

CASE 1

結晶中のイオン配列を デザインする

物質の性質は原子の配列と密接な関係がある。

有機化合物では、官能基や配位子といった

分子からなる「部品」を組み立てることで、

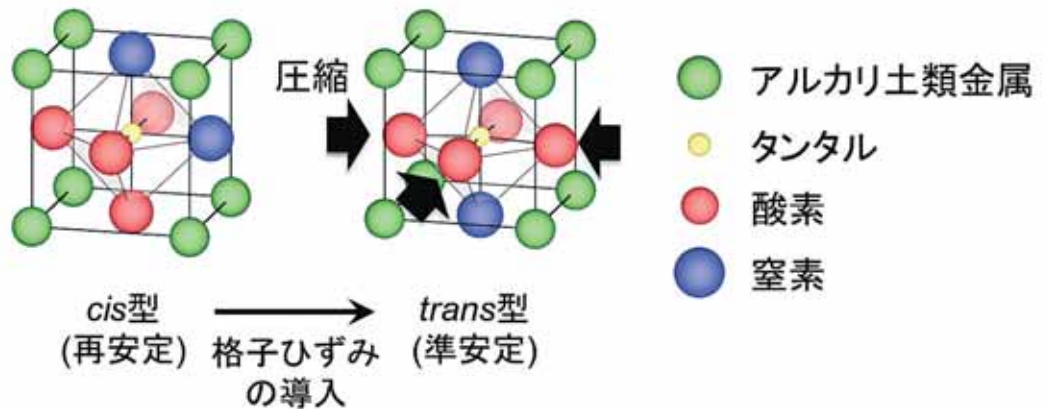
さまざまな原子配列・機能をもつ物質が設計・合成されている。

いっぽう、分子のようなビルディングブロックを持たない無機固体結晶では、

原子配列の精密な制御はチャレンジングな課題である。

本研究では、2種類の陰イオンを含む金属酸窒化物の結晶を舞台とし、

圧力印加による結晶格子のひずみを利用した陰イオン配列の制御に挑んだ。



金属陽イオンに酸化物イオン(O^{2-})と窒化物イオン(N^{3-})が結合した金属酸窒化物は、塗料や蛍光体、光触媒として

応用されている。 O^{2-} と N^{3-} はイオンの大きさが同程度のため、結晶中で等価な場所を占めることができる。このため、結晶中の金属イオンの周囲の陰イオンの配置(配位構造)には複数のパターン(異性体)が存在する。ペロブスカイト型とよばれる構造をもち、 O^{2-} と N^{3-} の割合が2:1のタンタル(Ta)酸窒化物では、窒素がタンタルをはさんで向かいあう*trans*型と、隣りあう*cis*型の二種類の異性体が存在する。このうち、*trans*型の結晶は強誘電性を示すことが予想されており、電子機器などへの応用が期待されるが、熱力学的に不安定なために合成例はなかった。

われわれは、二種類の異性体の構造のわずかな違いに注目して、*trans*型のタンタル酸窒化物の合成に挑戦した。理論計算によると、*cis*型のタンタル酸窒化物の結晶格子はほぼ立方体だが、*trans*型の結晶格子は窒素—タンタル結合方向に伸びた直方体となる。そこで、いささか短絡的なアイデアではあるが、結晶格子を直方体状に歪ませながら成長させれば*trans*型の異性体が安定化すると考えた。試行錯誤の末、格子定数が小さな酸化物を鋳型にしてタンタル酸窒化物を一原子層ずつ精密に積み重ねるヘテロエピタキシーという手法によ

て、結晶格子が面直方向に5%程度伸びた薄膜試料の作製に成功した。得られた薄膜試料は体積が小さいことから(質量換算で約10 μ g)、一般的な結晶構造解析法で酸素と窒素の配置を区別することは難しい。さまざまな手法を試した結果、最終的に大型放射光施設SPring-8を利用した偏光X線吸収分光とよばれる手法と原子スケールの空間分解能をもつ電子顕微鏡によって、結晶の一部が*trans*型構造をとっていることを明らかにした。

近年、酸窒化物をはじめとする複数の陰イオンを含む化合物(複合アニオン化合物)は、新たな無機固体材料として注目されている。本研究で提案した結晶中の陰イオン配列の制御方法は、複合アニオン化合物の機能設計にさらなる自由度を与えると期待される。

本研究成果は、当研究室の岡大地氏(現在、東北大学大学院理学研究科助教)と奈良先端科学技術大学院大学の松井文彦准教授、大阪大学の小口多美夫教授、高輝度光科学研究センターの室隆桂之主幹研究員、名古屋工業大学の林好一教授らの共同研究によるもので、D.Oka *et al.*, *ACS Nano* 11, 3860 (2017)に掲載された。

(2017年3月29日プレスリリース)

異なる配位構造をもつタンタル酸窒化物の結晶構造。一般的な粉末合成では*cis*型の異性体が成長するが、結晶格子を直方体状にひずませながら薄膜合成することで準安定な*trans*型構造も得ることができる。

