解 説

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—

竹 内 一 将

液晶は，基礎と応用の両面で大変有用な材料であるが，基礎研究への応用という観点からも魅力的である．本稿では，非平衡現象の統計力学，特に非平衡臨界現象と，それに関連したスケーリング則の実験研究において，液晶が大変重要な役割を果たしていることを，筆者らの最近の取り組みを中心に紹介したい．具体的には，電気的に駆動される液晶の乱流状態である，動的散乱モードを活用し，非平衡相転移の普遍的な臨界現象，成長過程に伴う普遍的スケーリング則，秩序化過程の普遍的スケーリング則が調べられることを解説する．主要な結果の紹介に加え，なぜ液晶がこうした研究に適しているのか，未解決の問題は何か等も議論することで，様々な意見交換が生まれる契機となれば幸いである．
キーワード：電気対流，動的散乱モード，臨界現象，スケーリング則，非平衡統計力学

1. は じ め に

液晶は，それ自体が基礎学問として豊かな対象であるだけでなく，ディスプレイをはじめとする様々な技術を支え，生み出す，魅力的材料であることは言を俟たない．しかし，本稿の主題はそのどちらでもない．液晶の，基礎物理学研究への応用という，一風変わった使い道について紹介しよう．

舞台となるのは，統計力学，それも熱平衡状態から遠く離れた，非平衡状態に関する統計力学である．多くの方に馴染み深い，熱平衡状態に関する統計力学では，磁性体を念頭においたスピン系が重要な役割を果たし，実験的にも理論的にも様々な研究が展開された．中でも臨界現象の物理学は，当初は恐らく想像だにされなかったほど非自明で，美しく，普遍的な物理が，スピン系を足掛かりに，スピン系を遥かに凌ぐ波及力をもって構築された顕著な例である[1]．臨界現象に関わる普遍的な物理学は，非平衡でも姿を現し，平衡臨界現象の単なる焼き直しに留まらない魅力的な物理が，主に理論や数値計算によって築かれてきた[2,3]．実験は，理論と比較可能な性質の良い系が不足している事情もあり，後手に回りがちであったが，特に近年は主要な理論に対する実験検証が行えるようになり，実験が先行することもでてきた．そのような，非平衡臨界現象，および関連する非平衡スケーリング則の実験研究で，主要な役割を果たしてきたのが，実は液晶なのである．そこで本稿では，筆者らが推進している最近の展開を中心に，このような非平衡統計力学分野において液晶が果たしてきた役割を概観しよう．液晶のどのような特長が活かされてきたか，どのようなことがわかっていないかについても紹介したい．これらを手掛かりに，今後の研究として面白そうなことを想像しながら読み進めていただけたら幸いである．

2. 臨界現象とスケーリング則

本題に入る前に，本稿がどのようなスケーリング則を対象とするかを確認するため，よく知られていることではあるが，熱平衡状態の臨界現象について復習しよう．詳細な解説は教科書[1]に譲ることとし，ここでは強磁性体の最も単純なモデルであるIsingモデルを例に，臨界現象の特徴と普遍性を手短に紹介する．

Isingモデルは，磁性体の結晶を念頭に，格子上の各点iに（不対電子の）スピンσ_iがあり，スピンは上向き（$\sigma_i=+1$）か下向き（$\sigma_i=-1$）のいずれかだとする（**Fig. 1(a)**）．Hamiltonianは$H=-J\sum_{\langle i,j\rangle}\sigma_i\sigma_j$で与えられ（和は隣接格子点のペア$\langle i,j\rangle$に対してとる），$J>0$である．すなわち，隣接するスピンは同じ向きを向く方がエネルギー的に有利であり，強磁性的な相互作用が表現されている．しかし，絶対零度でもない限り，熱ゆらぎがスピンの向きをばらけさせる効果をもち，強磁性的な相互作用と競合する．結果，2次元以上のIsingモデルでは，臨界温度T_cが存在し，$T>T_c$では熱ゆらぎが優勢で，スピンは上向き・下向きがほぼ半々に存在するのに対し，$T<T_c$では強磁性相互作用が打ち勝って，スピンは上向きまたは下向きのどちらかに偏ることとなる．前者は常磁性相，後者は強磁性相である．両者は磁化$M=(1/N)\sum_{i=1}^{N}\sigma_i$によって定量的に区別でき，常磁性相（$T>T_c$）では（無限に大きな系なら）$M=0$なのに対し，強磁性相（$T<T_c$）では$M$は正の数または負の数をとる（**Fig. 1(b)**）．このように相転移を特徴づける量は，一般にオーダーパラメータ（秩序変数）と呼ばれている．

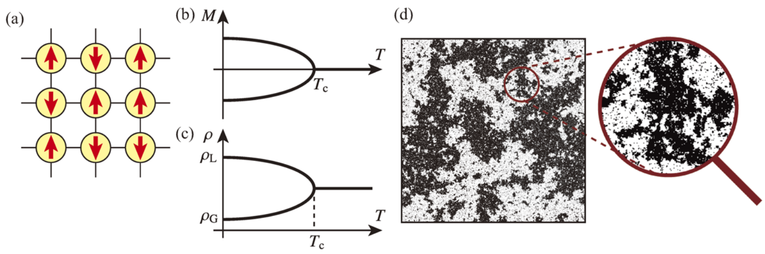

Fig. 1 The Ising model and its critical behavior. (a) Sketch of the Ising model. (b) Magnetization (order parameter) against temperature (controlled parameter). (c) Density against temperature in the case of the liquid-vapor transition, when the pressure was controlled in such a way that the transition takes place at the critical point. (d) Snapshot of the two-dimensional Ising model at the critical temperature.

特に転移温度近傍では,

$$|M| = \begin{cases} |T-T_c|^{\beta} & (T \le T_c) \\ 0 & (T \ge T_c) \end{cases} \tag{1}$$

のように冪的にふるまうことが知られており,βを臨界指数という.転移温度近傍では,比熱は$C \sim |T-T_c|^{-\alpha}$,相関長は$\xi \sim |T-T_c|^{-\nu}$のように,様々な物理量が冪的に発散する異常性を示し,これらの指数も臨界指数と呼ばれている.Isingモデルの場合,2次元は厳密解が存在し,$\alpha=0$(Cは対数発散),$\beta=1/8, \nu=1$などの値が知られている.3次元Isingは厳密に解かれていないが,例えばβなら,数値計算[4]では$\beta=0.3264(2)$,理論[5]では$\beta=0.32643(9)$など,極めて高い精度で値が推定されている.ここで,括弧の中の数字は最後の桁に対する誤差範囲を表し,$\beta=0.3264(2)=0.3264 \pm 0.0002$を意味する.

