

F-1 擬二次元・準希薄 DNA の形態とダイナミクス

九大院理^A, 京大院理^B 高崎広太^A, 木村康之^A, 市川正敏^B

鎖状高分子である DNA は準希薄系においては周囲の DNA と絡み合う事で、希薄系とは異なった運動を示す。また拘束された空間内では、拘束の程度の違いにより三次元の非拘束状態とは異なる形態およびダイナミクスを示す。

本研究では 2 枚のガラス板に挟んだ DNA 1 分子の実時間直接観察を行うことにより、拘束された空間での準希薄系における形態とダイナミクスに関する情報を得た。実験では蛍光染色した少量の DNA を多量の無染色 DNA と混合することにより、蛍光顕微鏡を用いて 1 分子の運動を観察できるようにした。

右図に拡散係数 (図 1) と長軸長 (図 2) の濃度変化の様子をそれぞれ示す。

結果の詳細及び考察については当日報告する。

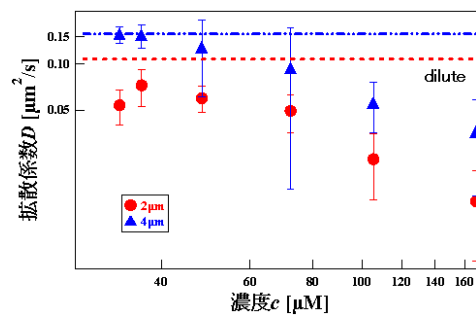


図 1 : 拡散係数の濃度変化

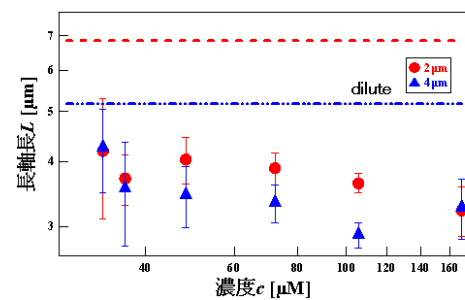


図 2 : 長軸長の濃度変化

F-2 ポリ乳酸の融解・結晶化挙動 I. 高温域での結晶化挙動

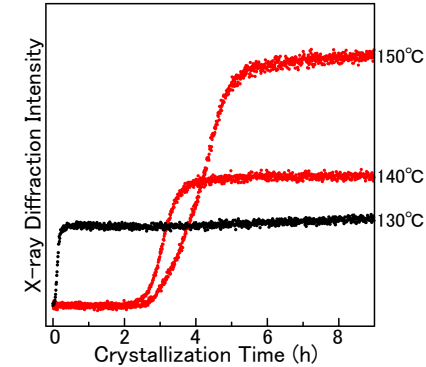
福岡大学理学部^A 塚本智史^A, 渡壁克己^A, 大道正幸^A, 椿原晋介^A, 安庭宗久^A

ポリ乳酸 (PLA) は、とうもろこしなどの再生可能なバイオマス由来の生分解性高分子である。筆者らは、PLA の結晶化挙動が結晶化温度 113°C ($=T_b$) を境に不連続に変化し、それが結晶構造の変化によることを報告した。本研究では、今まであまり研究されていない高い結晶化温度域での結晶化について検討した。

PLA 融液から所定の結晶化温度 (T_c) まで急冷した後に、 T_c に保って任意の時間等温結晶化を行い、さらに等温結晶化試料 (ICS) の昇温時の熱分析曲線から、融点の T_c 依存性を求めた。また結晶化の熱分析曲線をもとに、ピーク結晶化時間 (τ_p) の T_c 依存性を求めた。これらの曲線の T_c 依存性はよく対応していた。共に 115°C ($=T_b$), 140°C ($=T_d$) を境にして不連続に変化し、異なる3つの温度域, Region I: $T_c \leq 115^\circ\text{C}$, II: $115^\circ\text{C} \leq T_c \leq 140^\circ\text{C}$, III: $T_c \geq 140^\circ\text{C}$ に分けることができた。

種々の T_c で結晶化時間 (t_c) を変えて作製した ICS (T_c, t_c) の X 線回折図形では T_d 近傍で大

きな変化はみられず, Region II と III で結晶構造の変化は無いと考えた。また ICS (Region II) と比較して ICS (150°C : Region III) では、 $t_c > 6\text{h}$ の場合には小角側を含めて各ピークが明瞭に現れるようになった。一方、図に示すように等温結晶化時の回折強度の時間変化は、Region III では長時間の結晶化の誘導時間が必要であり、その後より大きなサイズの結晶が生成することを示している。



