特集 —— 中性子を利用した高圧物性研究の新展開 ——

リン脂質の圧力誘起膨潤相

A Swollen Phase of Phospholipid Bilayers Induced by Pressure

瀬戸 秀紀

Hideki SETO

Temperature, pressure, and ethanol concentration dependence of the structure and dynamics of dipalmitoyl phosphatidylcholine (DPPC) aqueous solution were investigated by small-angle neutron scattering and neutron spin echo experiments. A swollen phase, in which the mean repeat distance of lipid bilayers is larger than these of the other phases, is found between the liquid-crystalline phase and the interdigitated gel phase. The nature of the swollen phase is similar to the anomalous swelling state observed above the main transition temperature.

[phospholipid, lamellar structure, interdigitated structure, anomalous swelling, small-angle scattering, neutron spin echo]

1. はじめに

リン脂質は、1つの分子内に水に馴染む親水基の部分と油に馴染む疎水基の部分を持つ両親媒性の分子であり、水と混合すると疎水基を内側にするように凝集して二重層膜を作る事が知られている。そして温度変化により分子の膜内でのパッキングの様子が変化し、低温では疎水基が伸び切った状態のゲル相 (L_β' 相と呼ばれる) となり、温度上昇とともに二重層膜が 120 Å 程度の周期で波打ったリップルゲル相 (P_β' 相) を経て、疎水基が融解した液晶相 (L_α 相) へと相転移する。リン脂質二重層膜は生体膜の基本構造であること等の理由で、これらの構造形成についての研究例は非常に多い[1]。

このリン脂質水溶液に圧力を加えた時にどのような変化が表れるか。この点に関しては、例えば「麻酔作用の圧拮抗」のような生理学的な現象を理解したいと言う要求から、1970年代から研究が行われている。中でも圧力によって interdigitated 相 (L_m 相, 指組相とも言われる) が現れる相転移については様々な角度から研究が行われてきており、本誌においても金品らにより何度か取り上げられている[2-4]。従ってリン脂質膜の構造の一般論と圧力誘起 interdigitated 相についてはそちらを読んで頂くことにして、ここでは我々が中性子散乱を用いて新

たに見つけた「膨潤相」に焦点を絞って紹介することにする[5]。

2. 実験手法

2.1 中性子小角散乱と中性子スピネコー法

中性子小角散乱と中性子スピネコー法については、一昨年の本誌で詳細に説明した[6] のでここでは簡単な紹介にとどめる。「小角散乱」とはX線や中性子により、特徴的長さが数ナノメートル~数十ナノメートルの構造を調べる方法である。X線小角散乱 (SAXS) と中性子小角散乱 (SANS) との原理的な違いは、X線は電子によって散乱されるのに対して中性子は原子核によって散乱される、と言う点に尽きる。SANS は原子炉や加速器等の大型施設に設置されるため SAXS に比べて手軽さの点で劣るが、ソフトマター系に多く含まれる水素や炭素などの軽元素でも見る事ができるという特徴がある。更に構成元素の一部を同位体置換することにより、ある部分だけを染め上げて見ることも可能である。

中性子に特徴的なもう一つの点は、試料とのエネルギーのやりとりのある非弾性散乱 (あるいは準弾性散乱) が測定できる、すなわち物質の運動の状態を知ることが出来る、と言うことである。その実験手法にはいくつかあるが、中でも「中性子スピネ

〒305-0801 つくば市大穂 1-1 高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所

Institute of Materials Structure Science, High Energy Accelerator Research Organization, 1-1 Oho, Tsukuba, Ibaraki 305-0801

Electronic address: hideki.seto@kek.jp

コー法 (Neutron Spin Echo = NSE)」の特徴は中性子スピンの磁場中での歳差運動を時間の「ものさし」として用いることにより、中性子強度を犠牲にすることなく高いエネルギー分解能 (数十 neV 程度) で測定できる、と言う点にある。この手法は小角散乱領域における原子や分子の集団の緩和的な運動を測定するのに適しており、厚みや平均距離などの特徴的な長さが数 nm 程度のリン脂質等の両親媒性分子が作る膜の熱揺らぎのような数 neV～サブ meV 程度の運動状態を見ることができる。従ってこれまで界面活性剤やリン脂質などの様々な両親媒性分子膜の運動状態を調べるために利用されてきた[6-9]。

