

学位審査報告書

(ふりがな)	しもかわ なおふみ
氏 名	下川 直史
学位（専攻分野）	博 士 （ 理 学 ）
学 位 記 番 号	理 博 第 号
学位授与の日付	平成 年 月 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 4 条 第 1 項 該 当
研 究 科 ・ 専 攻	理学研究科 物理学・宇宙物理学 専攻
(学位論文題目)	
Hierarchical Ordered-Structure with Amphiphiles (両親媒性分子が形成する階層的秩序構造)	
論 文 調 査 委 員	(主査) 吉川 研一 教授 太田 隆夫 教授 小貫 明 教授

理 学 研 究 科

(続紙 1)

京都大学	博士 (理 学)	氏名	下川 直史
論文題目	Hierarchical Ordered-Structure with Amphiphiles (両親媒性分子が形成する階層的秩序構造)		
(論文内容の要旨)			
親水基と疎水基を分子内に併せ持つ両親媒性分子は、水中等で自発的に集合して様々な構造を形成する。本論文ではこのような構造のうち、単分子膜や二重膜といった膜構造に注目している。特に二重膜は細胞膜・生体膜の基本構造であり、二重膜で起こる物理化学現象は細胞機能とも関連していると考えられる。様々な構造体と膜構造の相転移、積層した膜間距離の転移、多成分膜内での相分離といった、様々な階層で形成される秩序構造とそれを支配する相互作用を明らかにすることで、両親媒性分子が幅広いスケールで形成する階層的秩序構造を実験・理論の両面から明らかにすることを目指した。 1 章では相分離・相転移理論の基礎を概説した。2 章では水/油/界面活性剤から成るマイクロエマルジョンの系における構造相転移を水・油界面に形成される単分子膜に注目し、理論的に明らかにした。粗視化した膜の曲率モデルにより球状-棒状転移や巨視的な油相の形成などを記述した。 3 章では二重膜が積層したバウンド状態と、その膜間距離が無限大に発散するアンバウンド状態の間の転移を記述する現象論的な理論モデルを提案した。特に、秩序変数と系の自由度が結合する場合を考えることで、転移が一次転移となる領域が存在することを見出した。また、膜間距離の異なるラメラ相の共存も予測した。 4～6 章では混合脂質二重膜における相分離を理論的に明らかにした。4 章では脂質二成分系における相分離において、特に膜が波打ったリップル相の記述を行い、実験により報告されている相図を定量的に再現した。ランダウモデルに立脚し、膜の弾性係数、転移温度に脂質の混合比依存性を持たせ、相転移と相分離を結合させた。5 章では実験により報告された脂質三成分からなるベシクル表面で観察された相分離ドメインの形態転移(ストライプからヘキサゴナル)を表面張力の増加が誘起すると仮定し理論的に説明した。さらに、数値シミュレーションによっても転移を確認した。6 章ではラメラ相・ヘキサゴナル相の秩序変数の時間発展を非線形方程式により解析した。特に、ブラゾフスキーが提唱した揺らぎが誘起する一次転移の効果を取り入れた。 7, 8 章では静電相互作用が関与する脂質二重膜における相分離に取り組んだ。7 章では電荷脂質・中性脂質混合系の相分離を実験により観測し、その結果を平均場理論により説明した。中性脂質のみの系に比べ、相分離領域が狭くなることを見出した。さらに、塩を添加し電荷脂質を遮蔽することで、相分離領域が拡大することを示した。8 章では 7 章を踏まえ、二重膜が異なる塩濃度の溶液に接している場合の相分離を理論的に明らかにした。 9 章では論文全体をまとめ、ソフトマター物理からのアプローチにより両親媒性分子が形成する階層的秩序形成を普遍的に記述できる可能性を述べ、今後の研究の発展性に言及した。			

(論文審査の結果の要旨)

本論文では両親媒性分子が形成する構造間の相転移、膜間距離の転移、面内相分離と幅広いスケールにおける秩序形成を、平均場理論、顕微鏡観察、数値シミュレーションと多様なアプローチを総合することにより明らかにしている。特に、面内相分離は二次元面内での相分離として物理学的に興味深い現象であるばかりでなく細胞機能との関係性も示唆されている事項である。また、静電相互作用と取り込んだ相分離膜の研究は相互作用と系の複雑さから扱いにくい問題であるが、世界に先駆けて研究を展開し、新規な実績をあげた研究と言える。

2章のマイクロエマルションの構造相転移と凝縮転移のモデルでは、2つの異なる現象を一つの理論モデルで記述している。また、棒状マイクロエマルションが球状を経ずに巨視的な油の相を形成する可能性を見出し、その条件を理論的に明らかにしたことは、今後の実験に大きな指針を与えることになると言える。

3章の剥離転移のモデルでは、膜間の異なるラメラ相の共存を予測している。この共存はイオン性の界面活性剤では実験的に報告されているが、モデルのような非イオン性の界面活性剤では報告例がなく、重要な研究と言える。

4章、5章の相分離のモデルでは、実験結果を説明することに成功している。4章では定量的に実験の相図を再現し、さらに実験では報告されていない新たな相図も予測している。5章では定性的に実験の転移の過程を明らかにしている。6章では温度が十分低い時に、秩序変数の初期値に依存して2つの安定状態が存在することを見出している。これは実験的に確認されることが望まれ、新たな実験の発展性が見込まれる。

7章、8章の静電相互作用を取り込んだ相分離研究を行った。多くの相分離研究は静電相互作用を無視しているが、DNAやタンパク質といった重要な生体分子の多くが電荷を有しており、また生体膜内にも電荷脂質が多く含まれている。そのため、静電相互作用を抜きにした相分離の研究は、実際の生体膜の物性とは大きく異なっていると考えられる。そのような中、世界に先駆け電荷脂質を含む脂質三成分系の相分離を実験的に明らかにし、さらに理論的なモデルにより説明を与えている。また、従来の側方相分離とは異なり、自発的なベシクルの変形と相分離が結合した新たな現象も確認している。8章で取り組んだ相分離モデルは、実際の細胞と等価な溶液環境を考えており、生物学への貢献も期待できる独創的な研究と言える。

このように、幅広いスケールでの秩序形成を明らかにするばかりか、実験結果を説明する理論的なモデルや新たな予測等を与え、学問的な意義の大きい研究を展開していると言える。

以上より総合的に判断し、本学位申請論文は独創的な優れたものとなっており、学位取得に値するものであると言える。また論文内容(2010年12月10日提出)とそれに関連した試問(2010年12月28日実施)の結果、物理学をはじめとする基礎的学問に関する学識は優れたものがあると判定した。以上のことより、博士(理学)の学位論文として学問的価値を有すると判断し、合格と認めた。