等温結晶化時の回折強度の時間変化

F-3 ポリ乳酸の融解・結晶化挙動 II. 低温域での結晶化挙動

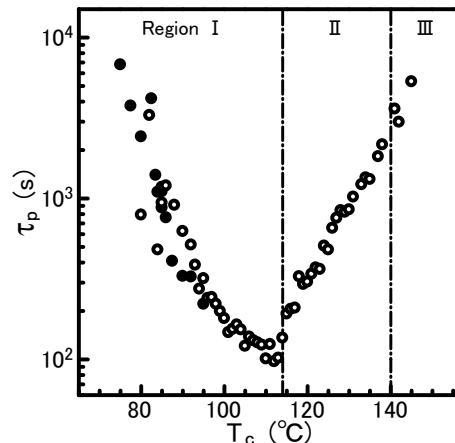
福岡大学理学部^A 小嶺英誠^A, 塚本智史^A, 江良和樹^A, 椿原晋介^A, 安庭宗久^A

ポリ乳酸 (PLA) は、結晶化温度 (T_c) 113°C を境に不連続に変化する特異な結晶化挙動を示す。しかし、その詳細についてはよく調べられていない。本研究では、 113°C より低温域に重点をおいて結晶化挙動の解析を行った。

等温結晶化では、通常 PLA を融液状態から所定の温度 (T_c) まで急冷し、その後 T_c に保って種々の測定を行なう。ただ、急冷時に最も結晶化速度の速い 110°C 付近を通過する際、結晶の核生成・結晶化が始まっている可能性があるため、通常の条件下での測定のほかに、低温域の測定では PLA を融液状態からの 0°C までほぼ瞬間的に冷却してガラス状態にし、その後 T_c まで急速に加熱し等温結晶化を行った。

図に分子量 1.06×10^5 の試料のピーク結晶化時間 (τ_p) の T_c 依存性を示す。白丸は通常の条件下でのもので、今まで報告されているものと同じく 113°C 付近で不連続に変化した。高温域では通常のポウル型ではなく直線的に変化し

た。低温域では 110°C 付近で上に凸の傾向を示した。黒丸は、一旦ガラス化した試料の τ_p で、白丸と比較してずれが生じた。さらに、 $T_c = 85^\circ\text{C}$ 付近で不連続になっていて、この温度でも結晶化挙動が変化しているのではないかと考えた。



ピーク結晶化時間の結晶化温度依存性

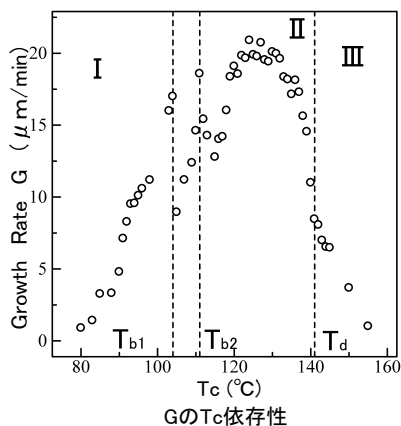
F-4 ポリ乳酸の融解・結晶化挙動 III. 球晶成長速度の解析

福岡大学理学部^A 渡壁克己^A, 塚本智史^A, 倉田昌親^A, 高橋和久^A, 椿原晋介^A, 安庭宗久^A

著者らは、ポリ乳酸 (PLA) の融液からの等温結晶化過程での球晶成長速度 (G) を偏光顕微鏡を用いて測定し、 G の結晶化温度 (T_c) 依存性が 113°C を境に不連続に変化することを示した。本研究では、PLA の結晶化挙動を広い温度域でより正確に把握するため、低分子量の高純度試料の偏光顕微鏡観察を行った。

図に示すように G の T_c 依存性は、 104°C ($=T_{b1}$)、 111°C ($=T_{b2}$)、 142°C ($=T_d$) で大きな変化がみられた。前述の 113°C は、この試料では 111°C に対応していた。Region I として示す $T_c \leq T_{b2}$ の温度域では α' 形結晶への結晶化による G を、Region II として示す $T_{b1} \leq T_c \leq T_d$ の温度域では α 形結晶への結晶化による G を示している。 T_{b1} と T_{b2} の間の領域は、2 つの結晶化挙動が同時に進行する境界領域と考えた。Region I で T_{b2} に近づくにつれて、急

激に G は大きくなった。Region III として示す $T_d \leq T_c$ では、急激に G は小さくなった。一方で、球晶サイズは大きくなった。熱分析と X 線測定の結果ともあわせて、PLA の結晶化挙動は Region I、II、III で異なっていると考えた。