2.2 高圧実験の装置

小角散乱は transmission geometry (試料内に入射ビームを通して、ダイレクトビームの周囲の Q 領域を測定する) で行うことが多いので、試料と中性子に対する窓の形は平板状にするのが普通である。また典型的なビームサイズが 5 mm ϕ ～20 mm ϕ 程度であることから、圧力容器の窓としては厚さ 20 mm 程度のサファイアを用いる。我々が最初に製作した SANS 用の圧力セルの最高到達圧力は 100 MPa 程度であったが、最近では 500 MPa まで到達可能なものが使われている[9]。一方、NSE の実験では余計な磁場による中性子スピンの偏極度低下を防がなければならないため、高圧セルは非磁性のステンレス鋼で製作してある。そのため現有の高圧セルでの最高到達圧力は 100 MPa 程度に制限される。どちらのセルもピストン・シリンダー型の加圧装置に接続されていて、ハイゼージで ± 0.5 MPa の精度で圧力をモニターできるようになっている。

3. 実験結果

3.1 試料

試料としては、このような実験に最も良く用いられる合成リン脂質であるジパルミトイルフォスファチジルコリン (DPPC) を用いた。また溶媒にはリン脂質とのコントラストを付けるため重水を用いた。更に添加物としてエタノールを 0.30 M から 1.20 M 加えた水溶液を用意した。これはエタノール添加により L_{β} 相に転移する圧力と温度が低下する事が知られているためで、例えばエタノールを 0.7 M 加えると、 L_{β} 相への転移圧力が 100 MPa 程下がって 50 MPa 前後になる。従ってエタノール添加した試

料を用いれば、100 MPa までしか加圧ができない NSE 用の高圧セルでも L_{β} 相の測定が可能となる。またエタノールを 1.2 M 以上加えると、常圧でも L_{β} 相に転移する。

3.2 中性子小角散乱 (SANS) 実験

まずは典型的な実験結果を見ていただこう。Fig. 1 は 0.70 M のエタノールを加えた系の温度を 56.0 $^{\circ}$ C に保って、圧力を常圧から 100 MPa に上げたときの小角散乱プロファイルの変化を示したものである。常圧から 55 MPa では $Q = 0.10 \text{ \AA}^{-1}$ 付近にピークが現れ、70 MPa 以上では $Q = 0.12 \text{ \AA}^{-1}$ 付近に出ている様子が見て取れる。低圧でのピークは L_{α} 相できている規則的な積層構造に対応し、70 MPa 以上のプロファイルは L_{β} 相の積層構造に対応する。

注目して頂きたいのは、60 MPa から 70 MPa ま

Fig. 1. Pressure dependence of the SANS profile observed at $T = 56.0^{\circ}\text{C}$ for the sample with 0.70 M ethanol. The vertical axis indicates the absolute scattering intensity and shifts by 10 cm^{-1} each for better visualization. The liquid crystalline phase transforms to the "swollen phase" at $P = 60$ MPa and to the interdigitated phase above $P = 69$ MPa. (Seto, *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn., **76**, 054602 (2007) より転載。)

で見られるプロファイルである。ここでは明らかにピークが low- Q 側に現れており、これが圧力上昇とともに high- Q 側にシフトしている。すなわちラメラ構造の面間隔である 60 Å 程度からより間隔が大きな (90 Å 程度) 構造に変化し、圧力上昇とともに面間隔が小さくなっている、と言うことを示す。

この L_α 相と $L_{\beta I}$ 相の間に現れる中間相 (仮に L_s 相と名付ける) では膜厚が増えているのか、それとも水の領域が増えているのか。それを明らかにするため、各相における散乱プロファイルをモデル関数でフィットしてみた。モデル関数としては、Lemmichらにより提案された次の形を用いた[10]。

$$I(Q) \propto \frac{1}{Q^4} \left\{ i_b(Q) + \frac{i_c(Q)}{N} \right\}$$

$$i_b(Q) = \text{Re} \left[\frac{(1-F_w)(1-F_H^2 F_L) + (\rho_r - 1)^2 (1-F_L)(1-F_H^2 F_w)}{1-F_D} \right] \quad (1)$$

$$+ \text{Re} \left[\frac{2(\rho_r - 1)F_H(1-F_w)(1-F_L)}{1-F_D} \right]$$

$$i_c(Q) = \text{Re} \left[F_w(1-F_D^N) \left(\frac{(1-F_H^2 F_L) + (\rho_r - 1)F_H(1-F_L)}{1-F_D} \right)^N \right]$$

