

Collective motion of microtubules with different lengths and rigidity

T. I. FARHANA¹, A. M. R. KABIR², D. INOUE², K. SADA^{1, 2}, A. KAKUGO^{1, 2}

(¹Graduate School of Chemical Sciences and Engineering, Hokkaido University;

²Faculty of Science, Hokkaido University, Sapporo 060-0810, Japan)

[Introduction]

The collective motion is a coordinated behavior of self-propelled particles (SPP), which is often associated with the formation of large-scale patterns [1]. The in-vitro gliding assay, where cytoskeletal filaments are propelled by biomolecular motors immobilized on a surface, has drawn much attention as a model system for demonstrating such collective behavior of SPP in-vitro. Recently, our group has studied the collective motion of most widely used biomolecular motor system microtubule (MT)/kinesin [2]. Nonetheless, the effect of length and rigidity of single MT filaments on the collective motion is still not unveiled. In this work, we will present the collective motion of MTs of different lengths and rigidity.

[Results and discussion]

The effect of MT length on the collective motion was firstly investigated using structurally flexible MTs prepared by polymerizing tubulins in the presence of guadine-5' triphosphate (GTP). We found that, regardless of lengths, the flexible GTP-MTs organized to local stream-like patterns due to their collective motion [Figure 1. (A)]. Next, the rigidity of MTs was increased by polymerizing tubulins in the presence of guanosine-5'[(α, β)-methylene]triphosphate (GMPCPP). Emergence of a large spiral pattern [Figure 1. (B)] was observed in high-density motility assay where comparably rigid GMPCPP-MTs were used. Thus, this study reveals that rigidity of MTs rather than their length is the regulatory factor of emergence of different types of patterns from collective motion.

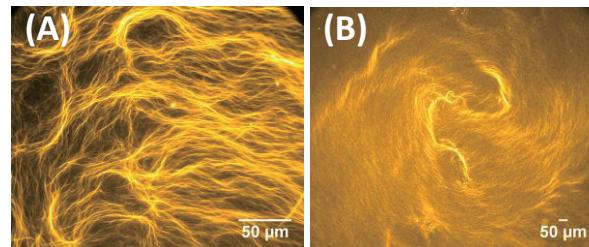


Figure 1: Emergence of different patterns by collectively moving (a) flexible MTs (GTP-MTs) and (b) rigid MTs (GMPCPP-MTs).

[References]

1. T. Vicsek, A. Czirók, E. Ben-Jacob, I. Cohen and O. Shochet, *Phys. Rev. Lett.*, 1995, **75**, 1226-1229.
2. D. Inoue, B. Mahmot, A. M. R. Kabir, T. I. Farhana, K. Tokuraku, K. Sada, A. Konagaya, and A. Kakugo, *Nanoscale*, 2015, **7**, 18054-18061.

円環上で光駆動されたコロイド系のリズム運動

(九大院理) ○齊藤圭太、木村康之

【はじめに】

流体中に分散した粒子間には、流体相互作用が働くために、粒子系はしばしば複雑な挙動を示す。この作用は、壁面近くで大きく変化することが知られている。これまで、我々はホログラフィック光ピンセットで作成した光渦を用いて、円環上に一方向に駆動した複数のコロイド粒子の集団運動について研究を行ってきた[1,2]。このとき、コロイド粒子間に働く相互作用のために、特徴的なリズム運動を示すことがわかっている。本研究では、薄厚セルを用いて、壁面近くでのコロイドの集団運動の観察を行ったところ、バルクとは異なるリズム運動を見い出した。

【実験】

実験は、粒径 $3.0 \mu\text{m}$ のシリカ粒子が分散した水溶液を、薄厚セル ($6 \mu\text{m}, 10 \mu\text{m}$) の中に閉じこめ、ホログラフィック光ピンセットで作成したリング光渦で一定の角運動量を与えて、シリカ粒子を周回運動させた。壁面からの距離を変化させて、粒子の集団運動を観察した。

【結果と考察】

3粒子系で観察された集団運動について紹介する。壁面の影響がない状況では、2粒子がクラスターを作り運動する(図1)。この時、このクラスターは1粒子よりも角速度が速いため、前の粒子に追いつく。その後、粒子の入れ替えが起こり、前の2粒子がクラスターとなり離れる。壁面の影響がない状況では、上記の過程が繰り返すリズム運動が見られた。薄厚セルの場合には、異なる運動が観察できた。壁面付近で粒子を周回運動させると、図2に示すように、壁面の影響が出ない状況と同じように2粒子がクラスターを作り運動する。しかし、この時、1粒子はクラスターよりも角速度が速くなり、2粒子のクラスターに追いつく。その後、クラスターの組み換えが起こり、先頭の1粒子が離れる。粒子を壁面から遠ざけると、運動モードが変わり、3粒子はほぼ等間隔で運動を行った。この様な運動は、定性的には、底面による実行抵抗の増大と流体相互作用の遮蔽効果によるものだと考えられる。

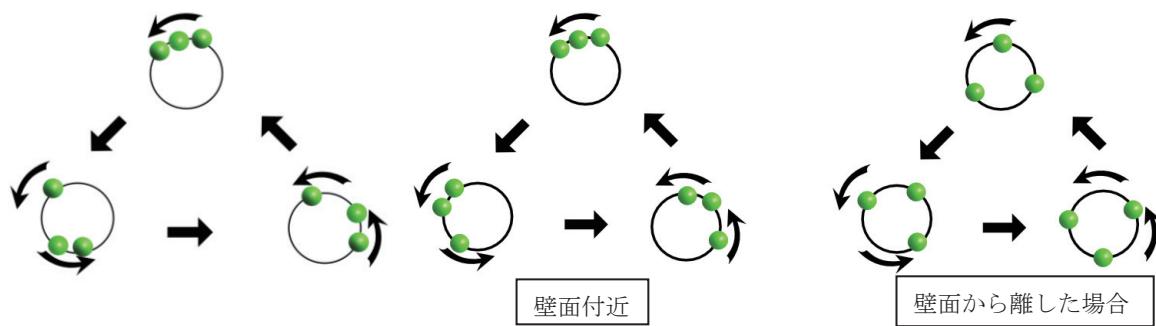


図1. 壁面から影響が無い場合

図2. 壁面からの影響がある場合

【参考文献】

- (1) Y. Sassa, S. Shibata, Y. Iwashita, and Y. Kimura, Phys. Rev. E **85**, 061402 (2012).
- (2) S. Okubo, S. Shibata, Y. Sasa Kawamura, M. Ichikawa, and Y. Kimura, Phys. Rev. E **92**, 032303 (2015).

生体高分子の外的力学刺激に対する応答挙動

(北大総化¹, 北大院理²) 西川聖二¹, Tanjina Afrin¹, Arif Md. Rashedul KABIR², 佐田和己^{1,2}, 角五彰^{1,2}

【はじめに】

生物は細胞内の物質を輸送するための高度に発達したシステムを構築しており、その中で微小管は輸送路としての役割を果たす[1]。微小管はこのほか細胞の構造維持のための細胞骨格として働く等、多くの細胞活動で様々な役割を果たす。その活動の中で微小管は内的、外的な機械的ストレスによる構造変形を起こし、この構造変形に伴い物質輸送障害が生じることが明らかになっている[2]。さらにこの障害は、アルツハイマー型認知症等の多くの神経変性疾患と密接な関係があるとみられている[3]。しかしこれまでに微小管の構造変形が細胞内物質輸送に及ぼす影響については十分な検討がなされてこなかった。

【結果と考察】

本研究では、内外からのストレスによる微小管の変形がモータータンパク質であるキネシンによる物質輸送に及ぼす影響の解明を目的とする。このため微小管の座屈を発現させる実験系を構築し、座屈した微小管上での物質輸送をリアルタイムに観察した。本実験系ではキネシンは微小管を駆動するキネシン(K_{573})と量子ドット(Qドット)を輸送するキネシン(SNAP-Kinesin)の2種類を用いた。微小管は部分的にビオチン(Bt)を修飾したものを作製した。はじめにガラス基板上に K_{573} 及びストレプトアビジン(St)を非特異吸着させた(Fig. 1)。その後微小管を加え、微小管上の Bt と基板上の St との非共有結合性の相互作用 ($K_d=10^{-15} \text{ M}$) により Bt 修飾部位のみを基板上に固定した。微小管の Bt 未修飾部位は ATP を加えると K_{573} の駆動による運動をはじめ、Bt と St の相互作用による部分的な固定により微小管に機械的応力が加わり、その結果座屈した。この屈曲した微小管上で SNAP-Kinesin による Q ドットの輸送を観察したところ(Fig. 2(a))、微小管の屈曲部では Q ドットの輸送速度は低下を確認した。また、Image J、MARK II を用いて Q ドットを積んだ SNAP-Kinesin が微小管上のどの部分を移動しているかを解析した結果(Fig. 2(b))、SNAP-Kinesin は微小管の屈曲部で片側一方のみを移動していることが示された。

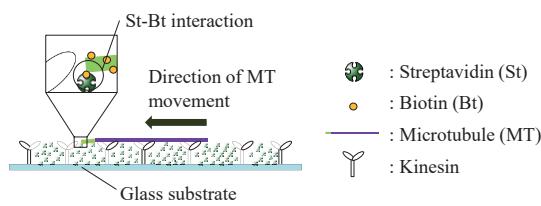


Fig.1 Schematic illustration showing the experimental design used for demonstrating buckling of microtubule.

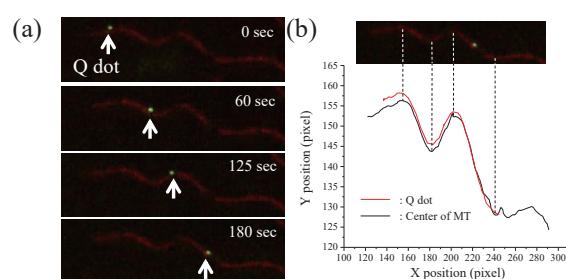


Fig. 2 (a) Fluorescence images of Qdot transportation along a buckled microtubule. (b) Trajectory of the Qdot moving along MT (red). Black line is the center position of a microtubule.

【参考文献】

- [1] Blasius, T. L.; Reed, N.; Slepchenko, B. M.; Verhey, K. J. *PLOS ONE* **2013**, 8, 1-11.
- [2] Bicek, A. D. et al. *Mol Biol Cell*. **2009**, 20, 2943–2953.
- [3] Vos, K. J. D. et al. *Rev. Neurosci.* **2008**, 31, 151-173.

Laponite 水溶液のエイジング過程における定常ずり粘度のせん断速度依存性

(立命館大学大学院理工) 丸山友暉 瀧川佳紀 深尾浩次

【はじめに】

Laponite とは、上面と底面は正の電荷をもち、側面は負の電荷をもつ、直径約 25 nm、厚さ約 0.92 nm の円盤状の粒子である[1]。Laponite 水溶液は、攪拌静置後の時間経過とともに、はじめはさらさらの低粘度液体であるが、時間の経過とともに、粘度が増加するエイジング現象を示す。最終的な構造としては、ガラス状態、ゲル状態、液体状態などが知られており、それらの構造とダイナミクスについては、X 線小角散乱、動的静的光散乱などにより、詳しく調べられている。一方で、レオロジーの観点からの Laponite 水溶液の構造研究は少ない。本研究では、せん断流が Laponite 水溶液の構造形成に与える影響に着目した。その影響を調べるために、Laponite 水溶液のエイジング過程中に 定常ずりせん断流の印加を行い、定常ずり粘度の測定を行った。

【結果と考察】

定常ずりせん断流下での粘度は時間経過とともに粘度が増加していく様子が観測された。この時、低せん断速度領域においては、エイジング時間に対する粘度増加率が大きく、高せん断速度なるにつれて、粘度増加率は小さくなることがわかった。このように、Laponite 水溶液の定常ずりせん断流下でのエイジングによる粘度変化はせん断速度に依存して、特徴的な変化をすることが明らかになった。Fig.1 の三角形のシンボルの挙動からわかるように低いせん断速度($\dot{\gamma} = 5 \text{ s}^{-1}$)から高いせん断速度($\dot{\gamma} = 50 \text{ s}^{-1}$)へ変化させると、粘度は急激に低下し、高いせん断速度($\dot{\gamma} = 50 \text{ s}^{-1}$)の一定ずり速度で、はじめから粘度測定を続けた場合の曲線上にのり、その後、その曲線に沿って、時間発展を続けた。しかし、再度低いせん断速度($\dot{\gamma} = 5 \text{ s}^{-1}$)へせん断速度を変化させると、粘度は急激に増加し、 $\dot{\gamma} = 5 \text{ s}^{-1}$ の一定ずり速度で、はじめから粘度測定を続けた場合の曲線上に戻り、その後、時間発展を続けた。逆に高いせん断速度($\dot{\gamma} = 10 \text{ s}^{-1}$)から一定時間、低いせん断速度($\dot{\gamma} = 5 \text{ s}^{-1}$)へ変化させた場合にも、同様に、粘度の値がステップ的に変化し、変化させた後でのせん断速度に対応したエイジングによる粘度の時間発展の曲線に従って、粘度変化が進行することがわかった。この結果では、ある一定のせん断速度のせん断流を印加している最中にも印加しているせん断速度とは異なるせん断速度で生じるはずのエイジングが見られる。つまり、せん断速度の異なる定常ずりせん断流を印加した場合でも、それぞれのせん断速度でのエイジングが独立で進行していると考えられる。

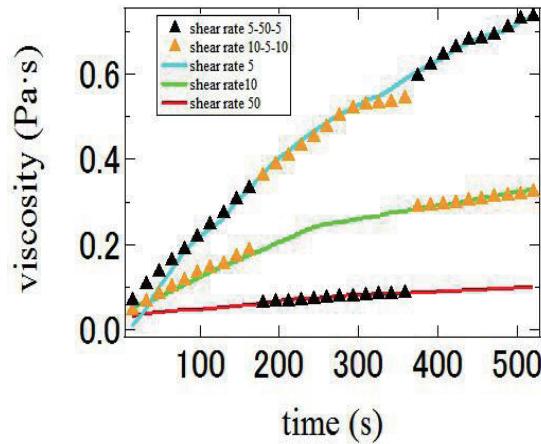


Fig.1 aging time dependence of viscosity at constant shear rate (lines) and step-up and step-down shear rate (triangles).

【参考文献】

- [1] S. L. Tawari, D. L. Koch and C. Cohen, J. Colloid Interface Sci., 54, 240, (2001)

光応答性 DNA を用いた微小管集合体の運動方向制御

(¹北大院総化, ²北大院理, ³関大化生工, ⁴名大院工)

○鈴木隆平¹, 井上大介², Arif Md. Rashedul Kabir^{1, 2}, 佐田和己^{1, 2}, 葛谷明紀³, 浅沼浩之⁴, 角五彰^{1, 2}

1. Introduction

Biomolecular motor system microtubule-kinesin can perform mechanical work by consuming the chemical energy of adenosine triphosphate and has been considered a promising candidate for developing artificial nanotransport devices. Recently we integrated microtubules into assembled structures, e.g., bundles by employing a DNA based interaction among the microtubules. In this study, by introducing a photoresponsive moiety to the DNA¹ and spatiotemporally regulating photo irradiation, we aim to control the active self-assembly and mobility direction of the microtubules. This work will widen the future nanotechnological applications of biomolecular motor systems.

2. Experiment

Microtubules were polymerized from azide modified and fluorescently labeled (Alxa488 or TAMRA) tubulins in the presence of GMPCPP at 37 °C for 30 min. Two types of microtubules modified with two types of DNA (CAA8Azo7 and T12TTG4Azo3) each containing a photoresponsive moiety were prepared by using the azide-alkyne cycloaddition reaction. The photoresponsive moiety underwent isomerization to *cis*- or *trans*- form upon visible and UV radiation respectively which consequently allowed the assembly and disassembly of microtubules gliding on the kinesin coated substrate. The photoregulation of the assembly of microtubules was monitored under a fluorescence microscope ($\lambda=335\text{-}345\text{ nm}$) and YFP-filter ($\lambda=490\text{-}510\text{ nm}$).

3. Results

The design principle used to controlling the active self-assembly and mobility direction of microtubules is shown in the Fig. 1. The DNA-modified microtubules exhibited gliding motion on a kinesin coated substrate in the presence of ATP. The gliding microtubules formed assemblies under visible light irradiation and the microtubule assemblies were dissociated upon UV light irradiation (Fig. 1a). Experiments are now underway to control the movement direction of microtubule assemblies through regulation of the self-assembly by spatially regulated visible or UV irradiation (Fig. 1b).

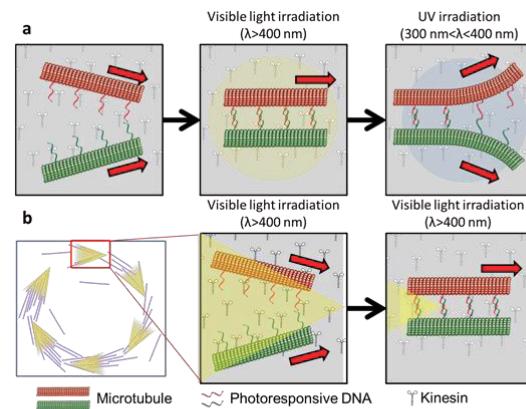


Fig. 1: Schematic illustration showing the regulation of active self-assembly and mobility direction of microtubules.

4. Reference

- [1] Asanuma et al. *Nature protocols* 2007, 2(2), 203-212.

カーボンナノチューブ分散液のシアバンディング

(北大院工) ○武内大輔 折原宏

(北大電子研) 佐藤勝彦

(横国大環境情報) 田中良巳

【はじめに】

我々は以前、生体高分子である F-アクチン溶液におけるシアバンディングについて、シアバンドの形成にはアクチン濃度、印加せん断速度が関係することを示した[1]。これによりフィラメント間の相互作用が重要な要素の一つであると明らかになったが、その起源については未だわからないままである。我々は、シアバンディングに一般性があることを予想し、異なる流体系での実験を進めている。本研究では、カーボンナノチューブ (CNT) 分散液についてシアバンディングの有無を調べた。

実験では、共焦点レーザー顕微鏡とコーンプレートレオメータ(直径 25mm)が一体となった装置を用いて (Fig.1(a)) [2]、試料にせん断を印加した時の流速分布を PIV 計測により得た (Fig.1(b))。印加せん断速度は $0.1 \sim 100 \text{ s}^{-1}$ の範囲で変化させた。

【結果と考察】

Fig.2 に実験の結果得られる流速分布を示す。それぞれ横軸が流速、縦軸が高さを表し、せん断速度は (a) 0.1 s^{-1} 、(b) 10 s^{-1} である。(a) ではガラス界面でのスリップ、(b) では F-actin 溶液の場合と酷似したシアバンディングが観察されている。

Fig.3(a) では横軸せん断速度、縦軸 CNT 濃度として流速分布に対する相図を示した。今回扱った濃度 $0.05\text{wt}\%$ では、せん断速度 1 s^{-1} を境としてスリップとシアバンディングの領域に分かれる。比較として Fig.3(b) に示した F-actin 溶液の場合では、actin 濃度の低下に伴ってシアバンディングの領域は両端から減少し、低濃度ではシアバンディングが現れない。CNT 分散液においても類似の結果が予想される。詳しい結果と考察については当日報告する。

【参考文献】

- (1) I. Kunita, K. Sato, Y. Tanaka, Y. Takikawa, H. Orihara, and T. Nakagaki, Phys. Rev. Lett 109, 248303 (2012).
- (2) H. Orihara and Y. Takikawa, Phys. Rev. E 84, 061120 (2011).

