

バネビーズ模型のダイナミクスの濃度依存性

平均二乗変位, Rouse モード解析を中心に

(東北大学理学研究科) 麻生 翔吾

村島 隆浩

川勝 年洋

【はじめに】

高分子の濃厚溶液中におけるダイナミクスを考察する場合、現在のところ高分子鎖一つのダイナミクス(Rouse model)[1], 及び高分子鎖間のからみあいのダイナミクス(Reptation model)[1]を考慮しなければいけないことが知られている。前者と後者は、各々が支配的となる時間領域で平均二乗変位(MSD)のべき依存性が異なる。また高分子鎖の Rouse モード[2]においても、系を支配するダイナミクスと緩和時間のべき乗則が密接に関係していることが分かっている。

このダイナミクスをシミュレーションでよく再現するモデルに Grest-Kremer model[3]が挙げられるが、濃度をパラメータとして変化させた際にどのような挙動を示すのかよくわかっていない。そこで本研究では、Grest-Kremer model の濃度パラメータを変更した際に、Grest-Kremer model のダイナミクスがどのような濃度依存性を示すかシミュレーションを行った。

【結果と考察】

Rouse mode の最長緩和時間が濃度について指数関数的に増加していくことが分かった。またある濃度を境に、緩和時間の濃度についての指数関数緩和が変化することも分かった(図 1)。

次に、高分子鎖の MSD について解析を行ったところ、低濃度で極短時間スケール側で高分子重心の明確なバリスティック挙動が観察された。高濃度ではバリスティックな挙動を示す時間領域が短いことも判明した(図 2)。

発表では、これらの短時間側のバリスティックな挙動の振る舞いが長時間側のダイナミクスにどのような影響を及ぼすかを中心に、Grest-Kremer model のダイナミクスの濃度依存性について議論を行う。

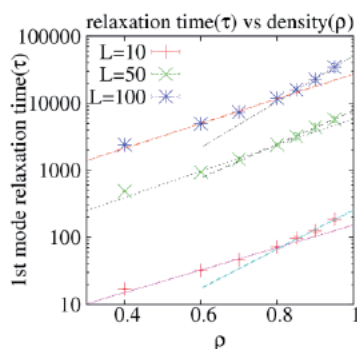


図 1. Rouse モード最長緩和時間の濃度依存性。

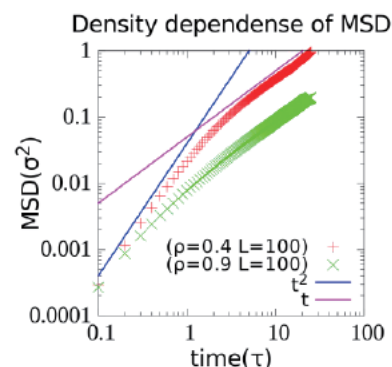


図 2. 数密度による MSD の振る舞いの違い。

【参考文献】

- [1]M. Doi and S. F. Edwards, “The Theory of Polymer Dynamics”, (Oxford, 1986)
- [2]K. Kremer, et al., Phys. Rev. Lett., **61**, 566 (1988)
- [3]G. S. Grest and K.Kremer, Phys. Rev. A, **33**, 3628 (1986)

イソ酪酸-水系の臨界点近傍における溶解ダイナミクス

首都大物理 石崎健太・及川典子・栗田玲

【はじめに】

相分離の臨界点近傍においては、濃度ゆらぎが大きくなるために、特異的なダイナミクスを示すことが知られている。これまでの研究の多くは相分離に注目したものが多く、溶解ダイナミクスについての研究は数少ない。そこで本研究では、イソ酪酸-水系の溶解ダイナミクスの観察を行った。イソ酪酸-水系は室温付近で UCST 型の相分離挙動を示し、その臨界温度は 299K 程度^[1]である。したがって、室温付近で二相状態から一相状態への溶解過程を観察することが可能である。一般的な溶解過程における二相間の濃度差は、はじめ急峻な濃度差をもち、時間とともになだらかな濃度分布へと変化する。しかしながら、本研究により観察したイソ酪酸-水系における二相間の界面は、一相領域の温度においても長時間存在しつづけ、二相間の濃度分布の変化も特異的な挙動を示した。

【実験】

イソ酪酸-水系の溶解ダイナミクスの観察のための実験系は、ガラス製容器、ビーカー、ならびに保温器から構成される。ガラス製容器にイソ酪酸-水系の溶液を封入し、イソ酪酸-水系が相分離する二相領域の温度環境（室温下あるいは冷蔵庫内）のもとに 60 分程度放置することで、内部の溶液を相分離させる。その後、相分離状態の溶液の入ったガラス製容器を、保温器により定温維持されたビーカー内の水により加熱することで、イソ酪酸-水系の溶解過程を観察した。なお、水の温度は、臨界点近傍の 301K 程度と、臨界点より十分遠い 313K 程度の 2 点で実験を行った。

【結果】

本研究により観察したイソ酪酸-水系における二相間の界面は、一相領域の温度においても長時間存在しつづけ、二相間の濃度分布の変化も特異的な挙動を示した。このことが、どのような原因により引き起こされる現象であるのか、水-グリセリン系の溶解過程の観察などとの比較によって考察する。

【参考文献】

[1] J.A.Pojman *et al.*, Langmuir 2006, 22, 2569-2577(2006)

コロイド分散系のマイクロレオロジーにおける粒子間相互作用の効果

(九州大学大学院 理学府) 井上 雅郎

(新潟大学 自然科学系) 吉森 明

【 問題設定 】

複雑流体の内部に挿入されたプローブ粒子の運動の様子から、その複雑流体の力学的性質を決定するマイクロレオロジーが近年盛んに使われている。本研究の目的は、複雑流体を構成する粒子（コロイド粒子や高分子鎖など）の粒子間相互作用がプローブ粒子の運動に及ぼす影響を理論的に解明することである。そこで、簡単な問題設定として、コロイド分散系の中で剛体球（プローブ粒子）を速度 U で動かす場合を考える。この時、プローブ粒子が周りのコロイド粒子から受ける抵抗力 F とする。この問題設定の下で、コロイド粒子間の相互作用が速度 U と抵抗力 F との関係に及ぼす影響を解明する。

【 手法 】

動的密度汎関数理論を用いた数値計算から、プローブ粒子周辺のコロイド粒子の濃度分布を求める。動的密度汎関数理論とは、主に液体分子のダイナミクスの記事に用いられる理論であり、粒子間の相互作用を考慮できるという利点を持つ。抵抗力 F は、定常状態におけるプローブ粒子周辺のコロイド粒子の濃度分布から求められる。

【 結果 】

コロイド粒子間に剛体球相互作用がある場合（図1の点と実線）とない場合（図1の破線）について、抵抗係数 F/U を比較した。その結果、コロイド粒子間の相互作用の効果は無次元速度 U^* に応じて変化することが分かった。

- $U^* = 0.1$ の場合には、コロイド粒子間の剛体球相互作用によって、抵抗係数は減少している。（相互作用がある場合の方が、ない場合よりも小さい）
- $U^* = 10$ の場合には、これらの相互作用によって、抵抗係数は増加している。

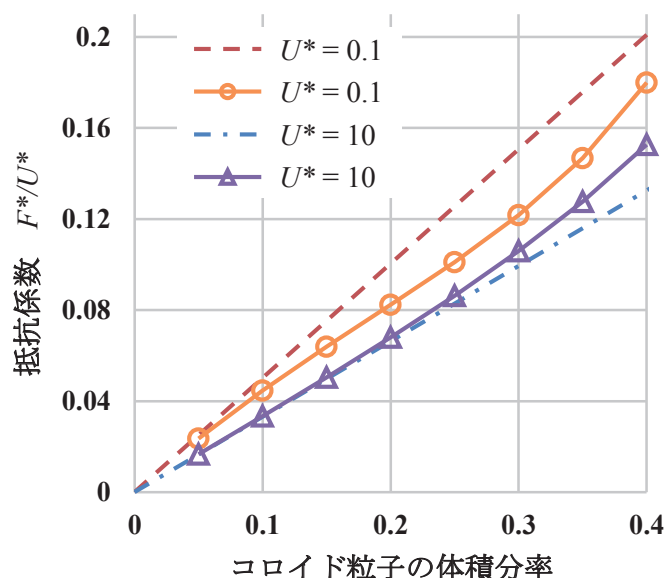


図1: 抵抗係数 F/U の体積分率依存性。コロイド粒子間に剛体球相互作用がある場合（点と実線）とない場合（破線）の計算結果をプロットしている。ここで、

$$U^* \equiv U(a+b)/D$$

$$F^* \equiv Fb^3/\{k_B T(a+b)^2\}$$

a と b はそれぞれプローブ粒子とコロイド粒子の半径、 D は拡散係数である。プローブとコロイド粒子のサイズ比は $a:b=1:1$ とした。

モデル多成分生体膜の理論的研究

(東北大学大学院理学研究科) 上町正志、川勝年洋

【はじめに】

生体膜が接着、融合する現象は、生体内の物質の輸送(membrane traffic)やウイルス感染等、様々な生体現象において重要な役割を果たしている。リン脂質やブロックコポリマーが作るベシクルや二重膜構造は生体膜のモデルとしてよく用いられ、理論、実験、シミュレーションといった方法で解析が行われている。先行研究により、膜が持つ張力(1)、膜面上のドメイン構造(2)は接着した際の構造を決める重要な要因であることが示唆されている。そこで、本研究では分子シミュレーションを用いて自由エネルギーの評価を行うことで、膜が接着する際に表面のドメイン構造が与える影響を定量的に解析することを目的としている。

【方法】

本研究では両親媒性分子のモデルとして、近年発展が著しい particle-field モデルを採用する。particle-field モデルは計算速度が極めて速く、ポリマー系や生体系など様々な系に適用されている(3)(4)。先行研究では主に NVT アンサンブルによる分子シミュレーションが広く行われているものの、NVT アンサンブルを用いて、膜が接着する前後の張力を一定に保つことは難しい。そこで、本研究では張力ゼロの二重膜、stalk を作るため、particle-field モデルにおいて NPT アンサンブルのモンテカルロ・シミュレーションを行う方法を新たに考案した。そして、thermodynamic integration により stalk と二重膜の間の自由エネルギー差を求める。

【結果と考察】

z 軸に垂直に配置された膜の張力 γ は、応力テンソルの対角成分 P_{xx}, P_{yy}, P_{zz} 、z 軸方向のシミュレーションボックスの長さ h_z を用いて $\gamma = h_z \langle P_{zz} - (P_{xx} + P_{yy}) / 2 \rangle$ と表すことができる。右図は、文献(5)に述べられた方法を用いて求めた P_{xx}, P_{yy}, P_{zz} を縦軸に、横軸にモンテカルロステップ(MCS)をとったグラフである。右図より、十分に緩和した状態では膜の張力がゼロとなっていることがわかる。シミュレーション手法の詳細、自由エネルギーの評価に関する結果は当日報告する予定である。

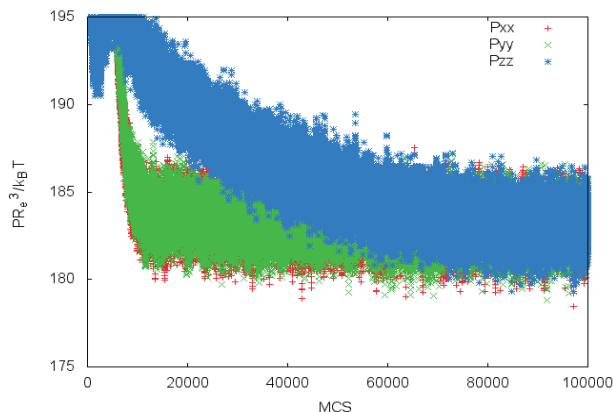


図 応力テンソルの対角成分

【参考文献】

- (1) J. C. Shillcock, R. Lipowsky, Nature Materials **4**, 225 - 228 (2005)
- (2) Y. Sakuma, et al., Eur. Phys. J. E **25**, 403 - 413 (2008)
- (3) G. Milano, T. Kawakatsu, J. Chem. Phys. **130**, 214106 (2009)
- (4) Y. Norizoe, et al., Faraday Discuss., **144**, 369 - 391 (2010)
- (5) G. Milano, T. Kawakatsu, J. Chem. Phys. **133**, 214102 (2010)

塗料のパターン形成

(お茶大理) 牛嶋麗夏、工藤和恵

【はじめに】

塗料が乾燥する際には、塗料自体の性質や塗布する材質によっては均一に塗ったつもりでも、ムラやヒビが出来るなどの不均一性が見られることがある。本研究では、塗料の一種であるマニキュアが乾燥する際に出来るパターンに注目する。

【結果と考察】

まず、マニキュアが乾燥する様子を観察する簡単な実験を行った。プラスチック基板とガラス基板にマニキュアを塗り、塗った直後と乾燥後の表面の様子を観察した。ガラス基板上のマニキュアの表面には、乾燥前後で目立った変化はなかった(図1a)。しかし、プラスチック基板上のマニキュアの表面には、乾燥後にシワのような模様が見られた(図1b)。これらの違いの考えられる原因は、基板の違いによる気体の透過率の違いと表面張力の違いである。

一般的にプラスチックの気体の透過率は、ガラスに比べて非常に大きいことが知られているため、基板からの蒸発がシワに影響を与えることが考えられる。しかし、プラスチックの下にガラスを置き、基板からの蒸発を防いだ状態で同様の実験を行った際も同じようにシワのような模様が見られた。このことから、表面張力の違いがシワに影響を与えると考えられる。

高分子溶液の乾燥シミュレーションの文献(1)の以下のモデル

$$\frac{\partial h}{\partial t} + Ca^{-1} \nabla \cdot (h \mathbf{v}) = -J$$

$$\frac{\partial(\phi h)}{\partial t} + Ca^{-1} \nabla \cdot (\phi h \mathbf{v}) = Pe^{-1} \nabla \cdot (h \nabla \phi)$$

をもとに、膜にかかる圧力を考慮したモデルを用いる。このモデルを用いて、表面張力がシワにどのように影響を与えるか数値シミュレーションで確かめた結果を報告する。



図1 塗料の乾燥後の表面の様子。(a)ガラス基板の場合(b)プラスチック基板の場合

【参考文献】

- (1) M. Kobayashi, M. Makino, T. Okuzono, and M. Doi, J. Phys. Soc. Jpn. **79**, 044802 (2010)
- (2) M. J. Blount, M. J. Miksis, and S. H. Davis, Phys. Rev. E **85**, 016330 (2012)

液晶が膜に及ぼす影響

東北大学理学研究科 奥島 駿、川勝 年洋

【はじめに】

液晶がある構造に閉じ込められると、液晶のバルク部分の曲げ弾性エネルギーと、界面に起因するエネルギーの競合により、内部の液晶が特徴的な空間構造を示すことが知られている。このような性質のために、液晶の閉じ込め系は分子センサーへの応用が期待されている[1]。この閉じ込められた液晶系に関して、我々は、閉じ込めの拘束を与えている界面が柔らかい膜でできている場合、すなわち、変形可能なソフトな閉じ込めの場合について興味を持って研究を行っている。ここで、液晶は低分子量の回転楕円体の分子形状を持ち、2枚の互いに平行な界面活性剤単層膜で挟まれた層状構造をとっているとし、膜の外側は等方性の液体で満たされているとする。この系について、粗視化分子モデルを用いたモンテカルロシミュレーションを実行し、液晶の膜に対する配向のし易さを制御するアンカリングの強さを表すパラメータを様々に変えて、膜の物性を測定した。アンカリングは、実際的には液晶と固体基板との間の立体相互作用やファンデアワールス力を利用して液晶の向きを制御するものだが、このシミュレーションでは、液晶と界面活性剤の疎水基との相互作用ポテンシャルの中に表れる異方的な引力の大きさを制御することで、アンカリングを実現した。

【結果と考察】

以下、 ξ をアンカリングパラメータとする。 $\xi=1$ では相互作用は等方的だが、 $\xi>1$ では相互作用引力の異方性が強くなり、液晶は膜の法線方向を向きやすくなる。

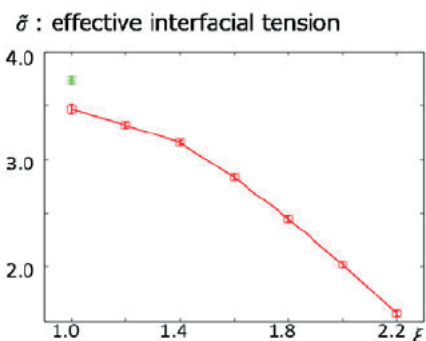


図1：界面張力の ξ 依存性。赤いラインは膜の間に液晶を挟んだ場合で、緑は等方性液体を挟んだ場合。膜の物性として測定したのは、界面張力と曲げ弾性の二つである。まず、界面張力の ξ 依存性は図1のようになった。我々の液晶のモデル分子は回転楕円体形状をしているため、形状による界面張力への影響を見るために、粒子数や温度などのパラメータは変えず、膜に挟まれている液体が球状分子から成る等方性液体の場合についても界面張力を計測した（図の緑の点）。2枚の膜間の液体を球形から楕円形にしただけの場合($\xi=1$)、わずかながら界面張力が下がっていて、 $\xi>1$ では界面張力が減少傾向にあることが分かる。このことから我々は、界面張力に対して、(i)膜と液晶との間の相互作用引力、(ii)液晶の曲げ弾性、の2つの要因が影響を与えていると考えた。この仮説の検証のために、液晶の配向秩序パラメータを用いた理論モデルの解析を行い、その結果得られた界面張力の表式に ξ の変化による引力の変化の効果を追加し、計測結果と比較した。この結果、液晶の配向秩序は界面張力を下げるが、その寄与は ξ の変化に対して一定であり、 $\xi>1$ での界面張力の低下を与えているのは、引力の効果であることが分かった。詳細については当日発表する。

【参考文献】

[1] J.K.Gupta, et al., *Langmuir*, 2009, 25(16), 9016-9024

流動誘起不安定化機構に基づく No-slip 境界条件の破れの考察

(東大生研) 黒谷 雄司・古川 亮・田中 肇

【はじめに】

流体力学で通常仮定される流体の速度が境界壁の速度と一致するという no-slip 境界条件は、ミクロなスケールでは一般に成立しないことが実験的に確認されている[1, 2]。特に、流体と境界壁の接触角が 90 度以上の場合、流体に気体が過剰に溶けている場合（例：水に対する CO_2 ）にスリップが顕著に起こることが知られているが、その理論的機構は十分理解されていない。そこで、粘性率が密度依存性を保つ Navier-Stokes 流体はせん断流下で密度が空間的に不安定化するという流動誘起不安定化機構[3]を境界壁がある場合に考察することで、本現象を説明できるか検討した。

