ミトコンドリアの形態モデル

(理化学研究所) 立川 正志

【はじめに】

ミトコンドリアは真核細胞の内部にあっ て、細胞で使われるエネルギーの原料となる ATP を作り出す大切な働きをする細胞内小 器官(オルガネラ)である。その起源は、も ともと別の生物であった細菌の一種が真核 細胞の祖先に入り込んで共生することによ り生まれたと考えられており、そのため、真



核細胞の細胞膜由来の外膜と細菌由来の内膜、さらに内膜が折り畳まれたクリステ構造を持つ。また、細菌様の粒状の構造として描かれることが多い(図1A)。

しかし、近年の詳細な観察により明らかになりつつあるミトコンドリアの実際の形態は、 この一般的な理解とは異なる部分がある。まず、多くの細胞では、ミトコンドリアは長軸方 向に延びたチューブ状の形態を持つ。さらに、融合・分裂をアクティブに繰り返すことによ りその長さは変化し、細胞全体で一つの動的なネットワークを構成していると考えられてい る。また内膜は、外膜にピッタリ張り付いた境界膜(inner boundary membrane)とクリステ 膜(cristae membrane)に分かれていることも示唆されている。

では、このミトコンドリアの形態はどのように作られ維持されているのだろうか。これま で、有効な物理モデルによる説明はなされてこなかった。

【結果と考察】

本研究ではミトコンドリアの形態を生み出すメカニズムについて、新しいモデルを提唱した い。そのモデルでは、クリステ構造について従来の内膜が内側に押し出される描像ではなく、 境界膜から物理的な力で引っ張り出されて形成されることを仮定する。この仮定から、クリ ステ形成力が外膜と境界膜の面積差を生み出す力となり、結果として、ミトコンドリア外形 に自発曲率を与えることが示される。この自発曲率に基づくミトコンドリア形態のエネルギ ーモデルを作ることで、ミトコンドリアの『長さによらない一定の太さのチューブ』形態を 説明できることがわかった。さらに、このエネルギーモデルから、ミトコンドリアの分裂の きっかけとなるチューブの動径方向の収縮による"くびれ"が、形態の熱ゆらぎとして形成 されることを示した。

これらの結果は、ミトコンドリア形態が物理メカニズムによって包括的に制御されている ことを示唆している。このモデルに基づき実験検証可能な予測を立てることを通して、ミト コンドリア形態の制御とその機能の関係について理解を目指したい。

アクティブマターとしての自己推進型イオンゲル

(明星大学理工学部)古川 一暁

【はじめに】 私たちは最近、イオン液体を含む高分子ゲル(イオンゲル)を水面に浮かべると、強力 で持続性の高い自己推進力を発現することを見出した⁽¹⁾。これは、イオン液体が水面に溶出する際 に生じる表面張力の差異に起因する(マランゴニ効果)。イオンゲルは物質内部にエネルギー源を有 していると言え、アクティブマターとしての特徴を備えている。本発表では、イオンゲルに特徴的な自 己推進特性について私たちの最近の研究を紹介し、アクティブマターとしての可能性を議論する。

【実験】 C_nMIM-TFSIと P(VDF-co-HFP)(重量比 80:20)とからなるイオンゲルを調製した。それらを 長方形棒状に切り出し、気液および液液界面におき、自己推進運動を観察した。

【結果と考察】 私たちが初めてイオンゲルの自己推進力を見出したのは、C₂MIM(EMIM)型である (図1)。その特徴として、① 自己推進力が強力で持続的なこと、② わずかな気液界面でも自己推 進力を示すこと、③ 成型加工性に優れること、が挙げられる。さらにイオンゲルを C_nMIM 型に拡張 し、④ 液液界面(のみ)で自己推進力を示すイオンゲルの存在を確認した。以下、詳細を述べる。

① 約10×2 mm のイオンゲル片は、10 Hz 弱の回転運動を行い、回転端速度は300 mms⁻¹ に達 する。自己推進力は、ゲルから水面に溶出するイオン液体の濃度勾配に起因する。気液固界面に 溶出したイオン液体は速やかに水に溶解して除去され、回転運動が10² s 以上継続する。その後、 運動モードを非線形運動に変えながら、10³ s 以上運動が継続する。

② 水滴表面、水中の気泡表面といった、イオンゲル 片の大きさと同サイズの気液界面でも、持続的な運 動を生じる。運動モードはイオンゲル片および気液 界面の形状に依存する。

③ イオンゲルは真空中へ導入でき、不活性高分子 パリレンの被膜形成が可能である。パリレンで被膜し たものは水面で運動を生じないが、切断してイオンゲ ル面を露出させると自己推進力を示す。

④ C₁₆MIM型は、気液界面(H₂O表面、CHCl₃表面)
では運動を生じないが、H₂O/CHCl₃界面では回転運動を生じた。C₁₆MIMはH₂Oに不溶、CHCl₃に易溶であるため、後者に溶出した C₁₆MIM が液液界面エネルギー(界面張力)を変化させる機構が働いていると考えられる。

イオン液体と高分子との組み合わせは相当数に上るため、イオンゲルは今後多数の新規アクティブマターを提供する物質群になると考えられる。

【参考文献】(1) Kazuaki Furukawa, Tetsuhiko Teshima, Yuko Ueno, □Self-propelled ion gel at air-water interface. □Sci. Rep. 7, 9323, 2017.



図1. イオンゲルの原料と性状および 水面における回転運動の様子

細胞集団のコロニーの成長則:接触阻害による自制機構

(京都大学大学院工学研究科)山本 量一

【はじめに】 近年の実験技術の進歩に伴い,微生物集団や生体組織などの生物学的系に対 しても,物理学的な手法による定量的な実験が行われるようになって来た.構成要素自体が アクティブな運動性を持つことがこれらの系の大きな特徴であり,多くの系で非自明な集団 運動の出現が報告されている.本講演では,我々がここ数年取り組んでいる「基板上で遊走・ 増幅する細胞集団に対する最小モデルの構築」と,それを用いて行った「細胞集団のコロニ ーの成長則に対する計算機シミュレーションの結果」について報告する.

