

# ゲスト成分が誘起するソフトマターメソ構造の相転移ダイナミクス

お茶の水女子大学大学院 理学専攻・教授 今井 正幸

本グループは、異種なソフトマターを混合するなど系をエキゾチックな状態において、その状態で観察される特異な現象の理解とそれを用いたメソ構造の制御を目指すものである。本年度は、脂質混合ベシクルの自発曲率と相分離の結合による形態転移、コロイドゲルのダイナミクス、構造化表面での接触角履歴のテーマで大きな進捗があり、新しいメソ構造形成原理の解明とそれを通じたメソ構造制御に繋がるものと期待される。

## 1. 脂質複合膜の非平衡ダイナミクス

### 自発曲率の異なる脂質混合系での相分離誘起孔形成

多成分ベシクルにおいては、相分離と自発曲率を結合させることにより新しいタイプの膜変形が引き起こされる事を示してきた。昨年度は、負の自発曲率をもつ脂質と零の自発曲率をもつ脂質を混合した2成分ベシクルで、相分離をさせると負の自発曲率をもつ脂質が膜間の橋掛け構造を形成して、ベシクル間の接着を誘起する事を示した。本年度は逆に、正の自発曲率をもつ脂質と零の自発曲率をもつ脂質を混合した2成分ベシクルにおいて、相分離と結合させることにより孔形成が起こる事を見いだした。この2成分ベシクルは、高温の均一相領域では均一ベシクルを形成するが、2相分離領域に温度を下げると、ベシクル上でバーストが発生し、内包物が放出されると共に数 $\mu\text{m}$ のサイズをもつ孔が形成される。これは、バーストによって出来た孔の縁が正の自発曲率をもつ脂質によりキャップされて安定化される為であり、接着の場合と同様、相分離により誘起された局所的な曲率による新しいタイプの膜変形である。図1には横軸に正の自発曲率を有する DHPC の濃度( $m$ )、縦軸にはその濃度で観察される孔あきベシクルのタイプの出現割合を示している。特に DHPC 濃度が1~10%の領域で、形成された孔の周囲が巻き込まれる形で縁を作る現象が観察された。これは2分子膜の上膜と下膜を橋渡しするキャップが形成されたことにより脂質の膜間移動が可能になったため、脂質のもつ自発曲率がベシクルの形状と結合して一方の膜に優先的に分布するようになった結果、非対称膜が形成された為であると考えられる。このように、自発曲率に差がある脂質の相分離は、接着や孔形成など生体膜の機能発現において基礎となる膜変形を誘起するだけでなく、膜の非対称性までもたらす事が明らかとなり、膜の変形現象を生体膜系への展開する上で重要な因子になる事が明らかとなった。

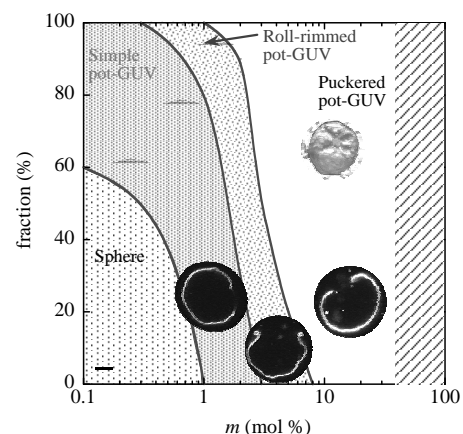


図1 孔形成ベシクルの形態相図

## 2. 両親媒性分子膜とコロイド粒子の静的及び動的結合

### コロイドのゲルの局所構造・ダイナミクス解析とゲル化の機構解明

コロイド分散系においては、粒子間ポテンシャルを制御することで、気体、液体、結晶、

ガラス、ゲルといった様々な物質の基本状態を実現することができる。そのため、相互作用する粒子系の挙動を大きな時間・空間スケールで研究できるモデル系として近年注目を集めている。本研究では、粒子間に働く引力を制御することで、コロイド粒子の液体、クラスター、ゲル相における局所的な構造と粒子レベルでのダイナミクスに注目して研究を行った。具体的には、引力の異なる系を作成し、共焦点顕微鏡により 3 次元粒子座標とその軌跡を調べた。液体、クラスター、ゲルの各状態での動径分布関数を測定し、凝集状態を確認した。そして局所構造を定量解析することで、引力および隣接する粒子数に対する構造の変化の様子や、通常の結晶構造にはない局所構造が凝集体内に存在するという結果を得た（図 2 参照）。また、粒子座標の時間変化を粒子ごとに追跡することで、粒子間の流体力学的相互作用を示唆する粒子間速度のベクトル相関を見出した。また、クラスター、ゲルの表面付近と、中心付近では粒子の運動性・運動様式が大きく異なることを見出した。これにより、メゾスコピックな構造内の動的な不均一性が明らかにされただけでなく、隣接粒子数の少ない表面部とそれが多中心部という空間的な特徴との相関が明らかになった。本研究により、ソフトマターの持つ時空階層性を研究する上での新しい方向性を示すことができたと考えている。

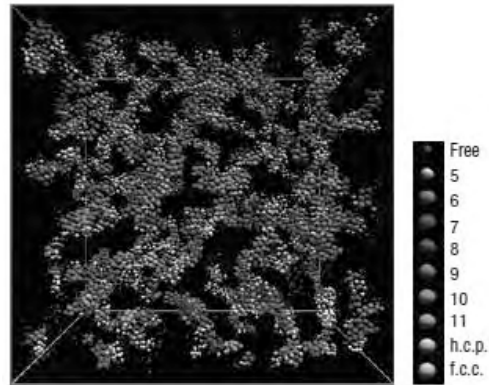


図 2 コロイド分散系の局所構造

### 3. 複合表面等での濡れの非平衡ダイナミクス

#### 構造化表面での接触角履歴

表面に凸凹などの構造がある構造化表面では、元々の表面が撥水性であると、表面構造のために撥水性が飛躍的に高まることが知られている。このような表面では、水滴と表面の間に空気が挟まったカッシー状態が実現している（図 3：左）。しかし、表面の窪みにまで水が入り込んだベンゼル状態（図 3：右）に落ち込むと撥水性が落ちる。このため、これらの状態間の転移を研究することは、応用面でも重要な課題である。昨年度までは、この状態間遷移にかかわるエネルギーランドスケープの計算を行ってきた。しかし、接触角履歴についての取り扱いは現象論的に扱いにとどまっていた。そこで、本年度は、単純化した状況に立ち戻り、接触角履歴についてより基本的な理論の構築を目指した。まず、「波板状基盤の上の 2 次元的な滴」という単純化した状況に着目し、接触線で強制的にヤングの法則が破れることに起因する接触角履歴の効果について計算をはじめた。その結果、与えられた形状に応じて接触角が決まる理論を構築することができた。



図 3 (左) カッシー状態

(右) ベンゼル状態