F_H, F_L, F_w, F_D はそれぞれ

$$F_v(Q) = \exp \left[-iQd_v - \frac{Q^2 \sigma_v^2}{2} \right] \quad (2)$$

($v = H, L, W, D$)

により与えられる。ここで d と σ は積層膜における厚みと標準偏差、 N は膜の枚数であり、 H, L, W, D の添え字はラメラの繰り返し単位における親水基、疎水基、膜間の水、及びラメラの部分を表す。すなわち $d_D = 2d_H + d_L + d_W$ である。更に ρ_r は中性子に対する散乱振幅密度差で、親水基、疎水基、水それぞれの散乱振幅密度 ρ_H, ρ_L, ρ_w を用いて次のように書ける。

$$\rho_r = (\rho_L - \rho_w)/(\rho_H - \rho_w) \quad (3)$$

Fig. 1 の実線がフィッティングの結果だが、式 (1) は実験結果を良く説明する。

解析の結果得られた膜の厚みは、 L_α 相では 43.4 Å, $L_{\beta I}$ 相では 32.7 Å だったのに対して、 L_s 相では 47.5 Å であった。この値は同様の条件で測定した $P_{\beta'}$ 相の厚み 47.3 Å にほぼ等しい。すなわちこの結果から L_s 相での二重層膜の構造はリップルゲル相に近い事が推定できる。今回のフィッティングによって得られた膜の厚さについてはエラーが大きいのので注意が必要だが、しかしながら膜の厚さが分

子の長さの 2 倍以上になるとは考えにくい。従ってこの中間相における水の層の厚み (例えば $P = 60.0$ MPa では 33.0 Å) は他の相 (例えば L_α 相では 22.1 Å) よりも厚い、と考えてよいであろう。すなわちここでは膜間に水を多く含んで膨潤している相 (膨潤相) である、と見て良い。

この L_s 相が出現する条件を調べるため、我々はエタノールを添加していない試料とエタノール濃度を 0.30 M, 0.50 M, 0.70 M, 0.12 M とした試料のそれぞれに対して、温度と圧力を変化させて相図を作成した。Fig. 2 は代表的な例で、エタノール濃度が 0.70 M の時のものを示している。濃い網掛の部

Fig. 2. P-T phase diagrams obtained by the SANS experiment of the sample with 0.70 M ethanol. The dark hatched area is the region of the single swollen phase (L_s), and the light hatched area is the coexistence phase ($L_s + P_{\beta'}$).

Fig. 3. Pressure and temperature dependence of the mean repeat distance d in L_s and L_α phases of the sample with 0.70 M ethanol. (Seto, *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn., **76**, 054602 (2007) より転載。)

Fig. 4. SANS profiles observed (left) and the intermediate structure factor $I(Q,t)/I(Q,0)$ (right) obtained from the NSE measurement for the sample with 1.21 M ethanol. (a) $T = 41.0^\circ\text{C}$ in L_α . (b) $T = 38.5^\circ\text{C}$ in L_s . (c) $T = 36.0^\circ\text{C}$ in $L_{\beta I}$. The lines in the SANS profiles are guides for the eyes, and the lines in the NSE data are the fit results. The arrows in the SANS profiles are the positions where the NSE data are depicted. (Seto, *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn., **76**, 054602 (2007) より転載。)

分が L_s 相が単独で見られた領域であり、薄い網掛は L_s 相と P_β' 相の共存相が見られた領域である。エタノールの濃度を上げると $L_{\beta\beta}$ 相の出現条件に合わせて L_s 相が出る領域も低温・低圧側にシフトするが、 L_α 相と $L_{\beta\beta}$ 相の間の領域に出ると言う点では変わらない。また P_β' 相の高温高圧側に隣接して出る、と言う点でも同じである。

Fig. 3 は、 L_s 相における二重層膜の繰り返し周期 d の温度、圧力依存性をまとめたものである。傾向として言えることは、 d の圧力依存性はさほど大きくはないが、温度には強く依存し温度が低いほど d が大きくなる、ということである。この結果は、 L_s 相の出現要因を明らかにする上で重要なものである、と言えよう。