F-5 ポリブチレンサクシネートの高温域における不連続な結晶化挙動

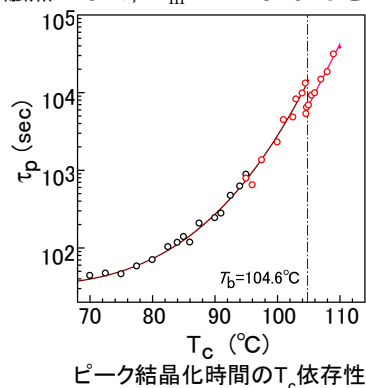
福岡大理^A 大道正幸^A, 椿原晋介^A, 安庭宗久^A

ポリブチレンサクシネート (PBSu) は、脂肪酸ポリエステルに属する生分解性高分子として実用に供されている。本研究では、PBSu についてこれまであまり行われていなかった、高温域における結晶化挙動を検討した。

PBSu を融液から所定の温度 (T_c) まで急冷して、その後 T_c の一定温度に保って結晶化を行った。等温結晶化時の熱分析曲線から、等温結晶化の開始から結晶化速度が最大になるまでの時間 (ピーク結晶化時間: τ_p) の T_c 依存性を求めた。(右図) τ_p vs T_c の曲線は、 T_c に対して指数関数的に増加するが、 $T_c = 104.6^\circ\text{C}$ の点で τ_p の値は不連続に短くなり、その後再び指数関数的に増加した。即ち、この温度 $T_c = 104.6^\circ\text{C}$ を境に結晶化挙動が不連続に変化した。この境となる温度を T_b とし、 $T_b = 104.6^\circ\text{C}$ 以上を高温域とした。

次に、高温域で作製した等温結晶化試料の昇温時の熱分析曲線は、昇温速度 $10\text{K}/\text{min}$

のときは単一ピーク、 $0.5\text{K}/\text{min}$ のときは二重ピークで、ピークも鋭くなった。これは、融解・再結晶化が起きたためであり、等温結晶化試料中の結晶の熱的安定性はまだ低いことが分かった。更に高い T_c での等温結晶化試料の融点を求め、Hoffman-Weeks Plot の手法を用いて解析を行い、より信頼性の高い平衡融点として、 $T_m^\circ = 131.9^\circ\text{C}$ を得た。



F-6 脂質ベシクルの交流電場下での変形

九大理^A, 九大院理^B 中間悠^A, 山本直樹^B, 岩下靖孝^B, 木村康之^B

生体中の細胞膜を構成する主成分はリン脂質である。リン脂質は水中で2分子膜が球殻状に閉じたベシクル構造を自発的に形成する。リン脂質ベシクルはこれまでに、細胞のモデルシステムとしてその研究が盛んに行われてきた。また、その外場に対する応答も細胞の物性を考える上で重要である。

本研究では外場として交流電場を用い、dioleoyl phosphocholine (DOPC) を用いて作成したベシクルの電場応答を観察した。その結果、図1に示すように印加する電場の周波数に依存して、ベシクルの変形の様子（電場に対して平行か垂直か）が変化することが分かった。

当日はこの変形の電場、周波数依存性について詳しく報告する。

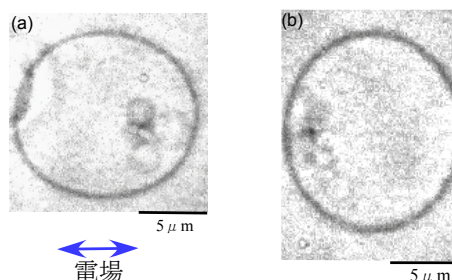


図1 交流電場下でのベシクルの変形。
(図中の矢印は電場の方向を示す)
(a) 1kHz, 40V/mm (b) 100kHz, 40V/mm

F-7 油水界面を用いた試料内包リン脂質ベシクルの調製

九大理^A 藤野雄貴^A, 向井貞篤^A, 水野大介^A, 鶴田昌之^A

地球上には、マリアナ海溝のような高圧下でも活動できる生物が存在する。そのような極限環境において、生体膜が膜構造、形状、物質保持能力を維持できるかどうかは未だ明らかでない。

本研究では、リン脂質ベシクルを生体膜のモデルとし、圧力を加えてベシクルの形状変化と膜の物質保持能力を調査する。そのことから高圧下の膜状態と生命活動との関係を推察する。

具体的な実験方法としては、油中にリン脂質膜で覆われた水滴 (W/O エマルジョン) を作り、リン脂質膜で覆われた油水界面を通過させることで、膜不透過性の蛍光色素を内包するベシクルを生成する (図1、図2)。これに高圧顕微鏡セルで圧力をかけ、その形状の変化を観察する。同時に蛍光観察したときのベシクル内の蛍光強度の変化から、膜の物質保持能力を調べる。脂質には最も一般的なDOPCを使用する。

シクルを生成する (図1、図2)。これに高圧顕微鏡セルで圧力をかけ、その形状の変化を観察する。同時に蛍光観察したときのベシクル内の蛍光強度の変化から、膜の物質保持能力を調べる。脂質には最も一般的なDOPCを使用する。