こうした臨界現象の大きな魅力は,それが高い普遍性をもつことである.例えば,Isingモデルの臨界指数は,Isingモデルがターゲットとしていた強磁性体に留まらず,気液臨界現象や,二液混合流体の混和臨界状態など,様々な現象で同様の値が報告されている[6].このように,臨界指数が同じモデルや現象の集まりを普遍クラスと呼ぶ.気液臨界現象や二液混和臨界状態は,Isingモデルとともに Ising普遍クラスをなしている.これらはミクロに全く異なる系であるから,ミクロな詳細は臨界現象に影響しないということだ.ではどのような性質が普遍クラスを決めているかというと,空間次元に加え,対称性をはじめとする質的性質の違いが重要だと知られている.Isingモデルの場合,すべてのスピンを一斉に反転($\sigma_i \mapsto -\sigma_i$)しても系は不変(Hamiltonianが不変)だという対称性がある.すなわち,モデルとしては,上向きスピンと下向きスピンという互いに対称で離散的な二状態があり,常磁性相ではそれが対称に混ざっている($M=0$)のに対し,強磁性相では混ざり方の対称性が自発的に破れている($M \neq 0$).気液臨界状態では,超臨界流体では気体と液体という二状態が区別できないのに対して,臨界点を下回ると気相と液相に分離する.この様子を,流体の密度$\rho(T)$で表すと,$T>T_c$では単一の超臨界流体密度$\rho(T)$しかとらないのに対して,$T<T_c$では気相密度$\rho_G(T)$と液相密度$\rho_L(T)$に分離する(**Fig. 1(c)**).対称性の観点からは,これはIsingモデルの磁化$M(T)$のふるまい(**Fig. 1(b)**)と同等であり,現に気液臨界状態はIsingクラスに属すること知られている.逆に,対称性が異なれば様々な普遍クラスが現れる.例えば,スピンが3次元空間の任意の方向を向くことができるHeisenbergモデルは,Isingモデルと異なる臨界指数を示す.

臨界現象の普遍性は,臨界点において現れるスケール不変性が起源である.例えばIsingモデルのシミュレーションをすると,臨界温度では,上向きスピンの領域と下向きスピンの領域が極めて複雑な形状を示す(**Fig. 1(d)**).この形状は,一部を拡大しても全体と統計的に同等な特徴をもっており,フラクタルである.すると,統計量もスケール不変性を満たす必要があり,結果として様々な量が冪的な関係式で結ばれる.一方,系の個別的な特徴(例えばスピンの間に働く相互作用)はふつう特定のスケールを伴うため,スケール不変な統計量に影響を及ぼすことができず,これが普遍性に結び付く.正確な記述は,くりこみ群の教科書等[1]を参照されたい.

ここで強調したいのは,普遍性の起源がスケール不変性ならば,必ずしも熱平衡であることは必要ない,ということである.現に,これまでの様々な研究で,熱平衡から遠く離れた非平衡状態であっても,臨界現象や,それと関係するスケーリング則が現れ,普遍クラスをなすことが知られている[2].ここでも対称性が重要な意味を持ち,普遍クラスが分類されている.

3. なぜ液晶か?

筆者は,非平衡普遍クラスの実験研究において,液晶が極めて有利な材料であると考え,様々な研究を行ってきた.筆者が考える液晶の優位性は,以下の点にある.

3.1 外場に対する高い応答性・制御性

ソフトマター共通の特長であるが,液晶は,比較的小さな外場であっても,配向秩序をはじめ,系の状態や構造に大きな影響を与えることができる.特に,電場に対する応答については様々な知見が蓄積されているうえ,電場は高い精度で制御可能なので,測定条件を高精度で制御し,比

較的長い時間をかけて多くの測定データを取得する必要があるスケーリング則の研究に向いている．

3.2　非線形・非平衡性

外場に対する応答が不安定性と結びつけば，そこから様々な動的モードが励起され，非線形・非平衡な領域に比較的容易に到達することができる．特に，外場を強め，非平衡度を高めていくことで，異なる非平衡状態の間の「相転移」を観察することもできる．この場合，平衡系における温度の役割（制御変数）は外場強度が担う．外場の強さを変えることで，平衡系におけるクエンチ（急冷）やアニーリング（徐冷）に相当する操作を行うこともできる．なお，本来「相転移」という語は，熱力学的な相の間の転移を意味し，非平衡状態への使用には注意が必要だ．ここでは離散的に区別可能なマクロな非平衡状態を，ある種の「相」とみなし，その間の転移を「相転移」と呼ぶことにする．

3.3　対称性の設計自由度の高さ

2章で強調したとおり，普遍クラスの研究においては対称性が極めて重要な意味をもつが，この点で液晶は大変相性が良い．例えば，ネマチック，スメクチック，コレステリックなどの液晶相の分類は対称性に基づいており，異なる相を使えば異なる対称性のもとで研究ができる．また，液晶は，表面処理をはじめとして，配向制御技術が大変発達しているため，境界条件を介して対称性を変えることもできる．対称性を比較的自由に設計し，制御できる自由度の高さは，他のソフトマター系と比較したときの液晶の大きな特長である．

3.4　光学的観察の容易さ

何らかの非平衡状態が実現しても，観察できなければ，その性質は調べられない．液晶系は，偏光顕微鏡法などにより，配向状態の違いを光学的に検出できる．したがって，相転移に関わる非平衡状態が（巨視的なスケールでの）配向の違いで区別可能ならば，空間の各点がどの非平衡状態にあるのか（原理的には）調べられるし，その時間発展を追うこともできる．つまり，**Fig. 1（d）**で示したシミュレーションのような空間配位状態が，時間発展も含めて，実験で得られるのだ．

4.　液晶の電気対流現象と乱流

前章で紹介した液晶の優位性を活かして，筆者は特に，ネマチック液晶の電気対流現象を用いて研究を展開している．電気対流とは，ある種の液晶に電場を印加して起こる，電気流体不安定性によって駆動される対流現象のことだ[7–9]．以下，標準的なケースである，負の誘電率異方性（$\varepsilon_{\parallel}<\varepsilon_{\perp}$）と正の伝導率異方性（$\sigma_{\parallel}>\sigma_{\perp}$）を持つネマチック液晶を対象として，電気対流の原理と，本稿で特に取り扱う乱流状態（動的散乱モード）について紹介しよう．本条件を満たす液晶材料としては，*N*-(4-methoxybenzylidene)-4-butylaniline（MBBA）が代表的であり，実際に本稿で紹介する実験では，いずれもMBBAが使われている．

簡単のため，プラナー配向条件で考える．**Fig. 2（a）**のように，液晶が二枚の平行平板に挟まれているとしよう．外場がなければ，液晶の配向場は一様にプラナー配向軸の方を向く（紙面横向き）．では，平板に垂直に電場Eが印加されたとき，この配向場は安定に保たれるだろうか．安定性を議論したいのだから，一様な配向場に微小な摂動を加えたとき，それが減衰するか成長するかを考えればよい．微小な摂動だから，Fourierモードの重ね合わせで表現でき，単一のFourierモードについて考察をすれば十分である．ここでは，**Fig. 2（a）**のように配向場が変調した場合を考えよう．