3.3 中性子スピネコー (NSE) 実験

L_s 相の出現要因を考えるため、我々は NSE 法を用いることによりリン脂質膜の曲げ弾性係数を調べた。本特集の別の記事[7]を見ていただくと分かるが、NSE により得られるのは中間相関関数 $I(Q, t)$ である。Zilman と Granek による理論モデル[11]によれば、リン脂質膜のような 2 次元膜が熱により揺らいでいる時の $I(Q, t)$ は次の式のように書ける。

$$I(Q, t)/I(Q, 0) = \exp[-(\Gamma t)^{2/3}], \quad (4)$$

ここで得られた緩和率 Γ は波数 $Q (= 2\pi/d)$ と次の関係を持つ。

$$\Gamma = A Q^3, \quad (5)$$

この係数 A を用いると、次の式を用いて膜の曲げ弾性係数 K_c を計算することができる。

$$K_c = (0.025(k_B T)^{3/2}/A\eta)^2, \quad (6)$$

因みにリン脂質系の NSE 実験結果はこの Zilman and Granek のモデルによって良く説明できることは、我々のグループによる別の実験により分かっている[12]。

Fig. 4 に L_α 相、 L_s 相、 $L_{\beta\beta}$ 相それぞれにおける NSE 実験の結果を示す。加圧下での NSE 実験も可能[6, 7] だが、今回は実験の簡便さを優先するため常圧で L_s 相が出るエタノール濃度が 1.21 M の試料を用いて、温度変化のみで実験を行った。左側の図はそれぞれ NSE 装置を用いた SANS 測定の結果であり、右側の図は矢印で示した Q における $I(Q, t)$ である。どの結果も式 (4) でほぼ説明できたので、

式 (5) と式 (6) を用いてリン脂質膜の曲げ弾性係数を求めた。

得られた結果をまとめたものが Table 1 である。 L_α 相の値は、以前行った実験で得られた値とほぼ一致する。また $L_{\beta\beta}$ 相は L_α 相と比べて 1 桁程度堅くなっていることが分かる。 $L_{\beta\beta}$ 相では疎水基の部分が互いに貫入しあって指を組んだような構造になっていると考えられているから、 L_α 相よりも堅くなっていると言う結果は妥当である。

一方、 L_s 相における膜の堅さだが、 $L_{\beta\beta}$ 相に比べて更に 1 桁堅い、と言う結果が妥当かどうかはよく分からない。Fig. 4(b) で分かるように L_s 相での NSE 測定は Bragg peak の裾の部分で測定しており、強い弾性散乱の影響で $I(Q, t)$ の緩和が遅くなっている、と言う効果は否定できないからである。従って絶対値はあまり信用できないのだが、しかし少なくとも L_α 相と比較して膜が堅くなっている、と言っても良いものと思われる。

4. 考察と結論

我々は DPPC 水溶液の温度、圧力、エタノール濃度を変えながら SANS 測定を行って構造を決めた。その結果高圧で $L_{\beta\beta}$ 相が現れること、エタノール濃度の上昇に伴って転移圧力が下がること、等これまでに知られていた事実を確認する結果を得た。それに加えて、 L_α 相と $L_{\beta\beta}$ 相の間に新たな相 (L_s 相) が現れる事を示した。この L_s 相では二重層膜の厚みがゲル相とほぼ同じで、膜間の水の部分だけが広がっている。すなわちラメラの間に水を多く蓄えた「膨潤相」となっている。Fig. 3 からこの膨潤相におけるリン脂質膜の平均距離 d の圧力依存性はあまり顕著ではないが、温度には強く依存し温度を下げると d が大きくなる、という傾向が分かる。また膜の曲げ弾性係数は、 L_α 相よりはかなり堅いと考えられる。

これらの結果から L_s 相が現れる原因を考える上で参考になるのは、DPPC や DMPC 等のリン脂質で見られる「異常膨潤」である。これは 1994 年に

Table 1. Results of the NSE measurements.

$T(^{\circ}\text{C})$	phase	$A(\text{\AA}^3/\text{ns})$	$K_c(\text{J})$
41.0	L_α	15.9 ($Q = 0.13 \text{ \AA}^{-1}$)	1.9×10^{-19}
38.5	L_s	1.44 ($Q = 0.11 \text{ \AA}^{-1}$)	2.1×10^{-17}
36.0	$L_{\beta\beta}$	4.92 ($Q = 0.09 \text{ \AA}^{-1}$)	1.6×10^{-18}

Hønger らが SANS 実験により初めて示した現象[13]で、Fig. 5 に示したように L_α 相から温度を下げて行くと P_β' 相への転移点に向かって二重層膜の面間隔が数%増加する、と言うものである。

DPPC や DMPC 等の中性リン脂質膜の平均距離を決める要因として考えられる相互作用としては、

Fig. 5. Temperature dependence of the mean repeat distance of DMPC bilayers.

