

H-1 アルギン酸水溶液のゲル化に伴うパターン形成

佐賀大院工^A, 広大院理^B, 九大院理^C 成田貴行^A, 大石祐司^A, 大西勇^B, 鶴田昌之^C

多糖類水溶液の一種であるアルギン酸の水溶液を毛細管内に封入した状態でカルシウムイオンを拡散させると、巨視的なパターンを持つゲルを作成できることを見いだした。アルギン酸は昆布の主成分で β -D-マンヌロン酸と α -L-グルロン酸の 2 種のブロックが (1-4)-結合した直線状の共重合体で、その水溶液はカルシウムイオン存在下でゲルを形成する。ゲルに現れたパターンを分類し、毛細管の管径のサイズ及びカルシウムイオン濃度がパターンの形態及び周期性に与える影響を検討した。この結果をもとにパターンの形成機構について考察する。ゲルは任意調製したアルギン酸ナトリウム水溶液を毛細管内に充填し、毛細管の一端を封閉した後、任意濃度の硝酸カルシウム水溶液に漬け込むことで得た。ゲルに現れた周期構造は顕微鏡像から得て解析した。ゲルに現れた形態は大きく分けて 5 つの形状に分類できた。棒状ゲルの内部に空洞が現れるゲルは比較的毛細管径の小さい領域みられ、カルシウムイオン濃度の高い方からチューブ、セルチューブ、セルの順に形態が変化した。毛細管径の増加に伴い順に、螺旋、筒型のゲルが現れた。ゲルに現れたパターンの繰り返し、波長 λ と毛細管径 $2r_0$ の間には比例関係が見出された。一方、カルシウム濃度 ϕ とは $\lambda \propto \phi^{-0.5}$ の関係が見出された。不溶な 2 成分からなる液体を毛細管内に封緘すると、液体間の界面張力と管への濡れに起因したレイリー不安定性が現れ、液体同士が巨視的な周期構造を形成する。この周期構造の波長 λ_{re} は毛細管半径 r に比例する。この比例関係と今回形成されたゲルパターンの波長 - 毛細管径の関係が一致した。また、一方、カルシウム濃度 - ゲル波長との関係には、スピノダル分解に見られる相関長 - クエンチ深さの関係との関与が見出された。

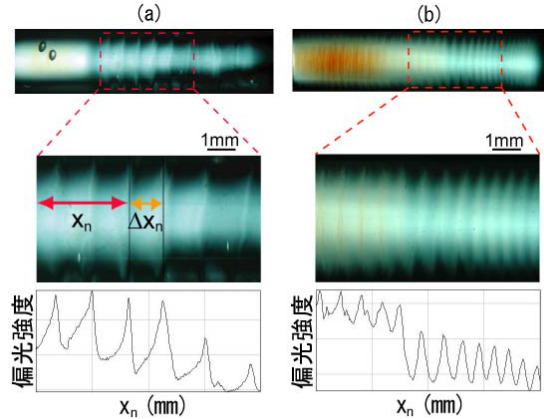
H-2

κ -carrageenan ゲルのリーゼガング現象に及ぼす電場の効果

九大院理^A, 佐賀大理工^B, 広大院理^C 岡村香奈^A, 柳澤実穂^A, 向井貞篤^A, 成田貴行^B, 大西勇^C, 鵜田昌之^A

κ -カラギーナンは海藻由来の多糖類であり、高濃度の1価金属イオンの添加により液晶ゲルを形成することが知られている。近年、 κ -カラギーナン溶液とカリウムイオンの拡散・反応系において、ゲル中に液晶相が周期的に形成される現象が見いだされた。得られた周期的パターンの解析により、 κ -カラギーナンのパターン形成はリーゼガング現象の一種に分類されることが明らかになった。この系では、陽イオンが κ -カラギーナン溶液中に自由拡散することによりパターン形成が形成される。しかしながら、低分子イオンの拡散には電場の有無が大きな影響を与えることが容易に想像できる。そこで我々は、電場を印加することによりカリウムイオンを κ -カラギーナン溶液中に強