【結果と考察】

気体が過飽和に溶けた準安定な液体に対し、シミュレーションを用いて、せん断流下での気泡の不均一核生成・成長過程を調べた。その結果、粘性率が密度に依存する場合、せん断流下では古典核形成理論から推定される時間よりも不均一核生成が極端に短い時間で起こることが判った。この気泡が成長することで壁面近傍での流体密度及び粘性率が低下し、見かけ上流体がスリップすることが説明出来る。また、本機構によると流体の準安定度が小さくても、不均一核生成が起これば流体のスリップ長はシステムサイズに比例して大きくなるため、しばしば実験的に観察され MD では説明困難と考えられる μm スケールでの流体のスリップ現象を説明できる可能性がある。

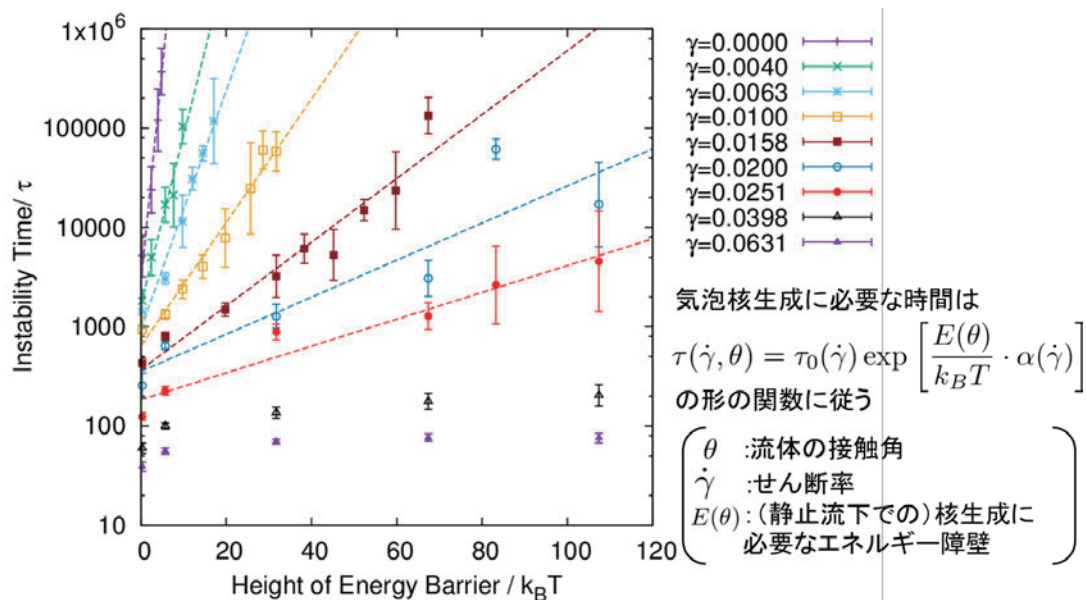


図 1. 気泡核生成が起こるまでに必要な時間の流体のせん断率及びエネルギー障壁依存性

【参考文献】

- [1] S. Granick, Y. Zhu and H. Lee, Nat. Mater. **2**, 221 (2003).
- [2] D. Ortiz-Young *et al.*, Nat. Commun. **4**, 2482 (2013).
- [3] A. Furukawa and H. Tanaka, Nature **443**, 434 (2006); Nature Mater. **8**, 601 (2009).

多細胞モデルの形態形成

(東北大理) 河野拓馬・海老原隆太・佐久間由香・今井正幸
(Jozef Stefan Inst., Univ. of Ljubljana) Primoz Ziherl

【はじめに】

自然界において多数の細胞が集まった構造体は、例えば原腸胚形成に見られるように特異な形態を取ることが分かっている。この胚形成に対しては細胞の持つ弾性エネルギーと接着エネルギーの和を最小にすることで再現するモデルが提唱されている[1]。このようなエネルギーの競合で多細胞の凝集体の形態形成を考えると、細胞ではなく単純な脂質ベシクルを用いた実験からのアプローチは、理論と実際の細胞との議論をする上で重要な役割を果たす。

本研究は、脂質ベシクルを用いて膜の弾性エネルギーと接着エネルギーの競合がもたらす多細胞モデルを構築することを目的とする。まずは、多細胞モデルの基礎を成す2個のベシクル間の接着面の平面 - S 字転移[2]を単純なベシクル系で再現するとともに、接着しているベシクルの三次元形状を **Surface Evolver** [3]上で再現し、そこから膜の弾性エネルギー・接着エネルギーを評価し、2細胞モデルの形状を決定する要因について検討した。

実験には **DMPC** 単成分ベシクルを用いた。このベシクルとコロイド (直径 $3\ \mu\text{m}$) の混合混濁液を用意し、その枯渇相互作用によってベシクルの接着を実現した。2個の球状ベシクルを接着させた状態で試料の温度を上昇させ、**DMPC** の熱膨張を利用してベシクルの余剰面積を増大させ、その時の接着したベシクルの形態変化を観察した。

【結果と考察】

枯渇相互作用により接着したベシクルの形態変化の様子を図1に示す。はじめ球状のベシクル(a)が半球状の形態を示した(b)。その後鏡餅状の形態(c)を経て、円筒の側面で接着する形態を示した(d)。これらの過程で2個のベシクルは平らな面で接している。一方で図2に示すように S 字で接着したものも確認でき、理論の予言と定性的に一致した。これらの実験結果に対して図1(a)に示した三次元画像解析を用いることで、膜の弾性エネルギーと接着エネルギーを定量的に解析し、多細胞モデルの形態決定の要因を議論する。

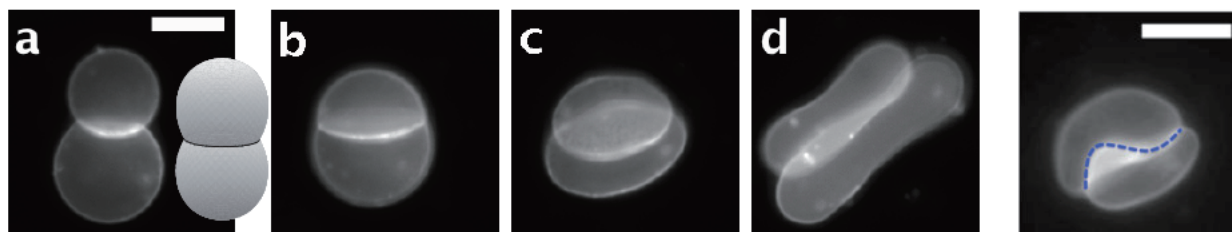


図1 ベシクルの形態変化 (平面接着) とその **Surface Evolver** で再現した接着像 (図1、2とも scale bar = $20\ \mu\text{m}$)

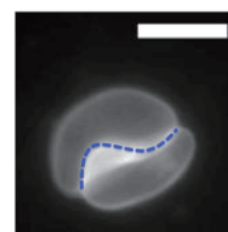


図2 S字の接着面を持つベシクル

【参考文献】

- [1] A. H. Brezavscek et. al., *Biophys. J.* **103**, 1069 (2012).
- [2] P. Ziherl and S. Svetina, *PNAS* **104**, 761 (2007).
- [3] A. Sakashita, N. Urakami, P. Ziherl and M. Imai: *Soft Matter* **8**, 8569 (2012).

二価の陽イオンによるリン脂質ベシクルの駆動

(東北大・院理・物理) 兒玉 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ことが知られているが、この輸送はベシクル周囲の化学物質の濃度勾配に応答して行われていると考えられている。このような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 Diffusiophoresis[2]が挙げられる。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いるために、膜表面での一方向的な流れが幾何学的に抑制されており、その駆動メカニズムはマランゴニ効果ではないと考えられる。最近、我々はリン脂質ベシクル [1,2-dioleoyl-*sn*-glycero-3-phosphocholine (DOPC)] に NaOH 水溶液をマイクロインジェクションすることでベシクルの周囲に pH 勾配を作り出すと、その勾配下でベシクルが一方向的に駆動することを見出した[3]。この駆動現象に対して我々は、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の加水分解が進み、親水性の高い Lyso-PC や脂肪酸が生成され[4]、その結果ベシクル膜表面で界面エネルギー勾配が生まれるため、ベシクルはそのエネルギーが低下する方向に移動するというモデルを提案している。

さらに我々は、塩基性水溶液以外の様々な化学種（一価金属イオン、二価金属イオン、非イオン性溶質）をマイクロインジェクションし、DOPC ベシクルの応答を調べた。その結果、二価金属イオン水溶液で NaOH 水溶液と同様なベシクルの移動が観察された。その移動速度は数十 $\mu\text{m/s}$ であり、ピペットに近づくにつれて次第に速度が増した。これらの水溶液のインジェクションでは pH の変化は起きないため、ベシクル膜の加水分解は生じない。よって NaOH 水溶液のインジェクションの場合のようにベシクル膜の加水分解生成物によるベシクルの界面エネルギーの低下とは異なるメカニズムでベシクルが動いていると考えられる。本発表では二価金属イオンのインジェクションによるベシクルの移動のメカニズムを同条件下でのコロイドの駆動と比較しながら議論を行う。

【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 et al., *Soft Matter*, 2015, submitted.
- (4) C. R. Kensil and E. A. Dennis, *Biochemistry*, 1981, **20**, 6079.

線形高分子と環状高分子の混合系の自己無撞着場理論

(東北大理) 後藤高彰, 川勝年洋

【はじめに】

環状高分子を、非生物材料をもちいて生成する場合は、線形高分子の端同士を化学反応でつなげることで生成される。このとき、すべての線形高分子を環状高分子にすることは難しく、線形高分子のまま残るものがある。このような線形高分子と環状高分子の混合系の振る舞いが解明されれば、どの程度環状高分子の合成反応が進んだのか知ることができるようになる。(1)(2) このような混合系において、線形高分子が環状高分子を通り抜けて拘束される効果に着目して自己無撞着場理論によって解析する手法を提供する。

本研究では線形高分子と環状高分子の混合系の振る舞いを知るための最初の段階として、次のような系を考えた。高濃度の線形高分子溶媒中に少量の環状高分子が存在し、平衡状態で線形高分子が環状高分子に拘束されている状態になる。このとき環状高分子によって拘束されている線形高分子の様子を、自己無撞着場理論を使って求めた。系を環状高分子とそれに拘束されている線形高分子、拘束されていない線形高分子に分けて、線形高分子の分布を平均場で表して計算を行った。

環状高分子の慣性半径は線形高分子に比べて小さく、また分子数も線形高分子よりも十分小さいので、環状高分子を単純化して捉えた。まず、環状高分子を点状であるとした場合、次に環状高分子が球状にガウス分布しているとした場合を考えた。また拘束されている線形高分子の本数は固定して、抜け出る傾向を調べた。

【結果と考察】

環状高分子が点状のときは、何本の線形高分子がどのセグメントで拘束されているかを表す関数 $n(s)$ を導入して、線形高分子の拘束のされ方を調べた。 $n(s)$ をガウス関数で表せると仮定し、標準偏差や中心の位置を変えて、最も安定な拘束のされ方を求めた。セグメント数 10、空間の動径方向の長さ 20、線形高分子の分子数は 100、 χ パラメータを 10 とした。低分子溶媒の場合は両端にガウス関数を置いた場合の標準偏差 2.3 付近が安定であり、線形高分子が拘束から抜け出ようとする傾向が見られた。高分子溶媒の場合は両端にガウス関数を置いた場合の標準偏差 4.64 のときが安定であり、理想鎖のように振舞うという結果が得られた。

【参考文献】

- (1) J.D. Halverson et al. Phys. Rev. Lett. 108, 03831 (2012).
- (2) M. Kapnistos et al. Nature Mater. 7, 997 (2008).

マルチスケールシミュレーションを用いた熔融紡糸工程の解析

(京大院工) ○佐藤健, 谷口貴志

【はじめに】

高分子流体は複雑流体と呼ばれており、その微視的な絡み合い構造・配向などは巨視的なレオロジー特性に大いに影響を及ぼすことが知られている。これまで、高分子材料の研究で実施されてきた多くの流動シミュレーションでは、流体の応力算出のために、経験論的な構成方程式が用いられてきた。しかし構成方程式を用いたのでは、ミクロな構成要素の特徴とそれらの集合体のマクロな性質を直接関係づけることができない。逆に、分子動力学に基づくミクロスケールのシミュレーションを巨視的な空間スケールで、かつ、マクロスケールの特徴時間まで行うことは、計算負荷の観点で現実的ではない。一方、密度汎関数法などのメソスケールモデルでは、分子形状や化学的な特性などが粗視化によって生じる少数のパラメータで表されており、ミクロスケールの構成要素の特徴とそれらのマクロスケールな集合体としての性質を直接関連付けられない。そのため、ミクロ、メソ、マクロな性質を直接関係づけることができるマルチスケールシミュレーション(MSS)法の確立が強く望まれてきている。

このような手法は現在までに、平行平板間や、円柱周りの流れのような比較的単純な流路に適用され、成功を収めてきた[1], [2]。本研究では、この手法を工業的にも重要な紡糸工程に適用し結果を考察することとした。

【結果と考察】

本研究においては、ミクロスケールの応力の算出方法として、ダンベルモデルと Slip-link モデル[3]を用いた。また、マクロな流動については粒子法を用いて解くこととし、各粒子それぞれにミクロな高分子シミュレータが埋め込まれているとすることで、MSS を実現した。

まず、ダンベルモデルを用いた MSS から、糸の断面積が周期的に変動する現象(ドローレゾナンス現象)の発生点が高分子の緩和時間に関係することを確認した。同時にミクロな情報として、高分子が流れ方向に配向していくこともわかった。

次に、Slip-link モデルを用いて MSS を行った。高分子溶液においては、絡み合いに起因する相互作用が重要であることが知られている。しかし、このような絡み合いを実験で直接観察することは不可能である。Slip-link モデルはそのような絡み合いに着目した粗視化高分子モデルとなっており、Slip-link モデルを用いることで、マクロな流動とミクロな配向や絡み合いを直接関連付けることができる。このモデルを用いた MSS においては、ドラフト比の増加とともにマクロな流動によって絡み合いが変化することが明らかになった。

今回の発表では以上のことについて詳しく議論する。

【参考文献】

- [1] T. Murashima and T. Taniguchi, *J. Polym. Sci. B. Polym. Phys.*, **48**, 886 (2010).
- [2] T. Murashima and T. Taniguchi, *EPL*, **96**, 18002 (2011).
- [3] M. Doi and J. Takimoto, *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A.*, **361**, 641 (2003).

ATP 存在下における F_1 -ATPase の回転拡散係数の理論的解析

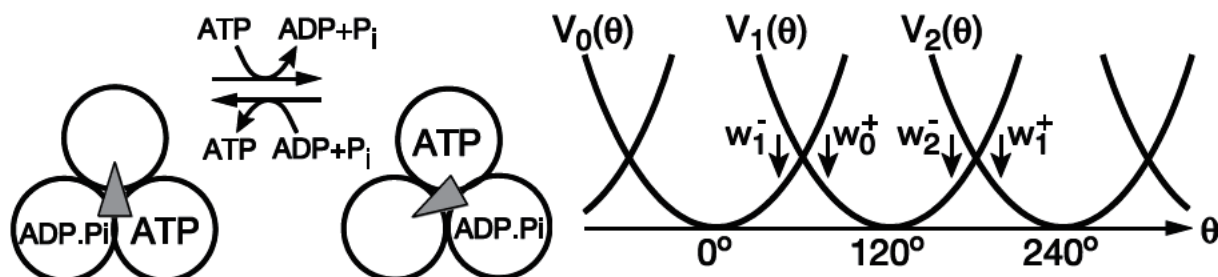
(東北大工) 品川 遼太、佐々木 一夫

【はじめに】

F_1 -ATPase はヒトを含め多くの生物の細胞内に存在する 10 nm ほどの回転分子モーターである。X 線構造解析や *in vitro* 分子実験の確立によって、 F_1 -ATPase の構造や反応スキームが解明されてきた[1]。また、ATP 非存在下での回転拡散係数の最近の測定結果[2]は、拡散係数のトルク依存性から回転子-固定子間の相互作用についての知見が得られる可能性を示唆している。

本研究では、ATP 存在下で自発的に回転している F_1 -ATPase に一定のトルクを加えた場合の回転拡散係数を理論的に計算する。そして、相互作用ポテンシャルの形状が拡散係数に及ぼす影響を解析することにより、拡散係数の実験データから回転子-固定子間相互作用や ATP 結合による状態の遷移に関して、どのような情報が得られるか検討する。

F_1 -ATPase のエネルギー論について議論するために最近提案された理論モデル[3]を基調としたモデルを用いて、定常状態における回転拡散運動を調べる。拡散係数は、Langevin 方程式を用いたシミュレーションのデータを統計処理することで計算できるが、精度のいい結果を得るためには多くのサンプルを必要とする。この方法だと、さまざまなモデルパラメータに対して拡散係数を計算するのに長い時間がかかる。発表では、Fokker-Planck 方程式の定常解から拡散係数を厳密に計算する手法[4] を使って得られた結果を報告する。



【結果と考察】

得られた拡散係数はある外部トルクにおいてピークを持つことがわかった。また、このピークの位置は、ATP 高濃度域では回転子-固定子間相互作用ポテンシャルの形状によって決まり、ATP 低濃度域ではポテンシャルの形状および状態間遷移率の角度依存性によって決まることわかった。

また、ATP 低濃度域では回転拡散係数の外部トルク依存性は平均回転角速度の場合よりも、状態間遷移率の角度依存性による変化をより受けやすいことがわかった。したがって、拡散係数はこの角度依存性を得るのに適していると言える。

【参考文献】

- (1) R. Watanabe and H. Noji, FEBS Lett. **587**, 1030–1035 (2013).
- (2) R. Hayashi *et al.*, Phys. Rev. Lett. **114**, 248101 (2015).
- (3) K. Kawaguchi *et al.*, Biophys. J. **106**, 2450–2457 (2014).
- (4) K. Sasaki, J. Phys. Soc. Jpn. **72**, 2497–2508 (2003).