Fig. 6. Temperature dependence of the bending modulus of DMPC. The dashed line indicates the main transition temperature. The observed point of DMPC at $T = 24.5^\circ\text{C}$ is in the gel phase.

van der Waals 引力と親水基の近くに形成される水和層による斥力、そして膜の熱揺らぎによる立体斥力の3つが考えられる。従って異常膨潤の要因として最も考えやすいのは、転移点に近づくに従って立体斥力が増加する、と言う描像である。もし膜が温度低下とともに柔らかくなるならば、膜の揺らぐ範囲が広がり実質的な立体斥力は増大する。従ってこれまでは異常膨潤の原因として転移点に近づくに従って膜が柔らかくなる、と言う考えが支配的であり、実際に確かめた、と言う実験結果もあった[14, 15]。

ところが最近、我々はこの異常膨潤状態におけるリン脂質膜の揺らぎを NSE により測定し、転移点に近づくに従ってむしろ堅くなる、と言う結果を得た (Fig. 6)[8]。膜間が広がった状態で膜の曲げ弾性

Fig. 7. Schematic picture of the anomalous swelling.

Fig. 8. Schematic picture of the P_β' phase. (a) Regular stacking of the ripple layers is formed with increasing temperature. (b) Irregular stacking of ripple layers is formed with decreasing temperature.

係数が大きくなる、と言う結果は「圧力誘起膨潤相」と同じであり、何か共通のメカニズムがありそうである。

そこで我々は、静的な膜の乱れにより平均の膜間距離が増大する、と言うモデルを提案した (Fig. 7)。すなわち、高温で柔らかく平均的にフラットだった膜が、温度の低下とともに乱れた状態のままで堅くなる、と考える。この乱れ方が隣り合った膜の間で同じであれば (位相が揃っていれば) 膜の平均距離に大きな変化はないが、実際には揃っていないためきれいに積み重ねることができない。その結果、膜の平均距離が大きくなって見えるのである。

この描像は、主転移点以下の P_{β}' 相の構造と関係付けるとより理解しやすい。 P_{β}' 相ではリン脂質二重膜が 120 Å 程度の間隔の波打ち構造 (トタン板のような構造) となるが、これがきれいに積み重なって見えるのは温度上昇により P_{β}' 相になったときだけである (Fig. 8(a))。温度を下げて P_{β}' 相に到達すると初めは波打ちの方向が揃わず (Fig. 8(b))、時間とともに徐々に揃ってくる、と言う振る舞いが見られる。またこの時の平均の面間隔は、温度上昇で得た P_{β}' 相よりも大きくなる。異常膨潤の場合には面間隔、膜の曲げ弾性係数のどちらも P_{β}' 相の値に向かって上昇しており、主転移点で繋がるように見える。すなわち異常膨潤は P_{β}' 相になるための前駆現象である、と考えれば理解できる。繰り返しになるが、従来は異常膨潤の要因として、温度が低下してゲル相に近づくに従って膜が柔らかくなり、熱揺らぎが大きくなった結果立体斥力が大きくなって膜の間隔が広がる、と言うモデルが提案されていた。しかしながらこの考え方には、なぜ温度が下がりゲル相に近づくに従って膜が柔らかくなるかと言う事が説明できない、と言う弱点がある。また膜の曲げ弾性係数は液晶相においてさえ $k_B T$ の数十倍であり、熱揺らぎによって遠距離的な斥力が働く、とは考えにくい。逆に我々の温度低下に従って膜が堅くなる、と言う結果は、温度を下げるとリン脂質の疎水基が伸び切って膜内のパッキングが良くなることの前駆的な現象であると考えると理解しやすい。すなわち膜が乱れたままで堅くなり、その結果積層の平均間隔が広がってしまう、と言う異常膨潤についての我々の解釈は、主転移点で液晶相からゲル相に相転移すると言うミクロな描像に一致するのである。

では、圧力誘起膨潤相の場合はどうか。こちらも膜が堅くなるのと面間隔が広がるのが同時に起きて

いる、と言う意味では異常膨潤の場合と同じである。また温度を下げると面間隔が広がると言うのも異常膨潤と同様なので、膜の静的な乱れが原因になっている、と言う可能性は高そうである。ただ、膨潤相の次に現れる L_{β} 相は比較的揃った相であり、また二重層膜の構造も違いが大きい。更に L_{α} 相と L_{β} 相の共存が見られる圧力があることから分かるように、この両者の相転移は一次的である。従って仮に L_{α} 相が L_{β} 相の前駆的な相だったとしても、その形成のメカニズムは異常膨潤とはかなり違ったものになっているのでは無いか、と思われる。