制移送し、パターン形成に及ぼす電場の効果を明らかにする目的で研究を行ったので報告する。



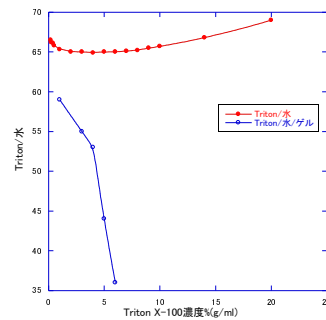
κ -カラギーナン水溶液 (0.5wt%) 中に図の左側から塩化カリウム水溶液 (1.0M) を拡散させて得られた試料の偏光顕微鏡下画像。(a) 0.4V/cm (b) 2.0V/cmの電場を印加した。

H-3

ゲル中における界面活性剤の相分離

九州大学大学院理学府物理学専攻複雑流体研^A, (株)ニプロパッチ^B 横井龍一^A, 柳澤実穂^A, 向井貞篤^A, 後藤元彰^B, 鵜田昌之^A

界面活性剤は様々な分野で利用されている。しかしながら、その正確な相挙動は十分に理解されているとはいえない。我々は汎用の界面活性剤である Triton X-100/水系の相挙動についての研究を行ったので報告する。Triton/水系の相図を以下の方法で決定した。様々な濃度の水溶液を調製した。これらの溶液を恒温槽に静置し、温度を 20°C/min で上昇させた。この過程で水溶液が白濁する温度を目視により決定した。この温度を曇点とし、曇点の濃度依存性を求めた。結果を図に示した。Triton X-100 は典型的な下部臨界相溶温度 (LCST) を有する系であることがわかる。次にこの系をポリアクリルアミドゲル中に導入し、その相図を求めた。ゲルの濃度は 420mM に固定した。得られた結果を図に示してある。相境界が低温側にシフトし、また相境界の形も大きく変化することがわかる。

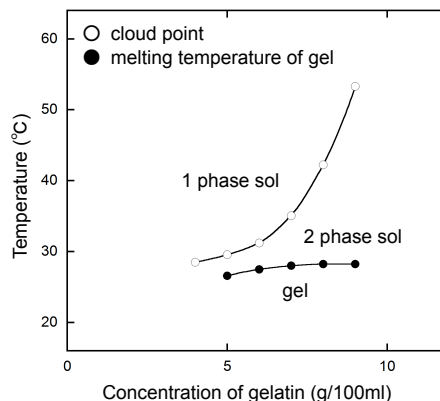


H-4 ゼラチン-PEG-水三成分系の相挙動

九大院理^A 山下祐太郎^A, 柳澤実穂^A, 向井貞篤^A, 安中雅彦^A, 鵜田昌之^A

ゼラチンはコラーゲンを変性して得られるポリペプチドを主成分とする物質であり、非常に高い親水性を示す。ゼラチン水溶液は、高温では均一な溶液状態であるが、温度を下げるとゲルを形成する。しかしながら、僅かな量の親水性高分子 poly(ethylene glycol) (PEG) を添加することにより溶液の性質が大きく変化する。僅かな量の PEG を添加したゼラチン-PEG-水三成分系溶液は、高温では均一な溶液状態にあるが、温度を下げると曇点が表れ、ゼラチンリッチ相と PEG リッチ相に二相分離する。例として、図に PEG 水溶液 (Mw:20,000、濃度 1.7%) を溶媒とした、ゼラチン溶液の相図を示した。本研究では、濃度や PEG の分子量などを変え、様々な組成の溶液について測定を行った。その結

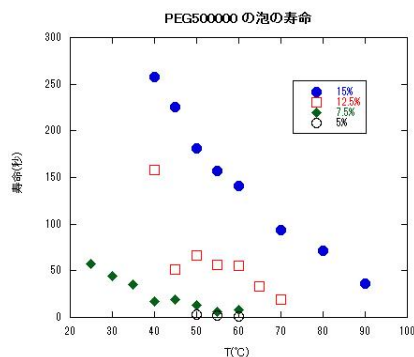
果、相境界は添加する PEG の分子量と濃度に強く依存することが明らかになったので報告する。