【モデル】 現実の細胞の自走機構は様々であるが、内部のアクチン・ミオシン網による伸 張・収縮を周期的に繰り返して移動する機構が典型例の1つである.この機構で発生する力 は純粋に内的なものであるので、個々の細胞についてその総和はゼロでなければいけない. 我々はこの様な内的な力を周期的に切替えて推進する力学モデルを考え、その運動を伸縮の 1周期で平均化することで、図1(a)に示す遊走細胞の最小モデルを導出した[1].遊走状態で は前部の円盤にのみ推進力が働いているが、このモデルでは周期的に遊走状態から分裂状態 に変化することもでき(図1(c))、分裂状態では細胞を伸長させる力が前後の円盤に働く(図 1(b)).一定の時間内に前後の円盤間の距離が判別距離を超えることができれば細胞分裂が 完了したものと判断し、前後の円盤をそれぞれ1つの細胞(前後の2円盤)として独立させ る.細胞が混雑環境にある場合、細胞間の排除体積効果によって、前後の円盤間の長さが一 定の時間内に判別距離超えることが難しく、細胞分裂が完了しない.これが我々のモデルに おける増殖の接触阻害(CIP)の力学的な実装法である.[2]



図1(a) 遊走状態で細胞に働く力.(b) 分裂状態で細胞に働く力.(c) 細胞周期の一例 【結果と考察】 基板上で成長する細胞コロニーのシミュレーションを行い, コロニーサイ ズの時間変化を解析した. コロニーサイズが小さい場合は, コロニーの面積(≒細胞数)は 経過時間の指数関数となる. コロニーサイズが大きくなると, 周囲に存在する細胞が障害と なって CIP が働き, コロニーの面積は経過時間の二乗に比例するようになる. これはコロニ ーの成長につれて, 外周部の細胞の外向き速度が一定値で頭打ちになるためであり, 実験事 実とも一致している.

【参考文献】

[1] S. K. Schnyder, Y. Tanaka, J. J. Molina, R. Yamamoto, Scientific Reports 7, 5163 (2017).

[2] S. K. Schnyder, J. J. Molina, R. Yamamoto, arXiv:1810.00546.

Pattern formation of skin cancers: Effects of cancer proliferation and hydrodynamic interactions

 ¹ Department of Chemistry, Tokyo Metropolitan University,
² Department of Physics, National Tsing Hua University,
³ Department of Physics, National Central University,
⁴ Center for Anatomical Studies, Kyoto University Graduate School of Medicine Takuma Hoshino¹, Ming-Wei Liu², Kuo-An Wu², Hsuan-Yi Chen³, Tatsuaki Tsuruyama⁴, and Shigeyuki Komura¹

[Introduction]

Recently, a dynamical study on skin lesions has discussed the morphological changes in early melanoma development by using a phase separation model [1]. It demonstrated that not only the cell-cell adhesion but also the coupling to the diffusion of nutrients (oxygen) leads to the microstructure (*e.g.* "dots" and "nests") formation in the early stage melanoma. In the model, the domain coarsening takes place due to diffusion process whereas hydrodynamic interactions, which possibly presents on tissue dynamics, are not considered. Here, we study pattern formation of skin cancers by means of numerical simulation of a binary system consisting of cancer and healthy cells. Importantly, we take into account the effects of cancer proliferation and hydrodynamic interactions to describe the time evolution of cancer cells.

[Results and Discussion]

The dynamical equations are derived within the framework of Onsager's variational principle. By numerically solving the time evolution equations of the cancer composition and its velocity, we show that the phase separation kinetics strongly depends on the cell proliferation rate as well as on the strength of hydrodynamic interactions. A steady state diagram of cancer patterns is established in terms of these two dynamical parameters and some of the patterns correspond to clinically observed cancer patterns.



Figure 1 Schematic illustration of an epidermal tissue on dermis. The epidermal cell layer is composed of cancer cells (shown in black) and healthy cells (shown in white).

[References]

[1] C. Chatelain, T. Balois, P. Ciarletta, and M. B. Amar, New J. Phys. 13, 115013 (2011).

Direct observation of phase separation processes for thermo-responsive polymer solution by transient grating imaging

(Chuo Univ) Kenji Katayama, Woon Yong Sohn

Poly-(N-isopropyl acrylamide) is one of the most famous thermo-responsive polymer, which has the lower critical solution temperature (LCST) around the body temperature, and has been regarded as a promising material for biological applications. By increase in temperature beyond LCST, the coil state (hydrated state) is changed into a globule state (de-hydrated state), causing the aggregation of the polymer region and the solution becomes turbid. Although he phase transition and separation processes have been studied for many years, even the phase transition temperature is still controversial because of long-lived unknown intermediate species.¹ We have studied the phase transition dynamics by using the transient grating (TG) method, where the stripe-patterned pulse light was irradiated to the PNIPAM solution to induce the temperature rise due to the absorption of heating molecules, the response was monitored by the diffraction of the probe light caused by the refractive index change.² Though we could confirm several intermediate species from nanosecond to second orders, the analyses were very delicate especially on the order of millisecond to second orders. Here, we have developed a new TG method, where the TG is directly imaged, and we could identify the anomalous volume change during the phase separation.

A PNIPAM solutions were prepared with different concentrations in water, and New Coccine (NC) was added at 1 mM for absorption of the pump laser with a wavelength of 532 nm. The TG imaging setup is described elsewhere.³ As shown in Figure, the PNIPAM solution was suddenly expanded around 5 to 200 ms for the PNIPAM concentration of 5 %. Surprisingly, after the expansion, the grating stripe re-appeared around 200 ms again. It means that the phase separation was happened after the volume expansion. The expansion ratio was 1.4 times larger than the original volume. We will discuss this phenomena in relation with the dehydration of water molecules.