自己生産ベシクルにおける PE 脂質の役割について

(東北大院理) 神保 岳大、佐久間 由香、今井 正幸
(山口大物理・情報科学) 浦上 直人
(Jozef Stefan Inst., Univ. of Ljubljana) Primoz Ziherl

【はじめに】

細胞は、様々なソフトマターから構成されているが、その全てを一から組み上げるのではなく、ソフトマターの物理的な性質を上手く用い、自己組織化や自発的な変形を利用することで初めて形作られるものである。細胞の機能を発現する重要な場の一つである生体膜もまた、リン脂質の両親媒性によって二重膜構造を成しており、そのモデル膜であるベシクルは、膜弾性理論を用いて変形や相分離等の物理的な性質を広く研究されてきている。ベシクルの変形の中でも生命機能に密接に関係するものとして、外部からの脂質分子の取り込み等による余剰面積の増加を駆動力とし、一つの球状ベシクルが二つの球状ベシクルへと分裂を繰り返す自己生産過程がある。この機構を解明することは、初期の生命がどのようにして自己生産という生命にとって必須の機能を獲得していったのかを探究する上でも重要である[1]。

シリンダー型脂質である DPPC と逆コーン型脂質である DLPE で構成される二成分ベシクルは、適切な温度変化を繰り返すことで容易に自己生産的な分裂を繰り返すことが知られており[2]、このベシクルの動的な形状変化を三次元で観察し、ベシクルの形状を定量化する三次元画像解析手法[3]を用いることで、自己生産過程における形状変化を明らかにし、膜弾性理論に基づき、その機構について検討した。

【結果と考察】

DPPC と DLPE の二成分ベシクルの複数世代に渡る再帰的な分裂過程について、三次元解析を行った。この解析をもとに、ベシクルの形状を決定する重要なパラメータである換算体積 v と面積差 Δa の変化を計算した。結果として Δa が v の変化に応じて階段状に飛びを見せながら変化するという ADE model におけるベシクル変化の予測と一致するものであった。この ADE model から得られる相図を用いて、脂質分子の断面積や分子数から定まる最適な面積差 Δa_0 の変化を推定すると、今回観察された自己生産過程は、i) ベシクルの大きさや世代に依らず、相似的な分裂を繰り返している。ii) 観察結果から得られる Δa_0 の大きな増加は単純なゲル-液晶転移のみを考慮しただけでは説明できない。ということが分かった。これに対し、ベシクルの二分子膜上でシリンダー型脂質と逆コーン型脂質が、球状ベシクルの曲率に応じて再分配され、非対称な脂質分布が実現していると仮定することで、統一的に 2 つの項目を説明できることが分かった。この再分配は、降温時に膜面積の減少による内圧上昇で膜上に開く孔を通じて起きると考えられ、外膜と内膜の自由エネルギーを比較することで考察していく。

【参考文献】

- [1] J. W. Szostak, D. P. Bartel and P. L. Luisi: Nature 409 (6818) (2001) 387.
- [2] Y. Sakuma and M. Imai: Phys. Rev. Lett. 107 (2011) 198101.
- [3] A. Sakashita, N. Urakami, P. Ziherl and M. Imai: Soft Matter 8 (2012) 8569.

高分子ブレンド結晶の不均一核からの成長ダイナミクス

首都大物理 関口 俊一、及川 典子、栗田 玲

【はじめに】

高分子は長さを持つ影響で、低分子とは異なる挙動を示すことが多い。特に結晶化挙動に関しては高分子の分子鎖同士が絡まって存在する影響で、形成過程や結晶構造が異なる。高分子溶融体を過冷却状態にすると高分子は結晶化を始めるが、分子鎖の絡み合いは容易には解消できず、部分的に結晶化し、結晶-非晶が層状に連なったラメラ構造をとる。また、高分子の種類によってはラメラ構造が側鎖や不純物の影響で規則的な周期でねじれて成長する。

以上のように、高分子の結晶化は低分子とは異なる特徴を持つことが知られているが、これまでの研究は均一核から形成した結晶に対して多く行われてきた。しかし、高分子の溶融体は粘性が高いため不純物や気泡が多く入りやすく、ここから不均一核形成が起こりやすい。このような中で、高分子の結晶化に関する不均一核形成の影響を調べた明確な研究は少なく、我々はそこに注目して実験を行った。

今回用いた高分子試料は PCL/PVB ブレンド系で、これはラメラ構造のねじれが観察される系である。PCL は結晶性高分子、PVB は非晶性高分子であり、Pure PCL ではラメラ構造はねじれないが、PVB をブレンドすることによりラメラ構造がねじれて成長する。



図1:ラメラのねじれ

【結果と考察】

PCL/PVBブレンド系をガラス壁面と高分子フィルム壁面を用いて、不均一核形成させたところ、ラメラのねじれ周期がこの2種類間で異なることがわかった。一方、結晶のねじれ周期は大きく異なるのに対し、熱量測定では結晶の融解には大きな差は見られなかった。これはラメラ厚にあまり差がないことを意味している。ねじれの周期を決めている要因を調べるため、これらの成長速度などを測定したその結果について発表する。

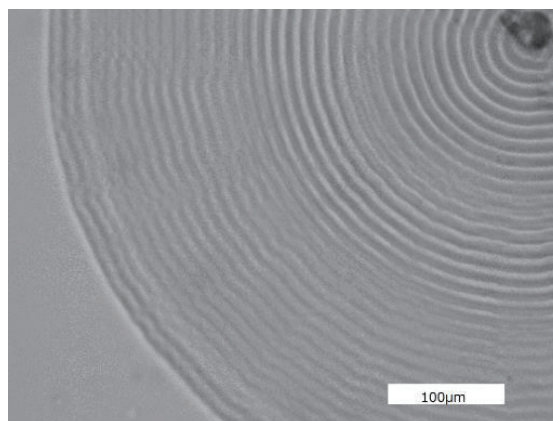


図2:高分子ねじれ結晶

粒子法をもちいた粘弾性体の引っ張り挙動解析

(東北大 理) 関根 忍、川勝年洋

【はじめに】

連続体の運動を有限個の粒子運動としてモデル化する数値計算手法である粒子法を用いた、粘弾性体の引っ張り試験時における挙動解析について報告する。

粒子法の手法としては、SPH 法や MPS 法が知られている。既存の粒子法では、気液界面等において圧力が異常なふるまいをするために計算が発散してしまうことが発生する。その原因の一つは、グラジエントやラプラシアンを計算するための微分モデルの計算精度が悪いためであり、そのため様々な工夫がなされてきた [1, 2]。

この発表では新しい微分計算モデルを提案するとともに、それを用いた計算による結果を紹介する。

【計算方法】

ある j 番目点粒子の時刻 t における位置ベクトルを $\mathbf{x}_j(t)$ であり、質量は m とする。この粒子が N 個集まった、多粒子における位置 $\mathbf{x}$ における密度場は次のように書ける：

$$\rho(\mathbf{x}) = \sum_{j=0}^{N-1} m \delta(\mathbf{x} - \mathbf{x}_j(t)) \approx \sum_{j=0}^{N-1} m_j W(|\mathbf{x} - \mathbf{x}_j(t)|, h)$$

最後の近似は、 δ 関数をは偏差 h のガウス分布関数で近似した。

任意の点 $\mathbf{x}$ における一般的な物理量 $\phi(\mathbf{x})$ は、各点において対応する値 ϕ_j を用いた重ね合わせにより表現する：

$$W_{jk} = \frac{W(\mathbf{x}_j - \mathbf{x}_k)}{\sum_m W(|\mathbf{x}_j - \mathbf{x}_m|, h)} \quad \text{ここで、} \phi(\mathbf{x}_j) = \sum_{k=0}^{N-1} W_{jk} \phi_k$$

この物理量の微分計算を、以下のように近似する (図 1 参照)：

$$\nabla \phi(\mathbf{x}) \approx \left(\frac{\phi(\mathbf{x} + \mathbf{e}_1) - \phi(\mathbf{x} + \mathbf{e}_3)}{2h}, \frac{\phi(\mathbf{x} + \mathbf{e}_2) - \phi(\mathbf{x} + \mathbf{e}_4)}{2h} \right)$$

$$\Delta \phi(\mathbf{x}) \approx \frac{\sum_{m=1}^4 \phi(\mathbf{x} + \mathbf{e}_m) - 4\phi(\mathbf{x})}{h^2}$$

$$\mathbf{e}_1 = (h, 0), \quad \mathbf{e}_2 = (0, h), \quad \mathbf{e}_3 = (-h, 0), \quad \mathbf{e}_4 = (0, -h)$$

また、表面張力としてはシャープ界面モデルを採用した。

【結果と考察】

初期配置されている粒子系の上面にプローブを接触させたのち (図 2)、プローブを上方に引っ張り上げていく。引っ張るに従い、粒子の側面は負の曲率をもつように形状変化していく (図 3)。

発表では、この形状変化する際における応力挙動について報告する。

参考文献

- [1] 入部、仲座、MPS 法における勾配計算の高精度化とその応用、土木学会論文集 B2 (海岸工学)、66,(2010),046-050
- [2] 玉井、柴田、越塚、Taylor 展開を用いた高精度 MPS 法の開発、Transactions of JSCES, No20130003

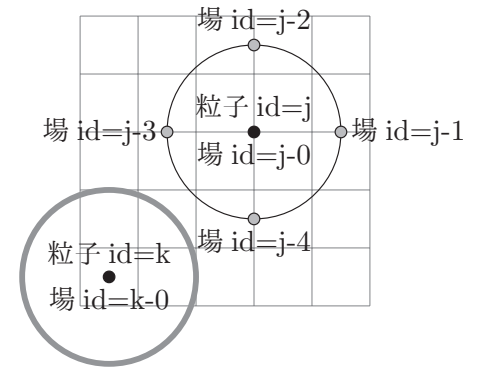


図 1. 計算モデルの説明

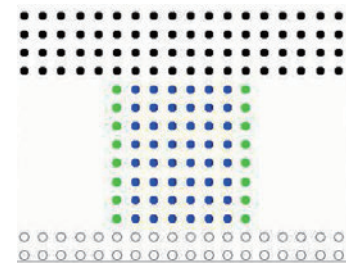


図 2. 計算例：初期配置

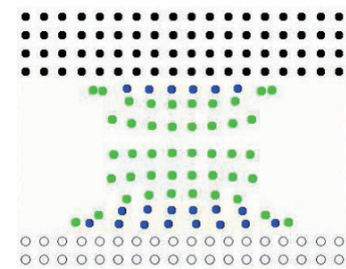


図 3. 計算例：引っ張時の変形

三重周期極小曲面上の剛体球 -プリミティブ曲面-

近大理工

高橋佑輔, 堂寺知成

【はじめに】さまざまなソフトマターで現れる共連続相に関連して、われわれは平均曲率が 0 である三重周期極小曲面の代表的なプリミティブ (P) 曲面上で、剛体球モデルを用いた Monte Carlo シミュレーションを行い、アルダー転移を確認した。P 曲面は、単純立方格子のネットワーク構造を持ち、空間群 $Im\bar{3}m$ の対称性を持つ。ジャイロイド曲面上については先行研究[1]があり、今回 P 曲面で同様のシミュレーションを行った。

【方法と結果】シミュレーションの条件は、まず P 曲面二枚から成る薄い膜を作り、その膜内に球の中心を置きランダムに球を動かす。動いた先が膜の内側でかつ他の球と衝突しないならばその操作を採用し、 10^6 ステップ繰り返して採用された回数をカウントし Acceptance Ratio として測定する。徐々に球の直径を増大させていくと球がある直径で突発的かつ自発的に結晶構造をとる。この系は剛体球ポテンシャルのみが存在しているので相転移はエントロピーのみによって引き起こされる。P 曲面 1 周期辺りの球の個数を N とすると、 $N=20, 24, 26, 30, 32, 36, 38, 40, 56, 72, 80, 96$ 系で相転移が確認できた。相転移後の規則配置(図 1)を空間群によって分類し、ポアンカレ円盤上のタイリングとして報告する。またウイルスカプシドの 20 面体配列を説明する Triangulation Number[2]とよく似た Hexagulation Number を定義することにより、 N のマジックナンバーを考察した。

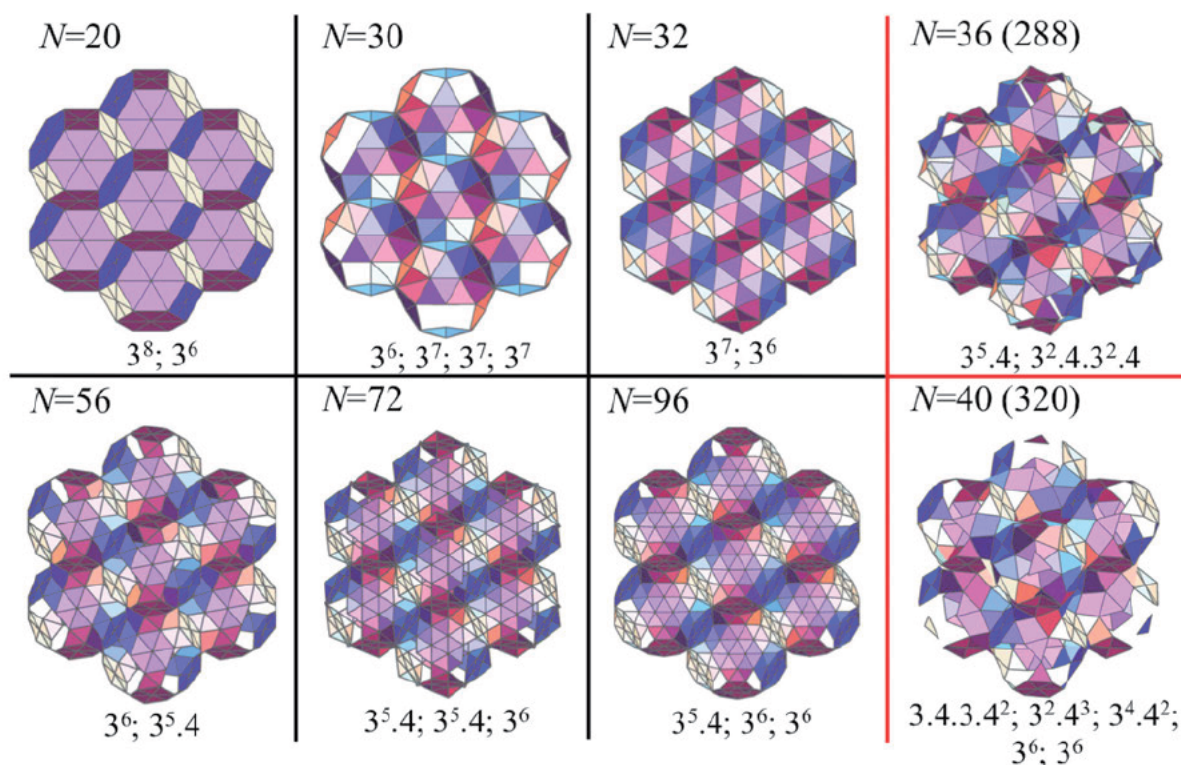


図 1. 相転移後の規則配置のタイリング

【参考文献】

- [1] T. Dotera, M. Kimoto and J. Matuzawa, Interface Focus 2, 575 (2012).
- [2] D. L. D. Caspar and A. Klug, Cold Spring Harbor Symp., 27, 1 (1962).

自律振動ゲルの理論・数値計算モデル

(東北大院理) 高畑正一, 川勝年洋

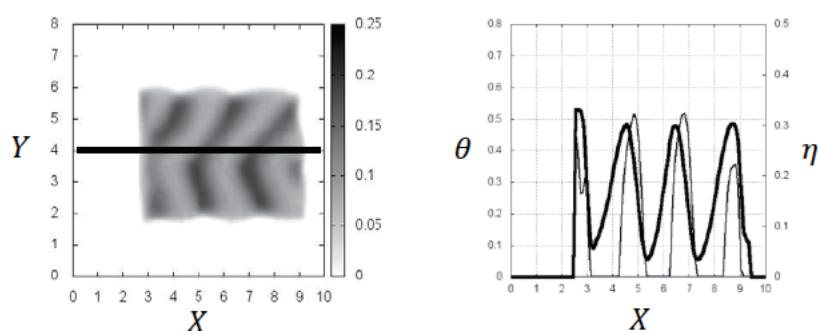
【はじめに】

近年、アクチュエータ開発研究において、化学反応を動力源とする自律歩行ゲルが注目を浴びている[1]。他方、生命現象の例として、粘菌の運動は化学物質の濃度振動に誘起されるゾル・ゲル転移現象として理解できると考えられる。我々は、以上のような現象を、化学反応下におけるゲルの自律振動現象として俯瞰的に理解することを試みる。本発表では、反応拡散系と結合したゲルの連続体モデル・数値計算モデルを提案し、その解析結果について議論を行う。

【連続体モデル】系の状態を、ネットワークの変位場 u_n (あるいは応力場 σ_n)、速度場 v_n 、体積分率 ϕ 、水の水速度場 v_w 、反応拡散系を構成する活性物質と抑制物質の濃度 θ, η で定義する。ゲルの運動方程式は変分原理[2]で定式化し、反応拡散系のモデルとしては Oregonator model [3]を用いた。また、変分原理において、ネットワークと水の相互作用エネルギーに対して化学反応による時間振動項を加えた。

【数値計算モデル】 $\phi, v_n - v_w$ の時間発展(ネットワークと水の相互拡散ダイナミクス)と θ, η の時間発展(反応拡散ダイナミクス)は空間に固定した座標点で計算できる[Euler 描像]。しかし、 u_n の時間発展は初期状態のゲルの形状に依存するため、物質点(局所ネットワーク)の流れに沿って計算しなければならない[Lagrange 描像]。また、 $v_n - v_w$ は歪みに依存するので、 u_n を物質点から座標点へマップしてから計算する。このように、物理量の分布を座標点と物質点の間で変換する手続き(Eulerian-Lagrange 法)が必要である。我々は、この手続きを実装した連続体の数値計算モデルを開発した。

【数値解析例】2次元系で数値積分を実行した。以下の図は結果の一例であり、反応振動数の空間非対称性によりゲルが自律振動しながら推進する様子を表している。



図：(a)ゲルの形状と ϕ の空間分布. 左端近傍にペースメーカー(反応振動数が相対的に大きい領域)があり、右方向(+X 方向)に自律振動しながら推進している. (b)中央線 $Y=4$ 上の θ (細線)と η (太線)の空間分布. η が大きいほどネットワークの親水性が高い(ϕ が小さい傾向にある).

【参考文献】

[1] R.Yoshida, et al., J.Controll. Release, 140, 186(2009). [2] M.Doï, A.Onuki, J. Phys. II France 2(1992)1631-1656. [3] V.V.Yashin and A.C.Balazs, J. Chem. Phys. 126, 124707(2007).