H-5 気液界面上における単一泡の寿命と粘弾性の関係

九大院理^A 前田智^A, 柳澤実穂^A, 向井貞篤^A, 安中雅彦^A, 鵜田昌之^A

泡は様々な分野で利用されている。洗浄、断熱材、消火剤などは典型的な例である。これらの中には、泡の寿命の長短を制御することで、より効果を高めることができるものがある。我々は、単一泡の寿命を決定する物理的な因子を明らかにする目的で泡の寿命を測定したので報告する。本研究では、特に液体の粘弾性が寿命にどのような影響を与えるかについて着目し、分子量 50 万のポリエチレングリコール水溶液で泡を作成した。我々は単一泡の寿命の高分子濃度依存性と温度依存性を測定した。単一泡の寿命の温度依存性を図に示している。講演では溶液の粘弾性測定の結果と合わせて報告する。



H-6 ゲル中の鎖状高分子の振動電場による伸張運動

九州大学大学院理学府物理学専攻統計物理学^A 雪山裕貴^A, 坂上貴洋^A, 中西秀^A

分子量の大きな DNA や染色体分子を伸長させる技術は効率の高い遺伝子解析法において極めて重要である。これまで、レーザートラップ法を用いた力学的伸長などいくつかの方法が提案されてきたが、最近、別の手段として、ゲルや高分子溶液中の DNA に振動電場をかけて伸長させる方法が開発された¹。この手法は DNA に触れずに伸長させることができるという点においても優れている。本研究では、振動電場をかけた場合の鎖状高分子の伸張運動について 2 次元の MD シミュレーションを行い、振動電場の周波数や振幅、ゲルの密度や高分子の長さ、高分子の伸長の間にどのような関係があるかを調べる。高分子をランジュバン方程式に従う 1 次元的につ

ながった粒子系としてモデル化する。高分子の伸長の程度を表す量として、主慣性モーメント I_1, I_2 を用いた量 $I = \left(\frac{I_1 - I_2}{I_1 + I_2}\right)^2$ を計算した。

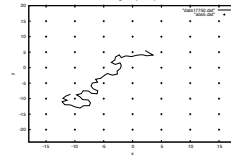


図1 $I \sim 1$ のときのスナップショットの一例

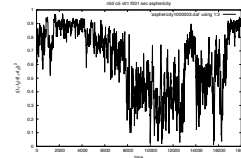


図2 $E = 10^{-1} \frac{25qE}{\text{cm}}$, $f = 10^{-2} \frac{25qE}{\text{cm}}$ の時の I の時間変化

¹N.Kaji, M.Ueda and Y.Baba, Biophys. J., 82, (2002) 335-344

H-7 液晶中の異方性粒子の相互作用

九大院理^A 榎海文吾^A, 岩下靖孝^A, 木村康之^A

ネマチック液晶中にコロイド粒子を分散すると、粒子周辺には表面アンカリングに起因した液晶配向の歪みが生じる。このとき、系は粒子近傍に対となる新たな点欠陥が生じることで安定化し、粒子-欠陥対を形成する。これを dipole 型粒子-欠陥対と呼ぶ。このような粒子間には、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 粒子とクラスター (図1) との間に働く力 F について測定を行った。また、得られた結果と、2 粒子間力の重ね合わせを用いて計算した結果との比較を図2に示す。

球状粒子と棒状粒子との相互作用については当日に議論を行う。

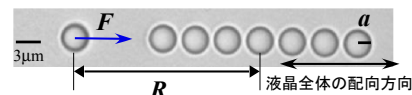


図1. 粒子とクラスター粒子の顕微鏡像

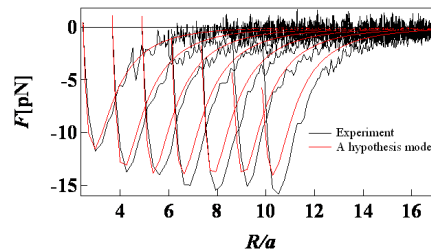


図2. 1粒子-クラスター間の力

H-8 液晶コロイドの異方的相互作用

九大理^A, 九大院理^B 浦本匠^A, 桴海文吾^B, 岩下靖孝^B, 木村康之^B

ネマチック液晶中のコロイド粒子は液晶の配向秩序を乱し、さらに粒子近傍に新たな欠陥を誘発する。そのため、粒子間には液晶の弾性ひずみを介した長距離的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 らによる理論予測によれば、粒子間力 F は $F=(1-3\cos 2\theta)/R^4$ で与えられる。ここで、 R は粒子間距離、 θ は粒子間を結ぶ直線と液晶の配向とのなす角である (図 1)。当日は、粒子間力 F の角度依存性 θ の詳細を報告する (図 2)。