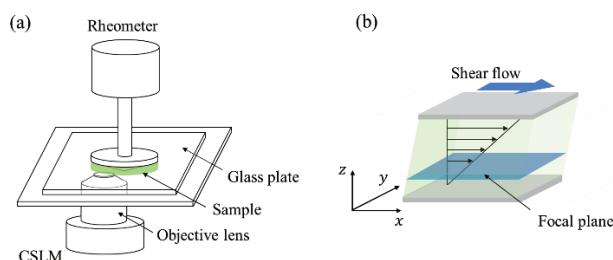


Fig.1 Experimental system

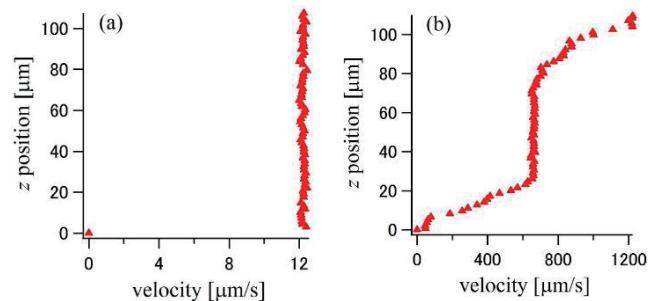


Fig.2 Profiles of flow velocity at shear rates of (a) 0.1 s^{-1} and (b) 10 s^{-1} .

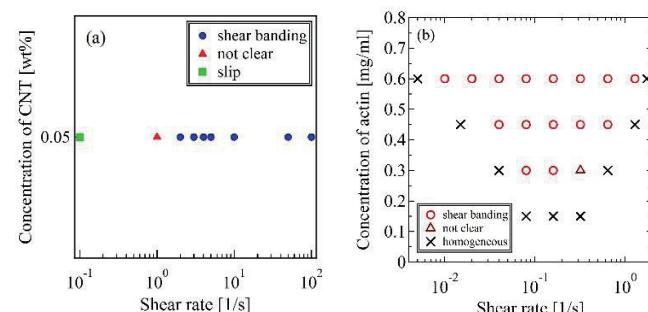


Fig.3 Phase diagram of shear band of (a) CNT dispersion and (b) F-actin solutions in concentration-shear rate plane.

液晶電気対流中におけるコロイド粒子の運動の偏光顕微鏡観察

(北大院工) 西岡 自晶, 佐々木 裕司, 折原 宏

【はじめに】 ネマチック液晶中に垂直配向処理された粒子が置かれると、その周りには点欠陥が生じ、配向場が非対称に歪む。その結果、交流電場によって粒子が電気泳動を示しうることが近年報告されている。^[1] 我々はこの原理を応用し、液晶電気対流中における粒子の運動について研究を行ってきた。現在までに、点欠陥を伴う粒子は対流中で上下運動を繰り返しながら一方方向に進むこと、特に粒子が鎖状に繋がった場合には芋虫のように運動することが分かっている。^[2] 本研究では粒子の三次元的な運動を、共焦点顕微鏡を用いることなく、標準的な偏光顕微鏡観察により定性的に特徴づけることを目指した。^[3]

【結果と考察】 液晶試料にはCCN47とCCN55を重量比1:1の割合で混合したネマチック液晶を使用した。液晶には1wt%程度のイオン性物質を添加した。水平配向セルが使用され、試料の厚みはおよそ28μmである。表面を垂直配向処理したシリカ粒子(直径2.47μm)を混合した液晶試料をセルに注入し、交流電場を与えて運動を観察した。

初めに単一粒子の運動を調べた。電場を印加せず静止している粒子を観察すると、図1(A)のように、直交ニコルの条件では周りの非対称なダイレクターの歪みから点欠陥の位置を区別することができる。鋭敏色検板を用いたときには配向場の向きに依存して、異なる色が観察される。続いて電場を印加し、電気対流を引き起こすと、粒子が対流の流れに沿って上下運動を伴いながら一方方向に運動する。運動の向きは点欠陥と反対の向きである。特に、鋭敏色検板を使用した場合、図1(B)のように粒子の上下運動に伴い周りの配向場の色が多彩に変化することが分かった。色の変化を詳しく調べたところ、これらは干渉色図表にしたがつており、粒子の高さによってリターデーションが変化しているためであると考えられる。

さらに、我々は鎖状に繋がった粒子の振る舞いについても調べた。鎖の芋虫運動が観察されるとき、その周囲は、単一粒子と同様の特徴的な様子を示した。つまり、液晶の屈折率異方性をうまく利用することで、粒子の三次元的な配置を簡便に把握可能であるといえる。

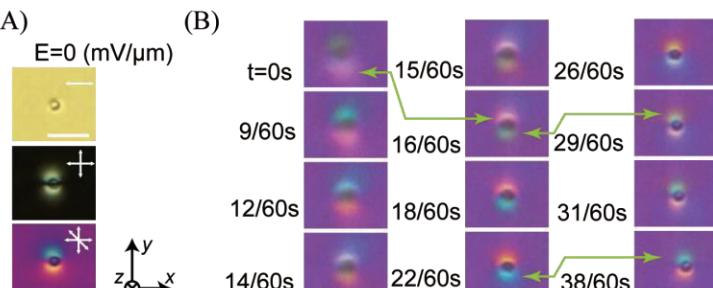


図1(A) 無電場下における粒子の様子 (B) 電気対流中の粒子の運動のスナップショット

【参考文献】

- (1) O. D. Lavrentovich *et al.*, Nature (2010) 467, 947. O. D. Lavrentovich, Soft Matter (2014), 10, 1264.
- (2) Y. Sasaki *et al.*, Soft Matter (2014) 10, 8813, Y. Sasaki *et al.*, Langmuir (2015) 31, 3815
- (3) Nishioka *et al.*, Liq. Cryst. (2016) 43, 427

温度変化によるリン脂質膜アクティブマターの運動制御

(東北大学理学研究科) 諸橋 博昭、今井 正幸

(東京大学総合文化研究科) 豊田 太郎

【はじめに】

近年、微生物の運動から非平衡系での物理法則を研究する過程で、生物ではない系で外力を加えなくとも自発的に運動する物体(アクティブマター)が見出され、その運動メカニズムが研究されている(1)。理論的には化学エネルギー変化が物体の界面で不均一に起こり、それによって界面上に流れが誘起され、自発運動に至るというモデルが提唱されている(2)。このモデルでのアクティブマターは、一度自発運動を始めると化学エネルギーを消費するまで一方的に自発運動を続けるが、微生物は単に動くだけでなく自身の運動の速度や方向を運動しながら制御することができる。我々はこの自発運動の制御を実現できるアクティブマターを実験的に作成することを目的とした。理論モデル(2)では、化学反応の反応物や生成物とアクティブマター界面の相互作用が駆動現象に影響を与える。そこで我々は運動中にアクティブマターの界面の性質を変化させることで、アクティブマターの運動に変化を与えられるのではないかと考えた。本実験では界面活性剤溶液中で自己駆動現象を示すリン脂質膜をモデル系とし、温度変化によってリン脂質膜のゲル-液晶相転移を誘起することでリン脂質膜の相転移と自己駆動現象の関連を調べた。

【結果と考察】

リン脂質 1,2-dimyristoyl-sn-glycero-3-phosphocholine(DMPC)を超純水に分散させて作製した DMPC 分散液にオレイン酸ナトリウム水溶液(100 mM)を加え、光学顕微鏡で観察した。図 1 に示すように、分散液中にチューブ状の構造体が形成され、そのチューブが分散液中を異方的に運動する様子が観察された。このチューブが駆動している最中に DMPC のゲル-液晶相転移の転移温度(24°C)をまたぐ温度変化(26°C→23°C, 10°C/min)を与えたところ、チューブは異方的な運動を示さなくなった。このとき、チューブの形状を保ったまま運動が止まる場合と、チューブが自発的に丸まって運動が止まる場合が観察された。この状態から温度を上昇(23°C→26°C, 10°C/min)させたところ、再びチューブ状となって異方的な運動を示した。我々はこのチューブ状のリン脂質膜が駆動するメカニズムを、膜の溶解によって発生したミセルがチューブ周囲に異方的に分布することによって生じると考えている(2)。リン脂質膜がゲル相のときに駆動現象が抑制されるのは、膜分子同士のパッキングが密になり、液晶相の場合と比べて溶解が抑制されることでミセルの生成が抑制されるためと考えている。

【参考文献】

- (1) M. M. Hanczyc *et al*, *J. AM. CHEM. SOC.*, **129**, 9386 (2007)
- (2) S. Michelin *et al*, *Phys. Fluids*, **25**, 061701 (2013)

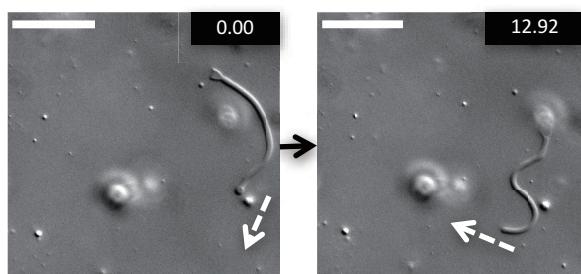


図1, DMPCチューブ状凝集体の駆動。微分干渉顕微鏡画像。右上の数字は動画取得開始時からの相対時間(秒)を、白矢印は運動方向を表す。
Scale bar = 50 μm

コレステリック液晶電気対流パターンの3次元観察

(九大院理) 高田哲弘、木村康之

【はじめに】

負の誘電異方性を有するネマチック液晶に閾値以上の交流電圧を印加すると、ある閾値電圧で対流が発生し、様々な対流パターンが現れる。一方、光学活性を有するコレステリック液晶では、分子配向に空間的なねじれを伴うために、ネマチック液晶とは異なるパターンの遷移が起こることが偏光顕微鏡を用いた観察で明らかにされている⁽¹⁾。しかし、コレステリック液晶の電気対流の3次元的な構造は直接観察されておらず、そのパターンの遷移過程の詳細は不明であった。本研究では、ネマチック液晶に少量の光学活性体を加えて作成したコレステリック液晶を用い、蛍光共焦点偏光顕微鏡(FCPM)により電気対流の3次元構造観察を行った。

【結果と考察】

FCPM法⁽²⁾は蛍光共焦点顕微鏡と偏光顕微鏡の性質を合わせ持つために、液晶の配向状態を高い空間分解能で3次元的に観察することが可能となる。液晶の配向状態の変化を蛍光強度として観測することを可能にするため、ゲストホスト効果を用いて液晶分子と平行に配向する蛍光色素を試料に添加した。電場を印加しない状態でコレステリック液晶はらせん状に配向方向がねじれているために、FCPMを用いて観察すると図1のような基盤に平行な縞状パターンが観測される。電圧上昇に伴い厚さ方向に図2、3のような特徴的な折り畳み構造が出現することが明らかとなった。また、試料に粒子を分散し、対流そのものの観察も行った。

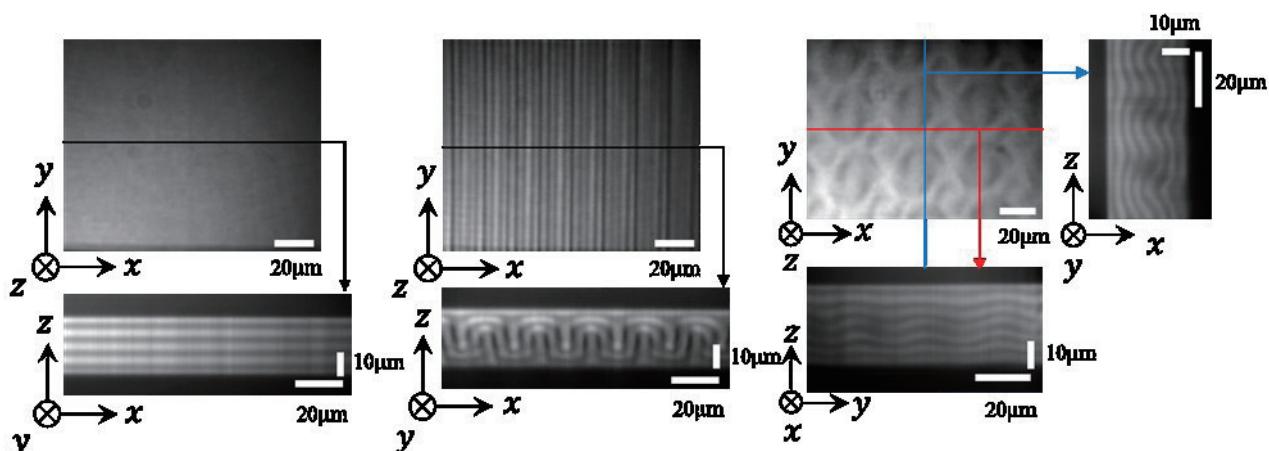


図1. 無電場での FCPM 像

図2. ストライプパターン
の FCPM 像

図3. グリッドパターン
の FCPM 像

【参考文献】

- (1) S. Kai and K. Hirakawa: J. Phys. Soc. Jpn., **56**, 502 (1987)
- (2) I. Smalyukh, S. V. Shlyanovskii, O. D. Lavrentovich: Chem. Phys. Lett., **336**, 88 (2001)

液晶液滴のマランゴニ対流による自発的な運動と液滴サイズ依存性

(九大院理) 菅 真梨子、木村 康之

【はじめに】

界面活性剤溶液中に液晶液滴を分散させると、マランゴニ対流によって駆動された液滴が、溶液中を複雑な軌道を描いて自己推進することが近年報告されている。例えば、ネマチック液晶液滴では、三次元でのらせん運動が観察されている[1]。コレステリック液晶液滴では比較的小さな液滴で液滴の縞模様と垂直な方向に駆動されていくことが観察されている[2]。これらの先行研究では、液晶液滴の自発的な運動や、液滴の内部構造の観察などが報告されているが、ある一定のサイズのみの報告になっている。本研究では、ネマチック液晶液滴とコレステリック液晶液滴の液滴サイズを変化させたときの挙動の違いと、キラル物質の濃度を変化させた場合のコレステリック液滴の挙動の違いを観察したので報告する。

【実験方法と結果】

実験では、界面活性剤 TTAB 水溶液中に、液晶液滴を分散させた。ネマチック液晶液滴は水にネマチック液晶 5CB を分散させて作成した。コレステリック液晶はネマチック液晶 5CB にキラル剤を混入し作成した。図 1 に、溶媒中に分散させた粒径 $15 \mu\text{m}$ のコレステリック液晶液滴の例を示す。キラル剤の濃度を調節してコレステリックのピッチが数ミクロンになるようにしており、半ピッチに対応した縞模様が観測できる。また、図 2 に溶媒中にネマチック液晶液滴を分散させたときの軌跡の例を示す。先行研究と同様に直線的な並進運動とそれを軸とするような回転運動をともに示すことがわかる。サイズ依存性の詳細は当日報告する。



図 1 界面活性剤溶液に分散させたコレステリック液晶液滴。
スケールバーは $10 \mu\text{m}$ 。

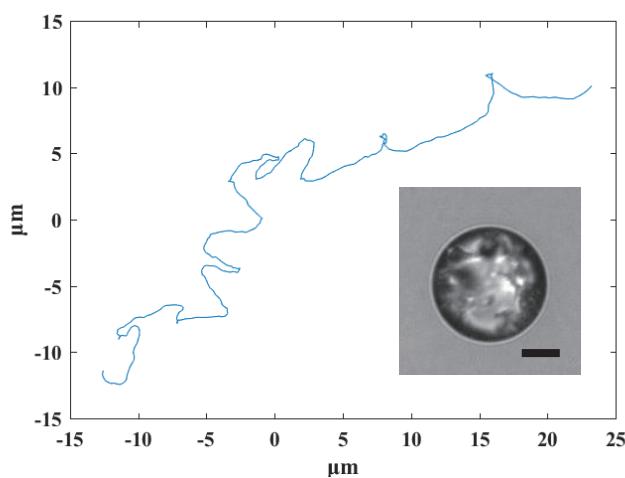


図 2 ネマチック液晶液滴の軌跡
とネマチック液晶液滴。スケール
バーは $10 \mu\text{m}$ 。

【参考文献】

- (1) K. Carsten *et al.* Phys. Rev. Lett. 117, 048003 (2016)
- (2) T Yamamoto *et al.* arXiv.1604.00298v1 (2016)

光応答性液晶デンドリマーの吸着界面におけるダイナミクス観察

(理化学研究所・創発物性科学研究センター) 謝 晓晨・荒岡 史人

【はじめに】

光応答性材料、特に分子性材料の中で、とりわけ精力的に研究されている分子群の一つにアゾベンゼン基(Ph-N=N-Ph)を持つ化合物がある。通常、アゾ基周辺の $\pi-\pi^*$ 遷移帯が紫外(UV)光により光励起されると、トランス体からシス体への構造異性化が起こる。その結果、トランス体とシス体との間で、エンタルピーの違いからミクロな構造フラストレーションが累積し、バルクの物性が大きく変化する。この異性化は可逆であり、シス体からトランス体への異性化は可視光による $n-\pi^*$ 遷移の励起により引き起すことができる。したがって、異性化に伴う物性変化を可逆的に制御できる点が大きな魅力であるほか、多くの場合、分子スケールの変化がマクロな形状・物性の変化として観測できる。このことから化学・エレクトロニクス・情報技術・医療など、様々な分野において注目を集めている。たとえば、アゾベンゼンを利用したポリマーは光応答性アクチュエータや分子ピンセットなどの機能性デバイス材料として提案されている。また、液晶の配向膜に用いることで、光ラビングやコマンドサーフェスなどが実現されてきている。

ここ数十年、アゾ化合物に関する研究は基礎・応用の両面から大きく発展した。特に分光学を中心とした光異性化に際する分子ダイナミクスについては多くのことが解明されてきている。しかしながら、分子スケールと巨視スケールの間、つまりメソスコピックスケールと呼ばれる中間領域の階層秩序のダイナミクスの理解が急務であるといえる。これは特に、光応答をコントロールする際に、物質の示す過渡挙動をあらゆる空間スケールにおいて理解する必要があるためである。

山形大学の米竹と羽場らは、ドーパントとして用いることでガラス基板に自己吸着しホスト液晶に自発的な垂直配向をもたらす液晶性デンドリマーを開発した[1]。さらに、デンドリマー側鎖にアゾ基を導入することで、光刺激により液晶の配向を水平と垂直の間でスイッチングさせることができるユニークな特性を持たせることができる[2]。本発表は、本系において光応答の際に、界面分子が作る階層的な秩序が光刺激に対してどのように変化するのかについて調べた。

【結果】

5CB と液晶性アゾデンドリマー(AzD6)の混合物を基板(ガラス・シリコン・配向膜表面など)に塗布し、その後に 5CB をイソプロピルアルコール(IPA)で除去した。AzD6 は IPA に不溶であるため、界面に形成した自己吸着膜はそのまま残存する。この吸着膜の光照射下におけるモルフォロジカルな挙動を高速原子間力顕微鏡(時間分解能:0.1s)で観察した。この動的な観察結果と各種分光測定および X 線回折から得た、分子レベルの過渡的構造変化を比較し、検討を行った。具体的には、AzD6 吸着膜は当初均一な層状構造をなすが、UV 光を照射することで、光異性化とともに自発的に基板から離脱過程が見て取れた。

【参考文献】

- [1] W. Li et al., *Macromolecules*, 45, 6618 (2012).
- [2] Y. Momoi et al., *Journal of the SID*, 20, 486 (2012).