三重周期極小曲面上の剛体球 -ダイヤモンド曲面-

(近大理工) 田中 秀明, 堂寺 知成

【はじめに】

1957 年 Alder たちはアルダー転移と呼ばれる二次元平面上の剛体球の流体相・固体相間の相転移を発見した。この結晶化は引力ではなくエントロピーのみによって引き起こされ、ランダムな状態から規則的な配置 (3⁶タイリング) になる[1]。球面上の規則配置はフラレーンやウイルスの正二十面体構造があるが、負曲率をもつ曲面上の剛体球の配置はあまり知られていない (先の研究にジャイロイド曲面[2])。今回我々は様々なソフトマターであらわれる共連続相に関連し三重周期極小曲面の一つ D (diamond) 曲面で剛体球を使ったモンテカルロシミュレーションを行い、アルダー転移を確認した。

【結果と考察】

図 1 は単位格子あたり剛体球の数 $N=128$ の系 (実際の剛体球数は 128×8) についての結果である。図 1 (a) で、赤線は半径 r を大きくしていくシミュレーションで $r=0.0825$ 付近で採択率 (各球の動ける割合) がジャンプし、相転移が一次転移であることがわかる。この結果は、相転移前後で剛体球がよりエントロピーの大きい配置に移動したことを示す。青点線は半径を小さくしていく場合で、同様に一次転移が確認され、同時にヒステリシスも観察される。図 1 (b) は、相転移後 ($r=0.084$) の配置で、その配置は D 曲面の対称性である空間群 $Pn\bar{3}m$ の部分群 $Fd\bar{3}$ になる。図 1 (c) は、図 1 (b) の配置をポアンカレ円盤上に写像したものである。単位胞の D 曲面の 4 分の 1 がポアンカレ円盤の太い線で囲まれた領域に対応している。

他に相転移を確認した $N=120$ の系についても当日述べる予定である。

【参考文献】

- (1) B. J. Alder and T.E. Wainwright, J. Chem. Phys. **27**, 1208 (1957).
- (2) T. Dotera, M. Kimoto and J. Matsuzawa, Interface Focus **2**, 575 (2012).

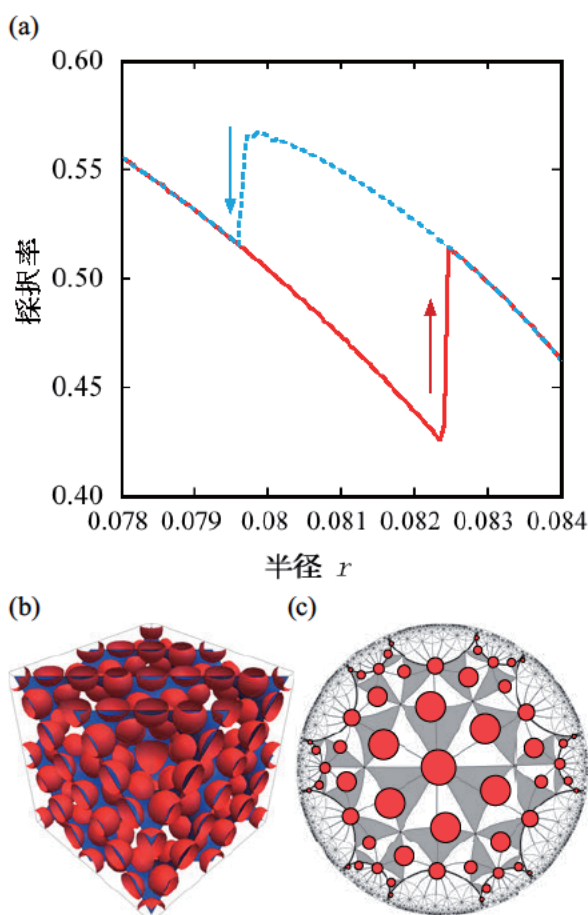


図 1 $N=128$ 系の結果。(a)は採択率の半径 r 依存性。赤線は半径増加, 青点線は半径減少のシミュレーション結果である。(b)相転移後 ($r=0.084$) の D 曲面上の規則配置 (1 周期)。(c)対応するポアンカレ円盤上の規則配置。

ネマチックコロイドを用いた異方的構造体作製とその電場応答

(九大院理) 田村優太、岩下靖孝、木村康之

【はじめに】

コロイド分散系の研究は、主に等方的な溶媒中に球状粒子を分散させた系を対象として行われてきたが、近年、液晶のような異方的な溶媒を用いた系でも研究が行われている。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。このため、粒子間には液晶の配向弾性に起因した双極子的あるいは4重極子的な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[1,2]。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。

【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とともに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)

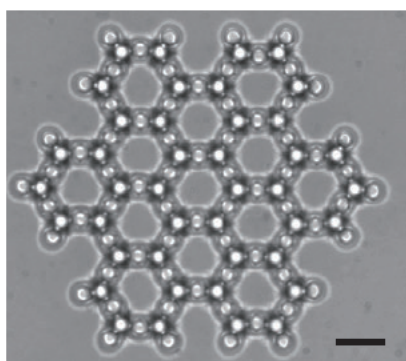


図1. ハニカム格子状コロイド構造体の顕微鏡像。スケールバーは $10\mu\text{m}$ 。

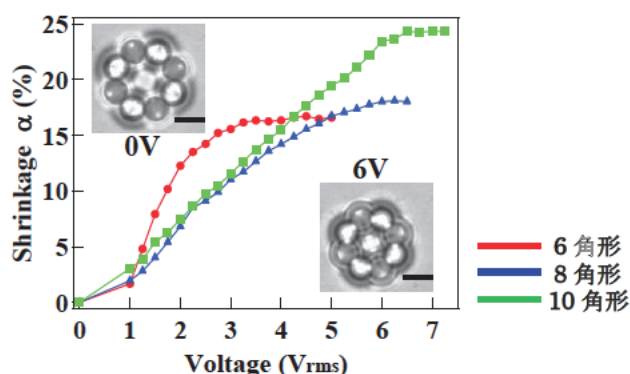


図2. 環状コロイド構造体の電場による収縮率 α の変化。スケールバーは $5\mu\text{m}$ 。

【参考文献】

- (1) I. Musevic, *et al.* Science **313**, 954 (2006)
- (2) A. Nych, *et al.* Nature Comm. **4**, 1489 (2013)

ペンローズ格子の剛体菱形による無秩序・秩序転移

(近大理工) 堤一真 堂寺知成

【はじめに】

近年の研究で、様々な多角形のナノプレート[1]が生成できるようになっており、多角形のプレートでどのような構造ができるのかについて関心が高まっている。Onsager による棒状分子の密度変化にともなう等方相からネマティック相への相転移が知られているが、内角 60 度・120 度の菱形について、密度 70%を超えたところで 6 回長距離秩序が現れることが既に報告されている。[2]

本研究では 2 次元準周期格子であるペンローズタイリングの 2 種類の菱形（鋭角 36 度と鋭角 72 度）を混合したとき、どの程度の密度で流動相から固相への相転移が起きるのか、さらに相転移後の状態がどのような構造になるのかを、モンテカルロシミュレーションによって研究した。

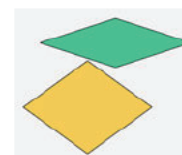


図 1 2 種類の菱形

【結果と考察】

細い（鋭角 36 度）タイルのみ 377 枚の系と太い（鋭角 72 度）タイルのみ 610 枚の系それぞれで 5 万ループごとにシミュレーションボックスの大きさに 0.999 と 0.9999 をかけた 2 パターンのシミュレーションを行い、ボンド配向秩序の変化を観察した。細いタイルと太いタイルでは細いタイルの方がより低い密度で秩序相が現れた。さらに細いタイルと太いタイルの 2 種類を混ぜたタイル数 144, 233, 377, 610 の系で 5 万ループごとにシミュレーションボックスの大きさに 0.9999 をかけたシミュレーションを行った。タイルの枚数比は黄金比で行った。4 つすべての系において密度 75%を超えたところで 10 回の秩序が現れた。

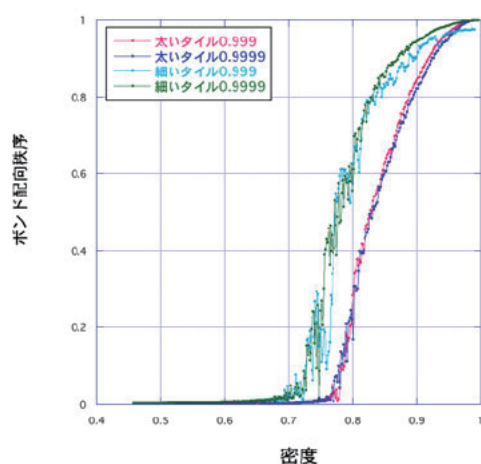


図 2 細・太の密度とボンド配向秩序の関係

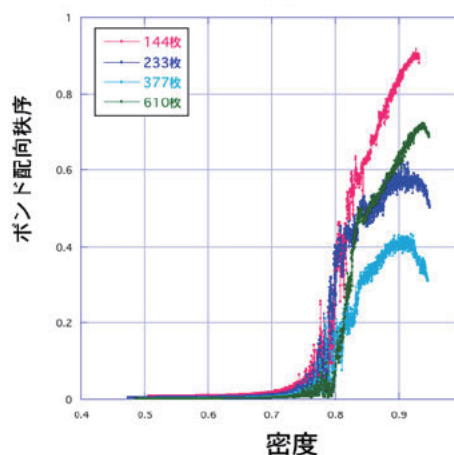


図 3 各枚数での密度とボンド配向秩序の関係

【参考文献】

- (1) L. Rossi and T. G. Mason, Soft Matter, **11**, 2461–2468, 2015.
- (2) S. Whitelam, I. Tambllyn, P. H. Beton and J. P. Garrahan, Phys. Rev. Lett. **108**, 035702, 2012.

金属パッチ粒子の金属面への選択的凝集および金属粒子の被覆

(九大院理) 野口 朋寛、岩下 靖孝、木村 康之

【はじめに】

コロイド粒子の分散状態を保つことは、コロイド系の様々な応用において重要な課題である。コロイド粒子の不可逆凝集は主にファンデルワールス(vdW)引力が起源であり、その力は溶媒との誘電率の差が大きいほど強い。よって導電体である金属粒子は、非常に強い vdW 引力により容易に凝集してしまう。そこで我々は、溶媒に対し分散安定な固定誘電体で金属粒子を被覆することにより、金属粒子を分散安定化することを考えた。具体的には、誘電体粒子の一部を金属薄膜で覆ったパッチ粒子を作製し、金属面同士を選択的に凝集させる(図(a))。このとき、パッチ粒子同士は凝集しないことが望ましい。

これまでに我々は Au-シリカパッチ粒子(小粒子)(図(b))とそれよりかなり大きな Au 面を持つ粒子(大粒子)を作製し、2次元分散系において小粒子による大粒子の Au 面の被覆挙動を調べた。その結果、塩濃度を調整することにより、小粒子の Au 面と大粒子の Au 面が凝集する「凝集面選択性」や、小粒子間あまり凝集せず小粒子-大粒子間は凝集しやすい「凝集粒子選択性」をある程度実現し、大粒子を小粒子が被覆した凝集構造を形成することに成功した。しかし、この結果をもとに 3 次元系での被覆実験を行ったところ、同一のサンプル中で密に被覆された大粒子と全く被覆されていない大粒子が観察される一様でない被覆が起こったが、その原因は不明であった。

【結果と考察】

今回は、パッチ粒子による Au 薄膜の被覆挙動をより定量的に評価するために、2次元基板上に形成した Au 薄膜に対するパッチ粒子の凝集挙動を観察した。このとき、粒子の様子から Au 薄膜と vdW 力により固着しているとみられる粒子と、固着してはいないがトラップはされているとみられる可逆吸着粒子に分類した。その結果、粒子の凝集挙動は通常の DLVO 理論で説明できることが分かった(図(c))。次に、3次元分散系での被覆実験では、気液界面の影響を防ぐため空気を除いたセル中で、沈殿しない程度の穏やかな攪拌を長時間かけ、形成された凝集体の観察を行った。その結果、2次元系と同様の塩濃度において、ほぼすべての大粒子が一様に被覆されている様子が観察された。即ち、攪拌時の構造形成に気液界面が大きく影響している可能性が示唆された。

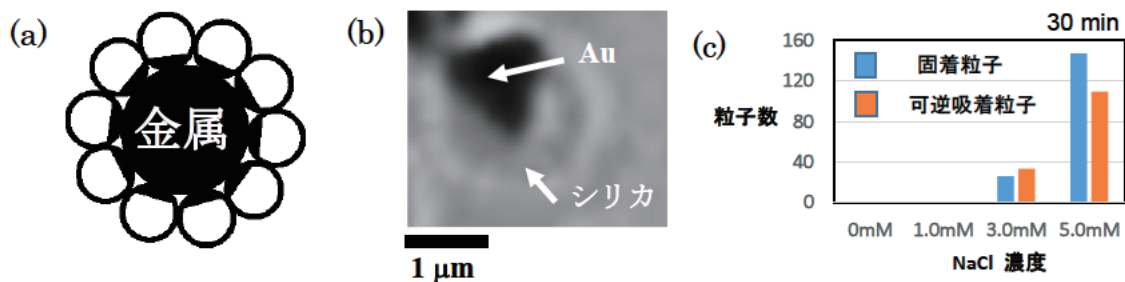


図 (a)ヤヌス粒子で被覆された金属粒子。 (b)Au-シリカヤヌス粒子。

(c)凝集開始 30 分後の固着粒子および可逆吸着粒子数の塩濃度依存性。

高分子薄膜中での標識鎖のパーコレーション現象

(TASC ^A, 産総研 ^B) 乗添祐樹 ^{A,B}, 森田裕史 ^B

【はじめに】

従来、パーコレーション理論の適用対象として、格子模型や高分子ゲル（化学ゲル）の網目構造など、空間的、あるいはトポロジ的な拘束条件を伴う系が広く調べられてきた。格子模型では粒子を配置できるのは格子点上に限られ、一方で高分子ゲルの場合には、架橋反応を停止したところで網目構造が確定して、クラスター構造の時間変化が停止する。また、架橋反応の最中であっても、一度生成された結合点が分離することはない、その後も維持される。

ここでは、こうした拘束条件を排した系として、平板上に置いた、単成分の均一鎖からなる高分子薄膜中でのパーコレーション現象を取り上げる。三次元だが、二次元に近い系である。この薄膜の構成要素たる高分子として、一定の割合で標識鎖を混ぜておくとする。すると、この割合が極端に小さいときには、標識鎖は互いに孤立して基板上に点在しているが、逆に極端に大きいときには、標識鎖は互いに重なり合って、基板全体を覆った状態となる。これは、標識鎖がある中間的な濃度となったときにパーコレーション転移が起こることを意味しており、つまり基板の一端から他端まで標識鎖が一繋がりとなった巨大なクラスターが形成される（参考文献 1, 2）。この相転移と、それに伴う臨界現象とを、三次元空間中での分子モンテカルロ（MC）シミュレーションにより解析する。

【結果と考察】

この系では、格子模型と異なり、標識鎖も非標識鎖も、薄膜中を自在に、空間的に連続に動き回ることが出来る。また、高分子ゲルとも異なっていて、標識鎖によって構成されるクラスター構造は、絶えず変化し続ける。この動的な系で生じるパーコレーション現象を解析し、Fisher 指数（臨界指数）を定めた。また、転移点で出現する、フラクタル構造を持った巨大クラスターのフラクタル次元を測定した。

こうして得られた結果を、高分子薄膜によく似ているが、グラフトという拘束条件を伴う系である高分子ブラシでの結果（参考文献 2）と比較した。臨界指数や巨大クラスターのフラクタル次元が、拘束条件の有無によって本質的に変化しないことを確認した。

この成果は、国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)の委託業務の結果得られたものです。

【参考文献】

- (1) Y. Norizoe and T. Kawakatsu, *Europhys. Lett.* **72**, 583-589 (2005).
- (2) Y. Norizoe, H. Jinnai, and A. Takahara, *J. Chem. Phys.* **140**, 054904 (2014).

二成分混合系の溶解過程に関する研究

(首都大理工) 花田康高, 栗田玲

【はじめに】

孤立した二成分混合系は、一般に相分離もしくは溶解のいずれかの熱平衡状態を示す。前者の相分離過程の代表例はスピノダル分解であり、保存系のみならずスピン系、流体系など様々な系で莫大な研究蓄積がある [1]。後者の溶解過程は一般に拡散過程と言及されるが、溶液の粘性や親和性に依存し多様な溶解過程を示す [2]。本研究では臨界点近傍における二成分溶液接触にともなう溶解過程の解析を行う。

臨界点近傍の振る舞いは、座標 $\vec{x}$ での秩序を規定するパラメーター $\phi(\vec{x})$ を用いて記述すると便利である。このとき、領域 Ω 内の自由エネルギーはバルクでの自由エネルギー f を用いて

$$F[\phi] = \int_{\Omega} \left\{ f(\phi(\vec{x})) + \frac{1}{2}k|\nabla\phi(\vec{x})|^2 \right\} d\vec{x}, \quad k > 0 \quad (1)$$

と定義される。熱平衡状態は (1) を ϕ の関数として最小化するようにして定まり、熱平衡状態への時間的变化は (流体場を考慮した) Cahn-Hilliard 方程式

$$\frac{\partial\phi}{\partial t} + \vec{u} \cdot \nabla\phi = \nabla \cdot \left\{ M(\phi) \nabla \frac{\delta F[\phi]}{\delta\phi(\vec{x})} \right\} \quad (2)$$

によって記述される。ここで $\vec{u}$ は流体場の速度であり、 $M(\phi(\vec{x}))$ は流動性を規定するパラメーターである。一般に流体場 $\vec{u}$ は Navier-Stokes 方程式を用いて記述されるが、本概要では $\vec{u} = 0$ として流体場を無視した状況の溶解過程について議論する。

【結果と考察】

バルクでの自由エネルギーを $f(\phi) = a\phi^2 + \phi^4$ として、 a のみを変化させた際の溶解過程を図 1 に示した。 $a = 0$ は臨界点 (臨界温度) であり $a \geq 0$ の場合、二溶液接触は任意の初期条件で完全溶解する。一方 $a < 0$ は初期条件、すなわち自由エネルギーの利得によって溶解・相分離のいずれかの熱平衡状態を示す。流体場を無視した溶解過程は、 $a > 0$ の場合、常拡散的溶解を示し、 $a < 0$ は f の二重井戸が拡散を律速するため界面を鋭い界面を形成しながらゆっくりと溶解する。 $a = 0$ は両者の中間的溶解過程を示す。本講演ではこれらの溶解過程を議論し、可能であれば上記溶解過程における流体力学的影响について議論する。