CASE 2

トポロジカル欠陥に集まる神経幹細胞

ヒトを含む多細胞生物は、億から兆オーダーの数の細胞の奇跡的ともいえる協調性の上に成立しているが、非平衡な多体系としての細胞集団運動のメカニズムは現在のところ、ほぼ未解明である。今回われわれは、脳組織の元となる細胞である神経幹細胞のつくるパターンの中に、液晶などに見られる「トポロジカル欠陥」とよばれる特異点を見つけ、細胞が集団としてそこに吸い込まれたり逃げ出したりしていることを発見した。これは細胞自身のつくるマクロなパターンと細胞の運動の相互作用により初めて起きることであり、これまで見つかっていない種類の非平衡現象であった。

近年、自発的に運動する要素が集まって織りなす現象を対象にした、「アクティブマター」とよばれる学際的な研究領域が注目を浴びている。各要素が摩擦や粘性に打ち勝って自発的に運動する系は、エネルギーを絶えず消費する非平衡系である。魚や鳥の群れ運動などのマクロスケールの身近な現象から、微小粒子や分子モーターなどの顕微鏡でしかとらえられない極小世界の集団運動まで、アクティブマターの研究対象は広く、これまでの固体物理学や流体力学の枠組みでとらえきれない多体現象を発見し、理論的に記述する試みが精力的に行われている。いっぽう、ヒトを含む多細胞生物では、発生過程だけでなく、成体においても細胞が新生・輸送され続けていることが知られている。こうした多細胞現象がパッシブ(受動的)でないのは明らかだが、個々の細胞がアクティブであることが細胞集団としてのふるまいにどう影響しているのかは、未解明である。

われわれは、プレート上で培養することのできる神経幹細胞の集団運動に注目した研究を進めている。その中で、「トポロジカル欠陥」とよばれる点に細胞が吸い込まれたり逃げ出したりする現象を発見した。プレート上の神経幹細胞は、生体内と同様に棒状の形をしており、高密度になると隣同士の細胞が向きをそろえあって、ネマチック液晶とよばれる物質と似た集団パターンを形成する。「トポロジカル欠陥」とは、このようなパターンの中であって、細胞や液晶分子がどちらに向いているかが定義できない特異点であり、さま

ざまな自然現象や物理理論で重要な役割を担うことが知られている。このようなパターンや欠陥は、細胞が細長く、頭尾の区別がないこと(=ネマチック)の帰結であるが、それ自体は棒状の粒子の集団であれば、たとえば鍋に敷き詰めた乾麺のように、パッシブな系でも現れる。

われわれが驚いたのは、神経幹細胞集団を長時間撮影し、トポロジカル欠陥が細胞の集積点になっていることを見つけたときである。一見ランダムに運動している細胞たちが、集団平均として流れを生み、トポロジカル欠陥に吸い込まれるように集まっていた。詳しく観察すると、 $+1/2$ という巻き数に対応する欠陥に細胞が集まり、巻き数 $-1/2$ の欠陥からは細胞が逃げ出していることも分かった。これはパッシブな系である液晶や乾麺では起こらないことであり、明らかに細胞のアクティブな性質がマクロに表出した結果である。

これまでのアクティブマター研究で、トポロジカル欠陥が構造ごとゆっくりと移動する現象などは報告されていたが、要素が集積したり逃避したりする例は、理論や数値シミュレーションでも知られていなかった。われわれは、系のアクティブ性がトポロジカル欠陥の移動を生む従来のモデルに、秩序方向に依存した非等方な粘性を組み入れた新しい理論を提案し、細胞が集まる現象を説明した。 $+1/2$ の欠陥の先端方向には、細胞が垂直方向に配列した領域があり、粘性の異方性によりそこが「壁」となる。細胞の集団移動がこの自身で作った壁に行き詰まり、その結果細胞が集積していくことが明らかとなった。

トポロジカル欠陥といういかにも抽象的な存在が、実際に細胞のふるまいに影響を与えていることは、奇妙に思われるかもしれない。いっぽうで、化学的なシグナルではなく、パターンと自発運動の相互作用により細胞の流れが調整できるとすれば、多細胞生物がそれを利用するのも自然に思える。物理学の知見を活かして多細胞現象の本質を見極める研究は、まだ始まったばかりである。

本研究は Kawaguchi *et al.*, *Nature* 545, 327 (2017) に掲載された。

(2017年4月13日プレスリリース)

神経幹細胞は培養プレート上で高密度になると互いに向きをそろえあうが、トポロジカル欠陥が自発的に生成する(左上)。このような構造は細胞に限らず、なべ底に乾麺を敷きつめたときのように棒状の粒子がよりあつまると自然と現れるが(左下)、神経幹細胞の場合には個々の細胞がランダムに運動する結果、欠陥に向かって流れが生じ、細胞がトポロジカル欠陥に集積する(右、色は細胞のそろっている向きの可視化、白点は細胞核の連続写真)。