水素結合性主鎖型高分子メソゲンの配向挙動と極性分子の添加効果

(大分大工) 渡邊太喜, 那谷雅則, 富高詩織, 岩見裕子, 氏家誠司

【はじめに】

ポリウレタンは、低温特性に優れた柔軟性に富む高分子である。このポリウレタンの構成単位にメソゲン基を導入した主鎖型高分子液晶は、メソゲン基間の相互作用とウレタン結合部位間の水素結合形成によって、その特性が強く影響される。特にウレタン結合部位間に形成される水素結合は、結晶性やメソゲン基の配列形成に影響を与えるため、その制御は分子配向構造の制御において重要である。最近、アミノ基を構成成分とする液晶ポリアミノウレタンが報告された(1)。本研究では、水素結合性高分子である液晶ポリウレタンとして、新しいタイプである液晶ポリアミノウレタンを合成し、それらの熱的性質、光応答性および極性分子との混合による液晶挙動について調べた。ここでは、これらの成果について報告する。

【結果と考察】

液晶ポリアミノウレタンは、アミノ基を有するメソゲンモノマーとジイソシアナートとの重付加反応によって得られた。合成した3種類の液晶ポリアミノウレタンの分子量 (M_n) は、9000, 21000 および 45000 であった。これらの液晶ポリアミノウレタンは、昇降温過程でネマチック相（シュリーレン組織）を形成した。液晶ポリアミノウレタンの溶融状態から紡糸（液晶紡糸）することによって、纖維試料を得た。この液晶温度範囲での紡糸によって得た纖維試料は、直交ニコル下で回転させると 45° おきに消光位と対角位に対応して、明暗が明瞭に観測され、紡糸によって纖維軸方向に配向したことが確認された。この纖維試料とキャストフィルム試料は、室温下で紫外線を照射すると光源方向に湾曲した。これは、高分子骨格主鎖に含まれるアゾベンゼンメソゲン基が紫外線照射によって、トランスマゼンゼンからシスマゼンゼンへ異性化することに起因する。この光応答は可逆的であり、繰り返し応答が可能であった。

液晶ポリアミノウレタンは、極性分子（ニトロアゾベンゼン誘導体）と混和性を示した。液晶ポリアミノウレタンと極性分子との接触試験では、接触部分にスメクチック A 相が誘起されることが観測された。液晶ポリアミノウレタンおよび極性分子は、いずれもネマチック相のみを形成し、スメクチック相を示さなかった。誘起スメクチック A 相の形成は、液晶ポリアミノウレタンのメソゲン基が極性分子のメソゲン基と相互作用した結果であると考えられる。混合液晶での誘起スメクチック相の形成は、ポリメタクリレートメソゲンおよびポリカルボナートメソゲンそれぞれに極性分子を添加した場合でも観測されており、本研究における結果はこれに一致する(2)。

また、液晶コポリアミノウレタンも合成し、それらの液晶挙動について調べた。液晶コポリアミノウレタンは、ガラス転移およびネマチック等方相転移を明瞭に示し、ネマチック相を形成した。ネマチック相において、シュリーレンが形成され、ガラス転移温度以下の温度域で、変化せずに保持された。

【参考文献】

- (1) Ujiie, S., Shimada, G., & Nata, M. (2015) *Chem. Lett.*, 41, 351-353.
- (2) Ujiie, S., & Kojo, T. (2012) *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, 563, 75.

液晶電気対流により誘起された自発せん断流れと履歴曲線

(¹北大院工、²大分大工、³別府大短期大学部、⁴九大院工)

○¹原田祐子・¹佐々木裕司・¹藤井修治・¹折原宏・

²佐藤裕樹・²長屋智之・^{2,3}後藤善友・⁴日高芳樹

【はじめに】

我々は、レオメーターの平行平板間に挟んだネマチック液晶に電場を印加し、液晶電気対流を発生させると、円盤が自発的に回転する現象をすでに見出しているが、今回、せん断応力とせん断速度の関係を負の領域を含めて測定したところ、これらの量の間に強磁性体や強誘電体などで見られる履歴曲線が観測されたので、その詳細を報告する。

試料として負の誘電異方性を持つネマチック液晶 MBBA(N-(4-ブチルフェニル)-4-メトキシベンゼンメタンイミン)を用いた。治具には直径 35mm の金属製円盤および観測用に直径 40mm のガラス円盤 (ITO 付) を用い、ギャップはどちらも 0.1mm に設定した。測定は、せん断応力制御およびせん断速度制御により負から正へ線型的に増加させた後、正から負へ減少させた。このような測定を電圧を変えながら (0V, 67V, 95V, 116V, 134V, 150V) 繰り返し行なった。

【結果と考察】

せん断応力制御およびせん断速度制御におけるせん断応力 τ とせん断速度 γ の関係をそれぞれ Fig.1(a) および(b) に示す。せん断応力制御では、無電場下を除き強磁性体や強誘電体で見られる履歴曲線が現れている。ループは電圧の増加とともに広がっている。第 2 および 4 象限では応力とせん断速度の符号が異なっており、これは通常の粘性抵抗ではなく、回転を助長する負のせん断応力あるいは負の粘性抵抗が存在することを示唆している。

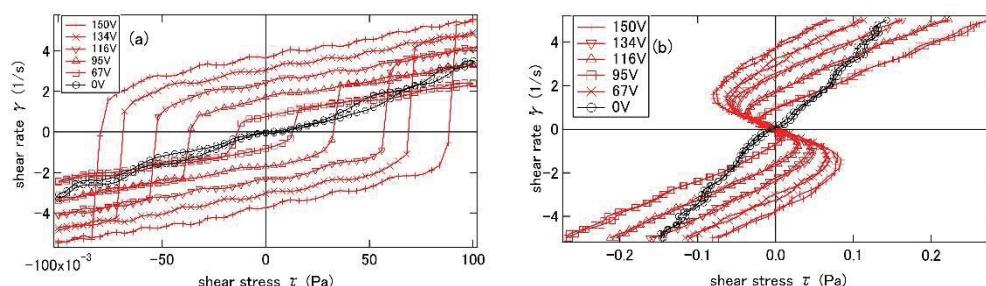


Fig.1 Plots of shear stress vs. shear rate at different voltages under (a) stress control and (b) shear rate control.

一方、せん断速度制御の結果では、無電場下を除き、S 字カーブが観測されており、原点附近では負の粘度が発生していることが明確にわかる。原点の傾きに着目すると、電場印加時では傾きは電場の大きさに依存していないのが特徴である。さらに、せん断応力およびせん

断速度を $\varepsilon_0 |\Delta\epsilon| E^2$ (ε_0 : 真空の誘電率、 $\Delta\epsilon$: 誘電率異方性、 E : 電場) でスケールすると電圧の異

なるデータ点がすべて一本の曲線上に乗り、スケーリング関係が見出された。詳細は研究会で報告する。

歪み誘起不安定機構による線形粘弾性体の疲労破壊シミュレーション

(東大生研) 黒谷 雄司・田中 肇

【はじめに】

高分子固体（樹脂・ゴム），接着剤，粘着剤等における外部力学入力に対する破壊機構の理解は，工業的に重要だと考えられる。しかし，これらの粘弾性体材料はアモルファス構造を持つために，その破壊機構の理解は，金属材料を中心に発展した破壊力学だけでは困難と考えられる。これらの粘弾性体材料の破壊機構を説明し得る理論の一つとして，歪み誘起不安定化機構が提案されており，本理論を用いると PMMA 樹脂に対するせん断入力下での破壊歪みのしきい値を説明できることが知られている[1]。特に本理論は，系の緩和時間とせん断率の積で定義される Weissenberg 数が 1 よりも小さい場合に起きる破壊現象を説明できる。

本報告では，本理論に基づく単純せん断歪み入力下での疲労破壊シミュレーションを行った。

【結果と考察】

構成方程式が Upper convective Maxwell モデルに従う線形粘弾性体を仮定し，その弾性率及び粘性率の密度依存性を持つ場合の破壊シミュレーションを実施した。特に，周期的に正弦振動を与え続けた場合の脆性破壊過程を観察した。その結果，正弦振動の振幅が，上記理論から求まる臨界歪み値を超えている場合，十分長時間経つと系が破壊に至ることが確認できた。

上記の臨界歪み値は，（正弦入力でない）せん断率一定のせん断入力を与えた場合に得られる応力歪み曲線上では，Hookean 的な挙動を示す歪み領域であることに注意すべきである。すなわち，本シミュレーション結果はマクロに観察される応力歪み曲線では破壊の兆候が一見観察されない場合でも，系内部ではミクロな破壊が進行している事を意味する。これらの結果は，しばしば工業的に重要な疲労破壊の物理機構に対して有用な知見を与える可能性がある。

【参考文献】

- [1] A. Furukawa and H. Tanaka, Nature Mater. **8**, 601 (2009).

ネマチック液晶中の微粒子のブラウン運動と配向ゆらぎの同時測定

(北大院工) ○櫻井信孝 佐々木裕司 折原宏
 (大分大工) 長屋智之

【はじめに】

液晶の配向と流れの間に相関があることは、マクロな流れに対しては良く知られており、この事実を示す多くの実験がなされている。熱平衡にあるミクロなゆらぎに対しても、これらの間には相関があるはずであるが、実験的検証は行われていないようである。そこで、本研究では配向場のゆらぎと液晶中に分散させた微粒子のブラウン運動とを同時に観察し、熱平衡系においてもこれらの間に相関があることを示した。

【結果と考察】

液晶中に蛍光微粒子を分散させ、水平配向処理をした厚さ $13\mu\text{m}$ のセルに注入した。光ピンセットで弱くトラップした蛍光微粒子の蛍光観測と配向場の偏光顕微鏡観測を同時に行つた。ダイレクターの変化は明暗の変化として観測することができる。偏光子の手前にバンドパスフィルターを置くことで入射光の波長を 550nm にした。このことにより、セル厚方向に一波長をもつゆらぎのモードが観測される。

配向場のゆらぎと流れ速度のゆらぎの相関を考察する。図 1 に示すように、 y 方向に進むと向きが変化する x 方向の流れ（青い矢印）がある場合、ダイレクターは速度勾配が最大（速度ゼロ）のところで最も傾くと考えられる。一方、流れ速度最大のところではダイレクターは y 方向を向き、ダイレクターの y 方向に関する変化率は最大になる。粒子が動くのは後者の場合であるので、ダイレクターの y 方向の変化率（ダイレクターの傾き角の y に関する微分）と粒子の x 座標は相関があると予想される。これはエリクセンーレスリー理論から導くことができる。ここでは、各時刻における粒子のまわりの強度の y 方向微分 g_y を強度のフーリエ級数から求めダイレクターの変化率とした。粒子のトラップする高さを変えたときの相関関数 $C(t) = \langle (g_y(t) - g_y(0))(x(t) - x(0)) \rangle$ を図 2 に示す。トラップする高さによって相関関数のグラフが異なっていることがわかる。これは観測しているモードのダイレクターの傾きが高さにより異なるためである。これより、平衡系におけるゆらぎにおいても配向場と流れ場に結合があることが実証された。

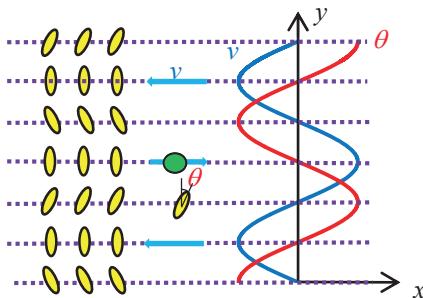


図 1. 配向と流れの関係

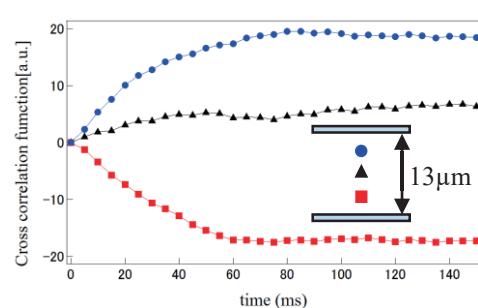


図 2. 粒子の変位とダイレクターのラビング方向の勾配との相関関数

DNA assisted control of swarming of a biomolecular motor system

J. J. KEYA¹, A. M. R. KABIR², D. INOUE², K. SADA^{1, 2}, A. KUZUYA³, and
A. KAKUGO^{1, 2}

¹Grad. Sch. of Chem. Sci. and Eng., Hokkaido Univ, ²Fac. of Sci., Hokkaido Univ.,
Sapporo 060-0810, Japan, ³Fac. of Chem. and Bioeng., Kansai Univ., Osaka,
564-8680, Japan

[Introduction]

Swarming, a collective behavior observed in living organisms, emerges some unexpected functions which cannot be achieved by a single organism [1]. Being inspired from nature, construction of swarm robots with artificial swarm intelligence is rapidly growing. To widely apply the concept at higher scalability, designing of robots at the molecular level with sufficiently powered actuator and task selective processor is desired. Latest technological advancements permit the fabrication of functional molecules which can be used as molecular devices [2]. In this work, we used biomolecular motor protein kinesin as swarming molecular actuator which can propel microtubules (MTs) in an *in vitro* motility assay. We controlled the swarming of MTs using a highly selective and programmable material DNA to operate the logical operations.

[Results and discussions]

To demonstrate swarming, the molecular devices were constructed by conjugating DNA strands to the MTs through copper free click reaction. The bioactivity of DNA-MTs was confirmed from their motility on kinesin which was observed by epifluorescence microscopy. The swarming of MTs was controlled through reversible AND logic gate operation by input DNA signals which was monitored from the resulted yellow color of groups of MTs formed by the self-assembly of red and green colored single DNA-MTs (Fig. 1) and their reversible dissociation of swarm pattern into single DNA-MTs. Tuning of mode of motion was possible from translational to rotational by changing the length and rigidity of MTs. Using high selectivity of DNA molecules and their hybridization property, orthogonal swarming of the DNA-MTs of different patterns was demonstrated. This work would benefit the development of swarm robotics at molecular level in near future.

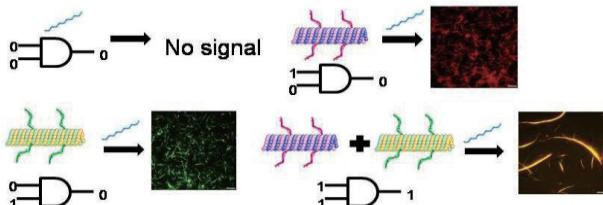


Fig 1. Control of swarming by logic gate operation.

[References]

- (1) Bonabeau E., Dorigo M., Theraulaz G. Oxford: Oxford University Press; 1999.
- (2) Seeman N. C. Trends Biotechnol. 1999, 17, 437-443.

高分子結晶化の初期過程における密度と配向の関係

(東北大院理) 横田 宏, 川勝年洋

【はじめに】

高分子メルトを冷却すると単純な結晶にはならず、図1に示すような階層構造をもつ固体が現れる。このような固体を高分子結晶と呼ぶが、その結晶化の初期過程については20年近くにわたって議論がなされてきた。

X線散乱実験によれば、初期過程において、spinodal分解が起こることを示唆している報告[2]と核生成による秩序化を支持する報告[3]とともに提出されている。これらの報告は対立する結果を示しており、初期過程の秩序化の機構について、明快な結論が提出されていない。

前回の発表[4]において、我々は、転送行列を用いて記述される高分子理想系をreferenceとして、乱雑位相近似によって高分子メルトの配向の相關関数を評価した。このことにより、spinodal分解を引き起こす起源が高分子の硬さとネマティック相互作用にあることを明らかにしたが、spinodal点と高分子の硬さとの定量的な関係を明示しておらず、密度と配向のカップリングについても議論は行っていなかった。

【結果と考察】

我々は、前回の発表では定量的な議論がなされていなかったspinodal点(spinodal分解を引き起こすために必要なネマティック相互作用係数 $-V_s$)と高分子の硬さを表すパラメータであるgaucheエネルギー ε_g とtransエネルギー ε_t の差との関係を明らかにした。これらの二つのパラメータの間には図2に示すような関係が存在する。ここで、 $f(N)$ はボンド数 N を変数とする関数である。

本発表では、このspinodal点と高分子の硬さとの関係の詳細と繰り込み群を用いて導かれる配向と密度の関係について紹介する。

【参考文献】

- (1) S.Milner, *Soft Matter*, 2011, **7**, 2909.
- (2) M.Imai, K.Kaji and T.Kanaya, *Macromolecules*, 1994, **27**, 7103.
- (3) Z.Wang, et al., *Macromolecules*, 2000, **33**, 978.
- (4) 横田 宏 川勝 年洋, 第五回ソフトマター研究会要旨集, 2015.