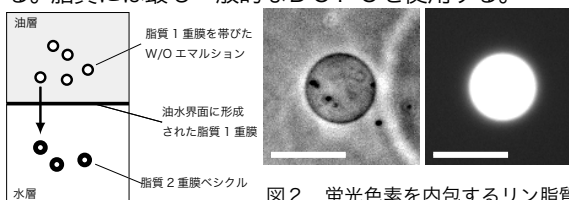


図1 油水界面を利用したベシクル作成

図2 蛍光色素を内包するリン脂質ベシクル。(左) 位相差像、(右) 蛍光像。スケールバーは 20 μm。

F-8 二次元コロイド結晶の融解

九大院理^A 沖佑馬^A, 岩下靖孝^A, 木村康之^A

ミクロンサイズのコロイド粒子分散系は、粒子濃度により、液体、結晶、ガラスなどの凝縮状態を示すことが知られている。また、これまでにコロイド粒子を用いた結晶の融解に関する研究が行われてきた。本研究では、レーザーを用いて作成した二次元コロイド結晶の融解過程を観察した。この方法の利点は、レーザー照射により、可逆的に結晶化、融解を実現可能な点にある。

得られた画像から、動径分布関数、隣接配向秩序関数、隣接配向秩序の位置相関関数などを計算し、融解過程の定量的な解析を行った。例として図に隣接粒子数の時間的変化を示す。

解析結果の詳細は当日発表する。

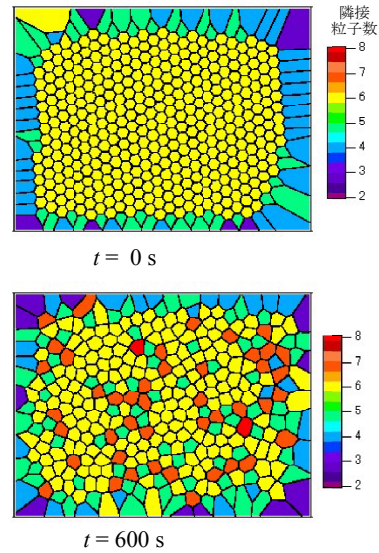


図 隣接粒子数の空間分布
(各セルはポロノイセル)

F-9 コロイド凝集体の構造形成

九大院理^A 相藤貴之^A, 沖佑馬^A, 岩下靖孝^A, 木村康之^A

コロイド粒子分散系は、原子・分子からなるミクロな系を直接観察可能なモデル系としてその凝集構造やダイナミクスに関する研究が行われてきた。特に粒子濃度の高い場合には結晶状の構造をとることが知られている。

これらの研究に対して我々は外場として集光したレーザーにより生み出される強い熱勾配を用いて希薄なコロイド溶液中で人工的に2次元結晶を作成することに成功した。本研究ではシリカ粒子を結晶化させ、その生成過程の詳細を定量的に解析した結果について報告する。

図には結晶形成過程の様子を例として示す。

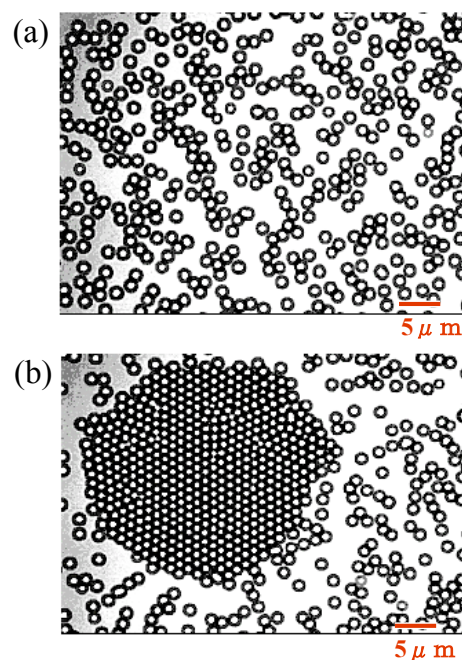
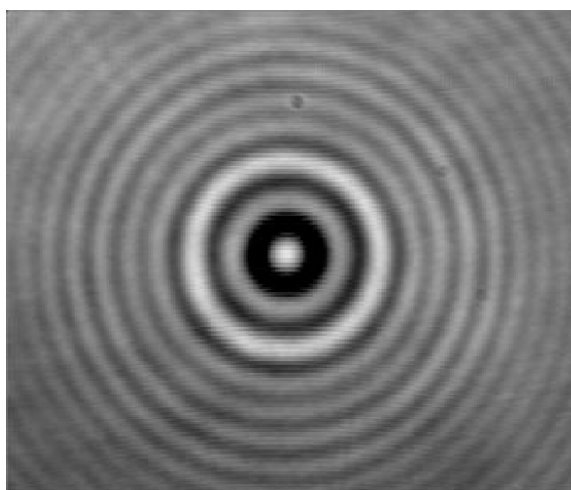