Figure Transient grating imaging of a PNIPAM solution during the phase transition and separation.

1) A. Halperin, M. Kroger, F. M. Winnik, *Angew. Chem. Int. Ed.* 2015, *51*, 15342. 2) H. Inoue, et al, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 2012, *14*, 5620, 2013, *15*, 3814. 3) T. Sato, et al., *Sci. Rep.*, 2017, *7*, 4801.

脂肪酸を含む脂質二重膜での相分離ドメインの硬化とミクロ相分離

(北陸先端大・マテリアル)下川 直史

【はじめに】

多成分脂質二重膜では低温において相分離が観察される。不飽和脂質と飽和脂質の二成分 系では飽和脂質に富む固体秩序(S₀)相と不飽和脂質に富む液体無秩序(L₀)相の相分離、コレス テロールを含む三成分系では飽和脂質とコレステロールに富む液体秩序(L₀)相と不飽和脂質 に富む L_d相の相分離が形成される。細胞膜・生体膜でもラフトドメインと呼ばれる相分離構 造が形成されていると考えられており、そのため脂質膜の相分離は生物学からも注目されて いる。

相分離は脂質組成に強く影響を受けるが、生体膜の脂質組成は摂取する食品により変化する。 特に、脂肪酸は生活習慣病などの疾病との関連性が議論されているが、相分離における脂肪 酸の寄与については十分に理解されていない。

そこで、不飽和脂質 DOPC、飽和脂質 DPPC、コレステロール(Chol)から成る系に飽和脂肪酸パルミチン酸(PA)、不飽和脂肪酸オレイン酸(OA)、トランス脂肪酸エライジン酸(EA)、 疎水部に枝分かれ構造を有する分枝脂肪酸フィタン酸(PhA)をそれぞれ添加した際の相挙動 を蛍光顕微鏡・共焦点レーザー顕微鏡により観察した⁽¹⁾。

【結果と考察】

 L_o/L_d 相分離が観察される DOPC/DPPC/Chol=40:40:20 に対して、DPPC を PA または EA に置換していった。その結果、 L_o 相が S_o相へと転移していく様子が見られた。これは相分離 ドメインが硬化したことに対応する。DPPC と PA または EA の間の強い引力が DPPC 領域 に含まれる Chol を排除したため L_o 相から S_o相への転移が起きたと考えられる。

一方、同じ脂質組成に対して DOPC を OA または PhA に置換していったところ、ストラ イプ・ヘキサゴナル・多角形といった様々な相分離パターンが観察された(Fig.1)。相分離ド メインの形状揺らぎからドメイン界面にかかる線張力を測定したところ、OA と PhA の添加 により線張力が下がっていることがわかった。また、ドメインのブラウン運動の解析よりド

メイン間相互作用を測定したところ、大きなド メイン間斥力が生じていることもわかった。

曲率エネルギー・ドメイン界面エネルギー・ ベシクル面積エネルギーの釣り合いからベシク ル形状を計算したところ、ドメインの硬化や線 張力の低下によりベシクルが自発的に変形する ことが示された。



Fig.1 OA 添加によるミクロ相分離構 造。スケールバーは 10µm。

【参考文献】

(1) N. Shimokawa, R. Mukai, M. Nagata, M. Takagi, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **19**, 13252-13263 (2017).

流体界面のトポロジー転移における自己相似動力学

(お茶の水女子大学) 奥村 剛

【はじめに】

流体界面のトポロジー転移現象はいたって身近な現象である。誰しも、はちみつをスプーンですくって、はちみつが糸上にのびて、滴(しずく)が生成するのを見たことがあるだろう。さらに、その滴が、はちみつの液槽に落ちると、液槽と合一することも容易に想像できよう。このように、液体の塊は、ごく日常的に、分離や融合という形でトポロジー転移を示す。これらの転移点では、界面の形状が特異的になり、表面張力に起因するラプラス圧が発散する。これに伴い、界面の形状の動力学が自己相似的になることが知られている。現在までに、軸対称性を持つ事例がよく研究されてきており、軸方向と動径方向のそれぞれに、時間に依存した特徴的長さが現れ、それぞれの各時刻での特徴的スケールで、各時刻の界面形状を規格化すると、一つのマスターカーブに乗るという例がいくつも知られている。このユニバーサルな形状関数は、臨界現象とのアナロジーで言えば、スケーリング関数に相当する。このような普遍的形状の出現は、分離や融合の動力学が、転移点近傍では、初期条件の違いによらずに、普遍的になることを意味する。このように、流体界面のトポロジー転移現象は、臨界現象との強い類似性があるにもかかわらず、これまでの殆どの例は、軸対称性を持った3次元の例に限られており、次元性や対称性に関する探索が十分に行われてこなかった。

【結果と考察】

本研究では、擬2次元状況での実験を行うことにより、軸対称性を持たないトポロジー転移 現象を、実験的に、はじめて発見した。具体的には、粘性液体に囲まれた気体のシートがち ぎれる状況を実験的に作り出すことに成功した。この現象は、シートが引っ張られる方向と シートの厚み方向からなる純2次元問題として捉えることができる。驚くべきことに、この 場合には、分離が起こるトポロジー転移点近傍において、特徴的な長さスケールが一つしか 存在せず、しかも、そのスケールは、転移点を原点とする時刻に単純に比例することが、実 験的に明確に示された。さらに、この長さスケールを用いて、転移点近傍の界面形状を規格 化すると普遍的な形状関数が現れ、すなわち、動力学は自己相似であることも明確に示され た。この実験事実は、ナビエストークス方程式と流量保存の式から、理論的に説明が可能で、 実験事実にサポートされたスケーリング仮設を用いると、確かに特徴的スケールが唯 ーになり、それが実験で示されたように時刻に比例することがわかった。さらに、速 度場と形状関数に対するスケーリング関数は、摂動論的に可解なこと(任意の次数ま で解析的に解ける)が分かった。このような理論構造は、これまでの軸対称性を持っ た場合と比べ驚くほどシンプルであり、これまでに、理論的に解明だった流体界面の トポロジー転移現象を解明する糸口となることも期待される。