5. おわりに

本特集号の目的は、J-PARC が完成し供用が開始されるタイミングに合わせて、中性子散乱でどのような高圧の実験ができるのかを紹介することであると聞いている。私はここ 10 年ほど中性子散乱を主な研究手法としてソフトマター系の高圧研究を進めてきたと言うことで、ここで執筆の機会を与えていただいたことは光栄な事ではある。しかしながら一昨年一度この場でスペースを頂いて研究内容を紹介しており、更に本特集でも共同研究者の長尾氏が別の記事[7]を書いている。従って私の高圧研究について紹介する材料はほとんど残っていないのだが、しかし昨年より新しい職場に移り、中性子散乱装置を多くのユーザの方に使って成果を出していただきたい、とお願いする立場となった事を考えて、厚顔にも新たな原稿の執筆を引き受けたと言う次第である。内容的には屋上屋を重ねるようなもので目新しさも少なく申し訳ないのだが、もしこの小文がこれから中性子散乱を使って高圧研究を行おう、と考えておられる方の参考になるとすれば、望外の幸せである。

謝 辞

本研究は、筆者が広島大学総合科学部に在籍中にスタートし、京都大学理学部に在籍中にまとめたものである。その中で元広島大学総合科学部の武田隆義氏、長尾道弘氏 (現 NIST)、山田悟史氏 (現 KEK)、信藤秀和氏 (現エルピーダメモリ) と、京都大学理学部の菱田真史氏らの協力を得ている。また光高圧機器株式会社の故・小泉光男氏には、高圧セルの設計・製作からメンテナンスまで様々な面でお世話になっ

た。

中性子小角散乱実験と中性子スピネコー実験は東京大学物性研究所の課題審査を受けて、その承認の元で行った。また科学研究費補助金と山田科学振興財団からの助成を受けている。合わせてここに謝意を表する。

参考文献

- [1] S. Tristram-Nagle, J.F. Nagle: Chem. Phys. Lipids, **127**, 3 (2004).
- [2] 金品昌志, 松木均: 高圧力の科学と技術, **4**, 223 (1995).
- [3] 金品昌志, 松木均: 高圧力の科学と技術, **9**, 213 (1999).
- [4] 金品昌志, 松木均, 玉井伸岳: 高圧力の科学と技術, **18**, 110 (2008).
- [5] H. Seto, M. Hishida, H. Nobutou, N.L. Yamada, M. Nagao, T. Takeda: J. Phys. Soc. Jpn., **76**, 054602 (2007).
- [6] 瀬戸秀紀, 長尾道弘, 川端庸平: 高圧力の科学と技術, **17**, 122 (2007).
- [7] 長尾道弘, 川端庸平, 瀬戸秀紀: 高圧力の科学と技術, **19**, 52 (2009).
- [8] H. Seto, N.L. Yamada, M. Nagao, M. Hishida, T. Takeda: Eur. Phys. J. E, **26**, 217 (2008).
- [9] 柴山充弘: 高圧力の科学と技術, **17**, 131 (2007).
- [10] J. Lemmich, K. Mortensen, J.H. Ipsen, T. Hønger, R. Bauer, O.G. Mouritsen: Phys. Rev. E, **53**, 5169 (1996).
- [11] A.G. Zilman, R. Granek: Phys. Rev. Lett., **77**, 4788 (1996).
- [12] N.L. Yamada, H. Seto, T. Takeda, M. Nagao, Y. Kawabata, K. Inoue: J. Phys. Soc. Jpn., **74**, 2853 (2005).
- [13] T. Hønger, K. Mortensen, J.H. Ipsen, J. Lemmich, R. Bauer, O.G. Mouritsen: Phys. Rev. Lett., **72**, 3911 (1994).
- [14] G. Pabst, J. Katsaras, V.A. Raghunathan, M. Rappolt: Langmuir, **19**, 1716 (2003).
- [15] N. Chu, N. Kucerka, Y. Liu, S. Tristram-Nagle, J.F. Nagle: Phys. Rev. E, **71**, 041904 (2005).

[2008 年 10 月 30 日受付, 2008 年 12 月 12 日受理]

© 2009 日本高圧力学会