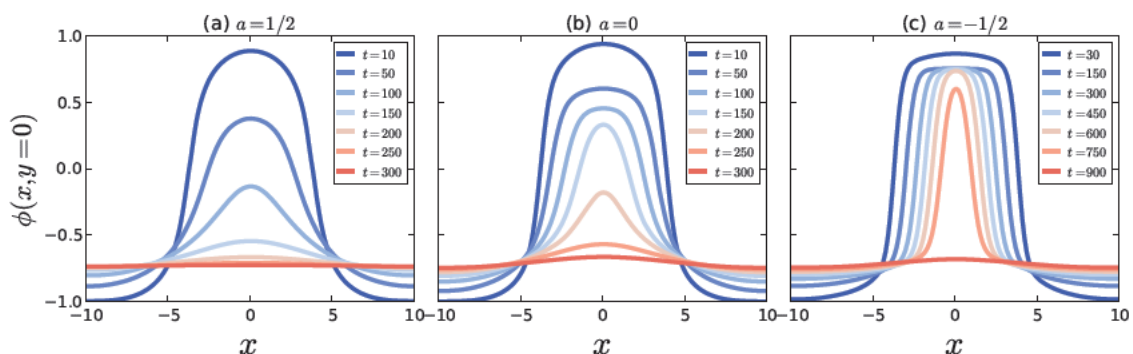


図 1 (a) $a = 1/2$, (b) $a = 0$, (c) $a = -1/2$ の ϕ の時間変化。初期条件はいずれも同一

【参考文献】

- [1] A. Onuki, Phase transition dynamics, Cambridge University Press (2002)
- [2] D. D. Joseph, Y. Y. Renardy, Fundamentals of Two-Fluid Dynamics Part II, Springer (1993)

イオン液体の水への溶解におけるエタノール注入の効果

(首都大物理) 深川 啓太, 及川 典子, 栗田 玲

【はじめに】

我々は、以前の研究[1]で、水溶媒におけるイオン液体の溶解過程を観察し、イオン液体が水への1方向拡散によって溶解していることがわかった。この1方向拡散の定量的な測定から、界面にエネルギーバリアがある確率的過程と考えられている。しかしながら、局所的な飽和や粘性の違いによるものという可能性が完全に否定できている状態ではない。

そこで今回は、アルキル基の疎水性相互作用によって構造が作られているかどうかを確認するための実験を行った。水溶媒に少量のエタノールを注入しても、飽和量や粘性の違いに大きな差はないため、溶媒の性質はほとんど変わらないと考えられる。そこで、イオン液体の水への1方向拡散によっての溶解が、局所的な飽和や粘性によるものであれば、溶解過程はエタノールが混入しても変化しないと予想される。一方、アルキル基の疎水性相互作用によって構造が作られている場合、エタノールの混入により界面構造に影響を与えるため、溶解過程に大きな変化が現れるのではないかと考えている。

今回の実験では、まず水溶媒にエタノールを注入し、水/エタノール混合溶液を作成した。そして、その中にイオン液体を注入し、それが完全に溶解するまでにかかる時間と、その界面張力を測定した。

【結果と考察】

水溶媒に少しずつエタノールを注入することにより、イオン液体の溶解にかかる時間は短くなり、ある比率を越えるとイオン液体は溶媒との間に界面を作らずに、時間をかけて溶解した。また、エタノールの量が増加すると溶媒とイオン液体間の界面張力は減少していった。

今回の発表では、イオン液体の水/エタノール混合溶媒における溶解において、エタノールが界面に作られる構造に与える影響について報告する。

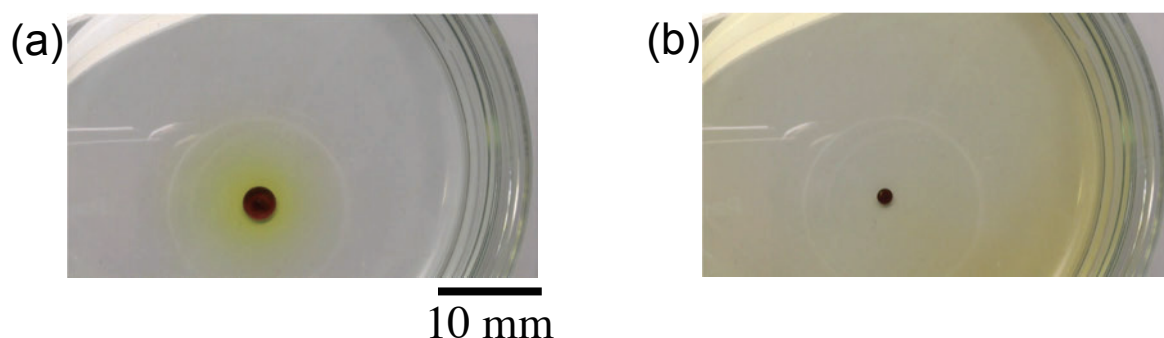


図 1. 水溶媒におけるイオン液体の溶解過程

【参考文献】

[1] 及川, 田原, 栗田 日本物理学会第 70 回年次大会 (2015 年) 23pAQ-2.

ラポナイト懸濁液への一価カチオン依存性

(九大院理) 藤井 明彦

(同志社大生命医科) 貞包 浩一朗

(立命館大理工) 深尾 浩次

(九大院理) 木村 康之

【はじめに】

ラポナイトは直径 25nm、厚さ 1nm 程度のディスク状粒子であり、溶液中で面と側面がそれぞれ正と負に帯電する。ラポナイト分散溶液は、時間経過と共にガラス化、もしくはゲル化が進行する。ここで、観察されるガラス構造は、粒子面間に働く長距離の静電斥力による斥力ガラスがある。一方、ある条件下では粒子同士が T 字型に結合し、ネットワーク状の構造（ゲル構造）を形成する場合もある。分散溶液が、ガラス化するか、ゲル化するかは、ラポナイトの濃度に依存する。また、ガラス化が進行するラポナイト濃度であっても、NaCl のような塩を添加することでゲル構造が形成することが報告されている。その理由として、粒子間の長距離静電斥力が NaCl により遮蔽され、粒子同士の接触が容易になったためであると解釈できる。本研究では無機塩をラポナイト分散液に添加した際の粘弾性挙動の変化を測定し、塩の添加による静電遮蔽の効果に関する詳しい理解を得ることを目指した。

【結果と考察】

陽イオン種による粘弾性変化を明らかにするため、LiCl、NaCl、KCl を用いて実験を行った。塩濃度を 9mM に調整した水溶液にラポナイト XLG を 3.0wt% になるように分散させ試料をエイジングさせ、固化した試料をレオメーターを用いてずりを印加することで一度形成された構造を壊し、構造の再形成（若返り現象）を測定した例を図 1 に示す。図 2 は試料にかかる応力の歪み依存性から試料の壊れやすさを評価した例である。これらの結果を通じて一価カチオンの種類が試料の構造形成のどのような違いを与えるのかを明らかにした。

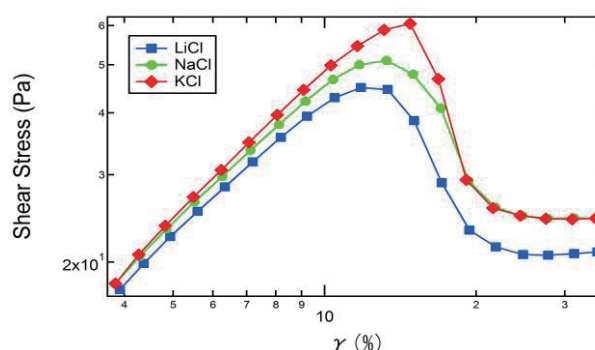
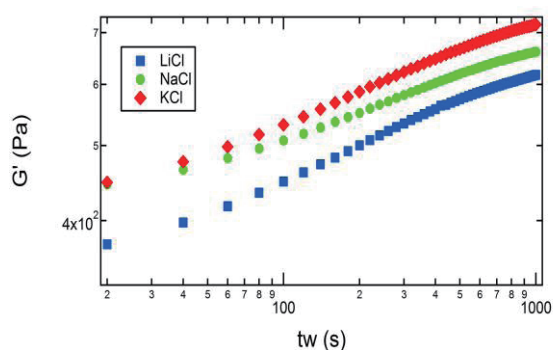


図 1：構造形成による貯蔵弾性率 G' の増加とその依存性とイオン種依存性。 図 2：試料に掛かる応力-歪み曲線のイオン種依存性。

泡沫における崩壊過程

(首都大 物理) 古田 祐二郎、及川 典子、栗田 玲

【はじめに】

泡沫は液体中に気体が内包されている複合状態であり、洗浄などによく使われるため、工業的には重要である。その一方、泡の形状や安定性など物理学だけではなく数学的なアプローチもあり、非常に興味深い。

泡沫における気体の体積分率が大きいとき泡沫が“ドライ”であるといい、それに対し、気体の体積分率が小さいとき泡沫は“ウェット”であるという。シミュレーションでは、均一なセルの大きさの2次元泡沫が崩壊していく中で、気体の面積分率が0.84未満になるとウェットな泡沫になっていくと考えられている。しかし、ドライからウェットへの転移においてまだ実験的な研究がほとんどなく、その転移が連続なのか不連続なのか興味深いため、画像解析からドライ・ウェット転移を定量的に測定し、その転移ダイナミクスを明らかにすることを目的とした。

【結果と考察】

実験では、テトラデシルトリメチルアンモニウム臭化物(TTAB)を純水に溶かし、グリセロールで粘性を調節したものを、キャピラリーとポンプを用いて泡沫を作製した。その泡沫をスライドガラスではさむことにより2次元泡沫を作製した。それを長時間放置すると、泡沫が崩壊し、この過程において気体が抜けていくため、気体の体積分率が時間変化する。そのため、ドライ泡沫はウェット泡沫に時間とともに転移していく。その様子を撮影し、画像解析を行った。研究会では、定量的な結果について発表する。

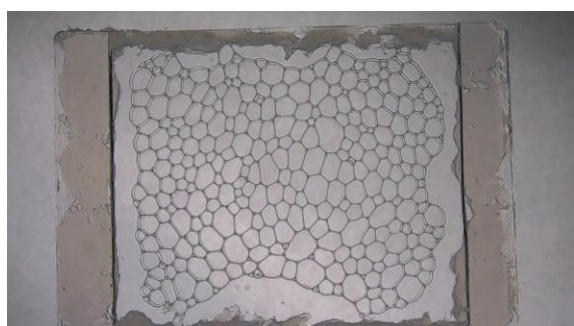


図 1、ドライ泡沫

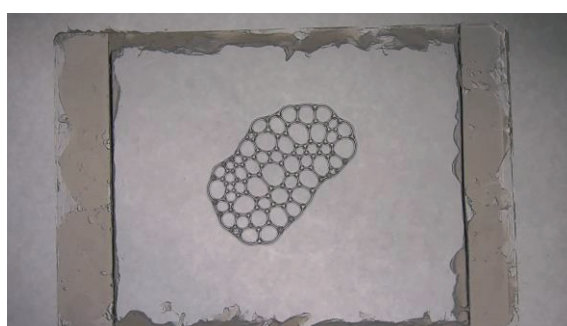


図 2、ウェット泡沫

【参考文献】

- (1) J. Lauridsen, M. Twardos, M. Dennin
Shear-induced stress relaxation in a two-dimensional wet foam
Phys. Rev. Lett., 89 (2002), p. 098303

ハードコア矩形ショルダー粒子系が作る新規タイリング構造

(近大理工) 別宮進一、堂寺知成

【はじめに】

図1のような単純な斥力ポテンシャルを持つ2次元のハードコア矩形ショルダー斥力ポテンシャルを用いることで、コアシェル比 λ ($\lambda = (R + \sigma)/R$) が $1.0 < \lambda < 2.0$ の領域において10, 12, 18, 24回の対称性を持つ準結晶が見つかった[1]。

【結果と考察】

まだシミュレーションされていない $2.0 < \lambda < 3.0$ の領域で冷却シミュレーションを行ったところ、カイロタイリング (図2 (a)) や、ケージ構造 (図2 (b))、6回対称準結晶 (図2 (c)) などさまざまな構造を発見した。

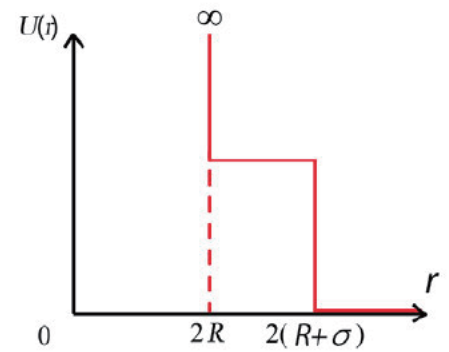


図1：コアシェル粒子のポテンシャル。

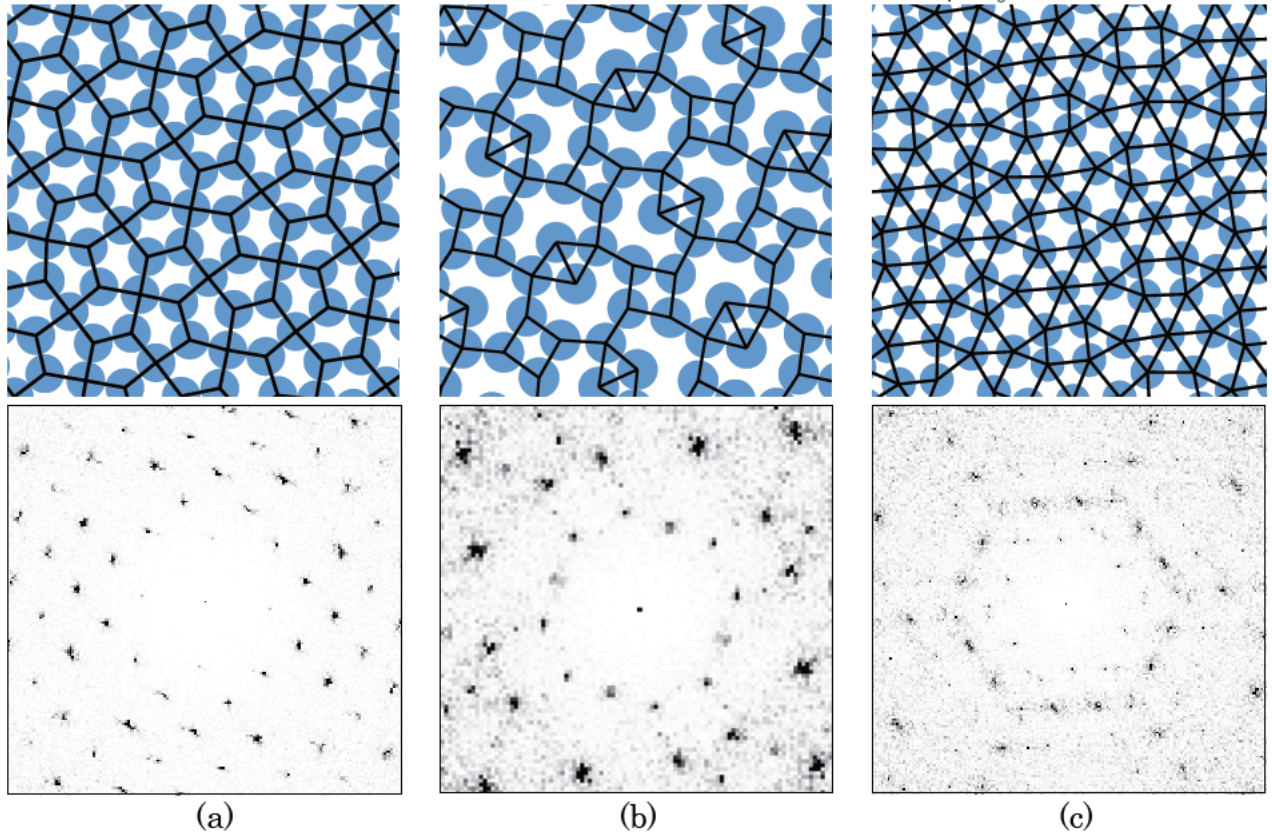


図2：粒子の配置 (上段) と回折像 (下段)。 ϕ はコアの面積密度とする。(a) カイロタイリング (p4gm)。 $\{\lambda, \phi\} = \{2.41, 0.66\}$ 。(b) ケージ構造 (p4gm)。 $\{\lambda, \phi\} = \{2.41, 0.61\}$ 。(c) 6回対称準結晶。 $\{\lambda, \phi\} = \{2.25, 0.53\}$ 。

[1]. T. Dotera, T. Oshiro and P. Ziherl, nature, **506** (2014) 208.

多重フィードバックによる細胞骨格のマイクロレオロジー計測

(九大理) 本田菜月、西澤賢治、有賀隆行、水野大介

【はじめに】

細胞を構成するソフトマターは、モーターたんぱく質が生み出す力により非熱的に駆動されている。強い非線形応答性と多彩な緩和挙動を示すソフトマターの物性は、こうした力学的な駆動や非平衡の度合いに強く依存する。細胞の力学的性質は、モーターたんぱく質と分子レベルで直接相互作用する生体ソフトマター（細胞骨格）により与えられる。したがって細胞内部の力学環境が決定されるメカニズムを解明するには、細胞骨格に局所的かつ制御された力を加えつつ、ゆらぎと力学応答を同時に観測することが重要である。今回我々は、多重のフィードバック制御を導入したマイクロレオロジー装置を新たに開発することで、これを実現した。

【結果と考察】

図 1 に多重フィードバックを導入したマイクロレオロジー計測装置の概略を示す。光トラップ位置を高速にフィードバック制御することで、一定の外力をプローブに印加する(force clamp)。これにより光トラップポテンシャルが粒子運動に与える擾乱を実質的に除去できる。さらに、試料を設置する Piezo ステージをフィードバックすることで、印加した光トラップ力に伴う粒子のドラフトや巨大な揺動に追随しつつ、プローブ粒子のゆらぎや応答を精密に観測できる。

開発したシステムを用いて、各種の再構成細胞骨格溶液中（F-アクチン、ビメンチン、フィブリン）で、ゆらぎスペクトルの印加牽引力に対する依存性を測定した。図 2 は、ヘビーメロミオシン（HMM）で架橋した F-アクチンゲル中で観測した結果である。印加する牽引力の増加とともに、プローブ粒子のゆらぎが減少することが観測された。これは、細胞骨格ゲルに特徴的な応力硬化現象を反映していると考えられる。同時にプローブ粒子の線形周波数応答を観測することで、揺動散逸定理の破れとして系の非平衡度の度合いを定量することも可能である。細胞中では、様々な物質が細胞骨格の網目構造中を能動輸送されることが知られており、本研究はこうした細胞内輸送の非平衡動力学の理解にも繋がると思われる。