物質に電場がかかっているのだから，Ohmの法則により電流が流れるが，液晶の異方性を考慮し，配向場に対して平行な成分と垂直な成分に分けてOhmの法則を適用する（**Fig. 2（b）**青色矢印）．すると，電場Eは垂直であるが，生じる電流密度Jには横成分があり，その向きは，$\sigma_{\parallel}>\sigma_{\perp}$

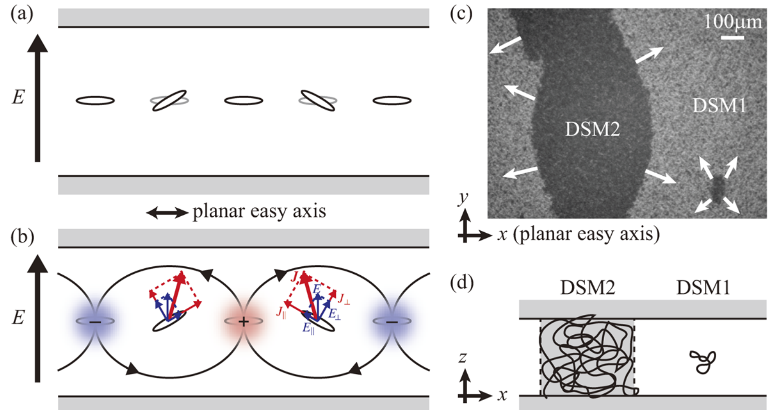

Fig. 2　Electroconvection of nematic liquid crystal. (a)(b) Sketch of the Carr-Helfrich instability. (c) Photograph of DSM1 and DSM2. Unpolarized light was used. (d) Sketch of DSM1 and DSM2 (side view). DSM2 contains a high density of disclinations.

に注意すると，**Fig. 2(b)**の赤色矢印に示すとおりである．これにより，正の電荷と負の電荷が周期的に誘起されることがわかる．これら誘導電荷も電場に晒されているので，Eが上向きなら，正の電荷は上向きに，負の電荷は下向きに力を受けて，**Fig. 2(b)**に示すようなロール状の流れ場を生む．この流体効果が液晶に及ぼすトルクは，当初考えた配向場の摂動振幅を増大させる向きである．したがって，元の，平板に平行な配向場は不安定だと示唆される．以上の流体効果に加えて，負の誘電率異方性がもたらす静電エネルギーの効果（これも不安定化に寄与する），液晶弾性による復元力の効果（これは不安定化を抑える）等を考慮して立式すると，印加電圧$V=Ed$（dはセルギャップ）に対して閾値V_0があり，$V>V_0$では一様な配向場は不安定化して対流が生じることが示せる[7,8]．以上の不安定性はCarr-Helfrich不安定性と呼ばれている．当初の理論は直流電圧を対象としていたが，その後交流電圧にも拡張され，周波数が低いときの対流現象を説明できる．周波数が高くなると，電荷蓄積の時間がないため，配向場の振動に基づく別の機構によって対流が誘起される[7–9]．

さて，以上の議論で，印加電圧がV_0を上回ったときの対流が説明できた．実験的にも，**Fig. 2(b)**が示唆するようなロール対流が観察される．しかし，これは最初の対流モードに過ぎない．実験的には，印加電圧Vを上げていくと様々な対流状態を変遷していき，最終的に，動的散乱モード（dynamic scattering mode, DSM）と呼ばれる乱流状態に至る[7,9]．DSMにはDSM1とDSM2の二種類があり，十分高い印加電圧Vでは，DSM1からDSM2が自発的に生成して，DSM2領域が拡がっていく（**Fig. 2(c)**）．DSM1とDSM2の違いは位相欠陥密度にあり，DSM2ではdisclinationが大量に発生している（**Fig. 2(d)**）[9]．これが，透過光観察でDSM2が暗く見える理由である．なお，DSMは最初期の液晶ディスプレイで実用化が試みられた歴史があり，そちらの文脈でご存じの読者もおられることだろう．

DSMには，非平衡臨界現象やスケーリング則の研究に適した様々な性質がある．第一に，3章で既に論じたことであるが，電気対流は印加電圧振幅が主要な制御変数であり，これは高い精度で制御し，また急峻に変化させられる．第二に，DSM2は大量の位相欠陥からなると書いたが，これは平板表面で配向アンカリングが破れることで実現していると考えられている[10]．DSM1ではアンカリングが破れないので，たとえ欠陥ができてもセルギャップより小さく，すぐに消えてしまうだろう（**Fig. 2(d)**）．すなわち，セル厚方向（図のz軸方向）は，全面的にDSM2か，全面的にDSM1かのどちらかであり，DSM1かDSM2かという状態変数は二次元空間（xy面）のみで定義されている．二次元は観察し易いし，擬二次元性を気にしなくて良いのは有利である．第三に，DSMは乱流と表現したが，正確には時空カオスと呼ぶべき状態であり，典型的な設定でReynolds数を評価すると10^{-5}から10^{-4}程度と非常に小さい．したがって，高Reynolds数の発達乱流で見られるような多スケール性がない．例えば透過光強度のゆらぎを計測すると，セルギャップd程度の距離（典型的に数$10\,\mu$m）で相関が指数関数的に減衰する．その意味で，DSMは短距離相互作用をする非平衡自由度の（2次元的な）集まりとみなすことができ，2章で紹介したような統計力学モデル（の非平衡版）で想定される，理論的魅力の大きい状況が自然に実現している．

非平衡相としてのDSM1とDSM2は，印加電圧振幅Vの転移点V_cで分かたれている[11,12]．$V<V_c$では，DSM2は消え，DSM1だけが残る．$V \gg V_c$では，**Fig. 2(c)**のようにDSM2が成長し，全体がDSM2で覆いつくされる．ただし，DSM2のない状態で$V \gg V_c$としても，すぐにはDSM2が発生せず，核生成が起こるまで待たなくてはならない[9]．DSM1は準安定なのだ．DSM2核生成は確率的に起こるが，転移点V_c近傍では，直接観測が困難なほどのレアイベントである．

そこで筆者らは，DSM2核生成を人工的に起こす手法を開発した[12]．液晶分子MBBAは，**Fig. 3(a)**に示すように，2つのベンゼン環が炭素窒素二重結合で結ばれた構造をしており，trans型とcis型の異性体がある．通常はtrans型で，このとき分子の形は棒状で，ネマチック性を示す．ところが，MBBAは，350 nm付近の紫外線照射によって光異性化反応を起こし，短時間の間cis型に変化することが知られている（**Fig. 3(a)**）[13]．すると分子は折れ曲がり，ネマチック秩序が低下するので，位相欠陥は生成されやすくなるだろう．事実，我々は，$V>V_c$で，準安定