なお、本研究は、下記の共同研究(1)に基づく。

【参考文献】

Hana Nakazato, Yuki Yamagishi, and Ko Okumura, Phys. Rev. Fluids 3, 054004
(2018)

弾性棒の剛体円筒への巻き付き

(1首都大物理, 2立命館大物理) 谷 茉莉 1, 和田 浩史 2

【はじめに】

細く柔らかい物体はしばしば、別の物体に巻き付いて存在する。例えば、アサガオなどの 蔓植物は、樹木や柵、支柱などに蔓を巻き付け、それを支えして成長する。我々は、水撒き 用のホース、電化製品のケーブルやコード、ロープや糸などを円形に巻き取ることで、破損 なくコンパクトに保存したり輸送したりしている。また食事の際に、スパゲッティをフォー クに巻きつけたり、麺を箸に絡ませたりして食べることがある。ミクロスケールでは、我々 の DNA フィラメントはタンパク質に階層的に巻き付くことで、高密度に格納されている。 このように、細く長い弾性棒の硬い構造物への巻き付きは、様々なスケールや様々な物体で 見られる形態である。

望ましい巻き付き形態を得るためには、弾性体内部に生じる張力や物体間のサイズ比が適 切であることが必要である。そもそも、弾性棒はどのようなときに硬い構造物の回りに安定 に巻き付くのであろうか。巻き付きの形は何によって決まるのであろうか。また、どのよう なときにその巻き付きはほどけるのであろうか。一見単純にきこえるこれら力学の問題は、 実は弾性力、幾何学、重力、摩擦といった複数の物理的要素が複雑に関わり合う興味深い問 題である。我々は重力と弾性力が競合するスケールにおいて、マクロ模型を使ったシンプル な実験(図1)、数値シミュレーション、弾性理論を組み合わせて、系の静的および動的な ふるまいを調べた。

【結果と考察】

我々はモデル実験において3つの巻き付き形態(tightly coiling, helically twining, no wrapping)を確認し、これ らを表す相図を作成、各境界を線形弾性理論により説明し た。また、弾性棒ー剛体円筒間の静止摩擦力が、巻き付き パターンに及ぼす影響を明らかにした。すなわち、一本の 弾性ロープ内で複数の巻き付き形態が同時に実現される のが静止摩擦力の働きによることを予測し、静止摩擦力と 排除体積効果を含んだ数値シミュレーションにより、この 特徴的なふるまいを再現することに成功した。さらに、巻 き付きがほどける場合にも注目し、弾性棒がほどける臨界 長さと、そのダイナミクスを調べた。



図1:モデル実験一例。弾性棒を 剛体円筒に固定し、円筒を回転さ せると弾性棒が円筒に巻き付く (helically twining)。

リオトロピックラメラ相のずり流動場誘起構造転移

(首都大理)加藤直

ソフトマターのずり流動場効果については多方面から研究が行われているが、中でもリオトロピックラメラ相がずり流動場により「オニオン相」に転移する現象は、30年近く前に初めて報告されて以来¹⁾、多くの研究者の注目を集めている^{2,3)}。オニオン相は、水中に分散した多重膜ベシクル(オニオン)と異なり、多面体の多重膜ベシクルのみで空間充填された構造を持つため、ゲルに類似した粘弾性挙動を示す。これまでに種々の系でラメラ→オニオン転移が報告されているが、オニオン相形成の条件や転移の機構については未だに不明の点が多い³⁾。非イオン界面活性剤 C_nH_{2n+1} (OC_2H_4) OH (C_nE_m)と水の2成分系は、静止状態において、温度変化のみにより種々のリオトロピック相に転移することが知られており、相挙動や転移機構を調べる上で有用な系であるが、このことはずり流動場下の転移についても当てはまる。本講演では、我々が C_nE_m /水系に対して行ったレオロジー/小角光散乱同時測定(rheo-SALS)およびレオロジー/X 線小角散乱同時測定(rheo-SAXS)の結果に基き、オニオン相の形成条件や転移機構について明らかになったことを述べる。

我々が研究を始めた時点で温度 - ずり速度相図が報告されていた唯一の系である $C_{10}E_3/x$ 系は、一定ずり速度下で温度を下降させるとラメラ→オニオン転移を示す⁴⁾。これに対して 我々は、一定ずり速度下で温度を上昇させるとラメラ→オニオン転移が起こることを、 $C_{16}E_7$ 系において初めて見出した^{5,6)}。我々はさらに、一定ずり速度下の温度変化に伴うラメラ→ オニオン→ラメラ転移(リエントラント転移)を $C_{14}E_5$ 系において初めて見出し、低温側と高 温側の転移をそれぞれ「下部転移」「上部転移」と名付けた⁷⁾。作成したずり速度一定下の 温度-濃度相図および濃度一定下の温度-ずり速度相図を他の系と比較すると、リエントラン ト転移は一般的な挙動であり、 $C_{10}E_3$ 系では上部転移のみが、 $C_{16}E_7$ 系では下部転移のみが観測 されるために一見異なる挙動に見えていたことがわかる。温度変化に伴うリエントラント転 移は、多面体オニオンの頂点と辺に蓄積される弾性エネルギーの温度依存性に起因すると考 えている⁷⁾。

我々はまた,転移機構の解明を目的として,転移温度近傍においてずり速度一定下で温度 を段階的に微小変化させて rheo-SAXS 測定を行った^{6,7)}。その結果,ラメラ→オニオン転移と オニオン→ラメラ転移における膜の配向は,転移の方向によらず温度のみに依存することが わかった⁷⁷。このことは、ラメラとオニオンの間の中間構造が、過渡的ではなく、温度のみ に依存する定常状態に近い構造として存在することを示唆している。