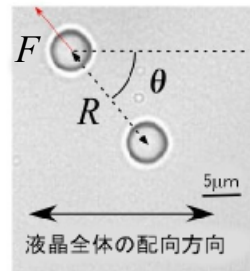


図1 粒子間力測定の様子

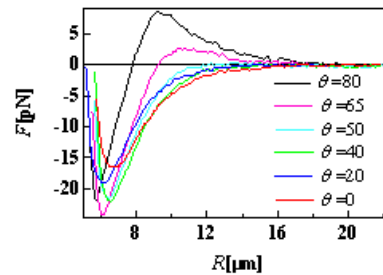


図2 粒子間力 F の角度依存性 θ

H-9 液晶コロイドの構造形成

九大理^A, 九大院理^B 井崎邦義^A, 桴海文吾^B, 岩下靖孝^B, 木村康之^B

液晶中に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、粒子間には液晶の配向ひずみを介した長距離的かつ異方的な力が働く。近年、この力を用いたコロイド粒子の構造形成に関する研究が盛んに行われている。

形成される構造体の形態は粒子の伴う欠陥の形に依存するが、本研究では点欠陥をもつ粒子 (図 1)、及びひも状の欠陥をもつ粒子 (図 2) を用いて 1 次元鎖や 2 次元結晶を作成した。粒子操作および欠陥の制御には光ピンセットを用いた。なお、ひも状の欠陥をもつ粒子は、配向方向をセル厚方向に 90 度ねじった場合にのみ生じる。詳細は当日発表する。

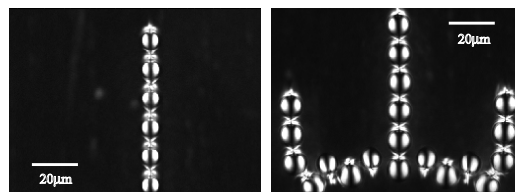


図 1. 点欠陥を伴う粒子で構成した構造体 (クロスニコル)

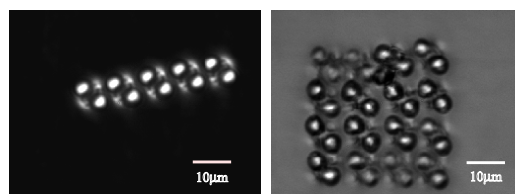


図 2. ひも状欠陥を伴う粒子で構成した構造体 (クロスニコル)

H-10 コレステリック液晶の電気対流 I – 相図 –

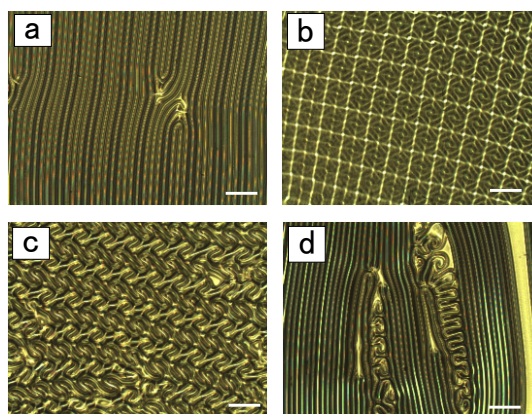
九大理^A, 九大院理^B 勝田康平^A, 石橋優作^B, 岩下靖孝^B, 木村康之^B

負の誘電異方性を持つネマチック液晶に電圧を印加すると、ある閾値電圧で対流が発生し、さまざまなパターンが観測される。また、光学活性を有するネマチック液晶 (コレステリック液晶) では、通常のネマチック液晶で見られないパターンが報告されている。