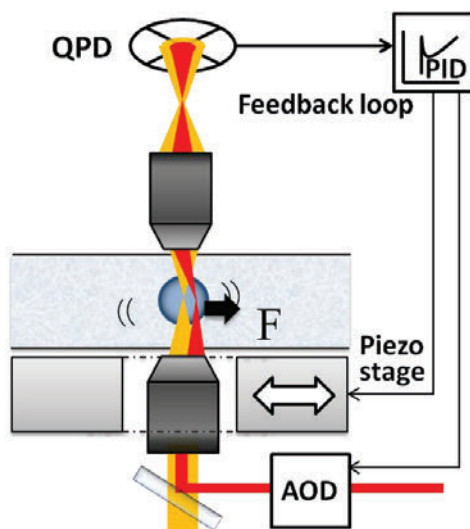


図 1. 装置の概要

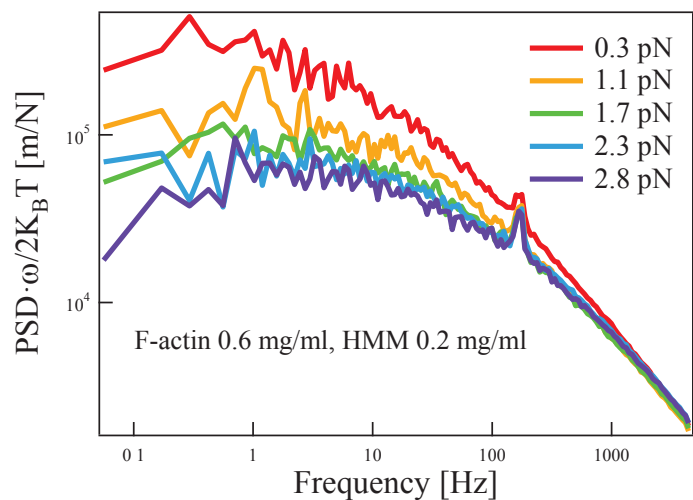


図 2. ゆらぎスペクトルの牽引力依存性

温度勾配による二分子膜ラメラ相の線欠陥のダイナミクス

(首都大物理⁽¹⁾、東大生研⁽²⁾) 栗田 玲⁽¹⁾、三井 駿⁽¹⁾、田中 肇⁽²⁾

【はじめに】

界面活性剤は親水基と疎水基の両方をもち、水との分散系においては疎水基を水と触れさせないためにミセルや二分子膜などの自己会合体を形成する。さらに、この自己会合体を単位構造として、よりマクロな高次構造を形成することが知られている。特に二分子膜では、膜が層状に積み重なったラメラ相と双連結的につながったスポンジ相などの高次構造が存在する。これらの自己会合体や高次構造は濃度や温度の変化に対し、敏感に応答することが知られている。

界面活性剤・水系が作る二分子膜の研究はこれまで温度均一条件での研究がほとんどであった。しかし、自然界や生体系では温度不均一、すなわち、温度勾配下で多彩な現象を発現している。温度勾配下には、界面エネルギーの温度依存性から流れが生じるマランゴニ効果や二成分の液体系において温度勾配を与えると濃度勾配が誘起されるソレー効果など、温度均一系では見られない様々な現象がある。このような温度勾配下では、温度や濃度の変調に対し敏感な二分子膜やその高次構造は温度勾配による影響を大きく受けると考えられる。そこで我々は温度勾配下による二分子膜とその高次構造であるラメラ相への影響を明らかにすることを目的として研究を行った。

【結果と考察】

界面活性剤・水系である非イオン性界面活性剤 $C_{10}E_3/H_2O$ 系の低濃度のものをカバーガラスで作成したセルに封入する。それをホメオトロピックに配向させたラメラ相になるように調整し、温度勾配を与え、顕微鏡で観察する実験を行った。ホメオトロピックな配向とはガラスに界面活性剤が立つように配向した状態をいう(図1)。その結果、温度勾配によって界面活性剤分子が高温領域から低温領域に移動し、膜面内で濃度勾配が誘起される二次元的ソレー効果を示す結果を得た。また、クサビ型のサンプルセル(図1)を用いて、ホメオトロピックに配向させ、二分子膜の配向と線欠陥の方向を制御

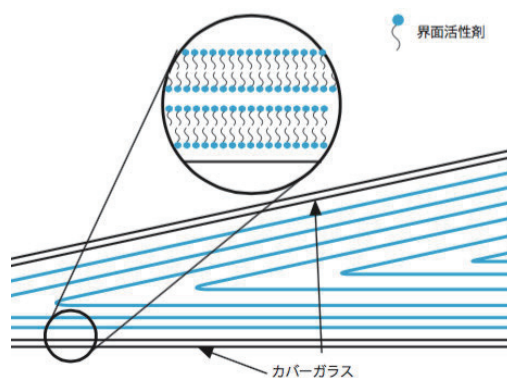


図1 クサビ型セルとホメオトロピックに配向したラメラ相

した。これにより、二分子膜への温度勾配の影響を定性的に議論することが可能となった。その結果、温度勾配によってラメラ相の線欠陥の移動が観測された。これらの結果を膜面内での二次元的ソレー効果による濃度勾配とラメラ相における二分子膜のゆらぎの関係から考察を行った。

ミョウバンの再結晶に対するイオン過剰の効果

(首都大 物理) 森永 恒希 及川 典子 栗田 玲

【はじめに】

背景及び目的

イオン結晶が単一塩溶液から結晶化する場合、材料であるイオンは化学量論的に適切な量が存在している。しかし、混合塩溶液を考えた場合、あるイオン結晶が結晶化するときそのイオン結晶の材料イオンが過剰に存在している可能性がある。

しかしながら、イオンが過剰に存在することで再結晶化に対してどれほどの影響があるかはそれほど調べられていない。

【結果と考察】

今回の実験で用いるサンプルはカリミョウバン($\text{AlK}(\text{SO}_4)_2$)溶液に塩化アルミニウム(AlCl_3)を混ぜ混合塩溶液を作成した。

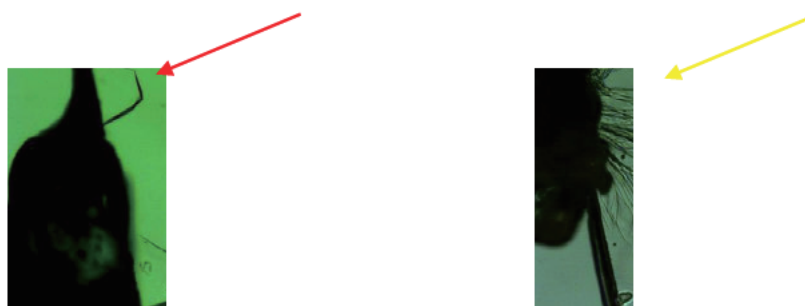
このサンプルは 60°C に温めた後に 20°C に冷やすことにより塩化アルミニウムが結晶化せず、カリミョウバンのみが結晶化する。そのため、カリミョウバンの結晶化に対しては、アルミニウムイオンが過剰に存在していることになる。

実験方法は、前述したサンプルを顕微鏡用の温度コントローラーステージを用いて、温度を管理し析出する結晶を顕微鏡で観察した。

結果は以下の写真である。

左：塩化アルミニウムを入れていない場合のカリミョウバン結晶（赤矢印の先端）

右：塩化アルミニウムを入れた場合のカリミョウバン結晶（黄色矢印の先端）



※左右の写真の黒い部分は種結晶であり、右下の赤い棒は 0.1mm のスケーラー
このようにイオン過剰のサンプルは特異な針状の結晶が析出している。

この結果について詳しい内容や考察をポスターで述べる。

化学刺激に誘起される分子集合体の自己駆動現象

(東北大学大学院理学研究科)諸橋 博昭、今井 正幸
(東京大学大学院総合文化研究科)豊田 太郎

【はじめに】

鞭毛虫など水中の微生物の一部は化学反応を利用し、その体を変形させることで水中をある速度で自発的に運動することができる。近年、実際の微生物ではなく、実験的に作成した系で自己駆動現象を見出した例が数々報告されている。しかし、それらの多くは磁場など物理的な外場を印加して変形を誘起するもの(1)や、化学的な刺激で駆動しているが大きな変形は伴わず、液滴表面上での対流を用いて速度を得ているもの(2)がほとんどであった。そこで我々はより実際の微生物に近いモデル系の作製のため、化学刺激によって大きく変形し、その変形を利用して駆動するという新しい自己駆動系の開発を行った。

【結果と考察】

我々はリン脂質 POPC(1-palmitoyl-2-oleyl-*sn*-glycero-3-phosphocholine)を純水中に分散させ、リン脂質の凝集体を作成した。そこに界面活性剤 TritonX-100 の溶液(100mM)を加えた所、リン脂質凝集体から tube 状の構造体が成長しつつ tube 全体が波打ち、リン脂質凝集体が tube の伸びる方向とは逆方向に秒速 10 μ m ほどの速さで駆動するというダイナミックな現象を見出した(Figure1)。また、tube を形成したリン脂質凝集体を偏光顕微鏡で観察した所、リン脂質凝集体、tube とともに表面において膜構造を形成していることが分かった(Figure2)。今回の発表ではこれらの観察結果を元に、tube の形成とその波打ち、それに伴うリン脂質凝集体の駆動の各現象のモデルを提案し、その正当性を議論する。

【参考文献】

- (1) R. Dreyfus *et. al.*, *Nature*, **437**, 862 (2005)
- (2) M. M. Hanczyc *et. al.*, *J. Am. Chem. Soc.*, **129**, 9386 (2007)

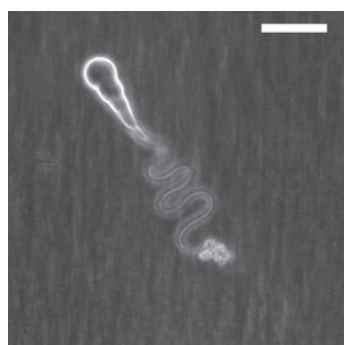


Figure1；位相差顕微鏡画像

TritonX-100(100mM)中で駆動する
リン脂質凝集体。scale bar = 50 μ m



Figure2；明視野顕微鏡画像(左)と偏光顕微鏡画像(右)

TritonX-100(10mM)中で tube を形成した際の画像. scale bar
= 10 μ m

粘弾性媒質中の二成分膜のダイナミクス

(首都大学東京・理工学研究科) 安田健人、岡本隆一、好村滋行

【はじめに】

生体膜は生体中で細胞骨格や細胞外マトリクスなどの高分子ネットワークに囲まれて存在している。これらの高分子媒質は粘弾性体とみなすことができる。そのため、粘弾性体に囲まれた生体膜に関する研究が行われている [1]。一方、生体膜には膜タンパク質が含まれており、膜中を側方拡散している。そのため、生体膜は脂質とタンパク質の二成分系とみなすことができる。我々は粘弾性媒質に囲まれた二成分膜のモデルを検討して、そのダイナミクスについて調べた [2]。

【結果と考察】

生体膜の形状を膜の高さ $h(\rho, t)$ で記述する。ここで $\rho = (x, y)$ である。さらに、膜上には多数のタンパク質が存在し、その濃度を $\psi(\rho, t)$ とする。脂質とタンパク質から成る二成分膜は、周波数に依存する弾性率 $G(s)$ を持つ粘弾性媒質に囲まれているとする (s は周波数)。膜の自由エネルギーは膜の曲げエネルギー、タンパク質の均一化のエネルギーに加えて、膜の曲率とタンパク質濃度の結合を考慮した (図 1(a))。また、膜の形状のダイナミクスは周囲の粘弾性媒質の流体方程式に支配され、タンパク質濃度は拡散方程式に従うとした。

これらの方程式を解き、膜断片の同位置平均二乗変位 $\phi(t) = \langle [h(\rho, t) - h(\rho, 0)]^2 \rangle$ を計算した。これにより、二成分膜における一般化されたアインシュタインの関係 (GER) を得た。これは平均二乗変位と周波数に依存する弾性率を関係付けており、マイクロレオロジーにおいて有用である。また、粘弾性体のモデルとして $G(s) = G_0 s^\alpha$ のような幂的な依存性を考えて、 $\phi(t)$ の時間依存性を調べた。その結果、 $t \ln(1/t) \rightarrow t^{2\alpha/3}$ のクロスオーバーが起こることがわかった (図 1(b))。

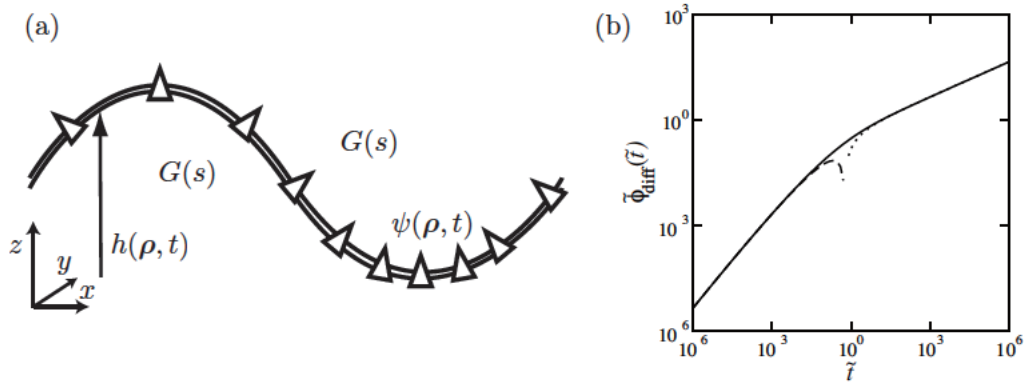


図 a 膜の曲率とタンパク質の濃度の結合、 膜の平均二乗変位の時間依存性 α /

【参考文献】

- [1] R. Granek, *Soft Matter* **7**, 5281 (2011).
- [2] S. Komura, K. Yasuda, R. Okamoto, *J. Phys.: Condens. Matter* **27**, 432001 (2015).

高分子結晶化初期過程における誘導期のモデル化

(東北大理) 横田 宏 川勝 年洋

【はじめに】

高分子結晶化の初期過程において、高分子鎖の配向がそろった、数 nm-10nm の高密度領域が生成し(誘導期)、その後に、折りたたみ鎖が形成されることが知られている(1). 実験から、高密度領域は、一様状態が不安定になることにより生成されることが示唆されている(spinodal 分解). 近年行われた実験により、折りたたみ鎖の形成は核生成のメカニズムで起こることが示されている(2).

このように、高分子結晶化の初期過程に関する実験の研究は、多くなされてきた. 本発表では、系の自由エネルギーをセグメント濃度とボンドの配向秩序に関して Ginzburg-Landau 展開することで、高分子結晶化の誘導期における自由エネルギーの振る舞いを考察する.

【高分子のモデル】

我々は、高分子のモデルとして、体心立方格子に配置された chain のモデルを採用した. i 番目のボンドの方向が指定されたとき、 $i+1$ 番目のボンドがとりうる方向とその統計重率は **Figure1** に示す通りである.ただし、初期ボンドに対して、球対称分布を仮定した.

このとき、ボンド間の関係をあらわす転送行列 T を次のように定義する.

$$T_{aa} = e^{-\beta\epsilon_t}, \quad T_{ac} = e^{-\beta\epsilon_g} \dots$$

T_{aa} は i 番目のボンド $\vec{b}_i$ と $i+1$ 番目のボンド $\vec{b}_{i+1}$ の関係がトランスである(**Figure1**:赤のベクトル)ときの統計重率を表し、 T_{ac} は i 番目のボンド $\vec{b}_i$ と $i+1$ 番目のボンド $\vec{b}_{i+1}$ の関係がゴーシュである(**Figure1**:黄色のベクトル)ときの統計重率を表す.

さらに、この転送行列を用いると 0 番目のボンドと N 番目のボンドが同じ方向を向いている統計重率は、 T_{aa}^N とあらわされる.

【結果と考察】

互いに独立な chain の集団を reference state として、密度と配向オーダーパラメータを用いて、Ginzburg-Landau 展開を行った. 展開係数を random phase approximation(RPA)を用いて評価することで、高分子融液における濃度-ボンド配向の長距離相関に nematic 相互作用の効果を導入した.

本発表では、われわれのモデル化の詳細と計算結果を紹介する.

【参考文献】

- (1)M.Imai, K.Kaji, and T.Kanaya, *Macromolecules*, **1994**, 27, 7103.
- (2)W.Chung, et al. , *Macromolecules*, **2011**, 44, 1140.

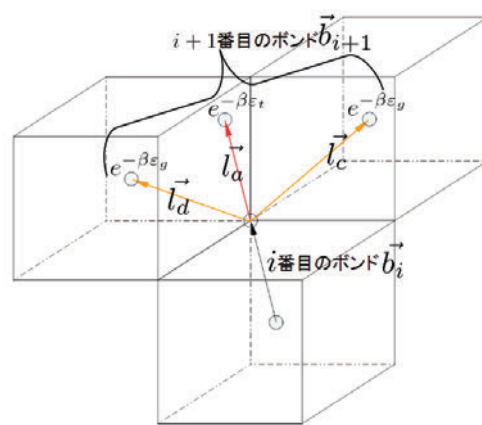


Figure 1 : i 番目のボンドに対する $i+1$ 番目のボンドとその統計重率.

ϵ_t はトランスのエネルギー, ϵ_g はゴーシュのエネルギーを表す.

凍結水溶液の濃縮相ガラス転移と医薬品の品質確保への活用

(国立医薬品食品衛生研究所) 伊豆津健一, 柴田寛子, 吉田寛幸, 合田幸広

【はじめに】

水溶液に含まれる各種の溶質は、溶液の凍結とともに氷晶間に高度に濃縮されて過冷却（非晶質）固体を形成し、一部は結晶化を起こす。一般に過冷却固体部分は溶質量の約 3 割の水を含み、低温ではガラス状態にあり、一定温度以上で急速に粘度や分子運動性が増加する。非晶質状態の溶質を含む凍結水溶液では、示差走査熱量計(DSC)を用いた昇温測定により、溶質により異なる温度で最大濃縮相ガラス転移 (T_g') と呼ばれる熱転移を示す。この変化は濃縮相のガラス転移を示すものと考えられている。

バイオ医薬品などの製剤化における凍結乾燥工程では、活性成分や添加剤を含む水溶液を凍結して減圧下の乾燥を進めるため、上記 T_g' の把握とそれに対応した試料温度の制御が重要となる。当研究室では、複数の溶質を含む多成分系水溶液の凍結により、溶質が混合した非晶質状態で氷晶間に濃縮される場合（単独 T_g' ）と、成分が異なる複数相に分離する場合があること（複数 T_g' 、凍結相分離現象）を見だし、タンパク質の高次構造保持など製剤の品質向上への活用を検討してきた。

【結果と考察】

本研究では、凍結溶液中で結晶化を起こしやすい糖アルコール（*myo*-inositol）と、濃度比により異なる混合性を示す高分子（dextran, gelatin）を用いて、凍結溶液中の非晶質濃縮相における両者の混合性を検討するとともに、混合性が *myo*-inositol の結晶化に与える影響を検討した。

Myo-Inositol のみを含む溶液の凍結では、*myo*-inositol が非晶質状態 (T_g' : -40℃付近) で凍結濃縮された後に、-10℃付近に水和物の結晶化を示した。両者を含む溶液（合計 10%, w/w）は、凍結直後には広い濃度比にわたって単独の T_g' 転移を示した（混合濃縮）。凍結溶液を T_g' より高温で一定時間保持すると、*myo*-inositol の濃度比が高い領域で溶質の相分離が起こり（複数 T_g' ）、*myo*-inositol の結晶化の後に非晶質状態で残された高分子単独での T_g' が観察された。これらの溶液を凍結乾燥すると、高分子比の高い溶液からは全ての条件で非晶質状態の多孔質固体が得られた。一方で *myo*-inositol 比の高い溶液からは、凍結方法や乾燥温度の設定により、非晶質固体または結晶化が起こる工程段階により異なる結晶形の *myo*-inositol が得られた。

凍結溶液中に濃縮された溶質は、低温でのガラス転移など興味深い現象を示す。特に多成分系で観察される相分離現象は、凍結乾燥を利用して調製される DDS 医薬品やバイオ医薬品の安定性を考える上で重要な要因であり、本現象を整理し体系化することは、実用面でも重要であるものと考えられる。

【参考文献】

- (1) K. Izutsu, M. Heller, T.W. Randolph, J.F. Carpenter, *J. Chem. Soc., Faraday Trans.* 94: 411-418 (1998).
- (2) K. Izutsu, H. Shibata, H. Yoshida, Y. Goda, *J. Pharm. Sci.* 103: 2139-46 (2014).