- (1) O. Diat, D. Roux, and F. Nallet, J. Phys. II (France) 3, 1427 (1993).
- (2) W. Richtering, Curr. Opin. Colloid Interface Sci., 6, 446 (2001).
- (3) T. Kato, in Advances in Biomembranes and Lipid Self-Assembly, 27, M. Rappolt and A. J. García-Sáez, Eds., Chap. 6, pp. 187-222, Academic Press (2018).
- (4) C. Oliviero, L. Coppola, R. Gianferri, I. Nicotera, and U. Olsson, *Col. Surf. A*, **228**, 85 (2003).
- (5) Y. Kosaka, M. Ito, Y. Kawabata, and T. Kato, Langmuir, 26, 3835 (2010).
- (6) M. Ito, Y. Kosaka, Y. Kawabata, and T. Kato, Langmuir, 27, 7400 (2011).
- (7) D. Sato, K. Obara, M. Iwahashi, Y. Kawabata, and T. Kato, Langmuir, 29, 121 (2013).

水・界面活性剤系でのラメラ-スポンジ相転移の 核成長と相分離過程の実時間・実空間測定

(高エネルギー加速器研究機構・加速器研究施設)西田 麻耶

【はじめに】

水・界面活性剤系の対称性の異なるメゾスケール秩序構造間相転移がどのように起こるかは 未解決の興味ある問題である。C10E3/H20系において層状のラメラ相から空間を等体積に2分 割する等方的な共連結構造のスポンジ相への相転移ダイナミクスをいろいろな光学顕微鏡を 用いて実空間・実時間測定を行い調べた。平行ガラス板間に試料を閉じ込めると2分子膜の 枚数が500枚以下であるとすべての膜が平行で欠陥のないホメオトロピックラメラ相を準備 することができ、このときラメラースポンジ共存相内にバルクより広い温度範囲で過熱準安定 ラメラ相が実現できることを見つけた。ホメオトロピックラメラ相からスピノーダル温度近 辺までゆっくりと温度を上げ、スポンジ核形成・成長の様子を観測することができた。

【結果と考察】

準安定ラメラ相内にスポンジ相核ができると、核の周りに四角格子状の周期模様が1層でき る(図1(i))。このラメラ相の四角格子状の模様はラメラ相に力学的力を加えた時に生ずる パターンに似ており、スポンジ核が発生するために回りのラメラ相に加わった応力による力 学的原因と考えている。核が成長してゆくと、辺を共有する新たな2層目の四角格子模様が できる(図1(ii))。さらに中心核が大きくなると、各周辺の四角形の個数は変化しないが、 辺の長さに大小が生じ、1層目の大きな辺の四角形は一部五角形となり(図1(ii))、さらに 進むと六角形となるのとほぼ同時にその中心に新たなスポンジ相核が現れ(図1(iv))、スポ ンジ相核は花弁状になってゆく。さらに進展すると近接する格子の4辺が交わる点からスポ ンジ核が生ずる(図1(vi))。ラメラースポンジ相界面の移動速度も測定でき、スポンジ相領域、 ラメラ相領域が融合してゆく時間変化も観察されている。ラメラ-スポンジ1次相転移ダイナ ミクスに新たな情報を提供すると考えられる。

【参考文献】

(1) 西田 麻耶、「 両親媒性二分子膜のラメラ・スポンジ転移に対する空間拘束効果」

(東京大学物理工学専攻、修士論文 2012年3月)」

(2)西田麻耶、田中肇、「空間拘束下におけるラメラ-スポンジ相転移とパターン形成」 日本物理学会講演概要集 第67巻1号 p. 396, (24pAH-12)、2012.3.24.



図1 ホメオトロピックなラメラ相中のスポンジ核成長(1)(2)

リオトロピック液晶共連続逆キュービック相の小角 X線単結晶構造解析

(静岡大学理学部物理学科・電子工学研究所)岡俊彦

【はじめに】

両親媒性分子と水などからなるリオトロピック液晶は、親水性領域と疎水性領域がナノス ケールで相分離し様々な相構造を形成する。共連続逆キュービック相では脂質や界面活性剤 などの両親媒性分子が3次元的に連続する2分子膜を形成し、水の存在する領域を相互に絡 み合うが交わらない2つの空間に分ける。共連続逆キュービック相はプリミティブ(P)型、 ダイアモンド(D)型、ジャイロイド(G)型の3種類が観測されている。私のグループでは 以前に脂質共連続逆キュービック相の単結晶の作成法を開発した(1)。その後、小角領域のみ のデータではあるが世界で初めてX線単結晶構造解析に成功し、共連続逆キュービック相に 関する新たな知見を得た(2)。

【結果と考察】

モノオレイン/水系の3種類の共連続逆キュービック相について単結晶を作成し、回転結晶 法によりX線回折を測定した。このデータは、2分子膜の膜厚が一定かつ場所依存性のない 等方的ガウス関数型ゆらぎを持つモデルとある程度の一致を示し、位相を決定することがで きた。得られた電子密度図の空間分解能は2.9から2.4nmとなった。電子密度図では脂質頭 部の電子密度図の高い部分、炭化水素部の低い部分が明瞭に区別できた。また水分量の多い P型、D型では水の領域も明らかであった。一方で得られた電子密度図は前述のモデルと一 致しない部分があった。解析の結果、これは場所に依存して、つまり2分子膜のガウス曲率 依存的にゆらぎの大きさが変化していると考えると説明できることが分かった(2)。

フィタントリオール/水系のD型、G型についても解析を行った。最終的に得られた電子密度図の空間分解能は1.2nmであり、より詳しいモデルを用いた解析が可能であった。こちらについても報告する。