今回、光学活性体コレステリルノナノエート (CN) をネマチック液晶 MBBA に添加した試料において現れるパターンを観察した。右図は観測されたパターンの一例である。添加する CN の濃度及び印加電圧を変化させ、パターン相図を作成した。

一方、同一電圧下でも、らせん構造のピッチとセル厚の大小によって現れるパターンが変化することがわかった。

詳細は当日発表する。



スケールバー = 100 μ m

図 観測された電気対流パターンの例。

周波数 50Hz セル厚 50 μ m
 (a)CN濃度 0.3wt%、印加電圧 7.0V
 (b)CN濃度 0.4wt%、印加電圧 10.3V
 (c)CN濃度 0.1wt%、印加電圧 12.8V
 (d)CN濃度 0.2wt%、印加電圧 14.6V

H-11 コレステリック液晶の電気対流 II – 構造 –

九大院理^A, 九大理^B 石橋優作^A, 勝田康平^B, 岩下靖孝^A, 木村康之^A

ネマチック液晶にコレステリック液晶を少量添加すると、ピッチが長いコレステリック液晶となる。これに電圧を印加すると電気流体力学的不安定性によって対流が発生する。この際観察されるパターンはネマチック液晶の場合と異なることが知られている。今回、コレステリック液晶特有の電気対流パターンを蛍光共焦点偏光顕微鏡 (FCPM) 法を用いて観察し、3 次元的な director 分布の解明を試みた。詳細については当日報告する。

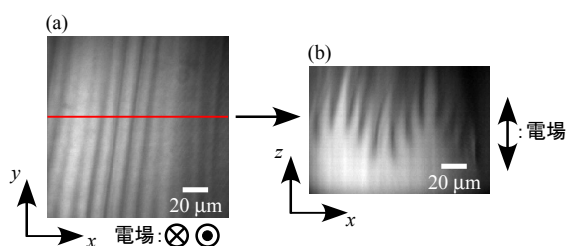


図:コレステリック液晶における電気対流パターンの蛍光共焦点偏光顕微鏡画像。
 (a)xy2次元画像、(b)xz断面画像。

H-12 リオトロピック液晶におけるラメラ相の核形成・成長

九大院理^A 青木辰徳^A, 岩下靖孝^A, 木村康之^A

液晶は固体（3次元結晶）と液体の中間的な性質を持ち、それを反映した興味深い成長機構を有している。その中でも我々は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、等方相からラメラ相が核形成・成長する際の成長機構に着目した。核が平衡形を保って成長する場合（安定成長）、始めに平らな層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、最終的に球核状の層構造をもつオニオン構造（図 (b)）になり、形状を保ったまま様に成長することが知られている。一方で、我々は、実験条件によっては不安定成長が起こることも確認した。その場合、オニオン構造に成長したあと、異方的に細長く伸びていく（図 (c)）。このように様々な現象が起こるが、そのメカニズムや条件などについては未解明な点が多い。そこで、膜の体積分率や曲げ弾性などの様々なパラメータによって、核形成・成長がどのように変化するか調べた。

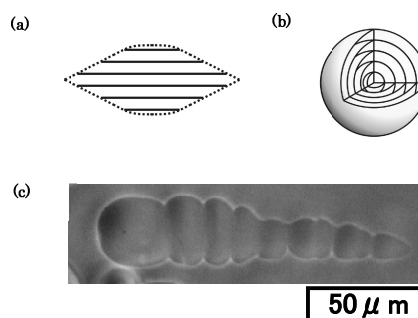


図.1. (a)円盤状ラメラ核の膜構造の模式図(b)オニオン核の膜構造の模式図(c)ラメラの成長不安定の様子。位相差顕微鏡観察。 $C_{12}E_5$ は5.15vol%、hexanolは0.85vol%。