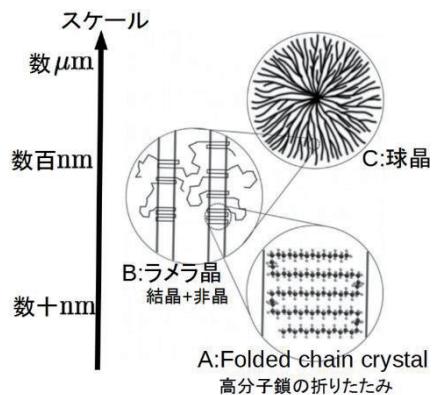


図1 高分子結晶の階層構造(文献[1]より引用)

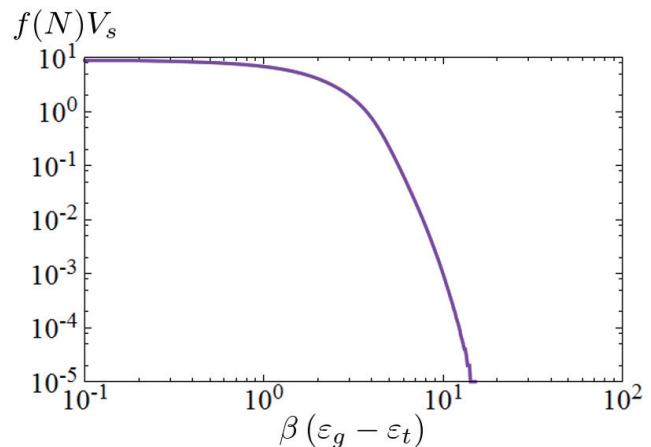


図2 Spinodal点と高分子の硬さとの関係。

生体外における纖毛構造の再現および運動性制御

(¹北大院総化、²北大院理) 佐々木 廉¹、和田 将輝¹、井上 大介¹、
Arif Md. Rashedul Kabir²、佐田 和己^{1, 2}、角五 彰^{1, 2}

【はじめに】

微小管/キネシン系に代表される生体分子モーターはアデノシン三リン酸(ATP)の加水分解により得られる化学エネルギーを運動エネルギーへと変換するタンパク質である。これらのタンパク質はナノサイズでありながら 100% 近い優れた運動効率を有しており、ナノデバイスへの応用が期待されている。これまでにキネシンを固定した基板上において微小管の並進運動を観察する手法である *in vitro* motility assay を基盤として盛んに研究が行われてきたが、この手法では基板の支持が必要とされるため、生体分子モーターの駆動領域が二次元基板上に限定されてきた[1]。一方で自然界にはゾウリムシのように水中を自由に遊泳する水生生物が多数存在する[2]。この運動は生体分子モーターにより構成される纖毛の波打ち運動により可能とされている。本研究では生体外において微小管とキネシンを組み上げることで纖毛を模倣した構造をポリスチレンビーズ表面にて再現し、その運動の発現に成功した。さらに自己推進型の運動素子としての応用を目指し、運動性の向上を試みたので報告する。

【結果と考察】

アミノ基の修飾されたポリスチレンビーズを担体として選択し、表面にアルキンを含有したジベンジルシクロオクチン(DBCO)基を修飾した。その後、アジド基の修飾された短い微小管(seed 微小管)を混合し、クリック反応によりポリスチレンビーズ表面へ seed 微小管を固定化した。最後に seed 微小管を重合の開始点と

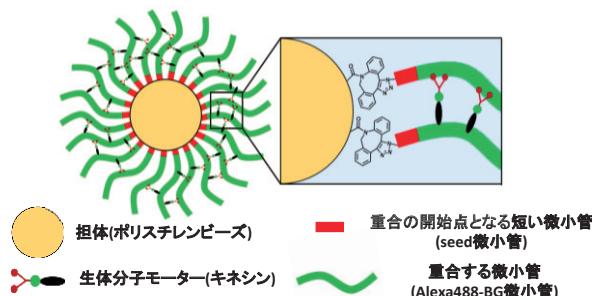


図 1 運動素子の設計

して微小管を伸長した。このとき、伸長する微小管中にベンジルグアニン(BG)を修飾することで BG と特異的に反応する SNAP-tag を有する SNAP-キネシンを微小管中へ固定化することを可能とした。蛍光顕微鏡を用いて人工纖毛の構築を確認した後、ATP を加えたところ、人工纖毛の運動の発現が確認された。観察された運動の周波数を角速度から算出した結果、約 0.01Hz であった。さらに運動性を向上させるため、系中にメチルセルロースを加えることで粘着力により微小管同士の協調性を向上させることを試みた。その結果、加えるメチルセルロース濃度を変化させることで人工纖毛の運動性の制御が可能であることが明らかとなった。さらに人工纖毛を構成する微小管の長さによっても運動性の制御が可能であることが明らかとなった。

【参考文献】

- [1] Tamura, Y.; Kawamura, R.; Shikinaka, K.; Kakugo, A.; Osada, Y.; Gong, J. P.; Mayama, H. *Soft Matter* 2011, 7, 5654.
- [2] P. Recho, T. Putelat, L. Truskinovsky, *J. Mech. Phys. Solids*, 2015, 84, 469.

Effect of Mechanical Deformation of Microtubule on Motor Protein-based Cargo Transportation

Tanjina AFRIN¹, Arif Md. Rashedul KABIR², Daisuke INOUE², Kazuki SADA^{1,2},
Akira KAKUGO^{1,2}

Graduate School of Chemical Sciences and Engineering, Hokkaido University, Japan¹,
Faculty of Science, Hokkaido University, Japan²

[Introduction]

Mechanical stress has profound influence on many biological processes. Recently biomolecular motor driven intracellular transportation, an indispensable cellular event to living organisms where microtubules (MTs) serve as the rail and MT-associated motor proteins work as a transporter, has been reported to be modulated by mechanical stress [1]. But how MTs are able to take part in mechanoregulation of associated cellular processes and whether MTs themselves can serve as mechanosensor remain illusive yet. Here we develop a system that allows investigating the response of MTs to compressive mechanical stress [2]. By monitoring motor protein driven transportation of cargo along deformed MT we unveil the effect of compressive stress on the dynamics of transportation by motor protein.

[Results and Discussion]

We have systematically investigated the impact of compressive stress induced MT deformation, i.e. buckling, on the motor protein-based transportation of Quantum dot as cargo. The kinesin driven transportation is significantly retarded by the buckling of MTs (Fig.1). There exists a critical strain (25%) for MTs beyond which the kinesin driven transportation is substantially affected. For MTs deformed by relatively low compressive strain the transportation could be reinstated on release of the compressive strain, which was not successful beyond the critical strain (Fig.1). Interestingly, the binding affinity of kinesin for the buckled MTs was found stronger compared to that for undeformed MTs indicates that depending on the mechanical state MTs may have variable affinity states for kinesins. When dynein was used Qdot transportation was found to be accelerated along the buckled MT track which indicates that the effect of MT deformation is not universal. Collectively all these results clearly reveal that MTs can work as a mechanosensor. This work will help understand the modulation of intracellular transportation by mechanical stress in cells and may shed light on the roles of biomolecular motor systems in cellular mechano-transduction.

[References]

- (1) Ahmed, W. W. & Saif, T. A. *Sci. Rep.* 4: 4481, DOI: 10.1038/srep04481 (2014).
- (2) Kabir, A. M. R., Inoue, D., Afrin, T., Mayama. H., Sada. K. & Kakugo, A. *Sci. Rep.* 5:17222, DOI: 10.1038/srep17222 (2015).

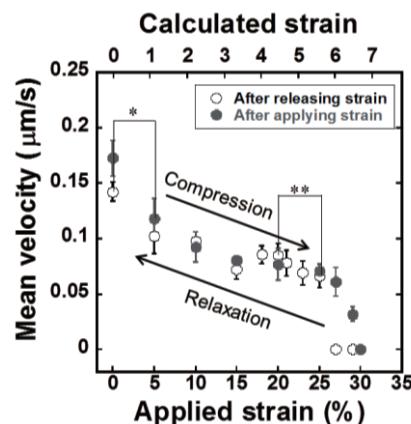


Fig. 1 Retardation and restoration of kinesin driven transportation along buckled MTs applying (closed circle) and releasing (open circle) compressive strains respectively. Error bar: standard error. * & ** represent student t-test significance at $P < 0.05$ and $P < 0.10$ respectively.

ヤヌス粒子構造体の局所表面プラズモン共鳴

(九州大学大学院理学府物理学専攻) 吉原 公貴

Au 等の金属ナノ粒子/構造体の自由電子は、可視 - 赤外程度の波長の電磁波に対し共鳴的な応答（局所表面プラズモン共鳴、LSPR）を示す。LSPR はナノスケールでの高度な光制御を可能にし、様々な機能材料へと応用されている。

LSPR の制御には、金属のナノ構造を自由にデザインすることが必要となる。その手法として、微細加工と比べ、簡便さ・構造の大規模化などにおいて大きな利点がある自己組織化を利用したものが知られている：球状シリカ粒子の密充填モノレイヤーを自己組織的に形成し、その上に金属を蒸着することで半球の金属膜を持つ粒子（ヤヌス粒子）が整列した構造が形成される。この構造は金属膜間のギャップにおいて粒径に依存した LSPR 応答を示すが⁽¹⁾、一方で金属膜の構造は一般に成膜条件に大きく依存する。そこで、(i) 粒子の表面物性、蒸着速度などの条件を変えて Au を成膜し、形成される金属膜の構造と LSPR 応答の関係を解明する。また、この手法は微粒子の自己組織化構造をテンプレートに用いているが、このような金属 - 誘電体ヤヌス粒子は熱平衡状態において特徴的な構造を形成し得る⁽²⁾。この時、この構造を温度や外場などによって動的に制御することができ、従来の静的な構造とは全く異なる LSPR 系と成り得る。そこで、今回は (ii) モノレイヤーの状態で LSPR 応答を示す粒子を用いて平衡構造を形成し、その構造を実際に動的に制御することを目指す。

研究①：図 1(a)は異なる条件で作成した Au 膜の例である。全体的に、粒子表面にチオールを形成し、高蒸着速度・高真空で製膜すると図 1(a)のような綺麗な半球面状の Au 膜ができる、スペクトル測定を行うと特有の LSPR 応答が見られた。一方、逆の条件では図 1(b)のように膜表面の凹凸が大きく、隣接する粒子の膜どうしも結合してしまい、特有の LSPR 応答は見られなかった。このように、成膜条件および膜の構造と LSPR 応答の関連が分かった。
研究②：温度によって粒子間相互作用を制御できる溶媒に粒子を分散させた（図 2(a)）。すると、引力の大きさにより凝集体のサイズを可逆的に制御することに成功した。このとき、図 2(b)のように金属膜を内側にした 1 次元上の構造体が自己組織的に形成されている。

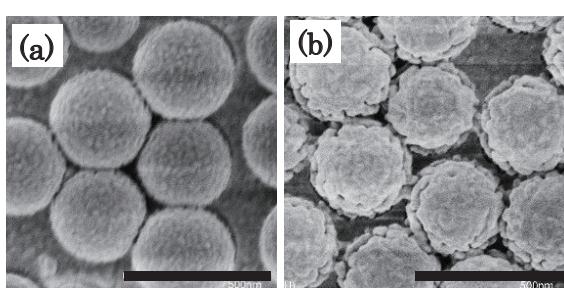


図 1. SEM 画像：(a)粒子表面にチオール基を形成し、高い蒸着レートで金を蒸着した。(b)表面にチオール基を形成していない粒子に低い蒸着レートで金を蒸着した。（粒子の粒径は 330 nm、Au 膜の厚さは 50 nm）スケールバーの長さは、500 nm。

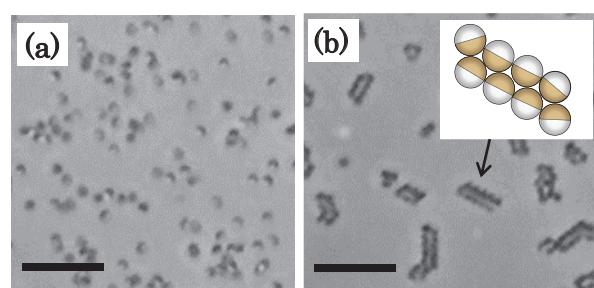


図 2. 光学画像：(a)ヤヌス粒子の分散状態と(b)凝集状態。（粒子の粒径は 700 nm、Au 膜の厚さは 40 nm）スケールバーの長さは、2 μm。

【参考文献】

- (1) K. Sugawa, T. Tamura, H. Tahara et al. *ACS Nano* 2013. 7(11), 9997-10010.
- (2) Y. Iwashita and Y. Kimura *Soft Matter* 2013. 9 10694-10698.

回転ドラムを用いた粉粒体の分離現象

(九大院理) 大石隼道、稻垣紫緒

【はじめに】

回転ドラムにおける粉粒体の分離現象とは、水平に置いた円筒容器にサイズや種類の異なる2つの物質を混合した状態で入れて容器を回転させると、軸方向にそれぞれの粒子が分離し縞模様を形成するという現象である。

この分離現象の持つ特徴として、部分充填で実験を行うと、表面に見えるバンドが時間の経過とともに結合していくその数が減少する様子（単調緩和）が見られる(1)のに対し、高充填ではサイズの大きい粒子によるバンドが何度も湧き出す様子が観察される(2)ことが知られている。またそれぞれの粒子が持つ動的安息角（容器が回転している時に粒子が形成する斜面の角度）の違いが大きいほど分離が起こりやすいこと(3)、そして表面上の分離と同じように内部でも分離しているわけではないこと(4)などが先行研究で明らかになっている。しかし、先行研究では、充填率や回転速度といったパラメータを体系的に変化させた時の振る舞いの変化や、どうして動的安息角の差で分離が起こるのか、表面と内部構造がどのような関係なのかなどについて詳しく検証した研究はほとんどない。

そこで、動的安息角の回転速度依存性、パラメータを変化させた時に形成されるバンドのダイナミクスの違い、内部構造の観察といった実験的な研究を行った。

【結果と考察】

ポピーシードとバジルシードの組み合わせで実験を行ったところ、部分充填で見られるはずの単調緩和が見られなかった。また、それぞれの粒子の動的安息角に違いがあるにもかかわらず分離が見られないことがあった。次にケイ砂とガーネットサンドの組み合わせでは、表面上の振る舞いはほとんど先行研究通りであったが、充填率と回転速度が共に低い時これまでとは異なる様子が観察された。またそれぞれの粒子が持つ動的安息角にはほとんど差がないにも関わらず、実験が可能なパラメータ領域では全て分離が起こっていた。

以上のことから、動的安息角が回転ドラムにおける分離現象を決める決定的なパラメータではないことが分かった。これからは別の粒子の組み合わせで実験を行っていくことで、どのパラメータが分離現象を決めているのかについて研究ていきたい。

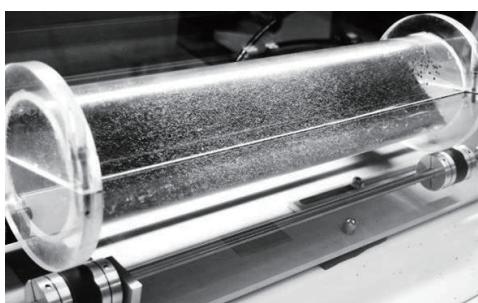
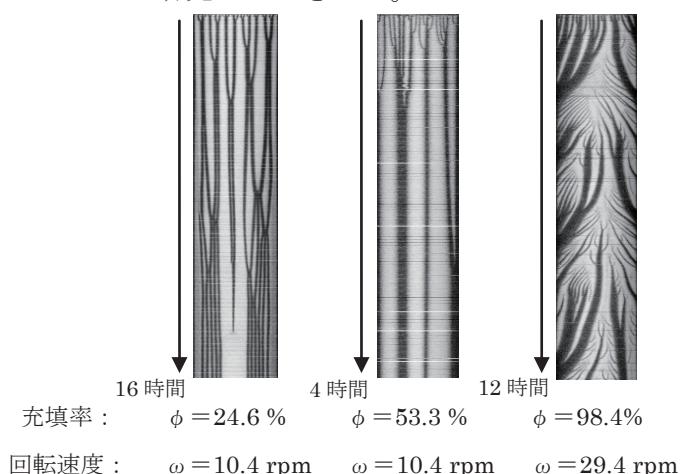


図1：実験セットアップ



【参考文献】

- (1) V. Frette and J. Stavans, *Phys. Rev. E* **56**, 6981 (1997)
- (2) S. Inagaki and K. Yoshikawa, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 118001 (2010)
- (3) O. Zik *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 644 (1994)
- (4) K. M. Hill, A. Capnhan, and J. Kakalios, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 50 (1997)

Rectification mechanism of electroosmotic flow pumps with thin porous polymer membranes driven by alternating electric field

Yoshihito Matsuzaki¹, Yasushi Okumura², Hiroki Higuchi², and Hirotugu Kikuchi²

¹Interdisciplinary Graduate School of Engineering, Kyushu University, Kasuga-koen, Japan

²Institute for Materials Chemistry and Engineering, Kyushu University, Kasuga-koen, Japan
(okumura@cm.kyushu-u.ac.jp)

Introduction

The electroosmotic flow pumps are non-mechanical pumps consisting of a porous material and a pair of electrodes. These pumps have drawn attention from many scientists because of their simple structure (Fig.1). In these pumps, an electric-field-induced current of counter ions, which is forming electric double layer with fixed charge, induces the electroosmotic flow of water within the pores of the porous material. However, generations of gases like hydrogen and oxygen and pH change are caused by electrolysis of water under direct current driving. Recently, alternating current (AC) driven electroosmotic flow pump using track etched membrane, whose zeta potentials on the both surfaces were different, was proposed by us. Since the cross-section of pores through the membrane and profile of applied voltage are symmetric, other asymmetric effect would be responsible for the AC-driven unidirectional electroosmotic flow¹⁾. Track etched membrane with pores of 400 nm, which was made of polycarbonate film with 10 μm thick, was used. By zeta potential meter, asymmetric zeta potentials at both surfaces of the membrane were estimated to be -12.1 mV and -10.5 mV, respectively.

Results and Discussion

We measured Lissajous curves of the membrane sandwiched with a pair of electrodes under AC driving at 25 Hz to evaluate the electrolysis of water that can supply direct current of ion. But, the curves were symmetric without direct current component. The result showed that time-averaging of reciprocating current by counter ion is zero in AC driving.

Asymmetric nature of Zeta potentials and the hydrodynamic radius of the pores were obtained by streaming potential measurements and water-flow measurements under application of water pressure from both sides of the membrane. As shown in Fig. 2, obtained Zeta potentials and hydrodynamic radius were asymmetric. Here, asymmetric hydrodynamic radius indicate that thickness of electric double layers in the pores depend on the direction of pressure applied to the membrane in the streaming potential measurement. It is considered that asymmetric electric double layers on the both side of membrane affected the thickness of electric double layer in the pore also under AC driving. The asymmetric thickness of electric double layers in the pore should have caused asymmetric electroosmotic flow without electrolysis.

Reference

- 1) Manabu Taniguchi, Interdisciplinary Graduate School of Engineering, Kyushu University Master's thesis, 78 (2013).

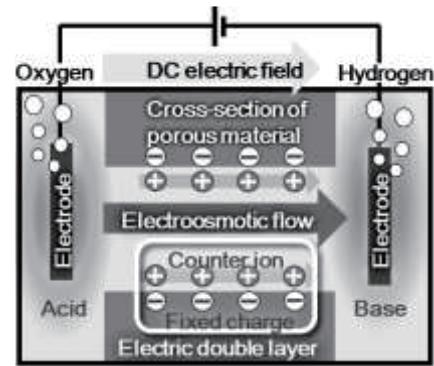


Fig.1. Principle of electroosmotic flow pump

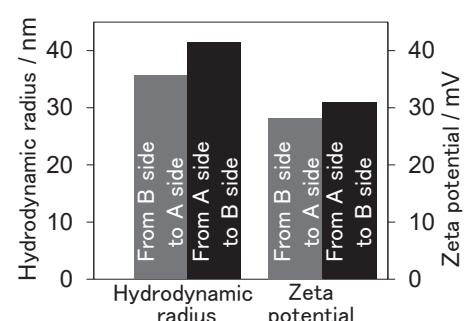


Fig.2. Asymmetric hydrodynamic radii and zeta potentials in track etched membrane obtained by streaming potential measurements.