図. コロイド粒子の凝集過程
(a) 0s, (b) 600s

F-10 三次元粒子位置追跡法による細胞骨格の力学的異方性の検出

九大院理^A 坂本隼人^A, 水野大介^A, 木村康之^A

生物細胞の形状や力学的な安定性は、アクチンに代表される細胞骨格によって維持されている。外部からの力学刺激に対して細胞骨格は生理学的に応答するが、そのメカニズムを理解するには、まず応力の存在下における細胞骨格の微視的な力学応答を調べる必要がある。本研究では平行平板セル中にアクチンゲルを封入し、その上面を変位させることで試料にずり応力を加えつつ、内部に分散させたコロイド粒子の運動を観察した。サンプルにレーザー光を照射して得られる干渉パターンを解析することで、コロイド粒子の三次元位置情報を得た (ホログラフィックマイクロコピー)。印加したずり応力の有無に依存して粒子の運動が変化すれば、媒質の力学物性のずり誘起異方性を解析できると期待される。



図：得られたホログラム

F-11 ホログラフィック光ピンセットを用いたソフトマターの物性測定 (1)

九大院理^A 山本直樹^A, 岩下靖孝^A, 木村康之^A

光ピンセットとは、集光したレーザーを用いてミクロンサイズの粒子を捕捉できる技術である。非破壊・非接触での精密な物性測定が可能であるという特徴から、ソフトマターの局所物性測定などの研究に用いられてきた。しかし、従来の光ピンセットでは多粒子の同時捕捉や任意のポテンシャルを形成することは困難である。そこで今回我々は、ホログラフィック光ピンセットの開発を行った。ホログラフィック光ピンセットは、空間光変調器により作り出した二次元位相分布を光フーリエ変換することによって、任意の強度分布を顕微鏡の焦点面に作り出し、微小な物体の操作を行う (図1)。例えば、多数の粒子を同時にトラップし複雑な構造を形成することができる (図2)。

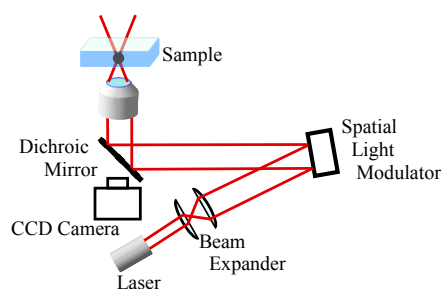


図1：ホログラフィック光ピンセットの光学系

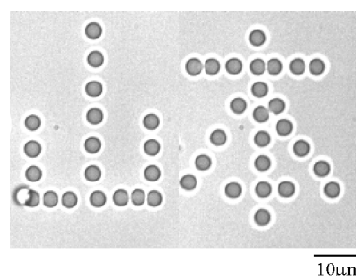


図2：ホログラフィック光ピンセットによりパターン上にトラップしたシリカ粒子

F-12 ホログラフィック光ピンセットを用いたソフトマターの物性測定 (2)

九大理^A, 九大院理^B 佐々百合子^A, 山本直樹^B, 岩下靖孝^B, 木村康之^B

ホログラフィック光ピンセットは、一本のレーザービームを様々な形状に集光させ、その上に粒子を捕捉し、操作することを可能にする。その中でも本研究では形状-位相ホログラフィーと呼ばれる手法を用い、レーザー光の波面の位相と強度の両者を空間的に変調することを試みた。例えば、円環状のトラップポテンシャルを作成することで、図1に示すように円環上に粒子をトラップすることができる。さらに、螺旋度 l で与えられる位相変化を加えることで、粒子に角運動量を与えることができる。図2に角運動量を与えたときの偏角の時間依存性と、粒子の角速度の螺旋度依存性を示す。