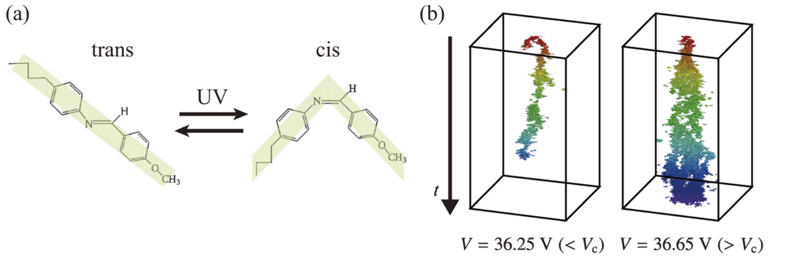

Fig. 3 Photo-induced DSM2 nucleation. (a) Trans-to-cis photoisomerization of MBBA molecules. (b) Spatiotemporal evolution of nucleated DSM2 clusters. The scales are 500 μm × 500 μm in space and 30 s in time. Color indicates time. The right figure is a reprint with permission from Ref. 12).

状態のDSM1中の1点に355 nmの紫外パルスレーザー（エネルギー0.3 nJ，パルス幅4–6 ns）を当てたところ，それがDSM2を生成することを見いだした（**Fig. 3 (b)** 右）[12]．$V<V_c$でも，転移点近傍であればDSM2を生成できるが，少し経つと消えてしまう（**Fig. 3 (b)** 左）．それに対して$V>V_c$では，ゆらぎの結果DSM2が消えてしまうこともあるのだが，一定の確率でクラスターが存続し，系全体に拡がっていく[12]．このように，単に制御し観察するだけでなく，レーザーで外的にDSM2を作り出して，それに対する系の応答を計測できることも，非平衡スケーリング則を研究するうえでDSM2がもつ大きなアドバンテージの1つである．

5.　DSM1-DSM2相転移と非平衡臨界現象

それでは早速，DSM1乱流とDSM2乱流の間の非平衡相転移について解説しよう[11,12]．既に述べたように，$V<V_c$では，仮にDSM2があっても消えてしまい，系全体がDSM1となる．一方，$V>V_c$だとDSM2は存続する．Vが十分大きければ，DSM2領域はどんどん成長し（**Fig. 2 (c)**）系全体を占められるのだが，V_c近傍だと，セルギャップの数倍～10倍程度の大きさのパッチに分かれてしまい，それがDSM1と共存する（**Fig. 4 (a)**）．DSM2パッチはランダムに動き回り，時おり分裂したり消滅したりするが，定常状態では分裂と消滅が（ゆらぎながらも）バランスしていて，DSM2パッチの集団が系全体で占める面積の割合$\rho(t)$はほぼ一定である．**Fig. 4 (b)**は，いくつかの印加電圧Vに対して，DSM2パッチの位置と時間発展の様子を示したものだが，Vが大きいほどDSM2パッチの数も多く，$\rho(t)$は大きい．逆にVを小さくしていくと，V_cを下回ったところでDSM2パッチが全滅し，$\rho(t)=0$となる（実験では，これでV_cの概算値を見積もる）．したがって，DSM2が占める面積の割合$\rho(t)$は，この相転移のオーダーパラメータである．そこで，$\rho(t)$の時間平均値$\bar{\rho}$を電圧Vの関数としてプロットした結果が**Fig. 4 (c)**であり，$V=V_c$でゼロから連続的に立ち上がっていることがわかる．

ここで，2章で紹介したIsingモデル（などの平衡相転移）のオーダーパラメータMのふるまい，式(1)を思い出そう．類推として，Mが対応するのは$\bar{\rho}$であり，温度Tは制御変数だから，印加電圧Vが対応するだろう．実は，電気対流の理論（**Fig. 2 (b)**）では，誘導電荷がVに比例し，それがVに比例した電場で駆動されるので，V^2が良いパラメータとされている．そこで，TがV^2に対応すると考えて，以下のようにオーダーパラメータがふるまうと仮定してみよう．

$$\bar{\rho} = \begin{cases} V^2-V_c^2 & (V \le V_c) \\ 0 & (V \ge V_c) \end{cases} \tag{2}$$

これはデータから直ちに検証でき，**Fig. 4 (c)** 挿図に示すように，V_c近傍で極めて精度よく成り立っている．ここで興味深いのは臨界指数βの値である．実験データからは，$\beta=0.59(4)$という値が得られた．$\beta=1/2$などの単純な値は，誤差範囲から否定されている．ではこの値は何なのかというと，実は，非平衡臨界現象の分野で理論的に考えられていた，有向性の浸透現象モデル（directed percolation, DP）の臨界指数が，2次元では$\beta_{DP}=0.583(3)$という値を取ることが知られており[14]，実験結果と誤差の範囲で一致している．本稿では割愛するが，本実験ではβのほかにも様々な臨界指数を計測し，そのすべてがDPと一致していた．中には，電圧を$V=V_c$に急降下させた際のオーダーパラメータの臨界緩和$\rho(t)\sim t^{-\alpha}$（**Fig. 4 (d)**）や，紫外レーザーを打ち生成したDSM2が時刻tまで生存する確率$P_s(t)$に関し，$V=V_c$で現れる冪則$P_s(t)\sim t^{-\delta}$（**Fig. 4 (e)**）もあり，前章までに解説した利点が活かされている．なお，$\rho(t)$と$P_s(t)$の間には場の理論から予言される非自明な対称性があり，その結果成り立つ関係式$\alpha=\delta$も本実験で検証されている[15]．