Sustainable Division in a Model System of Self-Reproducing Vesicles

(Tohoku University) Thomas Boeddeker, Yuka Sakuma, Masayuki Imai

Taking a step towards the understanding of the origin of unicellular life, we investigate the self-reproduction mechanisms in binary giant unilamellar vesicles (GUVs). Following previously reported results on self-reproducing vesicles by our group [1,2], we investigate the extension of reproducibility of the vesicle division and its limiting factors.

The GUVs used in this study consist of inverse-cone-shaped DLPE (1,2-dilauroyl-sn-glycero-3-phosphoethanolamine) and cylindrical DPPC (1,2-dipalmitoyl-sn-glycero-3-phosphocholine). Heating the GUV above the chain melting temperature results in shape deformation to a limiting shape and finally complete budding. Upon cycling the temperature below the transition temperature, the vesicles form a pore to expel excess volume and recover a spherical shape. Iterative heating cycles result in sustainable division of both daughter vesicles. While shape deformation towards the limiting shape can be explained in the framework of area-difference-elasticity (ADE) model, an additional energy term, taking into account changes in local lipid composition is needed to describe vesicle fission. This term is a result of the different lipid's molecular geometry coupling to local Gaussian curvature [3]. Indeed, fission is not observed in single component vesicles.

At the current state of our work, we aim to illuminate the extension of sustainable vesicle division and its limiting factors. A reproducible experimental routine has been established and vesicle division proved to be surprisingly robust with as many as 12 generations observed so far. We find a relationship between the size ratio of two daughter vesicles and the size of the mother vesicle at each division of vesicle. Preliminary data are plotted in Figure 1. While large vesicles tend to bud more asymmetrically and sometimes form multiple buddings, smaller vesicles show a single, more symmetric division until a limiting size is reached, below which further division is not possible. We aim to illuminate the underlying physics of this observation.

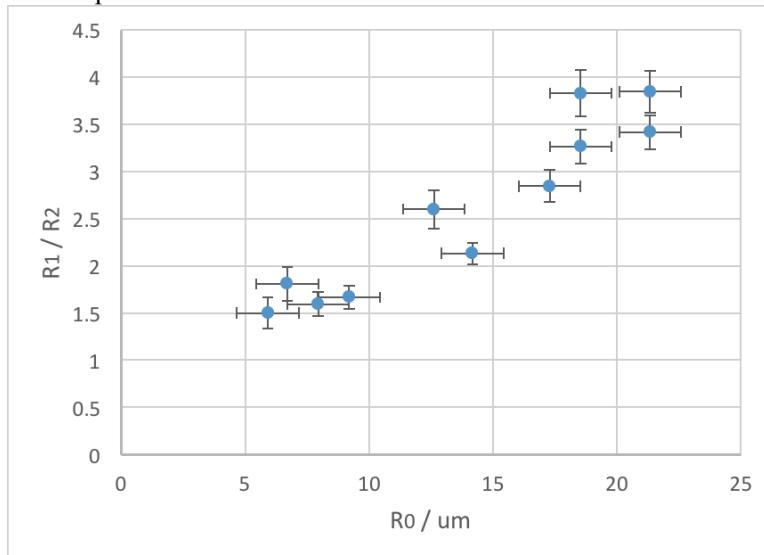


Figure 1: Ratio of larger daughter vesicle radius R_1 and smaller daughter vesicle radius R_2 plotted against the radius of the mother vesicle R_0 .

- [1] Sakuma Y., and Imai M. *Phys. Rev. Lett.* **107**, 198101 (2011).
- [2] Jimbo T., Sakuma Y., Urakami N., Ziherl P., Imai M. *Biophys. J.* **110**, 1551 (2016).
- [3] Chen C.-M., Higgs P.G., MacKintosh F.C. *Phys. Rev. Lett.* **79**, 1579-1582 (1997).

Mechanical Oscillation of Dynamic Microtubule Rings

¹Graduate School of Chemical Sciences and Engineering, Hokkaido University;

²Faculty of Science, Hokkaido University;

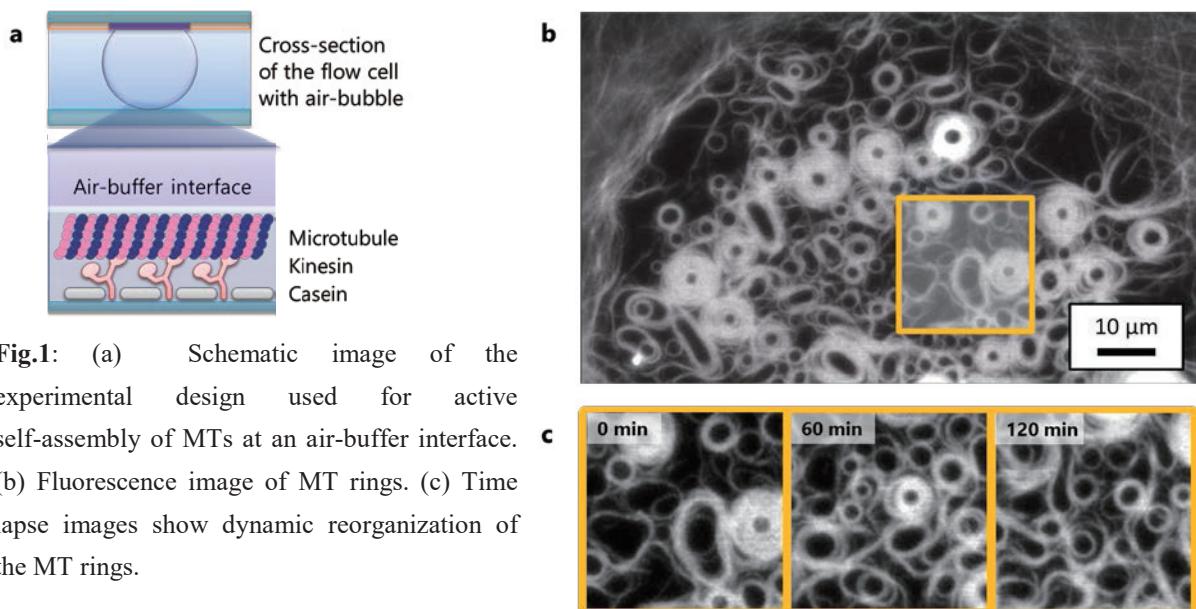
³Department of Computational Intelligence and Systems Science,
Tokyo Institute of Technology)

Masaki Ito¹, Arif Md. Rashedul Kabir², Md. Sirajul Islam¹, Daisuke Inoue², Shoki Wada¹,
Kazuki Sada^{1,2}, Akihiko Konagaya³ and Akira Kakugo^{1,2}

【Introduction】

Mechanical oscillation is a ubiquitous phenomenon observed in living systems, which emerges from a wide range of well-organized self-assembled structures, and plays important roles in many biological processes. We have reported an energy consuming self-assembly process of multiple microtubules (MTs) beneath an air–buffer interface that resulted in MT rings with a narrow size distribution and a high yield [1]. However due to the low mobility of MTs, the process of rings formation was kept unclear.

【Result and Discussion】



In this study, using established inert chamber system (ICS) and newly developed air-buffer control method, we have successfully observed the dynamic conformational transition between MT rings and bundles at the air-buffer interface (Fig.1 a, b). Surprisingly, the circular MT rings were not stable rather they continuously changed their sizes over time (Fig.1 c) and also exhibited autonomous oscillation through changes in size and shape. In this presentation, detailed investigation on the dynamic behaviour of oscillating MT rings will be discussed.

【References】

- [1] Kabir A. M. R. *et al. Soft Matter* 8, 10863. (2012)

コロイド分散系のゲル化に伴う運動凍結の1粒子レベル観察

東大生産研 館野道雄, 田中肇

【はじめに】ゲルとは巨視的スケールで繋がった微視的なエレメントからなる、ネットワーク状の構造物である。食品、生体内組織、緩衝剤など、有機物に極めて多く見られる物質状態で、その構造形成機構の理解は、基礎的にも産業面でも重要である(1)。

コロイド分散系で形成されるゲル状態において、長時間保持されたネットワーク構造は、巨視的には、コロイドリッヂ相と溶媒リッヂ相へのスピノーダル分解型の相分離が動的に凍結された結果形成される非平衡状態として広く認識されている(2)。しかし、このことは同時に、この運動凍結機構にその動的経路の詳細が関わっていることを示唆している。また、この運動凍結機構の巨視的スケールにおける解釈(3)の微視的な背景に関して、共通の理解は得られていないのが現状である。

このことを受けて、我々は、コロイド分散系のゲル化ダイナミクスについて、微視的視点から新たな知見を得るべく、実験的研究を行った。具体的には、共焦点レーザー顕微鏡を用いて、コロイド分散系の3次元構造の時間発展を、1粒子分解能で高速に補足することで、ゲル化過程を詳細に研究した。特に初期のランダムな液体相からゲル状態まで、個々の粒子を連続的に追跡することで、ゲル化に伴う運動凍結の機構を明らかにすることを最大の目標とした。

【結果と考察】その結果、ゲル化ダイナミクスにおける初期の時間領域と運動凍結領域を、明確な形で定義することに成功した。運動凍結前後の粗大化機構を調査したところ、凍結前の粗大化が進行する時間領域においては粒子の凝集に伴いネットワーク構造内部の体積分率が時間と共に上昇すること、また、運動凍結時刻以降は、その機構がコロイド間の立体斥力により阻害される様子が確認された。これらの結果は、ゲル化における巨視的構造緩和のスローダウンの背景に、粒子間引力に駆動された局所的に安定なパッキング状態の確立が重要な役割を演じることを示唆している。

【参考文献】

- (1) J L Drury et al *Biomaterials* 24 4337 (2003); R Mezzenga et al *Nat Matter* 4 729 (2005); M E Helgeson et al *Nat Matter* 11 344 (2012)
- (2) Peter J Lu, et al *Nature* 453 449 (2008)
- (3) E Zaccarelli *J Phys Cond Matt* 19 323101 (2007); V Trappe et al *Nature* 411 772 (2001); J. Sabin et al *Phys Rev Lett* 109 195701 (2012)

微小管集団運動発現への微小管濃度と枯渇力の影響

(北大院総化¹,北大院理²) 斎藤あい¹、鈴木隆平¹、Tamanna Ishrat FARHANA¹、Arif Md. Rashedul KABIR²、佐田和己^{1,2}、角五彰^{1,2}

【はじめに】

群を成す鳥や魚に見られるような集団運動とは、自走する各個体間に相互作用がはたらくことで秩序だった運動を示す現象である。Vicsek モデル^[1]では二次元平面状を運動する点粒子によって個体を再現し、自己駆動粒子から集団運動が生まれることを示した。このように *in silico* では集団運動への理解が進められているが、実験的に集団運動を再現した例は極めて少ない。当研究室ではこれまでに、自走する個体として生体分子モーターである微小管/キネシンを、個体間相互作用としてメチルセルロースが誘起する枯渇力を用いることで微小管集団運動の再現に成功している^[2]。本研究では微小管集団運動への更なる理解を目的とし、微小管濃度と枯渇力の大きさが集団運動発現に与える影響について検討を行ったので報告する。

【実験】

蛍光染色したチューブリンを GTP 存在下、37°Cで静置することで微小管を重合した。カバーガラスと両面テープを用いてフローセルを作成した。このフローセルにカゼイン、キネシン、微小管、メチルセルロースを含む ATP を順に流し入れ蛍光顕微鏡により観察を行った。さらに微小管の配向度を Image J を用いた画像解析により算出した。

【結果と考察】

蛍光顕微鏡観察の結果、ATP 添加直後に微小管の運動が観察され、微小管が形成する構造は時間経過とともに変化した。メチルセルロース非添加時、または極めて低濃度(0.05 wt%)の条件下においては、ATP 添加 120 分後も微小管の運動はランダムであった。一方、メチルセルロースが高濃度(0.1~0.3 wt%)になると、ATP 添加直後微小管はランダムに運動するものの時間経過に伴い配向を揃えて運動する様子が見られた

(Figure 1)。さらにメチルセルロースが高濃度であっても、微小管が低濃度の条件では微小管が配向を揃える様子は観察されず、メチルセルロース濃度および微小管濃度の両方が微小管集団運動の発現に寄与していることが示唆された。

続いて Image J による画像解析により微小管の配向度(Nematic order parameter, S)を算出した。各条件における ATP 添加 120 分後の配向度を比較すると、微小管が集団運動を発現する枯渇力(メチルセルロース濃度)に臨界値が存在することが明らかとなった。さらにその臨界値は微小管濃度に応じて変化することが示めされた(Figure 2)。

【参考文献】

- [1] Vicsek, T.; Zafeiris, A.; *Physics Reports* **2012**, 517, 71-140.
- [2] Inoue, D.; Kabir, A. M. R.; Farhana, T. I.; Tokuraku, K.; Sada, K.; Konagaya, A.; Kakugo, A. *Nanoscale* **2015**, 7, 18054-18061.

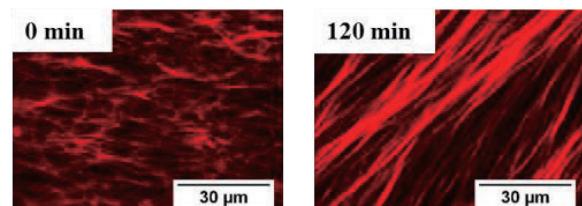


Figure 1. Fluorescence images of microtubules just after adding ATP and for 120 min.

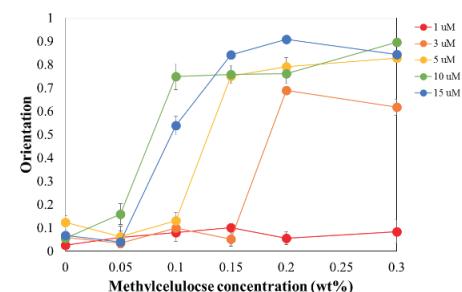


Figure 2. Orientation of microtubules after adding ATP for 120 min. Concentration of MTs and MC have profound influence on the kinetics of the collective motion of MTs.

金属イオンにより駆動されるリン脂質ベシクルの拡散泳動

(東北大・院理・物理) 児玉 篤治、佐久間 由香、今井 正幸、川勝 年洋
 (パリ第6大学、パリ第7大学) Nicolas Puff、Miglena I. Angelova

細胞内での物質輸送の一つにベシクルによる輸送が存在する。そのベシクルには周囲の化学物質の濃度勾配に応答して駆動するものがあると考えられている。化学的に非対称な環境に置かれた油滴やコロイド粒子の駆動現象は以前から研究されており、その駆動メカニズムとして、油滴の場合にはマランゴニ効果[1]、コロイドの場合には拡散泳動[2]が良く知られている。しかし、ベシクルはその表面が二次元の非圧縮性流体膜で覆われており、膜表面での一方的な流れは幾何学的に抑制される。そのため、駆動メカニズムは油滴のようなマランゴニ効果ではないと考えられる。我々は、1,2-dioleoyl-sn-glycero-3-phosphocholine (DOPC) より調製したベシクルの周囲に水酸化ナトリウム(NaOH)水溶液をインジェクションすることでベシクルの周囲に pH 勾配を作り出し、その勾配下でベシクルを一方的に駆動することに成功している[3]。我々は、この駆動メカニズムを次のように考えている。まず、高い pH 環境にベシクルが晒されることでベシクル膜を構成するリン脂質が加水分解され親水性の高い Lyso-PC や脂肪酸が生成される[4]。そして、それらの生成物によりベシクル表面の界面エネルギーに勾配が形成され、ベシクルはそのエネルギーが低下する方向に移動する。以上のような界面エネルギーの勾配による駆動メカニズムを提唱している[3]。

また、我々は塩基性水溶液以外にも、一価の塩化ナトリウム(NaCl)水溶液、二価の塩化カルシウム(CaCl₂)水溶液、三価の塩化ランタン(LaCl₃)水溶液など様々な価数をもつ金属塩化物水溶液を DOPC ベシクルに対してマイクロインジェクションを行いその泳動現象を系統的に調べた。その結果、NaCl 水溶液、CaCl₂ 水溶液などでベシクルの高濃度側への駆動が観察されたが、塩化カリウム(KCl)水溶液、LaCl₃ 水溶液ではベシクルの移動は観察されなかった。ベシクルの駆動メカニズムが拡散泳動の場合、その移動速度は、ベシクルのゼータ電位、インジェクション溶液の陽イオン、陰イオンの拡散係数の差の大きさ、そして濃度勾配の大きさに依存する[5]。発表では、特に多価非対称なイオンに対するベシクル駆動現象を定量的に測定した結果について、ベシクル周りのイオンの濃度勾配により引き起こされる拡散泳動の理論的予測と比較する。

【参考文献】

- (1) N. O. Young, J. S. Goldstein, and M. J. Block, *J. Fluid Mech.*, 1959, **6**, 350.
- (2) J. L. Anderson, M. E. Lowell, and D. C. Prieve, *J. Fluid Mech.*, 1982, **117**, 107.
- (3) A. Kodama, Y. Sakuma, M. Imai, T. Kawakatsu, N. Puff, and M. I. Angelova, *Soft Matter*, 2016, **12**, 2877.
- (4) C. R. Kensil and E. A. Dennis, *Biochemistry*, 1981, **20**, 6079.
- (5) D. C. Prieve, J. L. Anderson, J. P. Ebel, and M. E. Lowell, *J. Fluid Mech.*, 1984,

Regulatory effect of ROS on the dynamic instability of microtubules

Md. Sirajul Islam¹, Arif Md. Rashedul Kabir², Daisuke Inoue², Kazuki Sada^{1,2} and Akira Kakugo^{1,2} (¹Grad. Sch. of Chem. Sci. and Eng., Hokkaido Univ.; ²Faculty of Sci., Hokkaido Univ., Japan)

E-mail: sirajul22du@mail.sci.hokudai.ac.jp, kakugo@sci.hokudai.ac.jp

Introduction

Microtubules (MTs) are cytoskeletal biopolymers that play significant roles in cell division, cell morphogenesis and cell motility. To accomplish these cellular events, MTs depend on an intrinsic non-equilibrium dynamic behavior called ‘dynamic instability’ in which the two ends of MT switch between phases of growth and shrinkage¹. Recently, reactive oxygen species (ROS) has been suspected to modulate MT dynamic instability in cells. However, due to complicated cellular environment and unavailability of any *in vitro* investigation, no detail is understood yet. Here, by performing simple *in vitro* investigations, we have unveiled the effect of ROS on MT dynamic instability.

Results and Discussion

To study the dynamic instability of MTs, rhodamine-labeled MT seeds were immobilized on a cover-slip through the interaction with protein A and anti-tubulin antibodies. Then a polymerization mixture containing Alexa 488-labeled tubulin and guanosine-5'-triphosphate (GTP) was added in the flow cell to allow the polymerization of MT seeds. The dynamic MTs were observed under total internal reflection fluorescence microscopy (TIRF) (Fig 1a). We monitored the dynamic instability of MTs both in the presence and absence of ROS². The growth and shrinkage rate of MTs were found much higher in the ROS free environment than that obtained in the presence of ROS (Fig. 1b and c). The rescue and catastrophe frequency of MTs were also found to be largely affected by the ROS. Moreover, the ROS free environment ensured prolonged observation of dynamic instability of MTs *in vitro*. Our results have clearly revealed that MT showed enhanced dynamics in the ROS free environment³. The findings pinpoint the importance of maintaining a ROS free environment in the *in vitro* study of dynamic instability of MTs in order to obtain a more realistic scenario of the dynamic behavior of MTs.