【参考文献】

- (1) T. Oka, H. Hojo, Langmuir 30, 8253 (2014)
- (2) T. Oka, J. Phys. Chem. B 121, 11399 (2017)

液晶系における螺旋反転の理論

(九州工業大学・情報工学部・物理情報工学科) 松山明彦

【はじめに】

ソフトマターにおける"ねじれ(twist)"は様々なところで現れる。ねじれには右巻き螺旋 と左巻き螺旋が存在する。このような螺旋構造をもつコレステリック相では光学的特性とし て、螺旋反転や旋光性や円偏光二色性などが観測されている。例えば、最も単純には、右ね じれと左ねじれを持つキラル液晶分子を混合させた場合、濃度に依存して螺旋反転が起こる ことがある⁽¹⁾。さらに DNA はイオン、温度、溶媒、PH、光などの外的刺激によって右ねじ れから左ねじれに螺旋反転が起こる。このような螺旋反転の理解は、ねじれ構造を持つソフ トマターにおいて重要なテーマの一つである。

本研究では,最近のねじれ液晶の平均場理論⁽²⁾を発展させて,液晶系における螺旋反転の理論を構築し,そのメカニズムについて研究する⁽³⁾。

【結果と考察】

右巻きのキラル液晶分子の二成分混合系において, 濃度に依存して左巻きになる場合がある。図は実験(赤丸⁽¹⁾)と理論(実線)の比較を示す。縦軸は螺旋のピッチ長, 横軸は濃度, ピッチ波数 Q*>0 は右巻き, Q*<0 は左巻きを示し, Q*=0 で螺旋反転が起こる。2種類の キラル液晶分子間のキラル相互作用パラメーター ε_x に依存してピッチ波数に様々な濃度依存 性が現れる。例えば, $\varepsilon_x = -6.0$ では, ピッチ波数がゼロになる螺旋反転の濃度が2つ現れる。



 $\varepsilon_x = -1.8$ は螺旋反転が起こる 臨界値になる。

キラル液晶分子の二成分混合系 やネマチック液晶分子とキラル 液晶分子の混合系で起こる螺旋 反転の条件や,螺旋ピッチ長の 濃度依存性などについて明らか にする。さらに,相分離曲線と螺 旋反転濃度の関係から,右巻き と左巻きの相分離や,右巻きと 右巻きの相分離などが起こる。

【参考文献】

(1) Finkelmann, H., et.al, Naturforsch Z. 28a, 1046 (1973).

(2) Matsuyama, A. J. Chem. Phys. **139**, 174906 (2013); Liq. Cryst. 45, 153 (2017);

- Liq. Cryst. 43, 783 (2016); etc.
- (3) Matsuyama, A. Liq. Cryst. Published online: 30 April (2018).

コレステリックダブルツイストシリンダー滴の集合体形成と剛体回転

(1早大理工, 2各務材研)坊野 慎治¹, 丸山 雄司¹, 西山 活¹, 多辺 由佳^{1, 2}

【はじめに】

コレステリック(Ch)液晶試料を Ch-等方相(Iso)共存相温度まで冷却すると、中心に十字状の 組織を有するダブルツイスト円柱形状(DTC)滴が生じる(Fig.1(a-1))¹。DTC 滴内部の液晶配向 は、中心では基板と垂直方向に配向し、動径方向に離れるにしたがい一方向にねじれている。 一般的に、熱流や物質流下²のキラルな液晶は、力と流れの交差相関により、一方向 Lehmann 回転を示すことが知られている。しかしこれまでの研究では、DTC 滴に円柱対称軸と平行な 熱流を印加しても、円柱対称性を有する DTC 滴の回転は観察されていない。

本研究では、DTC 滴の剛体回転を顕在化するために複数の DTC 滴をそれぞれの DTC 構造を保ったまま集合させ、円柱対称軸に沿った熱流により DTC 滴の回転を駆 動する³。特に DTC 滴に少量のアゾベンゼン高分子を加えることで、複数の滴が接触 する際の配向の再構成を阻害し、安定な一方向回転を実現した。

【結果と考察】

共存相温度から冷却すると、複数個の DTC 滴が接触する、図 1(a-1)-(a-3)に 2 つの DTC 滴 の接触過程を示した。滴が接触しても再配向せ ず、2 つの DTC 構造(十字状の組織)を有する集 合体を形成する。この過程を繰り返すことで集 合数が増加し、図 1(b-d)に示したような集合数 が多い DTC 集合体が観察された。

得られた DTC 集合体に円柱対称軸に平行な 方向から熱流を印加すると一方向剛体回転を 示す。図 2(a-b)に集合数が 2-4の DTC 集合 体の偏光顕微鏡像をそれぞれ示した。どの DTC 集合体も時計回りに一定角速度で回 転しており、その角速度は 1+2/sin²(π/N)に 反比例する。我々は Lehmann トルクと粘性 トルクとの釣り合いに基づいた理論モデル を作成し、実験で観察された回転挙動を定 量的に説明することに成功した。

【参考文献】

- (1) J. Yoshioka, et al., Soft Matter, 12, 2400 (2016)
- (2) S. Bono, et al., Soft Matter, 13, 6569 (2017)
- (3) S. Bono, et al., Soft Matter, accepted (2018)



図1(a-1)-(a-3):2 つのDTC 滴が 接触する過程。(b-d):集合数が5, 7及び30のDTC集合体の偏光顕 微鏡像。



図 2: 熱流下における(a) 集合数 2, (b) 3 及び(c) 4のDTC 集合体の一様剛体 回転の偏光顕微鏡像。スナップショ ットは 0.67s 間隔で撮影した。