1 パッチ粒子密充填系の示す多様なメソ方向秩序

(九大院理) 岩下 靖孝、木村 康之

【はじめに】

多様な物性・形状の合成ナノ粒子やタンパク質などの生体高分子の自己組織化において、微粒子（コロイド粒子）の異方性が多様な構造（“秩序”）の源となっている[1]。今回我々は、表面の限られた領域（パッチ）を通じてのみ引力相互作用するコロイド粒子（パッチ粒子）の示す方向秩序に注目した：表面間の短距離相互作用にのみ異方性を持つパッチ粒子系は、作成手法が確立されており、理論的取り扱いが比較的容易であるため、異方的コロイド粒子の優れたモデル系として近年注目されている。しかしこれまでは、相互作用の異方性による並進秩序（結晶構造など）を対象としたものがほとんどであった。その一方、物性を担うもう一つの重要な秩序である「方向秩序」に注目した研究はほとんど行われていない。

【方法】

我々は既に球状1パッチ粒子の作成と、その自己組織化構造形成に成功している[2]。そこでこの粒子を密充填することにより、粒子が回転の自由度のみを持つ系を作成した（図(a)）。このとき、粒子の充填構造はクサビセル中での layering transition により制御しており、今回は fcc, hcp およびそのランダムな混在状態である rcp のみを対象とした。溶媒は水-ルチジン混合溶液である。パッチサイズを変え、現れるパターン（方向秩序構造）を顕微鏡観察した。またパッチ粒子を Kern-Frenkel モデルで表した計算機シミュレーションも行い、実験結果と比較した。

【結果と考察】

実験の結果、パッチのサイズ、即ち粒子間引力の異方性と粒子の充填構造、即ち位置の秩序によって、多様な方向秩序が現れることを発見した（例：図(b)(c)）。またモンテカルロシミュレーションにより計算した秩序構造や相図を実験と比較することにより、方向秩序化の機構を解明することができた。

球状パッチ粒子の密充填系は、異方的なコロイド粒子が純粋に方向秩序を示す新規な系である。本研究によりその秩序の多様性を実証し、秩序化の詳細を解明することができた。

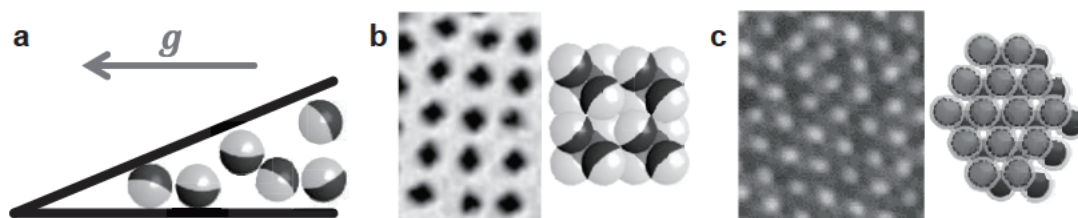


図 (a) 試料の模式図。(b, c) 方向秩序構造の顕微鏡像と模式図。

(b) 四面体形状4量体の周期的配列、(c) 六方格子二層における二重膜構造。

【参考文献】

- (1) A. Walther and A. Müller, *Chem. Rev.* **113**, 5194 (2013)
- (2) Y. Iwashita and Y. Kimura, *Soft Matter* **10**, 7170 (2014)

繊毛メタクロナル波の流体力学モデル

(東北大学大学院理学研究科物理学専攻) 内田 就也

【はじめに】

繊毛はゾウリムシの細胞表面やヒト気管上皮などを覆うフィラメントで、周期的なビーティング運動により周囲の流体に流れを作り出す。その際に数十～数千本の繊毛が進行波状の集団運動パターン(メタクロナル波)を形成することが知られているが、その機構や流体輸送特性については未知の部分が多い。われわれは繊毛のミニマルモデルとして、周期的な駆動力を持つ剛体回転子を考え、流体力学相互作用による非線形ダイナミクスを解析した。回転子の2次元配列におけるメタクロナル波について、動的相図を示すとともに流体輸送特性を解析する。

【結果と考察】

回転子は周期的な駆動力を受けて円軌道上を運動する剛体球からなる(図 a)。駆動力は回転子の位相 ϕ の関数として $F(\phi) \propto 1 + 0.5 \cos(\phi - \phi_m)$ と与える。駆動力が最大となる位相 ϕ_m 及び軌道の傾き角 β を変えたときの空間パターン(位相場 $\phi(x, y)$ のスナップショット)を図 b. に示す。メタクロナル波が最も安定的に生成しやすいのは $\phi_m = 45^\circ$, $\beta = 45^\circ$ 付近であることが分かる。また、流量と仕事率の比として定義した流体輸送効率は $\phi_m = 30^\circ$ で極大値を取る(図 c)。これらの結果は、メタクロナル波の特性が個々の繊毛のビーティングパターンに大きく依存することを示す。

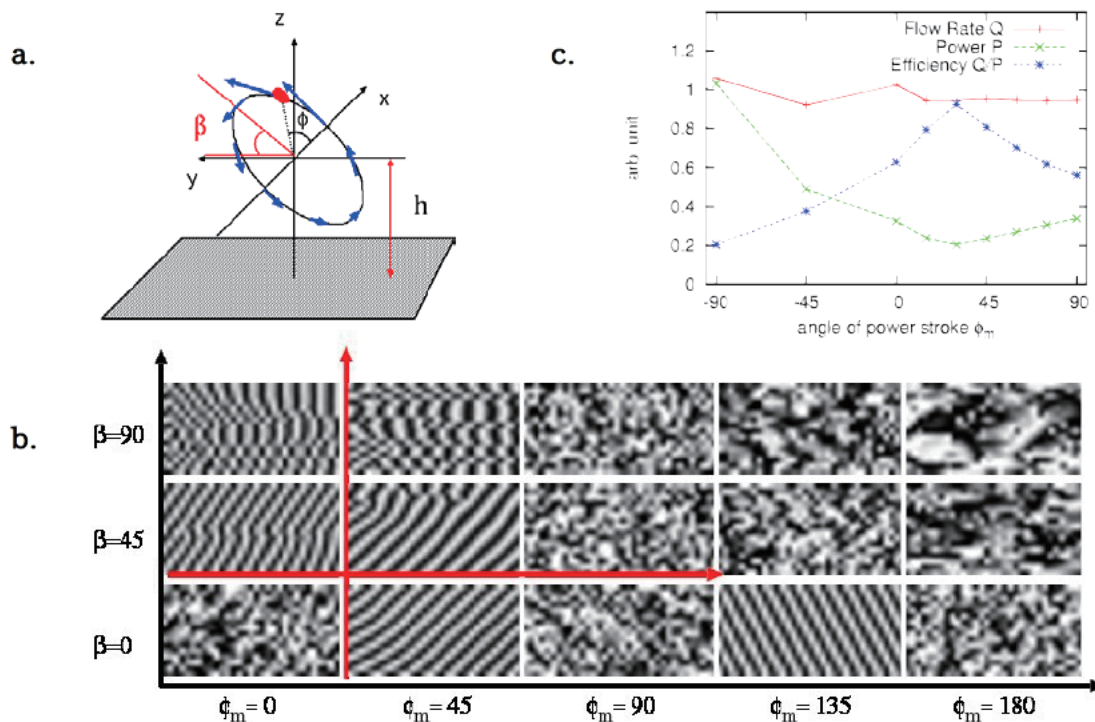


図 a. 回転子モデルの概念図 b. 2次元配列での空間パターン(グレースケールは回転子の位相)

c. 流体輸送特性(流量 Q , 仕事率 P , 輸送効率 Q/P)

コレステリック液晶エラストマーの刺激応答特性

(京工繊大院工) 永井芙菜, ○浦山健治

(京大院工) 洲上雄太, 瀧川敏算

【はじめに】

液晶とゴムが複合化された液晶エラストマー(LCE)は液晶性とゴム弾性の両性質をもち、液晶配向とゴムのマクロな形状が強く関連する特徴を示す。局所ダイレクタが周期的ならせん配列をもつコレステリック液晶は、円偏光に対する選択反射特性に代表されるユニークな光学特性をもつ。我々は液晶配向のらせん軸が膜面に垂直、もしくは平行な2種のコレステリック LCE(CLCE)膜を作製し、温度、電場および圧縮ひずみに対する応答挙動を調べた。

【結果と考察】

温度応答特性

液晶配向のらせん軸が膜面に垂直な CLCE 膜(N-CLCE)を作製し、温度変化に対するマクロ変形および選択反射特性の変化を調べた。冷却すると、膜はらせん軸方向に縮み、それと垂直な二方向には伸びるマクロ変形を示すと同時に、選択反射を示す波長域の中心波長(λ_c)は低波長側にシフトした。冷却による液晶の配向度の増加によって、らせん配列のピッチ長が短くなり、それに伴ってらせん軸方向の膜厚が小さくなることを示している。 λ_c の変化とらせん軸方向の膜厚の変化は、おおよそアフィン関係にあることがわかった[1]。

液晶配向のらせん軸が膜面の一方向に平行な CLCE 膜(P-CLCE)を作製し、熱変形挙動を調べた。温度変化を与えると、らせん軸方向に膜がマクロに伸縮する挙動は N-CLCE 膜の場合と同様であったが、膜表面にらせん周期に相当する周期的な凹凸が生じ、凹凸が温度変化に対して定常波のように変化する挙動が観察された。観察された膜表面の凹凸とその温度応答は、液晶の局所ダイレクタのらせん配列と配向度の増減を反映していると考えられる。

圧縮ひずみに対する応答挙動

P-CLCE 膜のらせん軸と平行方向に圧縮ひずみを加え、選択反射特性のひずみ依存性を調べた。圧縮下でも選択反射特性は保たれ、ひずみの増加とともに λ_c が短波長側にシフトする挙動が観察された。温度変化の場合と同様に、圧縮による膜厚変化と λ_c の変化はおおよそ比例関係がみられた[2]。

電場応答挙動

P-CLCE 膜を低分子液晶で平衡に至るまで膨潤させ、コレステリック液晶ゲルを得た。このゲル膜を膜厚よりも大きな電極間距離をもつ光学セルに膨潤溶媒とともに封入し、らせん軸と平行方向の電場に対する応答挙動を調べた。ゲルは電場方向に伸長変形を示し、そのひずみは電場とともに大きくなった。一方、透過光強度は電場下では大きく減少したが、電場強度がある程度以上大きくなると再び増加し、 λ_c が高波長側にシフトする挙動がみられた[3]。観察された力学および光学特性の変化に対する考察については当日述べる。

[1] Nagai, Urayama, *Phys. Rev. E*, **92**, 022501 (2015).

[2] Varanytsia, Nagai, Urayama, Palffy-Muhoray, *Sci. Rep.*, accepted for publication.

[3] Fuchigami, Takigawa, Urayama, *ACS Macro Lett.*, **3**, 813 (2014).

脂質二重膜のバディング

(首都大学東京・理工学研究科) 好村滋行
(チャールス・サドロン研) Jean Wolff
(テルアビブ大) David Andelman

【はじめに】

細胞はバディング（出芽）によって分裂や増殖をするため、その物理化学的なメカニズムを解明することは重要である。ここでは、生体膜のモデルとして二成分の脂質二重膜を考え、膜内のドメインによって誘起されるバディングのモデルを提唱する[1]。我々のモデルは、Lipowsky によって提唱されたモデル[2]の拡張になっている。

【結果と考察】

二種類の脂質分子 A および B から成るドメインを考える。バディングを記述するエネルギーとして、(i) ドメインの曲率弾性エネルギー（曲げ剛性率に比例）、(ii) ドメインの境界で働く線エネルギー（線張力に比例）、(iii) 二重膜の相分離エネルギーの三つの寄与を考慮する。重要な仮定として、それぞれの単層膜の自発曲率は、二種類の脂質分子の濃度差に対して線形的に依存するとした。ドメインの形状としては、図 1 のように、コンプリートバディング (a)、インコンプリートバディング (b)、フラット (c) の三状態を想定した。最初に全自由エネルギーをドメインの曲率（球面の一部と仮定）について最小化し、最終的には共通接線法によって、換算温度と平均濃度を変数とする相図を作成した。

いくつかのパラメータについて相図を計算した結果、二枚の単層膜間の濃度の非対称性によってバディングが誘起されることがわかった。また、あるパラメータ範囲では、一次転移と二次転移が連続的につながる三重臨界点や、三重点の存在が予測される。また、曲げ剛性率と線張力で決まる「陥入長」の変化が、相図のトポロジーに及ぼす影響についても議論する。

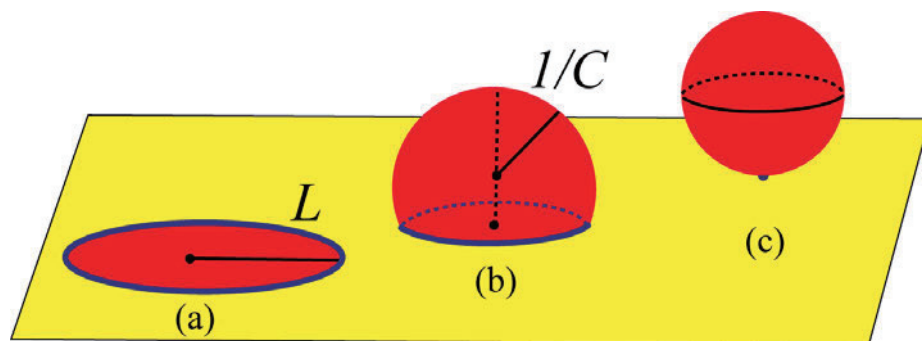


図 1 : ドメインのバディング

【参考文献】

- [1] J. Wolff, S. Komura, and D. Andelman, *Phys. Rev. E* **91**, 012708 (2015).
- [2] R. Lipowsky, *J. Phys. II (France)* **2**, 1825 (1992).

実面積一定条件における弾性膜の残留応力のモンテカルロ計算

(東京大学物性研究所) 芝 隼人

【はじめに】

脂質弾性膜のゆらぎはヘルフリッヒ自由エネルギーで記述される。ところで、重要な弾性係数であるところの表面張力には2つの定義があることが知られており、ヘルフリッヒのエネルギーに含まれているのは実面積に共役な内部応力である（ここではとりたてて内部張力と呼ぶ）。一方、力学的に測定可能な表面張力は射影面積に共役な力学張力（フレーム張力）である。低い張力の領域で顕著なことであるが、実面積と射影面積の差に由来して両者は異なっており、膜面のゆらぎを支配する表面張力がどちらなのか（どちらに近いのか）が議論されてきた。今回はモンテカルロ計算を用いて理想膜面に対して、張力の差がどのようになっているかを議論する。具体的には、射影面積がステップに応じて変化する格子膜を用いて、微分幾何学的に正確な曲率エネルギーを使用した。

【結果と考察】

内部張力と力学張力を行った。この際、内部張力と力学張力を両者同時に指定できるモンテカルロ計算を行うにあたって、膜格子の長さの分解度を定めるのが格子間隔であるに着目すれば、2つの応力の関数としてこれらの面積の大きさの理論式を書き下すことができる(a)。実面積一定となる両者の張力の組み合わせを定め、張力の大きさの関数として2つの張力差をプロットすると、理論式が厳密に成立した。したがって両者の張力の差が正確に記述できることが示された。

ゆらぎのスペクトルから、実際のゆらぎを支配している表面張力（以下、ゆらぎ張力）の推定値を計算可能である。非線形な曲率エネルギーの使用が行われた場合に、ゆらぎ張力は力学張力に近い値をとるが、優位に大きい値をとることが示される。ただし、この曲率エネルギーの使用に際しては、膜面が傾斜したときにたて自由度しかないことによって獲得されるエントロピーの寄与を取り入れる必要がある。また、通常よく用いられた、曲げの非線形性が取り入れられていない線形曲率（simple Laplacian）表式を使用した場合には、ゆらぎ張力が見かけ上、内部応力に近い値を取る。これは従来理論で解けるものであり、その予言を確認する結果となっている。

結論として、ゆらぎ応力と力学張力は近い値を取る。ただし、現在の計算の範囲ではわずかな差があり、この原因が本質的なものか補正項由来かは現時点でははっきりしていない。(b)

【参考文献】

- (1) J.-B. Fournier and C. Barbetta, Phys. Rev. Lett. **100**, 078103 (2008).
- (2) H. Shiba, H. Noguchi, and J.-B. Fournier, submitted, arXiv:1510.02546 (2015)

少数不純物粒子を含む斥力コロイド一層膜の凝固過程の計算機実験

(東北大 金研 CMRI) 寺田 弥生

【はじめに】

凝固過程において、不純物粒子がどのように固相に取り込まれていくかを明らかにすることは、固体材料の特性を理解するために非常に重要である。そこで、野澤らが行った移流集積法による斥力コロイド一層膜の凝固実験(1)をモデル化し、半径の異なる A,B2 種類の斥力コロイドを数比 $N_a:N_b=0.98:0.02$ で混ぜた二成分コロイド分散系の凝固過程シミュレーションを行い、不純物粒子 B が界面近傍や固相での粒子分布に与える影響を明らかにした。

実験では分散媒の蒸発等によって生じる移流によりコロイドが凝集し凝固が生じる。そこで擬二次元系で数密度が十分低い均一な状態を初期状態として一様外場によって壁側に凝集する状態を再現しブラウン動力学シミュレーションを行った。コロイド粒子間ポテンシャルはソフトコアポテンシャルを用い不純物粒子の粒子半径 r_b は $0.6r_a$ から $1.5r_a$ まで変化させた。