ところで，なぜ有向浸透現象なのだろうか．実は，その

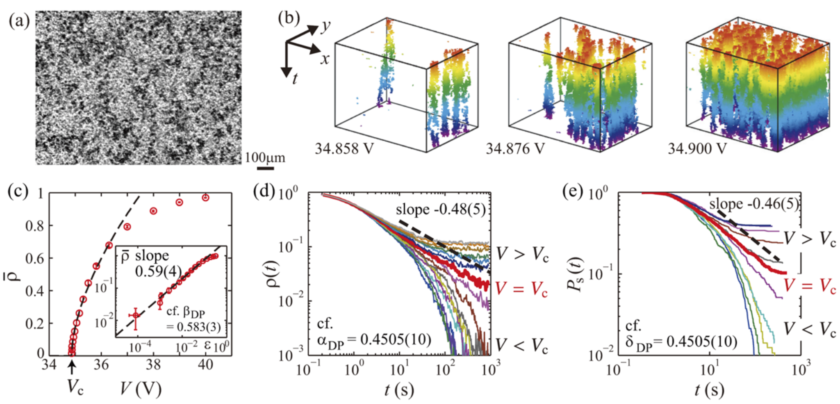

Fig. 4　DSM1-DSM2 transition. (a) Snapshot (image processed) of the steady state at $V=35.153$ V, slightly above V_c. DSM2 patches (black) move randomly amid DSM1 (gray). (b) Spatiotemporal evolution of DSM2 in the steady state. The scales are 1206 μm × 899 μm in space and 6.6 s in time. (c) The time-averaged order parameter $\bar{\rho}$ (DSM2 area fraction) in the steady state. The inset is a log–log plot of the same data against $\varepsilon\equiv(V^2-V_c^2)/V_c^2$. The dashed lines indicate the power law in Eq. (2). (d, e) Relaxation of $\rho(t)$ after voltage quench (d) and the survival probability $P_s(t)$ after DSM2 nucleation (e). Different colors correspond to different V. The data at $V=V_c$ are shown by red bold lines. Reprints with permission from Ref. 12) ((c)–(e) are through adaptations in Ref. 15)).

ヒントがFig. 4(b)に載っている．この図を見ると，DSM2は，途中の時刻で勝手に出現することが殆どなく，先の時刻で既に存在していたDSM2パッチが移動したり分裂したりすることでのみ，後の時刻までDSM2を残せることがわかる．これは，多孔質に水が浸透していく様子と似ている．水の浸透も，ある地点で水の伝わりが途切れたら，それより遠くの地点には水が行き渡らないからだ．ただし，Fig. 4(b)の「浸透」は，時間の正の向きにだけ起こるものであるから，等方的な浸透ではなく，「有向性」なのである．一方向にしか浸透が起こらない浸透の単純なモデルとして，20世紀中頃にDPモデルが提案された[14,15]．このモデルは，浸透の可否に関する相転移を示し，その臨界指数が，2+1次元では，先に引用した$\beta_{\mathrm{DP}}=0.583(3)$という値を示すのだ（DPモデルでは，浸透が起こる特別な次元とそれ以外の次元を区別し，2+1次元のように表す）．ここで強調したいのは，DPモデルはIsingモデル的なセンスのトイモデルであり，DSMはおろか，現実の浸透現象すら記述しない．にもかかわらず，0.58…のような「変な値」が一致してしまうのは，DPの臨界現象が普遍的であることを物語っている．何らかの意味で「DPに似ている」現象の相転移は，DP普遍クラスに属し，DPモデルと定量的に同じ臨界現象が出現するのである．

では，どのような現象が「DPに似ている」のだろうか．実は，DPクラスには膨大な理論研究・数値計算研究がある．それに基づく経験則として，「活性状態」から「吸収状態」への連続的な相転移は，付加的な対称性や保存則がなければ，通常DPクラスに属する，と考えられている（より正確な表現はレビュー[14,15]を参照のこと）．ここで活性状態とは，DSM2パッチや，浸透現象における水のように，ゆらぎながら，次の時刻や隣接する場所に伝搬する自由度が系のどこかにある状態のことを指す．逆に，吸収状態とは，そのような自由度がない状態を指す．液晶で言えば，DSM2パッチが1つもない，全面的なDSM1状態が吸収状態である．DSM2の自発生成がないとすると，ひとたびDSM2パッチが全滅したら，DSM2パッチは二度と出現せず，全面的なDSM1状態がずっと維持される．つまり，吸収状態は，一度入ったら出られない．だから「吸収状態」なのだ．こういう，一方通行の遷移過程は，詳細釣り合いを満たさないので，平衡状態では実現できない．故に，これは本質的に非平衡な相転移現象であって，その中で最も基本的なのがDPクラスなのだ．

DPクラスの普遍性は，理論的には無数のモデルで確認されてきた[14,15]が，実験的には本稿で紹介した液晶実験[11,12]が最初の例である．DP臨界現象は実在し，単純なモデルにはない現実の様々な「不都合な真実」の下でも壊れない，強い頑健性がDPにあることがわかった．現在は，水などの単純流体の層流乱流転移でもDP臨界現象が報告されている[16,17]．DPや関連する非平衡臨界現象は，実験や，実験と直接比較可能なモデルでの研究が急速に進みつつあり，その先陣を切ったのが液晶だったのだ．

6.　DSM2領域成長と界面ゆらぎ普遍法則

次に，$V \gg V_{\mathrm{c}}$で，DSM2が（中が詰まった）領域として拡大成長していく状況（Fig. 2(c)）を考えよう．中が詰まっているので，領域の形状は界面の位置で決まっており，領域が成長するとは，界面が外向きに動くということだ．ここで，Fig. 2(c)での界面形状を見てみると，縦長の楕円形という基本的な形に加えて，界面が少々凸凹していること

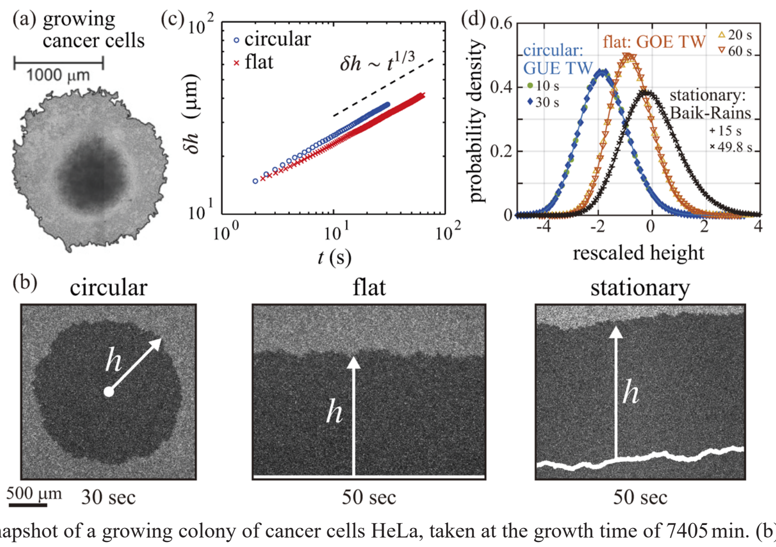

Fig. 5　DSM2 growth. (a) Snapshot of a growing colony of cancer cells HeLa, taken at the growth time of 7405 min. (b) Snapshots of growing DSM2 turbulence for the circular, flat, and stationary geometries. The times after laser emission are indicated. (c) Fluctuation amplitude (standard deviation) of h for the circular and flat interfaces. (d) Histograms of the rescaled height for the circular, flat, and stationary interfaces, compared with the GUE Tracy-Widom (TW), GOE Tracy-Widom, and Baik-Rains distributions, respectively. The experimental data were obtained at the indicated growth times. Finite-time corrections were evaluated[24,25] and subtracted in the presented data. The following figures are reprints with permission: (a) from Ref. 18), the left and center images in (b) and (c) from Ref. 24), and the right image in (b) from Ref. 25).