結果の詳細は当日発表する。

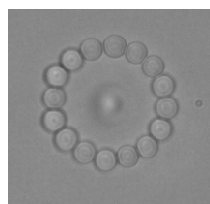


図1：円環上にトラップされた粒子

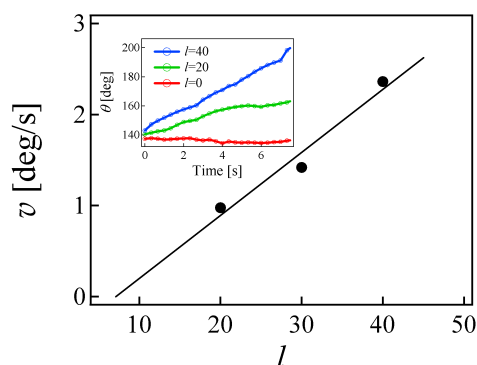


図2：角速度の l 依存性

F-13 vimentin ネットワークのマイクロレオロジー

九大院理^A 木下英^A, 水野大介^A, 木村康之^A

vimentin ネットワークのマイクロレオロジー
九大理 木下英、池辺詠美、木村康之、水野大介

Vimentin は、中間径フィラメントと呼ばれる細胞骨格を形成する蛋白質の一つであり、主に間葉系細胞中に大量に存在しているが、その力学的性質や生理的役割については不明な部分が多い。そこで我々は、マイクロレオロジーと呼ばれる手法 (コロイド粒子の熱揺らぎから周囲の媒質の粘弾性を求める) を利用して、vimentin ネットワークの力学的性質を広帯域計測 (10-1 - 10⁵ Hz) した。下図は、光トラップにより媒質中のコロイド粒子に力を加え (92pN)、vimentin ネットワークに局所的な応力を印加しつつ、14 μ m 離れた別のコロイド粒子の応答性 (熱揺らぎ) を「レーザーインターフェロメトリー法」により広帯域計測した結果である。vimentin ネットワークは印加された応力に強く依存して非線形かつ異方的な力学応答を示すことが分かった。

F-14 非平衡 (アクチン・ミオシン) ゲルのマイクロレオロジー

九大院理^A, 九大高等研究機構 (SSP)^B 豊田聖啓^A, 山本直樹^A, 木村康之^A, 水野大介^B

細胞内部では、細胞骨格である繊維状タンパク質とモータータンパク質との相互作用により非平衡状態が出現し、細胞運動や細胞内輸送などの生命活動に重要な役割をはたしている。本研究ではアクチン架橋ネットワークとミオシン凝集体からなる簡単な *in vitro* モデル (非平衡ゲル) を作製し、細胞内部の力学的非平衡状態を再現させた。このゲル中にコロイド粒子を分散させて、その軌跡を追跡し (ビデオマイクロレオロジー)、ラグタイム t 秒でのコロイド粒子の変位の分布 (van Hove 自己相関関数) を求めた。ゲル内部における非平衡揺らぎを反映して、その分布はガウス関数と指数関数の和であてはめることができた (図)。当日はフィッティングパラメータの時間依存性から、非平衡を生み出すミク

ロな力生成の動的および統計的性質を議論する。

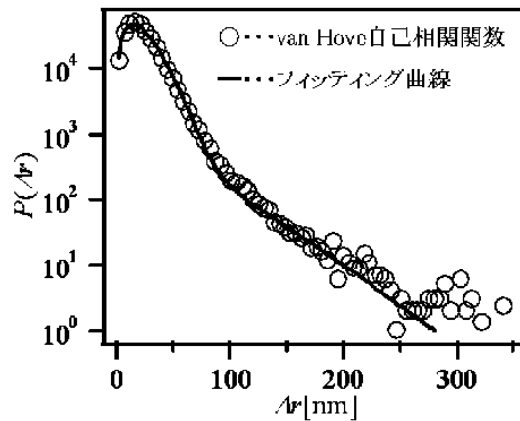
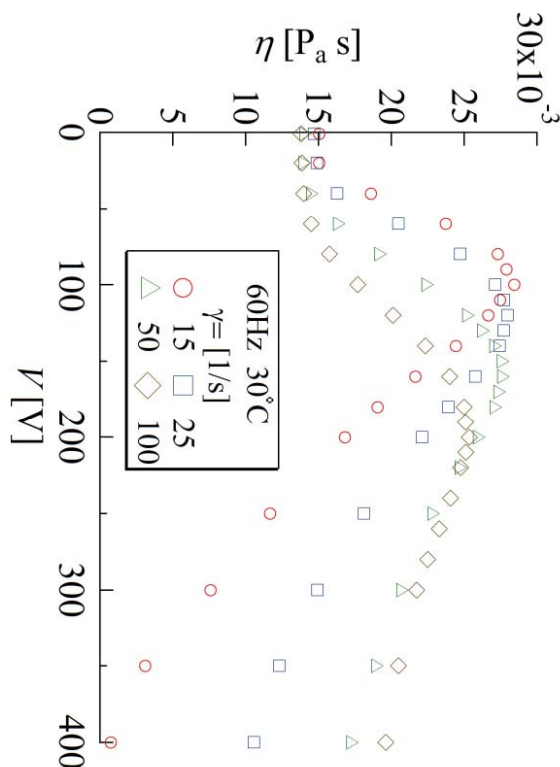


図) $\Delta t = 0.1\text{s}$ の時の van Hove 自己相関関数 (コロイド粒径 $1\mu\text{m}$)