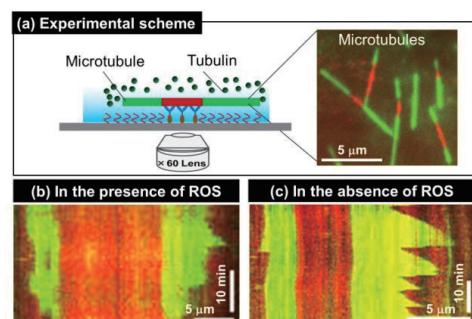


Fig. 1 Experimental scheme for observing MT dynamic instability (a), kymograph of a single MT observed in the presence (b) and absence of ROS (c).

References:

- (1) Mitchison T. J., Kirschner M. W., *Nature*, 1984, **312**, 237.
- (2) Kabir A. M. R., Inoue D., Kakugo A., Kamei A., Gong J. P., *Langmuir*, 2011, **27**, 13659.
- (3) Islam M. S., Kabir A. M. R., Inoue D., Sada K., Kakugo A., *Biophys. Chem.*, 2016, **211**, 1.

誘電分光によるコラーゲン水溶液の微視的構造及粘性

(北海道大学理、東京工業大物質理工 A)

川俣 大志, 桑木 俊介, 生駒 俊之 A, 田中 順三 A, 野崎 龍介

【はじめに】

コラーゲン分子は纖維状(棒状)蛋白質の一種であり 3 本の α 鎖が絡み合う三重螺旋構造(大きさ $300 \times 15\text{nm}$, 分子量 30 kDa)を有する。これまでの研究で、我々は種々のアミノ酸単分子の水溶液やポリペプチド水溶液の誘電分散を観測し、水の水素結合ネットワークの変化を含む溶質-溶媒相互作用を明らかにしてきた。また、球状蛋白質水溶液の誘電分散を観測した先行研究は多いが、多くの纖維状蛋白質は水に難溶の為、観測例はほとんどない。本研究では、巨大な生体高分子であるコラーゲンの水溶液に対して広帯域誘電分光法を適用し、その微視的構造及び粘性の起源の解明を試みた。

【結果と考察】

0.4- 4 wt%コラーゲン水溶液の(巨視的)粘度は純水よりも著しく増大し、また濃度に比例した。一方で、水溶液の誘電分散は全ての濃度において純水のそれと変わらなかった(図 1 (b))。これはコラーゲン分子に水和する水分子(束縛水)は僅かであり、ほとんどの水分子がバルク様に存在することを示唆する。次に、アミノ酸水溶液の誘電分散をコラーゲン分子の添加の有無で比較しても(図 1(a)及(c))、純水の場合と同様に誘電分散は変化しなかった。溶質であるアミノ酸分子の回転拡散を与える Stokes-Einstein-Debye 則を用いてコラーゲン入りアミノ酸水溶液の粘度を導くと、アミノ酸分子近傍の微視的粘度とゲル状となった水溶液の巨視的粘度との乖離が明らかになった。二つの異なる粘度を両立する構造について考察する。

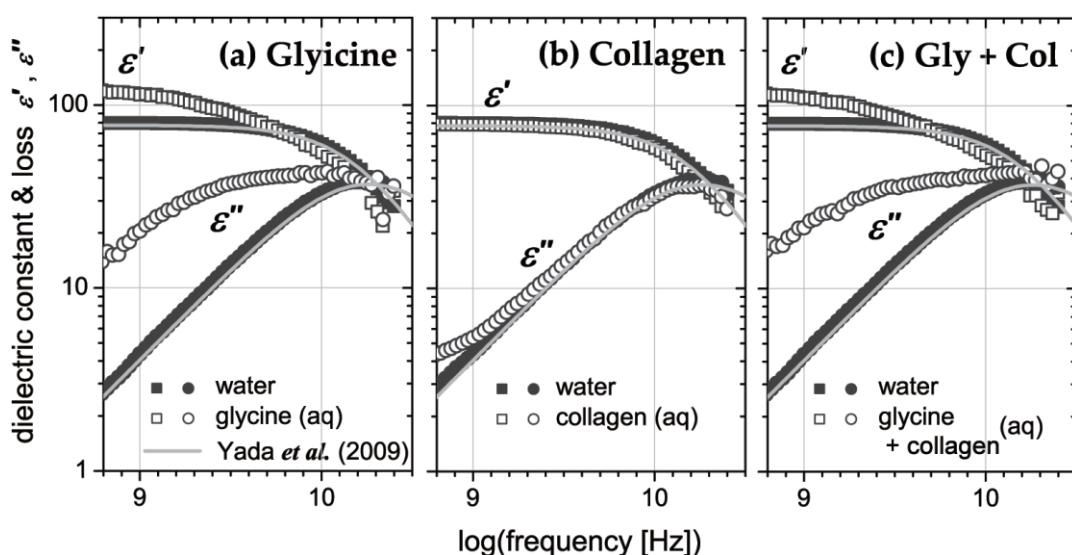


図 1 生体分子水溶液の複素誘電率

(a) 3mol% グリシン, (b) 4wt% コラーゲン, (c) グリシン及コラーゲン

格子状に配列した液晶トポロジカル欠陥の局所的安定化

(北大院工) 坂根 伸, 佐々木 裕司, 折原 宏
(東理大) レ バン コア (理研) 荒岡 史人

【はじめに】 ネマチック液晶のトポロジカル欠陥は、光学などで興味深い性質をもっているが、一方で多数の欠陥をバルクに安定して保持することは容易ではない。現在、欠陥を規則正しく配置するには試料セル基板のアンカリングを局所的に定める方法が主である。^[1] それに対して私たちは最近、イオンを添加したネマチック液晶に交流電場を印加するだけで、umbilics 欠陥を格子状に安定的に配列させる方法を見出した。^[2] 現在、この構造を光重合によって安定化する研究に取り組んでいる。本発表では、紫外光を光ピンセットと同様の手法で照射することで試料の任意の場所を局所的に安定化する試みについて述べる。

【結果と考察】 負の誘電異方性をもつネマチック液晶 CCN37 にイオン性物質(安息香酸テトラブチルアンモニウム)を 1 wt%、架橋剤(RM257)を数%混合した。試料セルは ITO 電極付きのガラスに垂直配向剤として CYTOP をスピンドルコートしたものを用いる。セルに試料を封入し、適切な交流電場をかけると格子状に配列した umbilics 欠陥が誘起される。ゲル化は紫外光 (365 nm、LED) を対物レンズで集光させ照射することで行った。そのときの様子を図 1 に示す。まず光ピンセットを用いて観察領域を欠陥配列で満たす。(図 1(a)) このとき RM257 を混ぜても観察されるグリッドに質的な変化は見られない。続いて紫外光を試料へ入射させるためにダイクロイックミラーを交換する。ミラーには紫外光を比較的よく反射するものを選んでいる。この状態で紫外光を適当な時間入射させると顕微鏡の視野内の集光した領域が光重合し、その部分が明るくなっていることがわかる。(図 1(b)) 最後に電場を OFF にした状態が図 1(c)である。外側はホメオトロピック配向であるが、紫外光を照射した部分は欠陥の配列を保っている。この原理を用いて試料ステージを動かすことにより任意の場所にグリッドを作ることが可能である。また、長時間照射するとゲル化する領域は不必要に拡大してしまうため、照射時間と RM257 の濃度を適切に設定する必要がある。

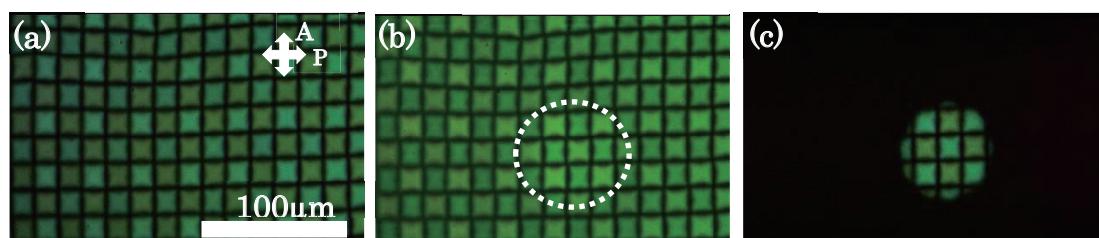


図 1 (a) 準備した一様な欠陥格子 (b) 紫外線照射時の様子 (c) 電場を切った後の様子

【参考文献】

- (1) Y. Guo *et al.*, *Adv. Mater.* 28, 2353 (2016)
- (2) Y. Sasaki *et al.*, *Nat Commun.* (in press)

ネマチックコロイドを用いた異方的構造体作製

(九大院理) 田村優太、木村康之

【はじめに】

分子の重心位置が液体と同様に無秩序であるが、配向方向に秩序を有するネマチック液晶中に直径数ミクロンのコロイド粒子を分散させると、粒子自身が液晶の配向を乱すトポロジカルな欠陥となるとともに、粒子近傍に新たな配向欠陥が誘起される。このような欠陥を伴った球状粒子間には液晶の配向弾性に起因した異方的相互作用が働く。

このような相互作用を用いて、ネマチック液晶中ではさまざまな異方的コロイド構造体を作製することができる。液晶は電場などの外場に対して容易に応答するため、ネマチック液晶中でコロイド構造体を作製すれば、その構造を外場により制御可能となることが予想される。近年、液晶をセル面に対して垂直に配向させた垂直配向セル中で2次元、3次元のコロイド構造体作製が報告されているが、報告されているコロイド構造体の多くは最密充填構造体に限られている。本研究では、双極子相互作用する粒子を用いて、非最密充填構造の2次元コロイド構造体の作製を行った。また、作製したコロイド構造体に電場を印加し、構造体の安定性およびその電場応答を調べた[1,2]。

【実験方法と結果】

実験では粒径 $4\mu\text{m}$ のシリカ粒子をネマチック液晶 5CB で満たした厚さ $10\mu\text{m}$ のセルの中に分散させた。垂直配向セル中に、シリカ粒子表面で液晶が垂直配向するように表面処理した粒子を分散させると、上向きと下向きの欠陥を持った双極子型粒子ができる。作製には、光ピンセットを用いて粒子位置の操作および欠陥の方向の制御も行った。図 1 に作製した隙間を持ったコロイド構造体の例を示す。また、環状コロイド構造体に交流電場を印加したところ、構造体が可逆的に収縮し、最大で約 20% 収縮することが分かった。(図 2) さらに構造体の自己組織的な作成も試みたのでその結果についても報告する。

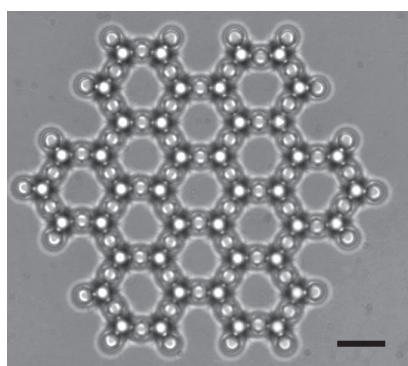


図 1. ハニカム格子状コロイド構造体の顕微鏡像。スケールバーは $10\mu\text{m}$ 。

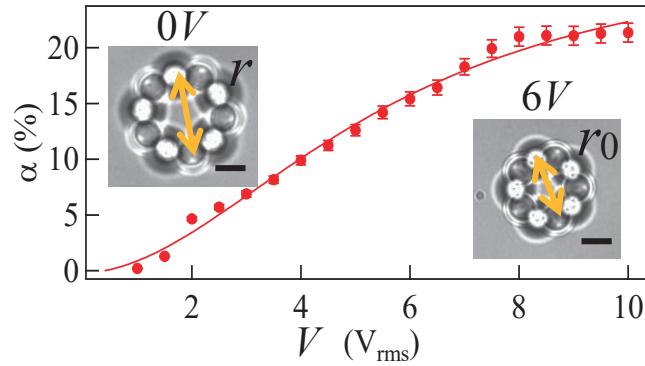


図 2. 環状コロイド構造体の電場による収縮率 α の変化。スケールバーは $5\mu\text{m}$ 。

【参考文献】

- (1) Y. Tamura and Y. Kimura, *Appl. Phys. Lett.* **108**, 011903(2016).
- (2) Y. Tamura and Y. Kimura, *Soft Matter* **12**, 6817-6826 (2016).

高分子安定化液晶ブルー相の電気光学特性の格子配向依存性

(九大院総理工¹・九大先導研²・JST-CREST³)
○増田 昂浩¹・奥村 泰志^{2,3}・樋口 博紀^{2,3}・菊池 裕嗣^{2,3}

【緒言】

液晶ブルー相にモノマーを添加し in-situ 重合を行うことで得られる高分子安定化ブルー相(PSBP)は、電場印加に対し従来の液晶の数十倍の高速な電気光学応答を示すことから次世代液晶表示材料として期待されている⁽¹⁾。PSBP は格子定数 300 nm 程度の三次元周期構造を有し、プレートレットと呼ばれる板状組織で構成される多結晶状構造をとる。PSBP はプレートレット毎に異なる格子配向を有しているが、電気光学特性を評価する際、従来は様々な格子配向のプレートレットの平均値を算出していたため、格子配向と電気光学特性の関係は不明であった。本研究ではプレートレット毎に電気光学特性を測定することで、格子配向と電気光学特性の関係の解明を試みた。

【実験】

In-plane switching 電極付きガラス基板とカバーガラスから成るセル中で PSBP を作成し、共焦点レーザー走査型顕微鏡(CLSM)像の対称性と周期性から面外配向と面内配向をプレートレット毎に同定した。電場印加時の挙動は顕微偏光高速度カメラによりクロスニコル下で動画撮影し、プレートレットごとの輝度解析より Kerr 係数、ヒステリシス、応答速度など電気光学特性を算出した。

【結果と考察】

CLSM を用いて合計 36 か所のプレートレットを観察したところ、Fig. 1 に示すような 2 種類のパターンが得られた。(a)は六回転対称性を示したため(111)、(b)は縦と横の比が $\sqrt{2}:1$ の周期構造を示したため、(110)と同定された。また面内配向に基づく格子と電場の成す角は、Fig. 2 に示すように定義した。今回用いた試料では、駆動電圧、Kerr 係数、ヒステリシスにおいて、明確な格子配向依存性は確認されず、最大透過率(Fig. 3)と残留複屈折において、(111)が(110)よりも優れた特性を示すことが見出された。

本研究は JSPS 科研費 25248021 および JST-CREST の助成を受けたものです。

【参考文献】

- (1) H. Kikuchi, M. Yokota, Y. Hisakado, H. Yang and T. Kajiyama: *Nature Materials*, **1**, (2002), 64.

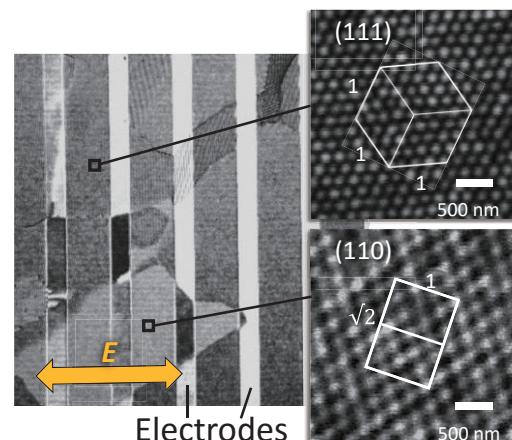


Figure 1. CLSM observation images of platelets. (a) : (111), (b) : (110)

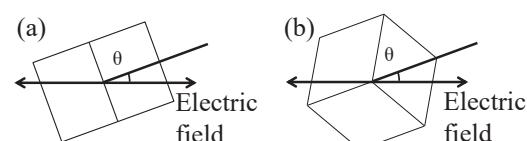


Figure 2 Definition of angle θ between electric-field and blue phase lattice on (110) (a) and (111) (b).

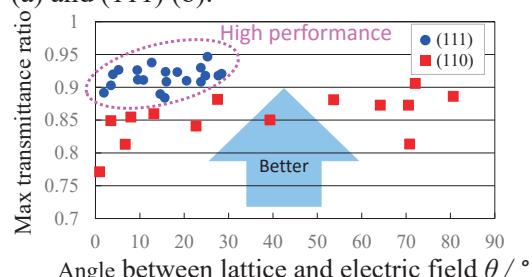


Figure 3. Electric field-induced maximum light transmission vs. angles between electric field and blue phase lattice on (110) and (111). High-performance domains are surrounded by a dotted line.

共焦点顕微鏡による高分子安定化ブルー相中の配向ベクトル分布観察

(九大総理工¹、九大先導研²、産総研³、JST-CREST⁴)

成田 和章¹、奥村 泰志^{2,4}、福田 順一³、樋口 博紀^{2,4}、菊池 裕嗣^{2,4}

【緒言】

ネマチック液晶に一定量以上のキラル剤を添加すると、格子定数が数百ナノメートルの三次元格子構造を有するブルー相(BP)が発現する。このBP格子中では、液晶の配向ベクトルが複雑に入り組んで巨視的には光学的に等方性を示す。またBPにモノマーを添加し、UV照射によるin-situ重合で得られる高分子安定化ブルー相(PSBP)¹⁾は、60 K以上の温度範囲で安定な液晶-高分子ハイブリット材料で、高速な電気光学効果を示すために次世代液晶表示材料として期待されている。本研究では液晶の配向ベクトルの方向に配向する二色性蛍光色素を添加したPSBPを、偏光を用いた共焦点レーザー走査顕微鏡(CLSM)で観察し、PSBP格子中の配向ベクトルの分布の直接観察を試みた。

【実験】

液晶にキラル剤、モノマー、重合開始剤、二色性蛍光色素である2.5-Bis(5-tert-butyl-2-benzoxazolyl)-thiophene(BBOT)²⁾を添加した試料をガラスセルに注入してからBP状態で安定化させ、得られたPSBPをCLSMで反射モードおよび蛍光モードで観察した。

【結果と考察】

蛍光色素BBOT無添加の試料では蛍光像が観察されなかつたが、添加した場合はPSBPの多結晶状組織ごとに蛍光強度の違いが見出された(Fig. 1(b))。また、反射モードでは観察したい格子配向に合わせてレーザー波長とキラル剤濃度を調整する必要があったが、蛍光モードではこの調整は不要で、かつ反射像より細かい縞状やドット状の周期構造が観察された。さらに励起偏光の振動面を回転させると、筋模様の向きが変化した。これらの明暗の変化は、シミュレーションによる各格子面中のダイレクターの向きと良い相関を示した。

本研究はJST-CRESTの支援により行われました。

【参考文献】

- (1) H. Kikuchi, M. Yokota, Y. Hisakado, H. Yang and T. Kajiyama, *Nat. Mater.*, **1**, 64-68 (2002).
- (2) R. Yamaguchi, K. Moriyama, S. Sato, X. ZhangT, Thiemann and S. Mataka, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, **433**, 87-95 (2005).