に気づく．実はこのように，何らかの領域が拡がっていくとき，界面のゆらぎが発達し易いことが知られており，がん細胞の塊の増殖[18]（**Fig. 5（a）**）や紙の燃焼，コロイド粒子の堆積など，例の枚挙に暇がない[19,20]．

このような成長界面のゆらぎには，典型的にスケール不変性があり，臨界現象と類似の普遍的なスケーリング則が，転移点と無関係に現れることが知られている[19,20]．対称性や保存則に基づいて，普遍クラスの分類もされている．その中で，最も重要かつ標準的な状況に対応する普遍クラスはKardar-Parisi-Zhang（KPZ）クラス[21]と呼ばれており，1986年に提唱されて以来（あるいはその前からも），理論を中心に極めて熱心に研究されてきた．特に，1次元界面のKPZクラスに関しては，2000年に，KPZクラスに属するモデルが厳密に解かれ，KPZを取り巻く状況が一変した[20]．非平衡で，非線形で，確率が絡む多体問題が，厳密に解けてしまったのだ．厳密に解かれたことで，臨界指数に留まらない，詳細な統計的性質が明らかになった．さらに，その後の爆発的な研究の成果も併せると，確率論や組合せ論などの純粋数学，量子多体系や，ポリマー，輸送現象などの様々な物理分野との関係まで明らかになっていった．一方で，厳密解研究は基本的に解けるモデルについての結果であり，解けるモデルとは可積分性をもつ特殊なモデルということなので，厳密解が示す統計的特徴が，非可積分なモデルや実験で，普遍的に現れる保証はない．それを実験的に検証することには，大きな意義がある．

筆者らは，DSM2領域成長を使って，それを試みた[22–25]．プラナー配向条件では，配向軸の影響で面内成長速度が異方的になってしまうので（故に**Fig. 2（c）**は楕円形である），垂直配向条件を採用した．さらに，4章で紹介した手法を用い，紫外パルスレーザーを液晶セルに打ち込むことで，所定の場所とタイミングでDSM2を生成し，その成長を観察した．レーザーを1点に打ち込めば，そこからDSM2が等方的に成長するため，平均的には円形の界面が拡がっていく（**Fig. 5（b）**左）．カメラの視野一杯に拡がったら，印加電圧を切って対流をなくしたうえで，再度電圧を印加し，界面の生成と観察をする．これを1000回程度繰り返し，界面の局所半径（方位角ごとに測った半径）hを計測して，標準偏差δhをプロットしたのが**Fig. 5（c）**青丸記号である．$\delta h \sim t^{1/3}$という冪則が明瞭に見られるが，この指数1/3は1次元KPZクラスの臨界指数であり，この実験系がKPZクラスに属することが確認できた．次に，厳密解研究の予言を検証する．代表的な予言はhの確率分布に関するものであり，理論に従い適切に無次元化したうえでhの分布を示したものが，**Fig. 5（d）**左，“circular”のラベルとともに中塗り記号で表示された分布である．Gauss分布に見えるかもしれないが，非ゼロの平均を持ち，左右非対称で，定量的に非Gaussであることが確認されている．ではどのような分布かというと，実はこうした円形界面に対して，厳密解が予言する分布であるGUE Tracy-Widom分布[20]が，**Fig. 5（d）**左の“circular”のところに実線で描かれている（実験データの記号は線で結ばれていない）．実験データはこれと極めてよく一致しており，この分布関数が，可解モデルだけでなく，実験さえも記述する普遍性をもっていたことが明らかとなった．本稿ではGUE Tracy-Widom分布の解説は割愛する（講義ノート[20]等を参照のこと）が，もともと数学のランダム行列分野で導入された分布関数（GUEというランダム行列の最大固有値の分布）であり，全く異なる数学分野で考案された分布関数が，普遍法則の結果として，液晶乱流の界面で姿を現すのは興味深い．

さらに，本実験では，界面形状による違いも検証した．実は，KPZ厳密解研究の非自明な予言の1つが界面形状依存性であり，丸い界面と平らな界面，さらにゆらぎ方が定常的な界面は，それぞれ異なる分布関数を示すとされる．一方で，直感的には，円形界面は，時間が経ち円が大きくなるにつれて，界面は平らになっていくので，$t \to \infty$の界面ゆらぎが円形界面と平坦界面で異なるとは，にわかに信じがたい．そこで本研究では，紫外レーザーを円筒レンズで直線状に拡げ，照射することで，平坦界面を生成した（**Fig. 5（b）**中央）．さらに我々は，空間位相変調器を使いホログラムを照射することで，任意の初期界面形状を生成する実験系を構築し[26–28]，それによって（ほぼ）定常的な形状の界面も生成した[28]（**Fig. 5（b）**右）．結果，これらは臨界指数は変わらず（**Fig. 5（c）**）同じKPZクラスであるが，3形状で本当に界面ゆらぎ分布が異なっていること，それぞれが厳密解の予言する分布関数と一致することが明らかとなった．最近は，任意の初期条件が扱える変分公式が理論的に提案されており，上記3形状に留まらない界面のゆらぎ分布も定量的に記述可能となった[27]．

分布に関しては厳密解の予言が先にあり，それを液晶実験が検証して，普遍性が判明した．液晶実験がKPZ普遍法則を捉えられることがわかったので，今度は理論がない問題にチャレンジする番だ．筆者らは，未だ理論的に解かれていない統計量に対して実験結果を提示することで，KPZ理論や関連する数学分野との連携を模索している．例えば，時間相関に関しては，実験で見えた非自明な性質[24,29]が，量子多体系の理論物理で説明され[29]，のちに（実験の寄与は不明だが）数学定理の誕生に至った[30]．こうした分野横断的な進展は統計力学研究の大きな魅力であるが，KPZではそれが顕著である．

7.　ツイスト配向によるIsing対称性の実現

既に何度も強調しているように，臨界現象や関連するスケーリング則では，対称性の違いが本質的な意味をもつ．3章で，液晶の1つの利点として対称性の制御を挙げたので，その実例を紹介しよう．電圧印加等のない平衡状態のネマチック液晶セルでは，一軸性のプラナー配向条件

や垂直配向条件では，バルクも含めて一様な配向場が実現する（**Fig. 6 (a)**）．これは，並進対称性こそ高いものの，回転対称性は最も低い状態である．これに対して，**Fig. 6 (b)**のようにツイスト配向条件にしてやると，文字どおりツイストした配向が実現するが，ツイストの向きは右巻きと左巻きの2通りがあり，（プレチルトがなければ）エネルギー的に対称である．ツイストの向きをσと書くことにして，右巻き，左巻きを，それぞれ$\sigma=+1, -1$と書くことにすると，符号反転$\sigma \mapsto -\sigma$に対してエネルギーが不変だから，Isingモデルと同じ対称性が実現している．

