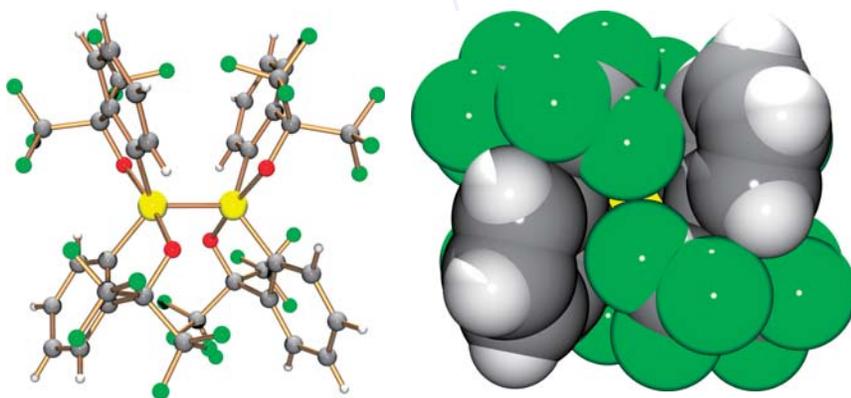
半導体材料の単結晶シリコンやケイ酸塩鉱物を始めとして、一般にケイ素は四つの原子と結合した4配位の正四面体構造をもつ。単結晶シリコンはダイヤモンド型構造であるため4配位ケイ素同士の結合の集合体であり、他のケイ素化合物におけるケイ素原子間結合の結合様式も同様である。化学結合は化学物質を構成する基本要素であるから、結合自体の性質を変えれば、新たな化学物質や反応の開発に役立つと期待される。ケイ素同士の結合の性質を根本から変えるためには、ケイ素が結合する原子数を増やすことや、ケイ素原子を正や負に帯電させることなどが単純な発想として浮かぶが、その実現は簡単ではない。なぜなら、結合の周りが混雑すると立体的な反発によって結合が解離しやすくなる上に、正電荷同士や負電荷同士は静電的に反発するからである。そもそも五つの原子と結合して負電荷を帯びたケイ素化学種は、置換基が脱離する傾向にあるため、多くは不安定である。そのような知見をふまえると、帯電した5配位ケイ素同士の結合は5配位状態に由来する不

安定性に加えて、二つのケイ素原子団の間の電子反発と立体反発からきわめて不安定で、容易に結合が切れてしまうと予想される。

今回、ケイ素を使った究極の結合への挑戦として、負電荷を帯びた5配位ケイ素化学種のケイ素原子同士の結合を、新たに創り出した。負電荷同士の静電反発が懸念されたため、全元素中で最大の電気陰性度のフッ素を多数もつ配位子を利用して、負電荷を配位子へと分散させた。4価4配位ケイ素化合物をリチウムで還元して新結合化合物を合成したところ、きわめて安定であることがわかった。たとえば、水中で100℃に加熱してもケイ素-ケイ素結合は切れず、空気中でも容易に扱える。

結合長(2.3647(9) Å)は一般的なケイ素-ケイ素結合長とほぼ同じである。結合の周辺はケイ素がおおわれるほど混んでいるが、配位子同士が立体反発を避けた配座である(下図)。水とは反応しないが塩酸とは反応してプロトン化される。また、電子を放出して酸化される性質をもち、紫外光を吸収する。すなわち、塩基性、酸化特性、紫外光吸光性の三つの面をもち、中心となるケイ素の結合から八つの原子が手足のように伸びた異形な化学結合であることから、「阿修羅結合」と命名した。5価5配位ケイ素同士の結合を有するジアニオン性化合物が実は安定であると明らかにしたことで、この新結合を骨格とする新しいケイ素材料の開発が期待される。本研究は、文部科学省、日本証券奨学財団、山田科学振興財団の支援によって行われ、N. Kano *et al.*, *Nature Chemistry*, 2, 112 (2010) に掲載された。

(2010年1月19日プレスリリース)



ケイ素を含む部分の結晶構造(左図)。中心の二つのケイ素原子(黄色)はそれぞれ二つの酸素原子(赤色)と二つの炭素原子(灰色)に結合し、外側にフッ素原子(緑色)が位置している。原子半径を考慮したジアニオン部分の様子を別方向から見ると、中心のケイ素原子が配位子におおわれて外側からほとんど見えず、配位子はぶつからないように配置されている。