F-15 ネマチック液晶の電気対流下における粘度特性

大分大学工^A, 北海道大学院工^B 池永暁弘^A, 小野澤晃^A, 長屋智之^A, 折原宏^B

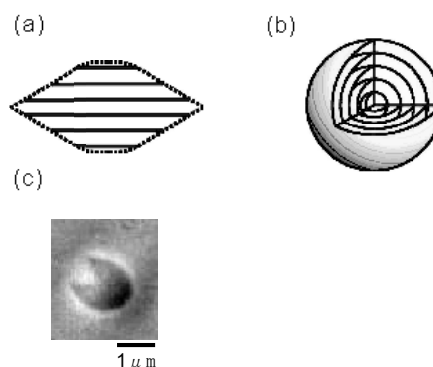
[はじめに] 負の誘電異方性をもつネマチック液晶に不純物イオンをドーピングし電場を印加するとある閾値で対流が現れ、その後はいくつかのパターン転移を経て乱流構造に至る。本研究では、methoxybenzylidene-butylaniline (MBBA) を用いて乱流が及ぼすレオロジー特性を実験で調べる。[実験] MBBA に 0.01 % の臭化テトラ-*n*-ブチルアンモニウムを添加した。平行平板型板回転粘度計を用いて電場下での粘性測定を行った。[結果と考察] 電圧を増加させていくと、粘度はいったん増加し、その後乱流が激しくなると粘度は減少することがわかった。また高周波電圧を印加することで乱流を消すと粘度の増加は見られなくなった。ゆえに乱流の乱れ具合が粘度に関係していることが推察される。



F-16 リオトロピック液晶のスポンジ↓ラメラ相転移の研究

九大理^A, 九大院理^B 青木辰徳^A, 岩下靖孝^B, 木村康之^B

リオトロピック液晶 (2分子膜系液晶、 $C_{12}E_5/H_2O$ など) のスポンジ相からラメラ相が核形成・成長する場合、始めに平らなラメラ構造を持つ円盤状の核 (図 (a)) が形成され、それが成長と共に自発的に変形し、最終的にオニオン構造 (多重膜ベシクル、図 (b)) になることが知られている。過去の研究から、この自発的な変形 (ラメラ相の構造の変化) は界面エネルギーと曲げ弾性エネルギーの競合により生じる事が分かっている。そこで今回は hexanol などの cosurfactant を加えることで膜の物性 (曲げ弾性など) を変え、核形成・成長過程に与える影響を調べた。



図(a)円盤状ラメラ核の模式図。(b) オニオン核の膜構造の模式図。(c)円盤状ラメラ核がオニオン構造へ成長していく途中の様子。 $C_{16}H_{34}O_4$ 4.9wt%。位相差

F-18 集光レーザー場における液晶ドロップレットの配向ダイナミクス

福岡大理^A 吉永あつき^A, 宮川賢治^A

レーザー光によって液晶の配向状態の制御が可能であることは良く知られている。

本研究では、数十マイクロンの液晶ドロップレット中の分子の配向が、集光レーザー場でどのような振る舞いを示すかを調べた。界面活性剤を添加した水溶液中で作成したドロップレットは、直交ニコル下で中心に欠陥をもつ十字状のテクスチャーを示した。これは $S=1$ のディスクリネーションによるものである。十字線によって分けられる4つの領域ごとに、円偏光レーザーを集光したところ、ターゲットパターンの発生を観測した。図1はターゲットパターンの時間変化を示している。時間の経過とともに、同心円のリングが中心から湧き出していることが分かる。隣り合うリング上の分子の配向角は $\pi/2$ ずれており、そのずれ方はレーザーの偏光特性に依

存している。詳細については、講演で報告する。

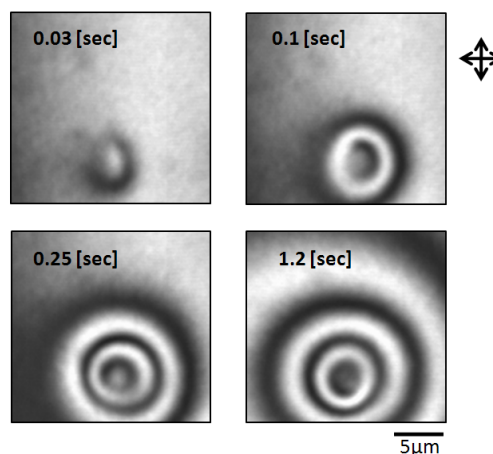


図1. 右円偏光レーザーによるターゲットパターン

F-19 液晶中の粒子間相互作用の起源

九大院理^A 近藤昇^A, 木下隆裕^A, 岩下靖孝^A, 木村康之^A

ネマチック液晶中のコロイド粒子間には液晶の弾性ひずみを介した長距離かつ異方的な力が働く。本研究では、dipole型の粒子-欠陥対間に働く力を光ピンセットを用いて直接計測した。