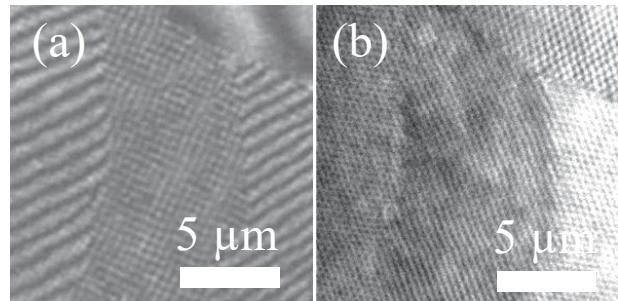


Figure 1 Reflection (a) and fluorescence (b) images of the same texture in BBOT-doped blue phase obtained by CLSM at low magnification.

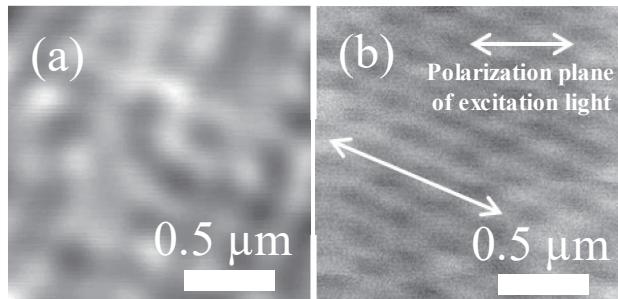


Figure 2 Reflection image (a) and fluorescence image with stripe pattern (b) of BBOT-doped blue phase obtained by CLSM at high magnification.

界面間高分子の空間構造と相転移

(東北大学) 佐藤 春樹

【はじめに】高分子溶液の濃度場に対する自己無撞着場理論

高分子系ソフトマターは、自身の含有する豊富な自由度に起因して、低分子系では見られない複雑かつ多様な相構造や相転移を示す。その一種として、二成分以上の構成区間を有するブロック高分子は、分子スケールでの構造分離に起因しメソスケールでの相分離を発現することが知られており、これをミクロ相分離という。この現象に関する研究は、これまでバルク系の高分子メルトや高分子溶液についてはほぼ網羅的に行われているが、界面を有するなどの拘束系については十分とは言えない。そこで本研究においては、拘束系高分子溶液を対象とし、拘束条件としては平行に系を挟む平面状の二界面を採用了。これは枯渇相互作用が生ずる、コロイドに挟まれた高分子を題材に採ったものである。研究の手段として、非圧縮条件下のフローリ・ハギンズ模型に自己無撞着場近似法を用いた上で、密度場の平衡分布を数値計算する手法を採用了。数値計算には統合ソフトマターシミュレータ OCTA の SUSHI を使用した。

【結果と考察】

溶媒の高分子は界面と特異な構造作用を示す両末端置換のトリブロック高分子を選んだ。また、溶媒と同種の高分子を界面に化学結合させた場合(Case I)、溶媒と同様の分子構造である異種の高分子を混合させた系についても研究(Case II)を行った。数値計算の結果として、Case I の二次元系計算においては、界面間距離をおよそ $3b$ (b : 有効結合長) 以下にした場合、界面平行方向に橢円形の周期ドメインの形成が見られた。また、ドメインの間隔は溶媒高分子の有無で異なることが求められた。Case II の一次元計算においては、同形状で異種組成のブロック高分子と混合し且つその各々が選択的に一方の界面と作用する場合、平衡状態を保った温度の昇降により、系の余剰自由エネルギーが分岐を起こす結果を得た。以上の結果について、トリブロック高分子の示す構造特性に特徴的なスケールをもとに理論的解析を行うものである。

【参考文献】

- (1) M. W. Matsen; *Macromolecules*, 45 (2012) 2161–2165.
- (2) Y. Norinoe, T. Kawakatsu; *Europhys Lett*, 72 (2005) 583–589

3重周期極小曲面上の剛体球のアルダー転移に現れる魔法数

(近大理工) 堂寺知成、田中秀明、高橋佑輔

【はじめに】

平面にパチンコ玉やビリヤードの球を並べると、1つの球のまわりには6つの球が並ぶことは誰もが知っている事実であり、ヘキサゴナル構造とよばれるこの構造は電子、原子から始まり、液晶分子、コロイド球、界面活性剤が作るミセル、高分子のメソ構造に至るまで、普遍的な規則構造として知られている。あるいはサッカーボール型フラーレン分子や球状ウィルスのように、正曲率曲面である球面上の規則構造もよく知られている。しかし、ポテトチップのような馬の鞍型（負曲率）曲面上の物理的規則構造の研究はなされていなかった。

ジャイロイド、ダイヤモンド(D)、プリミティブ(P)とよばれる負曲率をもつ3次元空間に周期的に織り込まれた曲面(3重周期極小曲面)に関連した物質構造がはじめて発見されたのは1960年代の界面活性剤系で、1990年代以降、ブロック共重合体、液晶などの有機分子、界面活性剤を利用して合成される多孔質シリカ、有機-無機分子、生体内でもミトコンドリア、網膜色素細胞、葉緑体、蝶の羽の鱗粉など、ソフトマターに普遍的に発見される構造である。

われわれはP、G、D曲面上の剛体球のシミュレーションを行い、エントロピーを駆動力としたアルダー相転移を観察することによって、これまで知られていなかった負曲率曲面上の規則構造を多数発見した。それらはまず曲面のもつ空間群の部分群として立方晶になるもの、三方晶になるもの、さらに2倍の超構造を作るものの3種に分類された。

【結果と考察】

立方晶になるものに注目すると、相転移を起こす単位格子当たりの球の数Nには魔法数があり、P、G、D曲面に対してそれぞれ $N = 8H$ 、 $N = 16H$ 、 $N = 32H$ と統一的に表現される。 H は、20面体ウィルスを構成するユニットの魔法数を説明する Triangulation Number ($T = h^2 + k^2 + hk$)に似た Hexagulation Number で、 $H = h^2 + k^2 - hk$ と表される。なお、 h と k は非負整数である。得られた構造について、魔法数、空間群、ワイコフ位置、タイリングを表に示す。

H-number	Surface (N_α)	Space group	Wyckoff p.	Tiling
$H^* = 3$	P (20)	$Im\bar{3}m$ (No. 229)	8c; 12d	(3 ⁶ ; 3 ⁸)
	G (40)	$Ia\bar{3}d$ (No. 230)	16a; 24d	(3 ⁶ ; 3 ⁸)
$H = 3$	G (48)	$I\bar{4}3d$ (No. 220)	48e	(3 ³ .4.3.4)
	D (96)	$F\bar{4}3c$ (No. 219)	96h	(3 ³ .4.3.4)
$H = 4$	P (32)	$Pn\bar{3}$ (No. 201)	4b; 4c; 24h	(3 ⁶ ; 3 ⁷)
	G (64)	$Ia\bar{3}$ (No. 206)	8a; 8b; 48e	(3 ⁶ ; 3 ⁷)
	D (128)	$Fd\bar{3}$ (No. 203)	16c; 16d; 96g	(3 ⁶ ; 3 ⁷)
$H = 7$	P (56)	$Pn\bar{3}n$ (No. 222)	8c; 48i	(3 ⁶ ; 3 ⁵ .4)
	G (112)	$Ia\bar{3}d$ (No. 230)	16a; 96h	(3 ⁶ ; 3 ⁵ .4)
	D (224)	$Fd\bar{3}c$ (No. 228)	32c; 192h	(3 ⁶ ; 3 ⁵ .4)
$H = 9$	P (72)	$Pm\bar{3}n$ (No. 223)	24j × 2; 24k	(3 ⁶ ; 3 ⁵ .4; 3 ⁵ .4)
	G (144)	$I\bar{4}3d$ (No. 220)	48e × 3	(3 ⁶ ; 3 ⁵ .4; 3 ⁵ .4)
$H = 12$	P (96)	$I\bar{4}3m$ (No. 217)	24g × 2; 48h	(3 ⁶ ; 3 ⁶ ; 3 ⁵ .4)

【参考文献】

- (1) T. Dotera, H. Tanaka & Y. Takahashi, Struct. Chem., DOI 10.1007/s11224-016-0833-7.

Anomalous diffusion induced by active molecules in viscoelastic medium

(Tokyo Metropolitan University) S. Komura, K. Yasuda, and R. Okamoto

With the use of the ``two-fluid model'', we discuss anomalous diffusion induced by active protein molecules in viscoelastic media. Active proteins in living cells generate non-thermal fluctuating flows that lead to a substantial increment of the diffusion in the cytoplasm [1]. Using the Green's function of the two-fluid model, we first obtain passive (thermal) two-point correlation functions including the displacement cross-correlation function between the two point particles separated by a finite distance. We then calculate active (non-thermal) one-point and two-point correlation functions due to active force dipoles representing proteins. The time correlation of the force dipole is assumed to decay exponentially with a characteristic time scale. We show that the active component of the displacement cross-correlation function exhibits various crossovers from super-diffusive to sub-diffusive behaviors depending on the characteristic time scales and the particle separation. Our theoretical results are intimately connected to the microrheology technique, and also reproduce the experimental result [2] by adding both passive and active contributions to the mean squared displacement.

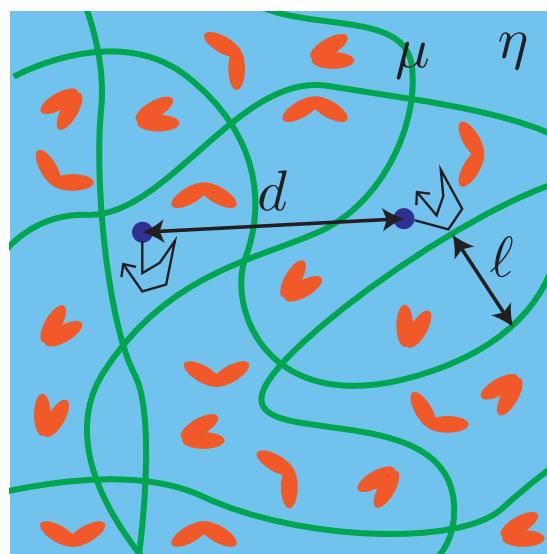


Figure 1: Active proteins in a viscoelastic media

【References】

- [1] A. S. Mikhailov and R. Kapral, *Proc. Nat. Acad. Sci. USA* **112**, E3639 (2015).
- [2] M. Guo, A. J. Ehrlicher, M. H. Jensen, M. Renz, J. R. Moore, R. D. Goldman, J. Lippincott-Schwartz, F. C. MacKintosh, and D. A. Weitz, *Cell* **158**, 822 (2014).

ポリシロキサンを主鎖とする側鎖型液晶エラストマーの電界応答

(東京工芸大学・工学部・生命環境化学科) 田中聰太、平岡一幸

【はじめに】

液晶エラストマーは液晶相の異方性とエラストマーの力学的性質を併せ持つ材料である。ソフト固体なので液晶相の対称性に起因する刺激応答による変形機能を持つ。本研究では、電傾効果を発現するキラルスマクチック A 相(SmA*相)を持つ液晶エラストマーに注目し、SMA*相と等方相における電界誘起変形を検討した。

【実験】

主鎖ポリマーとしてポリメチルヒドロキシシロキサンを、メソゲンとしてコレステロール誘導体モノマーを、二官能性の架橋剤を用い、側鎖型液晶エラストマーを得た。X 線回折と熱機械測定(針入測定法)により相系列を求めた[glass(33)SmA*(120)Iso in °C]。電界誘起変形の観察は、2枚のITOガラス間にシリコーンオイルを満たし、試料片端を固定して行った。

【結果と考察】

SMA*相の X 線回折像からスマクチック層の高次反射が確認される(Fig. 1(a))。液晶エラストマーを構成する「ポリシロキサン主鎖」と「炭化水素化合物のメソゲン」が相分離し、層の電子密度分布が矩形波的になったと考えられる。一方、Iso 相の回折像小角側にハローが残り、部分的な層構造の残留が示唆される(Fig. 1(b))。主鎖とメソゲンの相溶性の悪さから、主鎖まわりにメソゲンが放射状に配列した球状ミセルの形成を推察した。

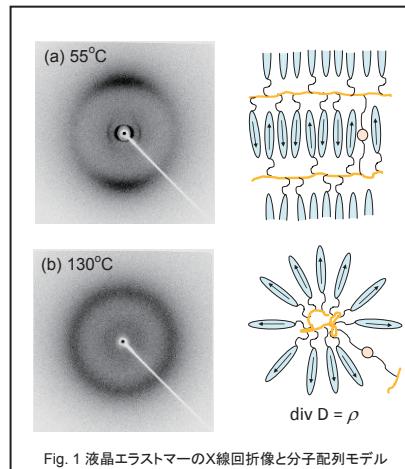


Fig. 1 液晶エラストマーのX線回折像と分子配列モデル

Fig. 2 に電界誘起変形(+1kV/mm の矩形波)の温度依存性を示す。試料自由端中央部を観察した。室温から 30°Cまでは SmA*構造の回折像を示すが、ガラス状態の為に変形しない。 T_g 以上の SmA*相全般(40°C~120°C)において、0.5~2μm 程度の y 方向へのせん断変形(Δy)が観測された。このせん断変形は極性があり電傾効果によるものと推察される。層間におけるメソゲンの相互侵入がないため、電界効果がノーマルモードとなり広範囲で観測されたと考えた。

Iso 相において $\Delta x = \pm 0.15\text{mm}$ 程度の x 方向の曲り変形(bend)が観測された(Fig. 2)。では射影 Δz をプロット)。電界方向により変形方向が反転した。さらに等方相への転移により静電気の発生が確認された。球状ミセルの形成により放射状に双極子モーメント配置されたため電荷が生じ、極性のある電界誘起変形が生じたと推定される。

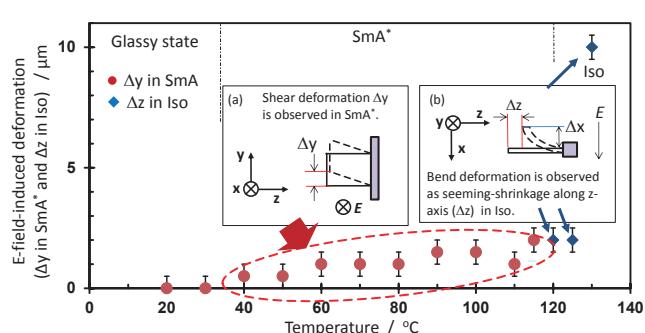


Fig. 2 電界誘起変形の温度依存性

【参考文献】 K. Hiraoka *et al.*, submitted to *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*

Amoeba proteus の細胞運動解析

(理学研究科) 市川 正敏

【はじめに】

細胞運動の特徴を物理学的な観点からとらえようという研究がここ10年で盛んになってきている。特にアメーバ運動は接着性の真核細胞一般の見せる振る舞いであり、大きな変形とランダムな重心移動に特徴がある。この特徴的な運動に対して、これまで重心の軌跡の数理的な解析やモデリングがなされてきた(1)。

【結果と考察】

我々はこれまで、典型的なアメーバ運動を行うオオアメーバ(*Amoeba proteus*)を対象として、その運動について解析を行ってきた。その結果、この細胞は二つの運動状態（動的状態（エサを食べて1日目以降）と静的状態（0日目））をとることを見出した（図1）。特に静的状態については、一般によく知られるアメーバ運動と重心の運動性などの特徴が異なる（図2）。そこで本講演では静的運動状態に着目し速度自己相関等に関して詳細な解析を行った。その結果、この運動状態において運動速度に関する記憶の効果があることや運動範囲に制限を受けていることが分かった。

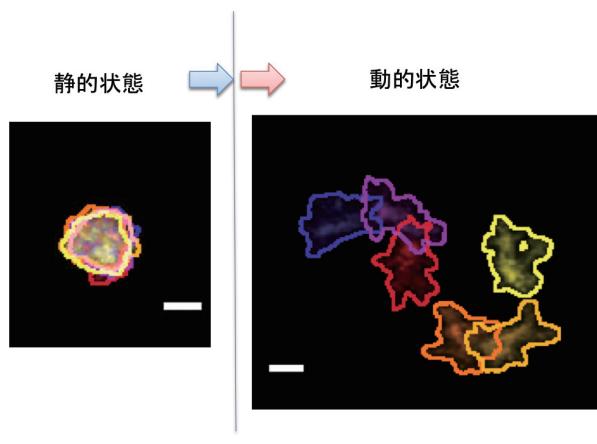


図1：静的状態と動的状態の運動
(scale bar: 100 μm)

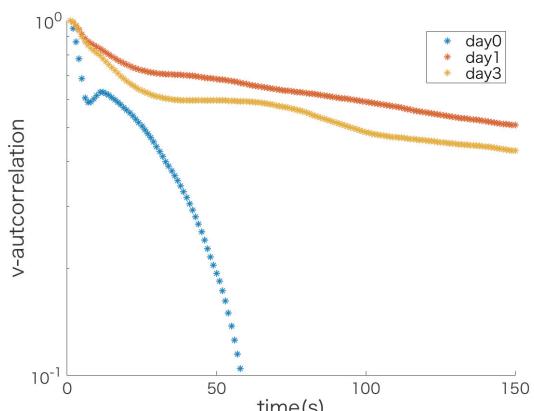


図2：静的状態と動的状態の速度
自己相関関数

【参考文献】

- (1) H. Takagi *et al.*, PLoS ONE, 3, e2648 (2008)

ベシクルの分裂メカニズム

(山口大院創成科学) 浦上直人
(東北大院理) 神保岳大、佐久間由香、今井正幸

【はじめに】

自己複製のための細胞分裂は、生命にとって最も重要なプロセスのひとつである。細胞が分裂する際、様々なタンパク質が関与している。しかし、近年、L型菌と呼ばれる細胞壁を持たない細菌は、これらのタンパク質を持たなくとも分裂することが報告¹⁾されている。その分裂形態は、生命現象というよりは、むしろ物理現象に近いと言える。一方、物理的側面からは、タンパク質を含まないシリンダー型と逆コーン型の2種類の脂質のみで構成したベシクル^{2,3)}において、分裂現象が観察されている。そのため、ベシクルが分裂する物理的条件を明らかにすることは、初期の生命を理解する上で重要となる。そこで本研究では、分子動力学シミュレーションによりベシクル分裂を再現し、分裂に必要な条件を明らかにすることを目的とする。

【シミュレーション方法】

脂質分子を親水性2粒子、疎水性4粒子をもつ直鎖上分子としモデル化した。シリンダー型と逆コーン型脂質は、頭部と尾部を構成する粒子半径を変えることで、その違いを表した。水分子は親水性1粒子とした。シリンダー型脂質分子を5,200、逆コーン型脂質分子を1,300、合計6,500の脂質分子でベシクルを構成し、温度・圧力一定のシミュレーションを行った。シミュレーションポテンシャルはMarkvoortら⁴⁾のものを参考にした。

【結果と考察】

Pear型ベシクルを初期状態とし、シミュレーションを開始した。ベシクル内の水分子数は13,376、2分子膜の外側と内側の脂質分子数差は $\Delta N = 2,382$ とし、2分子膜の内側に逆コーン型の脂質分子を多く配置した。図1にシミュレーションで得られたベシクルのネック幅とベシクルの形状を示す。時間経過とともにPear型ベシクルのネック部分が細くなり、 $2,500\tau$ 付近で急激に減少していることが分かる。この時、ベシクルは2つの球状ベシクルがStalkでつながったLimiting shapeに変化する。その後、ネック幅は変化するが、最終的に $3,800\tau$ 付近でベシクルの分裂が観察された。当日は、これらの結果の詳細を発表する予定である。

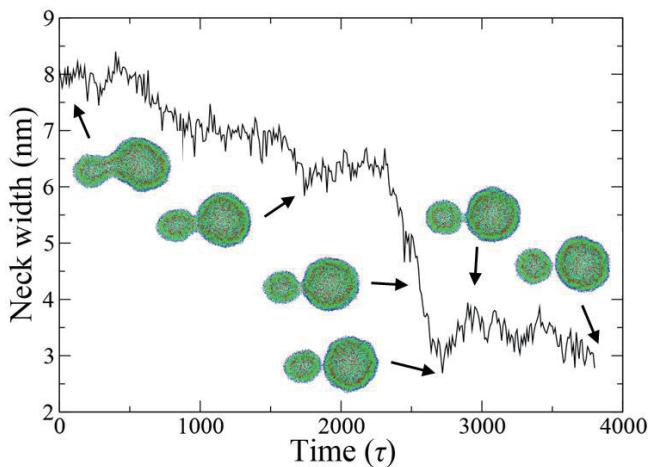


図1. ベシクルの形状変化とネック幅

【参考文献】

- (1) M. Leaver, et al., *Nature*, 457 (2009) 849
- (2) Y. Sakuma and M. Imai, *Phys. Rev. Lett.*, 107 (2011) 198101.
- (3) T. Jimbo, Y. Sakuma, N. Urakami, P. Ziherl, and M. Imai, *Biophys. J.*, 110 (2014) 1551.
- (4) A. J. Markvoort, et al., *Biophys. J.*, 99 (2010) 1520.