H-13 多成分ベシクルにおける側鎖高分子結合型脂質によるマイクロ相分離現象

九大院理^A, 東大生産研^B, 京大院理^C 柳澤実穂^A, 下川直史^B, 市川正敏^C, 吉川研一^C

飽和リン脂質（DPPC）、不飽和リン脂質（DOPC）、Cholesterol（Chol）からなる3成分ベシクルは、転移点以下でDPPCに富む液体秩序相とDOPCに富む液体無秩序相に相分離し、ドメインを形成する。Chol添加系では、界面長が最小となる大きな1つの円形ドメイン（モノドメイン）をつくるようにマクロ相分離する。本研究では、糖鎖脂質モデルとして、親水性高分子であるPEG（polyethylene-glycol）を結合させたChol（PEG-Chol）をCholの代わりに混合し、PEGが相分離に及ぼす影響を調べた。その結果、PEG-Cholの量がある閾値を越えると、直径が1マイクロン程度の小さなドメインが多数分散して現れる、マイクロ相分離へと転移することを見出した。このマイクロからマイクロ相分離への転移現象を、PEG間の斥力に着目することで理論的にも説明した。

H-14 ヤマス粒子の作成

九大理^A, 九大院理^B 玉井達哉^A, 野口朋寛^B, 岩下靖孝^B, 木村康之^B

ヤマス粒子とは、その表面が異なる物性を持った二つの部分から成る異方性粒子の総称である。ヤマス粒子はその表面の異方性によって、等方的な粒子とは違った性質を示す。我々は親水面と疎水面を持つ両親媒性ヤマス粒子を用い、コロイド界面活性剤として新規なメゾ構造形成を実現することを目的としている。そこでまずヤマス粒子の作成に取り組んだ。

ヤマス粒子作成のために、まずシリカを分散させたワックスと水溶液を混合してピッカリングエマルジョン (PE) を作成する。そして PE 表面のシリカ粒子の露出面をシランで修飾する。次にワックスを溶かし、マスクされていた面を別のシリカで修飾する。図2は片面を蛍光標識シランで修飾したシリカ粒子である。これを見ると、シランで修飾された明るい面と、未修飾の暗い面が確認出来る。用いるシラン剤の種類を変えたり、修飾時の溶媒を変えること等によって、様々な表面物性を持つヤマス粒子を作成した。

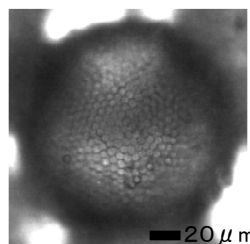


図1 作成したピッカリングエマルジョンワックス表面にシリカ粒子が張り付いていることが確認できる。

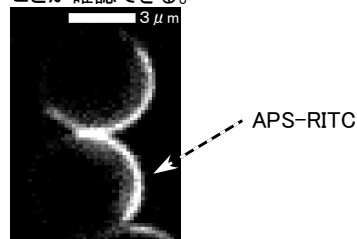


図2 蛍光標識シラン(APS-RITC)で片面を修飾したシリカ粒子

H-16 熱泳動効果によるコロイドの構造形成

九大理^A, 九大院理^B 田中小百合^A, 柴田就平^B, 佐々百合子^B, 相藤貴之^B, 岩下靖孝^B, 木村康之^B

コロイド分散系は、個々の粒子を直接観察可能であるために、原子系のモデルとして、結晶化過程や融解に関する研究が行われてきた。

本研究では、強く集光したレーザーにより発生させた局所温度勾配を用いて、二次元コロイド凝集体を作成し、レーザーを止めた後に融解していく過程を光学顕微鏡で観察した。

得られた画像の二次元フーリエ変換像を図1に示す。初期に見られた六回対称性と並進秩序が時間と共に消失することがわかる。また、ポロノイ分割を行い(図2)、各セルに対して局所的な六回対称性秩序を求めた。

動的融解過程の詳細は、当日発表する。

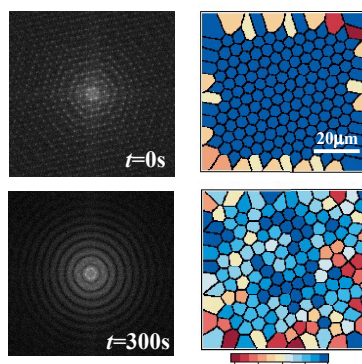


図1 フーリエ変換像

図2 ポロノイ図

H-17 熱泳動効果によるコロイド結晶の生成過程

九大院理^A, 九大理^B 相藤貴之^A, 田中小百合^B, 岩下靖孝^A, 木村康之^A

コロイド分散系は、直接観察が不可能な原子・分子からなるミクロな系の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。

