

## 審査の結果の要旨

論文提出者氏名 磯部 衛

本論文は、セッケン二分子膜を基本構造として展開されるトポロジ的な相転移現象について、実験的に研究した成果について述べている。特に、二分子膜系に対する流動場効果、スポンジラメラ共存相における MLV に関する研究、二分子膜系における粒子の自発的分配という 3 つのテーマについて研究を行い、二分子膜系において起こるこれらの特徴的な現象の性質について明らかにした。

第 1 章では研究の背景および目的について述べている。二分子膜のトポロジカル転移は膜が非常に柔らかいことにより生じる熱的に励起される波打ち揺らぎが系の安定性を支配しており、これまで、平衡状態における系の性質はこの考え方によりうまく説明されてきた。しかしながら、構造が非常に弱い相互作用によって形成されることに起因した外場に対する非線形応答、外場誘起の相転移ダイナミクス等についてはこれまで詳細な研究はされておらず未解明な部分が多い。本研究は、二分子膜による構造を形成する相互作用の弱さを反映した特徴的な現象に着目し、実験的側面から構造の安定性について明らかにすることを目的として行われたものである。

第 2 章において本研究で用いた実験手法、測定試料について説明した後、第 3 章では、 $C_{10}E_3 / H_2O$  系で形成される二分子膜系に対する流れ場の効果について述べている。定常流による粘性測定から、スポンジ相が shear thinning することを見出したが、これは強い剪断速度の下ではスポンジ相を特徴付ける双連結構造が流れに対して不安定となり、系が徐々に連結構造を消失していくことを示している。最終的には系の実効的粘性率は、層状構造のラメラ相とほぼ同じ値となる。以上の結果は、流動誘起によるスポンジラメラ相転移が起こっていることを示しているが、このように粘性測定によって流動誘起相転移を観察した例は初めてである。この測定から定常流動場下における動的相図の作成に成功した。また、光散乱測定より得た内部構造のダイナミクスと関連付けることにより、膜のトポロジ変換に要する活性化エネルギーを見積もることに成功した。

第 4 章では、スポンジラメラ共存相において形成される Multi-lamellar vesicle (MLV) に関する研究について述べている。MLV は膜が同心球状に配列した構造体で、通常は流動場下において形成されることが多くの系で示されており精力的に研究されているが、自発的形成に関する報告は極めて少ない。顕微鏡観察から、 $C_{10}E_3 / H_2O$  系において、スポンジ相からスポンジラメラ共存相へ浅くクエンチしたときは MLV が形成されるがクエンチが深いと形成されず、全く異なるパターンが現れたことから、核生成的に転移が起こる場合に MLV が形成されることが分かった。MLV の成長のダイナミクスに着目し、クエンチ後の MLV の半径  $R$  の時間発展を調べたところ、時間に対して  $R \sim t^{1/2}$  で成長していくことを見出したが、これは拡散による周囲からの物質供給が成長を律速していることを示

しており、更にこの成長様式を理論的な考察によって定量的に実証した。また、MLV が時間とともにガラス壁へ吸収されていく現象を見出したが、これは曲率を有する界面と平面界面との界面濃度差により起こる Gibbs-Thomson 効果を反映した蒸発・凝集現象として理解できることが示された。

第 5 章では、二分子膜系に混合したサブミクロン程度の大きさの粒子が自発的に分配される現象について述べている。スポンジ相よりさらに温度を上げると、系は濃いスポンジ相と  $L_1$  相と呼ばれるほとんど水より成る希薄な相に相分離するが、 $C_{12}E_5 / H_2O$  系に直径数 100nm の微粒子を混入しスポンジ+ $L_1$  相分離領域を観察したところ、スポンジ相より現れた  $L_1$  相ドメインに粒子が交互に分配される現象が見出された。この現象が起こるための条件を、スポンジ相の平均膜間距離と粒子の大きさという 2 つの量の幾何学的関係に着目し顕微鏡観察を行ったところ、分配パターンが発生するには、粒子の大きさが相分離前のスポンジ相の膜間距離よりも小さく、かつ相分離後のスポンジ相の膜間距離よりも大きいという条件が必要であることが明らかとなった。これはスポンジ相の膜間に閉じ込められていた粒子が、膜間距離の減少により吐き出される過程で、膜に仕切られた 2 つの空間に対称性の破れが生じるということを表している。

上記の研究成果は、揺らぎに起因した膜のトポロジー転移現象を基礎的に理解していく上で非常に有用であるばかりでなく、外場による膜構造および機能の制御、膜のトポロジー変換による粒子分別などへの応用が期待される成果も含む。

以上本研究で得られた成果は、物理工学上非常に重要なものである。よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。