この事実は以前から知られている．80年代には，折原，石橋により，Isingモデルと共通の秩序化過程が現れることが報告され[31]，その後もYurkeグループなどで関連研究が行われてきた[32]．秩序化過程とは，Isingモデルの場合，高温・常磁性相でスピンの向きがバラバラな状態から，温度を急降下させて低温・強磁性相にしたときに，スピンの向きが時間経過とともに揃っていく過程を表す．これも，臨界現象と類似の普遍的なスケーリング則で記述でき，オーダーパラメータが保存しない場合はModel Aと呼ばれている[33,34]．ツイスト液晶系でも，従来は，等方液体相から温度を下げネマチック相に転移させることでModel Aのスケーリング則が検証されてきたのだが[31,32]，本稿では，急冷の代わりに，DSM2乱流から印加電圧を除去することで，同様の秩序化過程を観測した結果[35]を紹介しよう．

高い電圧のもと，DSM2乱流で，disclinationが高密度で存在する状態にしておいてから，印加電圧を除去すると，**Fig. 6 (c)**のようなドメイン構造が現れる．ドメイン構造は，ツイストが右巻きの領域と左巻きの領域の共存を表し，ツイストの向きは偏光観察で識別できる．電圧除去直後は，無数の細かいドメイン構造が見られるのだが，時間経過とともに，小さなドメインが大きなドメインに飲み込まれ，ドメイン構造が大きくなっていく．この様子は，2点相関関数

$$C(l,t) \equiv \langle \sigma(\mathbf{r}_0+\mathbf{r},t)\,\sigma(\mathbf{r}_0,t)\rangle, \quad l=|\mathbf{r}| \tag{3}$$

を測ると，tの増大とともに，相関が減衰する距離が大きくなることから，定量的に確認できる（**Fig. 6 (d)**挿図）．理論的には，Model Aクラスでは典型的なドメインサイズが$L(t)\sim t^{1/2}$という冪則で成長することが知られている[33,34]．そこで，距離の指標として，lではなく$l/L(t)\sim l/t^{1/2}$を使って，**Fig. 6 (d)**挿図のデータを描き直してみよう（**Fig. 6 (d)**メインパネル）．すると，すべてのデータが1本の曲線上に重なってしまう．すなわち，時間発展の効果は$L(t)\sim t^{1/2}$に集約されており，距離を$L(t)$との比で表せば，ドメイン構造には統計的な変化が起こっていないのだ．このことは写真からも実感できる．**Fig. 6 (c)**は，2つの時刻$t=t_1, t_2$で撮影された写真を並べているが，縮尺が$L(t_1)/L(t_2)=(t_1/t_2)^{1/2}$倍違っている．結果，2枚の写真に写っている模様は全く同じように見える．2章で述べたスケール不変性（**Fig. 1 (c)**）が実現していることが，写真からもデータからも確認できるのだ．

以上の結果は，温度変化で秩序化過程を起こす先行研究でも報告されている[31,32]が，電圧除去の方法は，瞬間的に，精度よく実行できるので，測定精度を大幅に改善することができる．実は，理論では，冪則$L(t)\sim t^{1/2}$だけでなく，$C(l, t)$の関数形も提案されている[34]が，複数の理論が僅かに異なる予言をしており，決着がついていない．空間相関のほか，二時刻相関でも興味深い問題が残されているし，最近の数値計算では臨界パーコレーションとの関係も示唆され，短時間の動力学を記述するための動的スケーリング理論の拡張が提案されている[36]．実験精度が高まることで，こうした課題に実験が貢献できる可能性がある．

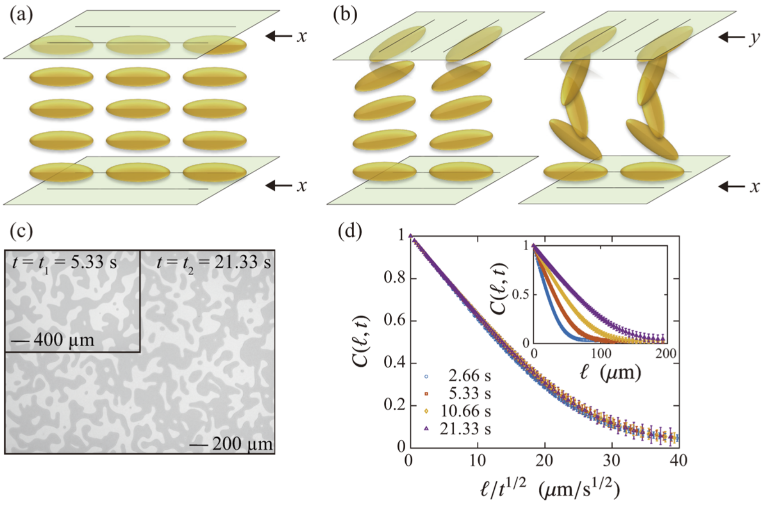

Fig. 6 Ordering process in twist nematics. (a)(b) Sketch of the director under the (uniaxial) planar (a) and twist (b) alignments. (c) Snapshots of domain structures at two different times, $t=t_1=5.33$ s and $t=t_2=21.33$ s, after the voltage quench. The scales are different by ratio $(t_2/t_1)^{1/2}=2$. Polarization microscopy allows to distinguish the left- and right-handed domains. (d) Two-point correlation function $C(l,t)$ at different t (legend). The results are detailed in Ref. 35).

8. むすびに

本稿では，液晶が非平衡統計力学研究に適した材料であること，非平衡臨界現象や，関連するスケーリング則の実験研究を牽引する役割が果たせていることを，実例とともに紹介した．具体的には，秩序化過程の動的スケーリング則（7章）では，対応する実験系の代表格として理論の様々な側面との比較が以前から行われてきた[34]し，吸収状態転移のDP臨界現象（5章）[14,15]や，KPZ界面ゆらぎ分布の厳密解検証（6章）[20]は，最初の実験例を液晶が提供することができた．一方で，これらは，それぞれの話題で最も基本的な普遍クラスに対応する成果であり，その意味ではまだ出発点に立ったばかりだと言える．3章では，液晶の特長として対称性の設計自由度の高さを挙げたが，本稿で紹介した実験はすべてネマチック液晶を使っていることからもわかるとおり，まだ充分に活かされていない．配向制御についても，技術進展により，１つの系に異なる配向条件の領域を設けたり，光制御したりといった自由度が格段に高まっている[37]．これらを使えば，様々な対称性や条件設定のもとで，マクロ非平衡現象のモデル実験が展開できるのではないかと期待している．