本研究では、熱泳動効果を利用して水中のシリカ粒子を温度の高い領域に凝集させ、任意に単独の結晶を作成する。この時、温度勾配によって粒子に働く力が、結晶の生成過程にどのような影響を及ぼすかを解明すべく研究を行った。

具体的には、金属薄膜を蒸着させたガラス面に、集光したレーザーを吸収させることによって、希薄なコロイド溶液中に強い熱勾配を生み出し、結晶を作成した。その生成過程を観察し、粒子の速度からポテンシャルを導出した。また粒子に働く熱泳動力を温度勾配から求め、前述の結果との比較を行った。

詳細については当日発表する。

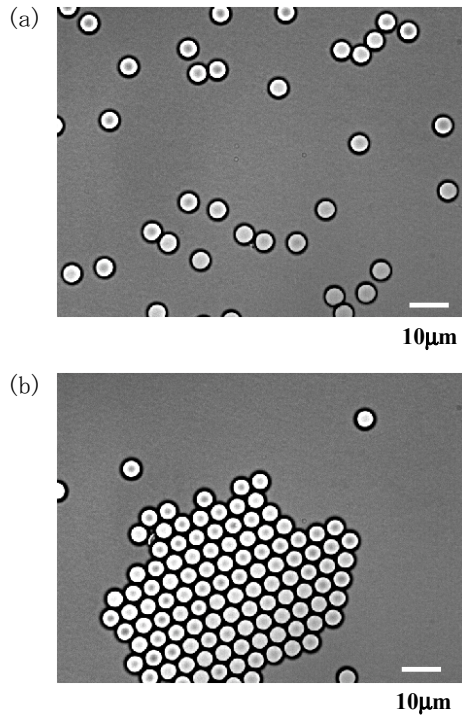


図. コロイド粒子の凝集過程
(a) 0s, (b) 1500s

H-18 流体力学的に結合した粒子系のリズム運動

九大院理^A, 九大理^B 佐々百合子^A, 田中小百合^B, 柴田就平^A, 岩下靖孝^A, 木村康之^A

粘性流体中を運動する微小物体は、周囲の流体を介して他の物体と相互作用をする。このような粒子系は非平衡状態であり、様々な興味深い集団運動を示すことが報告されている。特に、光渦（円環状の強度分布を持った集光場）上で水中を周回運動するコロイド粒子系は、リミットサイクルを示すことがわかっている。

本研究では、この系において出現するリミットサイクルが時間にスイッチングする現象を新たに見出した。

図1は6つの粒子が円環上を周回する様子であり、図2はこのときの隣接粒子間角度の時間発展を示す。図2から、異なるリミットサイクルA、Bが自発的にスイッチする様子がわかる。この運動形態の詳細は、当日報告する。