Lubenskyらは静電アナロジーを用いて、平行に配置した同径のdipole型粒子間には $F = -A/R^4$ と表わされる引力が働くことを予測した。ここで A は液晶の弾性定数に比例した定数、 R は粒子間距離である。実際、遠距離では R^{-4} に比例した引力が働くことがわかった(図1)。また、温度上昇に伴い、粒子間力 F が減少することも明らかとなった(図2)。

当日は、実際に測定した弾性定数と粒子間力の温度変化の比較もあわせて報告する。

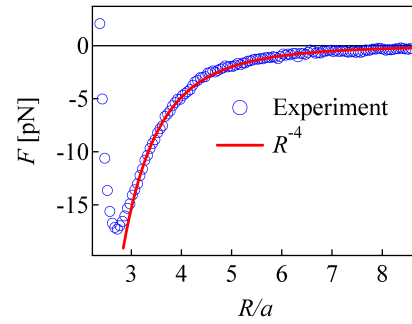


図1 粒子間力 F の距離 R 依存性 (a :粒子半径)

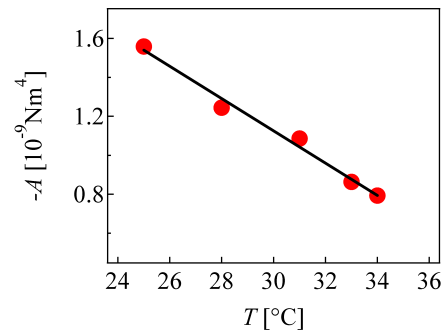


図2 比例定数 A の温度変化

F-20 液晶-コロイド分散系における特異的相互作用

九大院理^A, 京大院理^B, 産総研^C 木下隆裕^A, 市川正敏^B, 福田順一^C, 木村康之^A

液晶中に数ミクロンサイズの粒子を分散させると、粒子自身が欠陥となり、液晶の配向秩序を乱す。このため、粒子近傍に新たな欠陥が誘起される。この粒子間には液晶の配向ひずみを介した長距離かつ異方的な力が働くことが知られている。本研究では、(1)サイズが異なる粒子間、及び(2)欠陥の異なる粒子間に働く力を光ピンセットを用いて直接測定した。(1)の結果に関して、液晶の弾性理論を用いたシミュレーションを行ったところ、実験と良い一致を示した。(図1)また、(2)の場合、粒子間力が双極子-四重極子相互作用類似の距離依存性を示すことがわかった。(図2)

詳細は当日発表する。

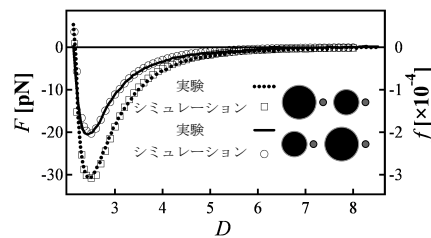


図1. 異なるサイズの粒子の間に働く力の距離依存性

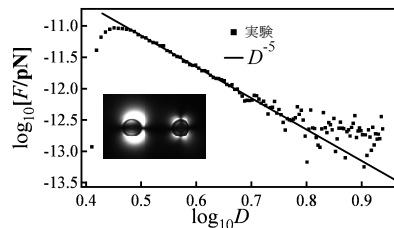


図2. 異種の欠陥を伴った粒子の間に働く力の距離依存性

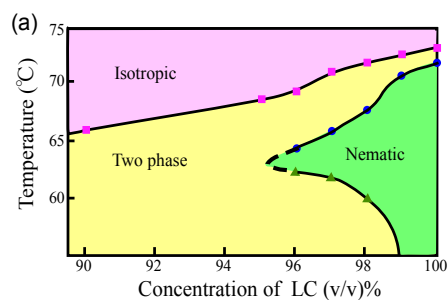
F-21 高分子-液晶混合系の相分離ダイナミクス

九大理^A, 九大院理^B 國崎泰史^A, 近藤昇^B, 岩下靖孝^B, 木村康之^B

近年、ネマチック液晶など構造液体中での粒子の特異な長距離相互作用を用いたマイクロサイズの構造体形成に関する研究が盛んに行われている。これまでに1次鎖や2次結晶構造などの単純な周期構造形成が報告されている。

本研究ではネマチック液晶と高分子の混合系を用い、一様なネマチック相から共存相への急冷による相分離を利用した構造形成を行った(図a)。例えば室温付近まで急冷した場合には、図bのように液滴が自己組織的に液晶の配向方向と平行な鎖状構造を作ることがわかった。

構造形成の詳細は当日報告する。



図a 液晶/シリコンオイル混合系の相図



図b 液晶中の鎖状構造