理論的課題も多い．本稿で注目した液晶電気対流は，ロール対流や弱非線形領域については理論的記述が確立されている[38]が，筆者が知る限り，DSM乱流は，理論的にも数値的にも手付かずで残されている．したがって，DSM乱流がマクロスケールで示す様々なスケーリング則が，そもそも液晶のどのような機構で現れるのかについて，理論的な理解は全くない．マクロとミクロをつなぐ試みは，実験的にも極めて重要だろう．こうした様々な課題が解決され，広大な非平衡スケーリング則の世界を液晶が開拓し続けていくことができるなら，平衡統計力学におけるスピン系の役割を非平衡統計力学で液晶が担うことも，あながち夢物語ではないのかもしれない．

謝　　辞

本稿で解説した実験は，佐野雅己先生や，私の研究室の学生たちをはじめとする，数多くの研究者らと共同で実施したものであり，共同研究者の皆様に感謝の意を表します．また，特にKPZに関する研究では，最前線で研究を展開されている多くの理論家，数学者の方々との交流が決定的に重要でした．笹本智弘先生，Herbert Spohn先生，Pierre Le Doussal先生をはじめとする皆様に感謝いたします．最後に，液晶学会員の皆様に向け，本解説記事を執筆する貴重な機会を下さった，内田幸明先生には心よりお礼を申し上げます．どうもありがとうございました．

参　考　文　献

1) 高橋和孝，西森秀稔，「相転移・臨界現象とくりこみ群」，(2017)，丸善出版，東京．
2) U. C. Täuber, *Critical Dynamics: A Field Theory Approach to Equilibrium and Non-Equilibrium Scaling Behavior* (Cambridge University Press, Cambridge, 2014).
3) 実験も含めた簡易的なレビュー: K. A. Takeuchi, J. Stat. Mech., **2014**, P01006（2014）.
4) M. Hasenbusch, Phys. Rev. B Condens. Matter Mater. Phys., **82**, 174433 (2010).
5) S. El-Showk, M. F. Paulos, D. Poland, S. Rychkov, D. Simmons-Duffin and A. Vichi, J. Stat. Phys., **157**, 869 (2014).
6) P. Heller, Rep. Prog. Phys., **30**, 731 (1967).
7) P. G. de Gennes and J. Prost, *The Physics of Liquid Crystals* (Oxford University Press, Oxford, 1995) 2nd ed., sec. 5.3.
8) 井村秀文，岡野光治，応用物理，**42**, 739（1973）.
9) S. Kai and W. Zimmermann, Prog. Theor. Phys. Suppl., **99**, 458 (1989).
10) V. S. U. Fazio and L. Komitov, Europhys. Lett., **46**, 38 (1999).
11) K. A. Takeuchi, M. Kuroda, H. Chaté and M. Sano, Phys. Rev. Lett., **99**, 234503 (2007).
12) K. A. Takeuchi, M. Kuroda, H. Chaté and M. Sano, Phys. Rev. E., **80**, 051116 (2009).
13) B. Yoon, S. H. Kim, I. Lee, S. K. Kim, M. Cho and H. Kim, J. Phys. Chem. B, **102**, 7705 (1998).
14) H. Hinrichsen, Adv. Phys., **49**, 815 (2000).
15) 竹内一将，日本物理学会誌，**70**, 599（2015）.
16) M. Sano and K. Tamai, Nat. Phys., **12**, 249 (2016).
17) G. Lemoult, L. Shi, K. Avila, S. V. Jalikop, M. Avila and B. Hof, Nat. Phys., **12**, 254 (2016).
18) M. A. C. Huergo, M. A. Pasquale, P. H. González, A. E. Bolzán and A. J. Arvia, Phys. Rev. E., **85**, 011918 (2012).
19) A.-L. Barabási and H. E. Stanley, *Fractal Concepts in Surface Growth* (Cambridge University Press, Cambridge, 1995).
20) 最近の厳密解研究の紹介も含めた講義ノート：K. A. Takeuchi, Physica A, **504**, 77 (2018).
21) M. Kardar, G. Parisi and Y.-C. Zhang, Phys. Rev. Lett., **56**, 889 (1986).
22) K. A. Takeuchi and M. Sano, Phys. Rev. Lett., **104**, 230601 (2010).
23) K. A. Takeuchi, M. Sano, T. Sasamoto and H. Spohn, Sci. Rep., **1**, 34 (2011).
24) K. A. Takeuchi and M. Sano, J. Stat. Phys., **147**, 853 (2012).
25) T. Iwatsuka, Y. T. Fukai and K. A. Takeuchi, Phys. Rev. Lett., **124**, 250602 (2020).
26) Y. T. Fukai and K. A. Takeuchi, Phys. Rev. Lett., **119**, 030602 (2017).
27) Y. T. Fukai and K. A. Takeuchi, Phys. Rev. Lett., **124**, 060601 (2020).
28) Tracy-Widom分布やBaik-Rains分布の数値データは下記ウェブサイトから取得できる：M. Prähofer and H. Spohn, Exact scaling functions for one-dimensional stationary KPZ growth, https://www-m5.ma.tum.de/KPZ, (2020年9月参照).
29) J. De Nardis, P. Le Doussal and K. A. Takeuchi, Phys. Rev. Lett., **118**, 125701 (2020).
30) K. Johansson, Probab. Theory Relat. Fields, **175**, 849 (2019).
31) H. Orihara and Y. Ishibashi, J. Phys. Soc. Jpn., **55**, 2151 (1986).
32) N. Mason, A. N. Pargellis and B. Yurke, Phys. Rev. Lett., **70**, 190 (1993).
33) P. C. Hohenberg and B. I. Halperin, Rev. Mod. Phys., **49**, 435 (1977).
34) A. Bray, Adv. Phys., **43**, 357 (1994).
35) R. A. L. Almeida, PhD Thesis, School of Science, Tokyo Institute of Technology, Tokyo (2019); R. A. L. Almeida and K. A. Takeuchi, in preparation.
36) T. Blanchard, L. F. Cugliandolo, M. Picco and A. Tartaglia, J. Stat. Mech., **2017**, 113201 (2017).
37) W. Hu, P. Chen and Y.-Q. Lu, in *Photoactive Functional Soft Mate-*

rials: Preparation, Properties, and Applications (Wiley, Weinheim, 2019), Chap.11.

38) L. Kramer and W. Pesch, *Pattern Formation in Liquid Crystals* (Springer, New York, 1996), Chap.6.

受理：2020.8.13

Kazumasa A. Takeuchi
東京大学大学院理学系研究科・准教授
東京都文京区本郷7–3–1（〒113–0033）
E-mail: kat@kaztake.org

ソフトマターや微生物等を使って，非平衡現象に潜む統計物理法則を追い求めています．