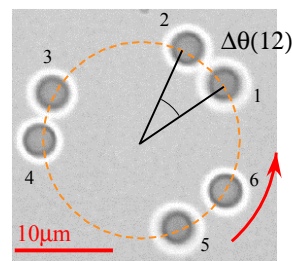


図1. 周回運動する粒子

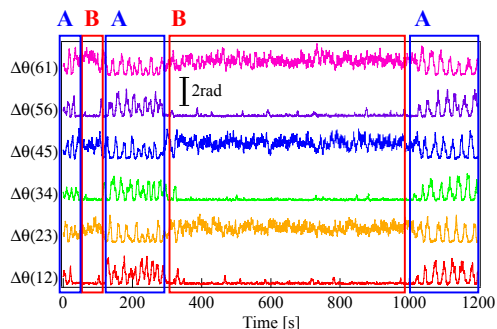


図2. 隣接粒子間角度の時間発展

H-19 粒径の異なる駆動されたコロイド粒子のクラスター形成

九大院理^A, 九大理^B 柴田就平^A, 田中小百合^B, 佐々百合子^A, 岩下靖孝^A, 木村康之^A

粘性流体中のコロイド粒子多体系は、粒子間の流体力学的相互作用に起因した多彩な挙動を示す点で大変興味深い。本研究では、ホログラフィック光ピンセットを用いて水中で複数のコロイド粒子を円環上にトラップし、接線方向に一定の駆動力を与えて、周回運動させた。本実験には、直径 $3\ \mu\text{m}$ および $2.5\ \mu\text{m}$ の 2 種類のシリカ粒子を用い、全粒子数や大小の粒子数の比、およびその配列を変えて粒子系の粒子の運動を調べた。

大きい粒子が 2 個、小さいが粒子 2 個の場合、図 a のような配列を初期位置として運動させたところ、図 b のようなクラスターを形成し、それ以上、他の状態には移行しないことが分かった。このことは隣接粒子間角度 $\Delta\theta$ の時間発展からもわかる (図 c)。クラスターの形成は粒子数や配列に依存し

ており、これらのパラメータを変えることで、クラスターの個数や形状が決定する。

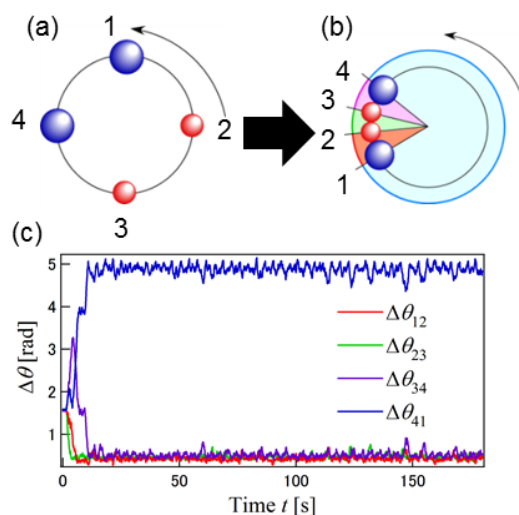


図. クラスターの形成と $\Delta\theta$ の時間発展

H-21 高圧力下におけるソフトマター挙動の直接観察

九大院理^A 向井貞篤^A

高圧力がソフトマターに与える影響について、様々な研究が行われているが、細胞スケール構造体の圧力応答に関する研究は、装置上の様々な制約から比較的少ない。そこで我々は、400 MPa, $80\ ^\circ\text{C}$ の試料の高分解能観察を可能とする高圧顕微鏡システムを開発し [1]、高圧力下のリン脂質ベシクル挙動の研究を開始した。

リン脂質は飽和脂質の DPPC、不飽和脂質の DOPC を用い、直径 $10\ \mu\text{m}$ 以上のジャイアントベシクル (GV) を、自然水和法で調製した。高圧セル内部で試料を $50\ ^\circ\text{C}$ に保ち、200 MPa までの圧力下、60 倍の対物レンズ (NA 0.7, Nikon) で位相差観察を行った。観察を通して、1 つの GV の形状変化を追跡した。常圧で球形であった GV は、100 MPa まではその形状を保ち、球形のままであった。150 MPa 以上において変形が見られ、その後、圧力を下げると、100 MPa 以下で球形を回復した。この変形は繰り返し可能であった。形状の変化が観察された圧力は、リップルゲル相-指組み相間の相転移圧力付近である [2]。同様の実験を、このような相転移を示さない DOPC の GV で行なったところ、形状変化は見られなかった。以上より、ベシクル形状の変化はリップルゲル相-指組み相転移の結果であることが示唆され、これに伴う余剰表面積の発生が原因であると考えられる [3]。また実際の生体膜では、複数種のリン脂質が含まれている。このような多成分膜では、温度変化により膜内相分離が起こることが報告されている [4]。本発表では、多成分ベシクルの高圧力下における挙動についても触れる。

[1] 高圧力の科学と技術, 21, 18 (2010). [2] 高圧力の科学と技術, 17, 106 (2007). [3] Chem-BioChem, 10, 251 (2009). [4] PRL, 100, 148102 (2008).