回転磁場におけるキラリティを持った粒子

(山形大学) 牧野 真人

【はじめに】

右手と左手のように、ある物体とその鏡像が任意の回転で重ね合わせることが出来ない場 合、その物体はキラリティを持つと言う。キラリティを持った粒子はプロペラのように並進 と回転がカップリングしており、回転運動をすることで並進運動することが出来る。この並 進運動の方向は、その粒子が持っているキラリティに応じて、正負が決定する。すなわち、 右手に分類される粒子が回転の軸の正方向に進むのであれば、左手に分類される粒子は回転 軸の負の方向に進むことが期待される。我々は、この効果の例として、キラリティを持った 粒子をせん断流に分散させ、せん断流の回転の方向すなわち渦度の方向に右と左に応じて、 別々の方向に動くこと、キラリティ及び磁気ダイポールを持った粒子を回転磁場に分散させ、 回転軸に対して別々の方向に動くことを報告してきた^{1,2}。ここでは、異方的な磁気帯磁率を 持つ粒子を回転磁場に分散して、キラリティに応じて、どのように運動するかを報告する。

【結果と考察】

図1の二つの円盤からなるプロペラ状粒子 を考える。二つの円盤のなす角 θ がキラリテ ィを与える。帯磁率を持つ粒子は磁場Bを与 えると定数を α として、 $-\alpha B \cdot \chi \cdot B/2$ のエネ ルギーを持つ。この粒子は、軸に垂直および 平行な帯磁率の差 $\chi_a = \chi_{\parallel} - \chi_{\perp}$ が正の場合は 磁場と粒子の軸は平行に配向、負の場合は磁 場と粒子の軸は垂直な方向に配向する³。こ の配向する性質から周波数 ω の回転磁場を与 えることで粒子を回転させることが出来る。





回転に伴い、プロペラ状粒子は、キラリティに応じて回転軸に平行な正負の方向に進むこと をブラウン運動が強く $h \gg a$ の場合、理論で示される。その移動速度は、 $\langle V \rangle = M(\omega)B^4$ と磁 場の強さの4乗に比例し、

$$M(\omega) = \frac{1}{2949120} \frac{\alpha^2 \chi_a^2}{\eta^2 h^3} \sin 2\theta \left\{ -\frac{15}{2h^2} \frac{\omega \tau_1^2}{1 + (\omega \tau_1)^2} + \frac{1}{a^2} \frac{\omega \tau_2^2}{1 + (\omega \tau_2)^2} \right\}$$

となる。ここで、 η は粘度、 $\tau_1 \ge \tau_2$ は、粒子の軸に垂直な周り、粒子の軸の周りの回転緩和時間である。この $M(\omega)$ の式に、 $\sin 2\theta$ がプロペラ状粒子のキラリティに基づいて移動を与えている。二つの緩和時間で、磁場の周波数 ω によっても移動方向の正負が変化することが分かる。当日はシミュレーション結果についても議論する予定である。

【参考文献】

(1) Masato Makino and Masao Doi, Physics of Fluids, 17, 103605(2005)

- (2) Masao Doi and Masato Makino, Physics of Fluids 28, 093302 (2016)
- (3)Tsunehisa Kimura, Polymer Journal, 35, 823 (2003)

紫外線照射下での化学反応を利用したソフトマターのダイナミクス

(神奈川大理) 鈴木 健太郎・菅原 正・山口 和夫

化学反応を利用して、ベシクルや油滴のようなメソスケールのソフトマターを構築する分子の構造や 特性を変化させることによって、自己生産や自己駆動と言った、時間展開する反応進行と連動した 自発的なマクロダイナミクスが実現される[1]。このような手法を様々なソフトマターに適応すれば、化 学反応ネットワークによって支えられた生命現象の理解に繋がる興味あるモデル系の構築が期待さ れる。最近我々は、いわゆる「ケージド化合物」と呼ばれる光分解性分子に着目している。例えば、ニ トロベンジル基で保護されたカルボン酸は、紫外線照射によってカルボン酸を生じ、その極性を大き く変化させる。この反応を制御する波長350 nm付近の紫外線は、水や脂質など多くの分子に影響を 与えないため、メソスケールのソフトマターのダイナミクスを誘起する化学反応の進行を、紫外線照射 によって制御することができる。

1. 光に向かって進む走光性油滴

疎水性のニトロベンジルオレイン酸(NBO)を主成分とする油滴を調整し、これに紫外線照射したところ、油滴が紫外線源の方向に向かう走 光性を示すことを見いだした[2]。油滴を構成するNBOは、紫外線照射 下で界面活性のあるオレイン酸を生じるが、油滴の紫外線照射面での 反応進行は、同一油滴上のその他の表面と比べて大きい。その結果、 油滴表面上の表面張力勾配が生じ、マランゴニ効果による運動が実現 されたと理解される。さらに、油滴内部に出現する内部の対流が、この 勾配を持続させる役割持つことを観測により明らかにした。



図1 紫外線照射方向(紙面 左)に自ら駆動する油滴

2. 光開孔性ベシクルを封入した二重ベシクル

疎水基の末端にニトロベンジルカルボン酸部位を持つリン脂質を 含む二分子膜からなるベシクルに紫外線照射すると、膜が開孔し内 容物の放出が行えることを確認した。さらにこのベシクルを、光感受 性のないリン脂質からなるベシクルに内部に封入した二重ベシクル を調整した。内部のベシクルは、外部のベシクルによって外界から 物理的に切り離されているにもかかわらず、紫外線照射によって任 意のタイミングで開孔し、その内容物の放出が行えることを、DNA と それを感応する蛍光色素を用いた観察により明らかにした。この 手法は、生体細胞に類似した、ベシクル内部からの物質添加に よる変調を実現しうる手法として興味深い。



図2紫外線照射による内部 ベシクルからのDNA放出

【参考文献】

- (1) K. Suzuki, T. Toyota, K. Takakura, T. Sugawara, Chem. Lett. 38, 1010 (2009).
- (2) K. Suzuki, T. Sugawara, ChemPhysChem 17, 2300 (2016).
- (3) K. Suzuki, K. Machida, K. Yamaguchi, T. Sugawara, Chem. Phys. Lipid 210, 70 (2018).