定常浸透圧場における球状ベシクルの膜ゆらぎとチューブ変形

(京大理院) 鴻巣 正樹、○市川 正敏

【はじめに】

これまで脂質膜小胞（リポソーム）を用いた理論・実験的研究が数多く行われてきた。特に脂質膜を二次元液晶膜として捉え、その平衡形状や膜のゆらぎといった挙動の理解が進んできた(1)。例えば、二重膜の弾性エネルギーと周囲の溶媒による熱的ノイズを考慮することで、Giant Unilamellar Vesicle (GUV) における自発曲率誘起の Budding 変形やチューブ変形のメカニズムなどが数値計算や実験により詳細に明らかにされてきた(2, 3)。一方で、近年行われているような定常的に膜に動的なノイズを与えたときに起こる膜物性の摂動についての理論的研究に対して実験的研究は比較的進んでいない(4)。そこで、定常的に一様膜を貫通する流体の流れによる膜形状や膜物性への影響に着目して実験を行った。

実験では、外液全体に糖による高張溶液を灌流させて脂質膜の半透性から膜内外の溶質濃度に差を付けて、GUV の内から外に向かう内溶液の浸透流を過渡的に引き起こし、一成分からなる球状 GUV の変形を観察した。このとき、プログラムにより外液濃度の上昇速度を制御することで浸透流の流束を系統的に変化させ、膜の余剰面積と浸透速度を二軸に膜変形形状の相図を作成した。

【結果と考察】

浸透速度が小さいとき、膜の最終形状と熱揺らぎの時定数の波数依存が過去の実験結果と一致する一方で、浸透速度が大きいときは不安定なチューブ形状を示すことが分かった。膜を透過する流体と膜との相互作用による散逸を考慮に入れ、力学モデルの線形安定性解析からチューブ化初期における突起（図 1）のサイズと浸透速度の相関についての考察を行った。また、チューブ化前における定常膜ゆらぎの時定数の波数依存性を解析して平衡ゆらぎのそれと定量的に比較し、幾つかの物性値に摂動があるのかどうかも確認した。

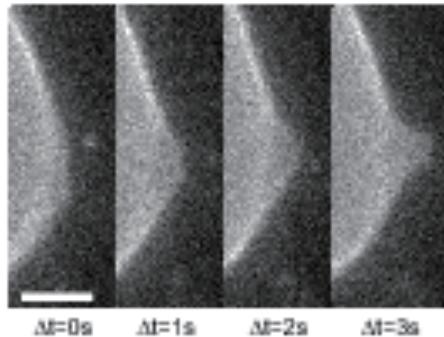


図 1：チューブ化初期の突起の生成の一秒钟ごとのスナップショット。
スケールバーは $5 \mu\text{m}$

【参考文献】

- (1) U. Seifert, Adv. Phys. 46, 13 (1997).
- (2) H.-G. Döbereiner, G. Gompper, C. K. Haluska, D. M. Kroll, P. G. Petrov, and K. A. Riske, Phys. Rev. Lett. 91, 048301 (2003).
- (3) R. Lipowsky, Biol. Chem. 395, 253 (2014).
- (4) B. Loubet, U. Seifert, and M. A. Lomholt, Phys. Rev. E 85, 031913 (2012).

ゼラチンゲルの弾性率変化

(群馬大学大学院理工学府) 片貝茉莉花, 槙靖幸, 土橋敏明

【はじめに】

ゼラチンはコラーゲンの加熱等により得られる変性タンパク質で、食品や工業製品などに広く用いられている。ゼラチンは、ゲル化後一定温度で保存しておくと、時間とともに弾性率が緩やかに増加し続ける性質がある（エイジングと呼ばれる）⁽¹⁾。ゼラチンは、温水中ではランダムコイル状分子として可溶であるが、冷却すると部分的にコラーゲンと同様のらせん構造を再生し、それが架橋領域となることによりゲル化する。コラーゲンは剛直な分子であるため、ゼラチンゲルは剛直な架橋領域が柔らかいランダムコイル鎖で繋がれた網目構造であるといえる。従来、ゼラチンゲルの弾性率の起源は一種のゴム弾性（ランダムコイル領域のエントロピーに起因する）と考えられてきたが⁽²⁾、実際には剛直な架橋領域の影響も無視できないと考えられる⁽³⁾。架橋領域の総量は、らせん構造に寄与する残基の割合であるらせん分率 χ で表現することができ、 χ は旋光度測定により求めることができる⁽³⁾。本研究では、貯蔵弾性率 G' とらせん分率 χ の関係から、エイジング過程におけるゼラチンゲルの弾性率の時間発展を調べた。

【結果と考察】

2.0 wt%ゼラチンを 60°Cからゲル化点（25.9°C）以下へ急冷し、 G' と比旋光度 $[\alpha]$ の時間変化を測定した。らせん分率 χ は $\chi = ([\alpha]_{\text{gel}} - [\alpha]_{\text{sol}})/([\alpha]_{\text{hel}} - [\alpha]_{\text{sol}})$ で計算される。ここで、 $[\alpha]_{\text{gel}}$, $[\alpha]_{\text{sol}}$, $[\alpha]_{\text{hel}}$ は、それぞれゼラチンゲル、60°Cにおけるゼラチン水溶液、0.3 M HCl 水溶液中のコラーゲン水溶液の比旋光度である。 G' と χ はどちらも時間とともに増加し、架橋領域の増加に伴って弾性率が増加することが示唆された。温度が低いほど G' や χ の増加は速くなつたが、 G' を χ に対してプロットすると、温度に依存しないマスターカーブで表現することができた（Figure）。 G' と χ の関係は $G' \sim (\chi - \chi_c)^t$ で表現され、指数 t は約 2 であった。

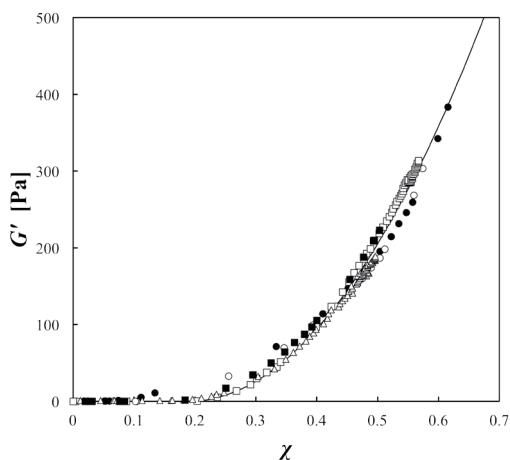


Figure: Correlation between G' and χ during the isothermal aging of a gelatin gel at 5.0 °C (●), 10.0 °C (○), 15.0 °C (■), 17.5 °C (□), 20.0 °C (△).

【参考文献】

- (1) A. Parker, V. Normand, Soft Matter 6, 4916-4919, (2010).
- (2) S. Ross-Murphy, Gums and Stabilisers for the Food Industry 7, IRL Press, Oxford (1995).
- (3) C. Joly-Duhamel, D. Hellio, A. Ajdari, M. Djabourov, Langmuir 18, 7158-7166 (2002).

パターン配向したネマティック液晶における橙円形状の欠陥線対生成

(大阪大学大学院 工学研究科) 吉田浩之、角南寛太、大内智弘、尾崎 雅則

【はじめに】

液晶物質におけるトポロジカル欠陥はバルクとは異なる粘弾性的、また光学的性質を示すことから、その本数や形状を制御する研究が近年、注目を集めている。多くの研究は、液晶中にコロイド粒子を添加し、その形状（トポロジー）および表面配向により欠陥を生成させるものであるが、我々は標準的なサンドイッチ型素子における欠陥形状を制御するため、パターン配向技術を用いた欠陥の生成に取り組んでいる[1]。本研究では基板表面の配向容易軸パターンを変化させることで橙円率の異なる線欠陥対を生成できることを報告する。

【結果と考察】

液晶セルを構成する基板表面に欠陥強度+1の特異点を有する配向容易軸分布をパターニングした。特異点を原点とした時、基板上の配向容易軸は $\varphi = \tan^{-1}(\alpha \cdot y/x)$ として、 $n(x,y) = (\cos\varphi, \sin\varphi)$ と表される分布とし、 α を変化させた種々のパターンを形成した。パターニングした2枚の基板を重ね合わせてサンドイッチセルを作製し、ネマティック液晶(5CB, Merck)を封入した後、偏光顕微鏡により素子の観察を行った。また、素子の上下基板をずらすことで特異点間に欠陥を誘起させ、その形状を観察した。

図1に $\alpha = 1, 2, 4, 6$ における、上下基板をずらした後の素子の偏光顕微鏡像を示す。特異点を結ぶような2本の黒い線として欠陥線が観察された。観察された欠陥線は橙円状であり、 α が大きくなるにつれて、その橙円率が減少することが確認された。本系では上下基板をオフセットすることで上下の配向容易軸パターンに差が生じ、ダイレクタのねじれが生じるが、ねじれ角が $\pm 90^\circ$ を超える領域ではリバースツイストが生じるため、この位置に欠陥が発生すると予想される。そこで上下基板間の液晶分子のねじれ角分布を計算し、リバースツイストの発生位置と実験を比較すると、良い一致が得られた。このことから、基板表面における配向容易軸をパターニングすることで橙円率を制御した欠陥線対が形成できることが明らかになった。

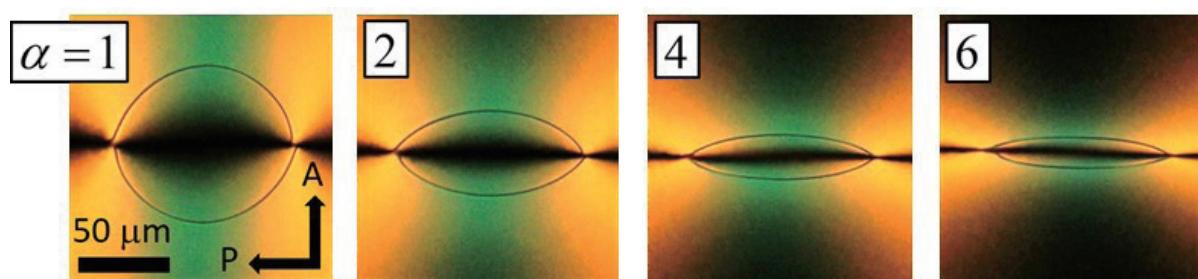


図1 作製した素子の偏光顕微鏡像

【参考文献】

- (1) B. Senyuk et al., Nature 493, 200 (2013).
- (2) H. Yoshida K. Asakura, J. Fukuda, and M. Ozaki, Nat. Commun. 6, 7108 (2015).

液晶の位相欠陥に低分子物質は凝集するのか？

(産総研機能化学¹, 産総研機能材料コンピュテーションナルデザイン研究 C², 産総研バイオメディカル³)
福田順一^{1,2}, 大園拓哉¹, 加藤薰³

【はじめに】

液晶中に生じる位相欠陥は、コロイド粒子などの巨視的な物体を引き寄せることが知られている[1]。位相欠陥においては液晶の配向秩序が急峻に変化するゆえ、局所的に高い自由エネルギー密度を有するので、位相欠陥がコロイド粒子などの他の物体に入れ替わると系全体の自由エネルギーを下げられることが、位相欠陥と巨視的な物体との間の実効的な引力の理由である。巨視的な物体については、位相欠陥のところに局在することによるエントロピーの減少の効果は無視できる。しかしながら、低分子物質が同様に位相欠陥によって引き寄せられ得るかについては、エントロピーの効果がより顕著になるので必ずしも自明ではない。最近の研究[2]では、界面活性剤分子が位相欠陥において選択的に凝集することが明らかにされたが、界面活性剤分子のモノマーは位相欠陥の存在とは無関係に一様に分布することも同時に示されている。本研究では、一般の（液晶ではない）低分子物質が液晶中の位相欠陥に凝集するかどうかについて、理論的考察を行なう[3]。

【結果と考察】

液晶とそれ以外の低分子物質が混合している2元系を考え、低分子物質の位置 \mathbf{r} における体積分率を $\phi(\mathbf{r})$ とする（液晶の体積分率は $1-\phi(\mathbf{r})$ ）。本研究で行なう考察は単純であり、系の自由エネルギー密度のうちの支配的な項は、低分子物質の並進のエントロピーの寄与 ($\propto \phi(\mathbf{r}) \ln \phi(\mathbf{r})$) と、低分子物質が混合している液晶の自由エネルギー密度（純粋な液晶の自由エネルギー密度を $f(\mathbf{r})$ とすると、 $(1-\phi) f(\mathbf{r})$ と書ける）であるとする（いま興味がある問題は、液晶と低分子物質が自発的には相分離しない場合なので、エンタルピーの効果は重要ではない）。実際の物質の値などを用いて評価したところ、欠陥の中心における ϕ の値は、バルクの値より 16%程度大きいことが明らかになった。すなわち、一様分散をもたらすエントロピーの効果に打ち勝って、無視できない程度の低分子物質の凝集が確かに生じることがわかった。講演では理論の詳細と、低分子量の蛍光物質と蛍光顕微鏡、および共焦点顕微鏡を用いて蛍光物質の凝集を調べた結果を紹介する[3]。

【参考文献】

- [1] たとえば T. Ohzono and J. Fukuda, *Nature Communications* **3**, 701 (2012).
- [2] X. Wang *et al.*, *Nature Mater.* **15**, 106 (2016).
- [3] T. Ohzono, K. Katoh and J. Fukuda, submitted.

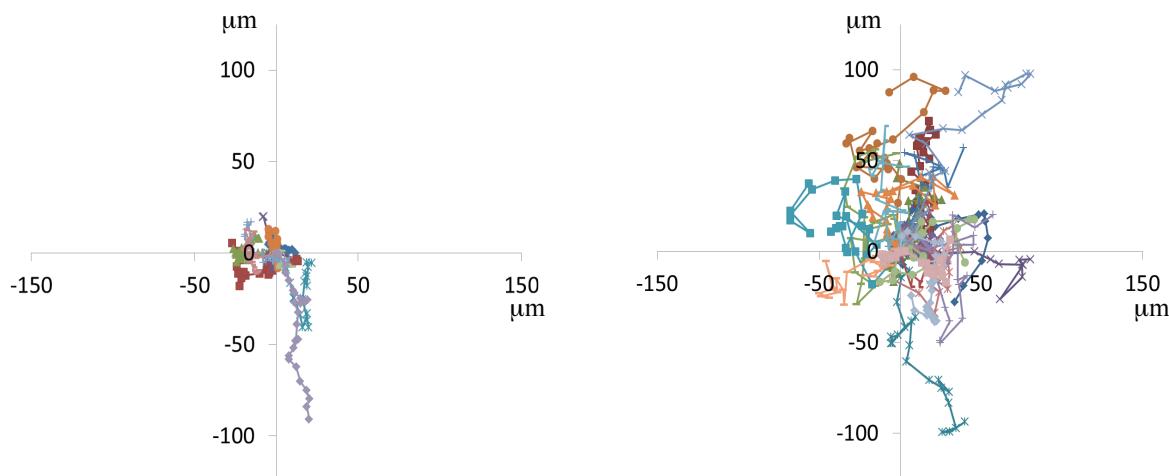
分化・未分化ヒト iPS 細胞の運動性

(長岡技科大) 山本 悠太、加納 歩、宮崎 翔太、中園 孝平、大沼 清*
 (北大院工) ○藤井 修治

【はじめに】

細胞運動は生物の体形成において非常に重要な役割を担う。特に、胚の発生過程における原腸形成は最初の細胞の大移動を伴う重要過程であり、臓器の位置決定・臓器内の微小構造の形成等に関わる。これまで倫理的・技術的問題から、ヒトの発生段階における胚を観察することは困難であった。ヒト iPS 細胞を用いれば、上記の問題によらず、胚の発生段階を再現し直接観察できる。そこで、まず、未分化のヒト iPS 細胞と分化誘導したヒト iPS 細胞を用い、それぞれの細胞の運動性の違いを定量化することを試みた。ヒト胚の発生段階における細胞の運動性評価により、体形成ダイナミクスの観点から生命現象の解明につながると期待される。

【結果と考察】



左図は未分化での iPS 細胞、右図は分化した iPS 紹介の六時間の軌跡を整理したものである。未分化と分化では、細胞の運動性に大きな違いが見られた。この運動性の大きな違いは、原腸形成時に見られる細胞運動の指向性を誘起する一因であると考えられる。分化後どのように細胞の運動性が変化するか調べたところ、分化一日後から細胞の移動速度が増加し、三日後には運動性が未分化の iPS 細胞レベルまで低下することがわかった。ところが、運動性は時間に対し大きく変化するにも関わらず、その平均自乗変位は常に時間に対し線形に増大するブラウン運動的な挙動を示した。未分化と分化した細胞の違い、また分化後の細胞運動性の変化を定量化にするには、細胞運動の持続長のような運動の相関長を解析する必要がある。分化後、細胞運動性の時間依存性は、ヒトの体づくりの基本を理解する手がかりに繋がると期待される。