【結果と考察】

図 1 に凝固が進行した後期過程での流動相と固相近傍のスナップショットを示す。一様外場により粒子はシミュレーションセルの右側で凝集が生じている。(a)、(b)ともに不純物コロイド粒子の周辺では格子が崩れ、欠陥が形成されているが、粒子半径比が大きい図 1(a)では不純物粒子の間をつないで欠陥が広がり粒界の誘因となり、多結晶領域が広がっている。そのため、図 1(c)の局所密度変化において、単結晶領域を示す高密度での振動部分が $r_b/r_a=1.4$ ではより狭くなっており、粒界形成過程を不純物の大きさをコントロールすることによって制御できることが示唆される。

【参考文献】

(1) J. Nozawa et al. JPC B, 117, 5289-5295 (2013)

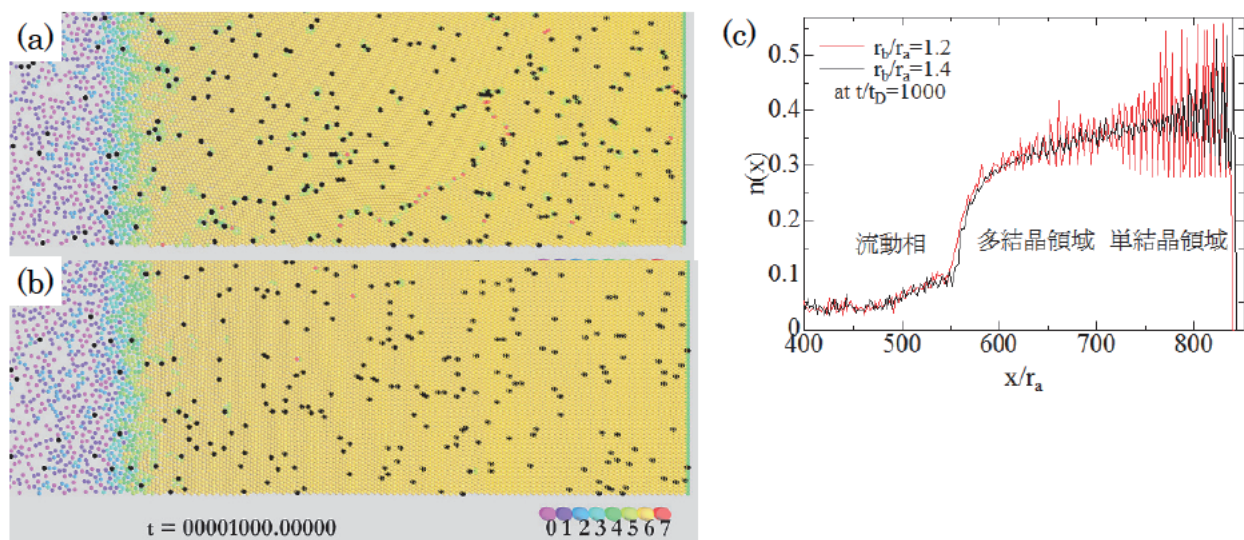


図 1 時刻 $t/t_D=1000$ におけるスナップショットと局所数密度変化。

(a) $r_b/r_a=1.4$ 、(b) 1.2 のスナップショット。(c)局所密度変化。黒丸は不純物粒子 B を示す。粒子 A の色は、最近接粒子数によって異なる。ここで、 t_D は粒子 A の構造緩和時間。

電解質水溶液の誘電率：塩濃度への非線型依存性

(九州大学 大学院工学研究院 化学工学部門) 名嘉山 祥也
(Tel Aviv University) David Andelman

高い塩濃度における電解質水溶液の誘電率について議論する。溶液の誘電率は静電相互作用のスケールを決める重要なパラメータであり、とくに帯電界面近傍や高分子電解質の近傍といったイオン濃度が高い領域の静電相互作用を変調させ、濃度分布や構造の変化に強く関与する。またイオン濃度依存誘電率は、対イオンの排除体積とともに電気二重層の静電容量を決定する [1]。溶液の誘電率は塩の濃度に非線型に依存し、また塩濃度依存性は塩の種類によって異なることが知られている。低塩濃度における誘電率減少は水和の効果によると理解されているが、高塩濃度の非線型依存性の仕組みは解明されていない。不均一媒体の誘電率を記述する Bruggeman–Hanai モデルにもとづき、イオン溶液の誘電率を導出し、イオンの脱溶媒和の効果を検討して拡張した。1 価の電解質の実験データを解析し、次のことを議論する。(i) 誘電率の塩濃度依存性と脱溶媒和の寄与。(ii) 塩の種類による脱溶媒和の傾向とイオンの溶媒和の強さとの関係。

Acknowledgments

The numerical calculations have been partly carried out using the computer facilities at the Research Institute for Information Technology, Kyushu University. Y.N. would like to acknowledge support from the JSPS Institutional Program for Young Researcher Overseas Visits and the hospitality of Tel Aviv University where this project was initiated. This work has been supported by Grants-in-Aid for Scientific Research (JSPS KAKENHI) under Grant No. 26400433, the Israel Science Foundation (ISF) under Grant No. 438/12, and the U.S.-Israel Binational Science Foundation (BSF) under Grant No. 2012/060.

Reference

- [1] Y. Nakayama and D. Andelman, J. Chem. Phys. **142**, 044706 (2015).

コレステリックブルー相の共焦点顕微鏡像を計算する試み

(産総研機能化学) 福田順一・(九大先導研) 奥村泰志・菊池裕嗣

【はじめに】 コレステリックブルー相 ([1], 以下ブルー相) は強いキラリティを有する液晶が示す特異な 3 次元秩序構造の一例であり, 線状の配向欠陥と, 二重ねじれ円筒と呼ばれる配向構造 (円筒軸に垂直なあらゆる方向に配向がねじれている) からなる数百 nm 程度の周期の構造である. ブルー相はフラストレーション起因の秩序相として基礎科学の観点から興味深いのみならず, 高速応答ディスプレイなどへの応用の可能性も積極的に模索されている. ブルー相の構造決定はコッセル図などの散乱に基づく手法によって主に行なわれているが, 東口, 菊池らが, 共焦点顕微法により実空間構造の観測が可能であることを示した[2]. しかしながら, 構造の周期が可視光の波長程度以下であることから, 実際のブルー相の配向構造と共焦点顕微鏡像との関係を理論的に明らかにするのは至難である ([2]においてはブルー相の構造の周期, 対称性と共焦点顕微鏡像の周期, 対称性との対比が矛盾なく行なえるという理解にとどまっていた).

【結果と考察】 共焦点顕微鏡像の計算のために, ブルー相の単位格子を厚さ方向に複数含む有限の厚さの液晶セルを考え, 特定の波長の単色光 (波数ベクトル $\mathbf{k}_i$) が入射した際に液晶セルがどのように光を反射するかを, Maxwell 方程式を直接数値的に解くことによって決定する. 共焦点顕微法において用いる, レンズによって集光された光に対する応答を考えるためには, 単一の $\mathbf{k}_i$ に関する考察では不十分であり, レンズの開口数に対応する立体角内に複数の $\mathbf{k}_i$ を一様に分布させ, それぞれの $\mathbf{k}_i$ の入射光に対して反射光の計算を行なう. 共焦点顕微鏡像の計算結果からの構築は自明な問題ではないが, ここでは全ての反射光を重ね合わせたうえで $\mathbf{r}_f$ における Poynting ベクトルの z 成分を求め, それが共焦点顕微鏡で観測される $\mathbf{r}_f$ における光の強度 $I(\mathbf{r}_f)$ であるとする. $\mathbf{r}_f$ の z 成分を固定し x, y 成分を変化させて $I(\mathbf{r}_f)$ を求めることで, ある一定の深さの焦点面における共焦点顕微鏡像が求められる.

計算の結果得られた共焦点顕微鏡像は, 入射光の波長, 偏光状態, ブルー相の単位格子のセル表面に対する配向方向に著しく依存するものとなったが, いずれの結果もブルー相の構造の対称性を反映したものである. 計算結果の一例を図に示す. その他の具体的な計算手法, および結果の詳細については, 講演で紹介する.

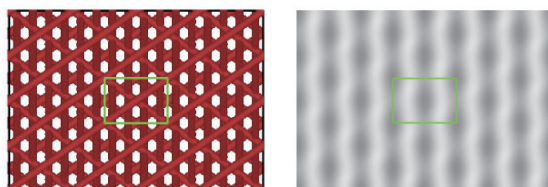


図: [110]配向の BP I の欠陥の配置 (左)
と, 共焦点顕微鏡像の計算例 (右).

本研究は物質・デバイス領域共同研究拠点 (九州大学先導物質化学研究所), および JSPS 科研費 (25400437) の援助によって行なわれた.

【参考文献】

- (1) D.C. Wright and N.D. Mermin, Rev. Mod. Phys. **61**, 385 (1989).
- (2) K. Higashiguchi, K. Yasui and H. Kikuchi, J. Am. Chem. Soc. **130**, 6326 (2008).

蛋白質会合体を用いた細胞核内部のダイナミクス

(長岡技科大) 藤井 修治

(ワイツマン研究所) マイケル エルバウム

(バルイラン大学) ユバル ガリーニ

【はじめに】

細胞核内部は、蛋白質、染色体 DNA、そして RNA などが密に詰まった濃密な環境にあり、それが転写や DNA 複製を効率的に進めるために重要な役割を果たすと考えられている。濃密な環境下では、分子の運動は込み合い効果によって強く影響されるため、拡散挙動も強く制限されると考えられるが、実際にはほとんどの分子が核内部を自由に移動でき、さらには染色体 DNA のような巨大分子も活発に運動するなど、そのダイナミクスは不明である。細胞内部のダイナミクスを調べる際に、コロイド粒子を細胞内部に注入しその運動を追跡する方法が一般的に用いられる。しかし細胞外から異物を注入するため、細胞に対するダメージが大きく、より“自然”なダイナミクスを調べるには、生体プローブを用いる必要がある。生体プローブとして蛋白質会合体を用い、その運動を追跡することにより、細胞核内部のダイナミクスに関する情報を抽出することを目的とした。

【結果と考察】

細胞核内部に蛋白質であるフェリチンの会合体を発現させ、その運動を追跡した。下図はその蛍光顕微鏡写真と、大小のフェリチン会合体について計算した平均自乗変位である。会合体の平均サイズは、大小それぞれ 0.64 、 $1.48\mu\text{m}$ である。この図において平均自乗変位は見かけ上の拡散係数に換算した。会合体の拡散挙動は、平均自乗変位が時間に対し劣線形的に増大する遅い拡散がみられ、時間経過とともに通常の拡散挙動(ブラウン運動)へと変化する。この挙動は会合体のサイズに依らず、拡散係数を見積もるとどちらもほぼ同等の値であった。フェリチン会合体を用いることで、細胞核内部のダイナミクスを調べることが可能であることがわかった。

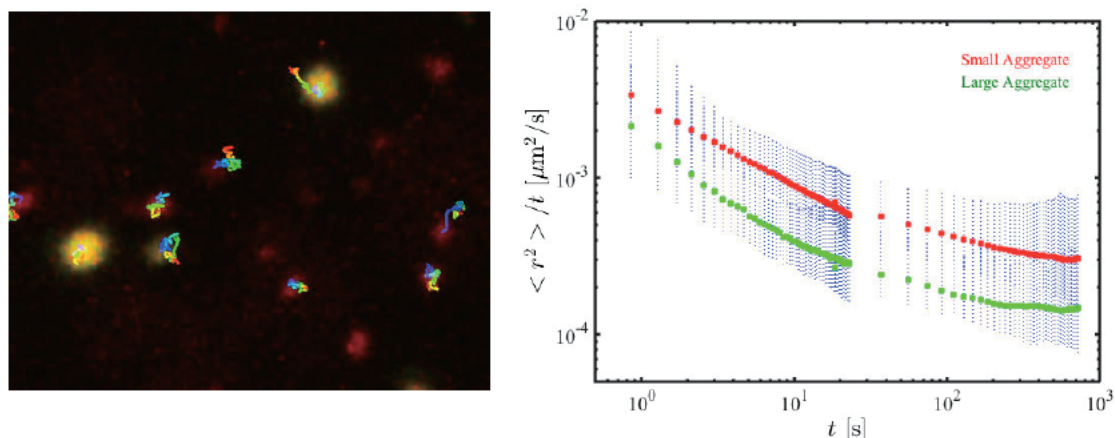


図1 フェリチン会合体の蛍光イメージと、その平均自乗変位

回転電場におけるダイポール及びキラリティを持つプロペラ粒子

(山形大学) 牧野真人 (北京航空航天大学) 土井正男

【はじめに】

キラリティとは、ある物体とその鏡像を重ね合わせることが出来ない性質である。たとえば、我々の左手と右手の関係に相当する。この左と右という性質は、ドーナツの穴の数などで議論されるようなトポロジー不変量ではない。左手の手袋は、そのままでは右手にはめることは出来ないが、左手の手袋を裏返すことで、右手にはめることが出来る。このとき、手袋は裏返すという連続的な変形を経ていることから、左、右という性質が連続的に変わることが分かる。すなわちトポロジー不変量でないことが分かる。本発表では、回転電場 $\mathbf{E} = E_0(\cos \omega t \mathbf{e}_x + \sin \omega t \mathbf{e}_y)$ を与えることにより、ダイポール及びキラリティを持つプロペラ粒子(図)が粘度 η の流体中でどのような移動度を持つか、議論する。ただし、分子などの場合を想定して、温度 T の影響が電場 E_0 に比べて大きいとする。

【結果と考察】

配向空間によるフォッカープランク方程式を利用して、計算すると、プロペラ状粒子の二つの円盤が適当に離れている場合、次の式で、電場に垂直な移動速度が表される。

$$\langle \bar{V}_z \rangle = \frac{m'^2 \sin 2\theta \cos 2\phi}{768\eta a h k_B T} \frac{\omega \tau}{1 + (\omega \tau)^2} E_0^2 + O\left(\left(\frac{a}{h}\right)^2\right)$$

ここで、 $\tau = 64\eta a^3 / 3k_B T$ および、 $m'^2 = m_1^2 + m_2^2$ でプロペラの軸に垂直なダイポールの大きさである。二つのなす円盤の角度 2θ およびダイポールの向きを表す角度 ϕ が、キラリティを表すパラメータとなっている。それぞれ、 $\sin 2\theta, \cos 2\phi$ で三角関数によって表され、連続的に符号が変わる、すなわち、連続的に左から右に移っていくのが分かる。このように移動方向が、キラリティに応じて、異なることから、回転電場を用いることによって、キラリティに応じ粒子を分離することが可能であることを示唆している。

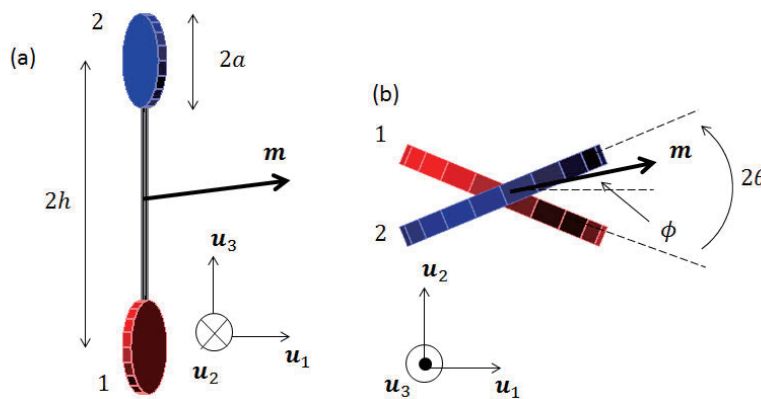


図 プロペラ粒子。(a)横から見た図。(b)上から見た図。二つの円盤は十分離れているとして流体相互作用は無視している。また、二つの円盤を繋ぐ軸は、二つの円盤を相対的に固定するもので、流体力学的には、作用しないとして計算した。

走化性や細胞間接着が無い細胞の運動秩序形成

(阪大理) 松下勝義

【はじめに】

細胞の集団運動形成は生物の発生において重要な役割を果たす現象である⁽¹⁾。その集団運動の形成要因にはこれまで様々な因子、例えば走化性や細胞間接着などが指摘されてきた。それらの因子が必須のものかどうかはそれぞれの役割を理解するうえで重要であるが、それぞれの因子が直接集団運動と関係しているか判別がつかないためよくわかっていない。そこでシミュレーション上でそれらの因子なしに細胞が集団運動を行うかを確認することは細胞の集団運動の本質的理解に重要な役割を果たす。

我々は実際に細胞集団を表現するモデルであるセルラーポッツモデル⁽²⁾を用いてこの細胞集団運動を調べ、この問いに答えることを試みた。特に本研究では走化性や細胞間接着がない細胞集団を考え、細胞の運動に対する極性のみを考慮したモデルを考えた。ただし、細胞間には互いに排除しあう相互作用を考えそれらが重ならないようにする。細胞が集団運動をする場合には細胞極性が多数の細胞間で秩序化するとされている⁽¹⁾。本研究ではそれを利用し極性の秩序化が起きうるかどうかを様々な細胞密度で調べた。

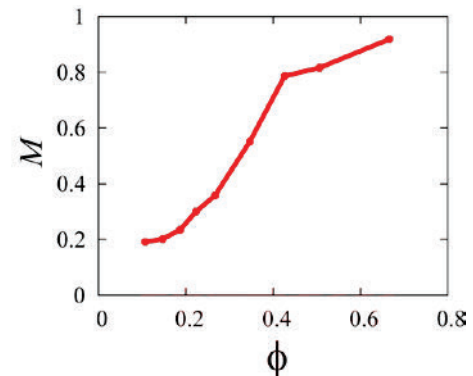
【結果と考察】

i 番目の細胞極性のベクトル μ_i として秩序変数 M を

$$M = \frac{1}{N} \sum_i \mu_i$$

で定義する。ただし μ_i は 1 に規格化されており、 N は細胞数である。 M はすべての細胞の極性が同じ向きを取り秩序化した場合は大きさが 1 をとる。一方で秩序化されない場合はそれより小さい値をとる。

この M の時間平均を細胞のシステムサイズに対する体積分率 ϕ に対してプロットしたものを図 1 に示す。 M は細胞密度が低い場合には非常に引く値をとるが、細胞密度がある一定量を以上になるとほとんど 1 になり秩序化することが分かった。この結果から細胞集団には走化性や細胞間接着などは集団運動にとって必須要因でない可能性が示された。



【参考文献】

- (1) C. J. Weijer., J. Cell Sci. 122, 3215 (2015); P. Friedl and D. Gilmour, Nat. Rev. Mol. Cell Biol. 10, 445, (2009); P. Rorth, Annu. Rev. Cell Dev. Biol. 25, 407 (2009).
- (2) F. Graner and J. A. Glazier. Phys. Rev. Lett. 69, 2013, (1992).