温度応答性ゲルのネットワークゆらぎ

(東大物性研) 呉羽拓真、林恭平、Li Xiang、柴山 充弘

【はじめに】

水で膨潤するハイドロゲルは、溶媒種、温度、pH等の周囲の環境変化に応答し、自身の体積 を変化させることから、アクチュエータや生体材料等への応用が期待される。特に、外部刺 激応答性に関する研究は古くから行われており、理論的または実験的に解釈が進められてい る。その中でも近年、下限臨界共溶温度(LCST)を有する生体適合性の高いポリマーが提案さ れた[1]。このポリマーの基本骨格はアクリレートまたはメタクリレートの主鎖に対し、オリ ゴエチレングリコールの側鎖を有しており、この側鎖が温度によって水和・脱水和を引き起 こすため、相分離が生じると考えられている。また、側鎖のエチレングリコールユニット数 に依存して相転移温度も変わるため、2 種の相転移温度が異なるポリマーを共重合すること で任意に高分子鎖やゲル全体の相転移温度を調整することができる。しかし、現状では、こ れらポリマーおよびそれを架橋したハイドロゲルの温度応答性メカニズムとそれに伴う物性 変化の知見は乏しく、機能向上に向けた設計指針等に活きる構造情報が必要である。本研究 では、側鎖に異なるエチレングリコールユニット数を有するポリマーが共重合されたハイド ロゲルの物性を評価することを試みた。特に、動的光散乱法(DLS)を用いて、温度によって変 化するゲルの動的物性を評価し、議論する。

【結果と考察】

得られた散乱光強度の自己相関関数を示す(Figure 1a)。一般にゲルの DLS 測定では、単一の 指数関数で記述可能なゲルネットワーク由来のゆらぎ(協同拡散)を観測できる[3]。一方、本 研究で作製したゲルの場合は、膨潤または収縮状態に関わらず協同拡散とそれよりも遅いモ ードの2つが観察された。これは2種の異なる LCST を有するポリマーを共重合したゲル内 部において、高分子鎖同士が会合した相分離が生じると考えている。実際に、Figure 1 中の式 を用いてフィッティングを行い、得られた拡散係数から見積もったゆらぎの相関長(Figure 1b)

は臨界温度に向かって発散する一方、相 分離したドメイン由来の Slow モードの 割合を表す 1-A も昇温に伴い増加し、高 分子鎖同士が会合したドメインが成長 していることを示唆している(Figure 1c)。

以上のように、ホモポリマーを架橋し て調整する温度応答性ゲルとは異なる 相転移挙動を示すことが考えられ、共重 合で調整するゲルとの相違点を明確に することは今後さらに複雑で機能が求 められるゲルの設計指針を立てる際に 有用な知見になると考えている。



Figure 1. (a) Scattering intensity time correlation function observed at different temperatures. Temperature dependence of (b) the correlation

【参考文献】

[1] Lutz, J. F.; Hoth, A. Macromolecules 39, 893 (2006)

[2] Kureha, T.; Hayashi, K. Ohira, M.; Li, X.; Shibayama, M. Macromolecules accepted (2018)

DNA 鎖長依存型超分子触媒を起点とする情報の流れ

(1東大院総合・2神奈川大理) 松尾宗征1・平田結子2・鈴木健太郎2・菅原 正2

生命の起源およびその本質を物質サイドから解明するには、膜や高分子といったソフトマ ターを用いて人工細胞を化学的に構築するアプローチが有効である。生命は遺伝情報の 子孫への伝達を伴った、細胞の自己再生産に本質がある。現存細胞において、遺伝情報 発現のダイナミクスは、DNA に書き込まれた配列情報(遺伝子型)の転写と翻訳により、タン パク質を発現すること(表現型)で達成されているが、このように高度な仕組みが前生物的時 代に存在した原始細胞に最初から備わっていたとは考え難い。

既に我々は、人工細胞にとってコンパートメントに相当するジャイアントベシクル(GV)内部 での DNA 複製と、GVの自己生産が連動して起こる系の構築に成功している[1,2]が、内封 した DNA の情報分子としての役割は明確ではなかった。その際、GV 内部で増幅した DNA の表面がカチオン性脂質に取り巻かれて疎水化するのに伴い、GV 膜内に陥入してカチオ ン性の分子性触媒と超分子触媒(C@DNA)を形成すると考えられる。これが DNA 封入ベシ クルの迅速な自己生産の起点になっているとする仮設を、その錯体形成および触媒機能に おける相乗効果により実験的に証明した。この超分子触媒における DNA の鎖長は、引き付 ける触媒分子数を制御し、翻って膜分子生産の効率に影響を与える可能性がある。

そこで、鎖長の異なる DNA を封入した 3 種の GV(核酸濃度一定)を用意し、外部からの 膜分子前駆体が誘起する GV の分裂様式およびその頻度について、フローサイトメトリによ る多数 GV(10⁴ 個)の集団解析、共焦点顕微鏡を用いた増加 GV 数(10²~10³ 個)の数え上げ、 および、単一 GV 観察による形態変化の追跡より、DNA の鎖長と分裂様式に明らかな相関 があることを見出した。このことは、DNA の鎖長が情報としての役割を担っていることを意味 している。すなわち転写・翻訳系をもたない原始的モデル人工細胞においても、生物的情 報の流れが創発することが示された(図 1)。さらに異なる鎖長の DNA を内封した複数の GV に V*添加を行い、競争的自己生産を行わせることで優勢種が出現することも明らかになっ た。これらの成果は GV 型モデル人工細胞における進化の可能性を示唆している。



【参考文献】

(1) K. Kurihara, M. Tamura, K. Shohda, T. Toyota, K. Suzuki, T. Sugawara, Nature Chem. 3, 775 (2011)

(2) K. Kurihara, Y. Okura, M. Matsuo, T. Toyota, K. Suzuki, T. Sugawara, Nature Commun. 6, 8652 (2015)