平行平板内に閉じ込められた膜の形態変化*

水野 広樹^{*1}, 畑岡 進也^{*2}, 鯉淵 弘資^{*3}

Shape Transformations of Triangulated Spherical Surfaces in Parallel Plates

Hiroki MIZUNO, Shinya HATAOKA and Hiroshi KOIBUCHI^{*3}

^{*3} Department of Mechanical and Systems Engineering,
Ibaraki National College of Technology,
Nakane 866, Hitachinaka, Ibaraki, 312-8508, Japan

We numerically study a spherical surface model and find that the model undergoes a shape transformation between the pancake phase and the concave phase. A constraint potential included in the Hamiltonian confines the surface inside a couple of parallel plates. The Hamiltonian including the Gaussian bond potential and the extrinsic curvature energy is discretized on fixed-connectivity triangulated surfaces, which are allowed to self-intersect. The shape transformation between the pancake phase and the concave phase occurs at relatively large bending rigidity b , where the surface is quite smooth and hence self-avoiding. This transformation is considered to be a phase transition because the size fluctuation follows to a scaling relation typical to the continuous transition, although the curvature energy remains almost constant against b at the transition region.

Key Words : Membranes, Bending Energy, Phase Transition, Monte Carlo, Triangulated Surface Model

1. 序 論

レシチンなどの脂質分子が水中で自己組織化した人工膜小胞は脂質分子膜と呼ばれる⁽¹⁾。脂質分子膜の大きな特徴としては、柔らかくてほんの少しの外的な刺激で自由に變形するということが挙げられる。例えば、赤血球が自分自身の大きさよりも小さな直径の血管の中を動くことは良く知られている。このほか、人工膜小胞における prolate-oblate 転移と呼ばれる球体と楕円体の間の形態変化なども典型的な例である⁽²⁾。この形態変化は熱揺らぎで引き起こされるが⁽²⁾、外力として電場をかけた場合にも起こることが知られている⁽³⁾。

このように、脂質分子膜は熱揺らぎなどによって形態変化をすることが知られているが、それがその他のどのような条件で起こるのかは、状況によって様々である。このため、膜の形態変化のメカニズムについて、モデルにより理解することが重要な問題となっている。膜の形態変化を研究するモデルの方法として、ばねとビーズで構成される 2 次元ネットワークを用いた統計力学的な数値シミュレーションが行われている⁽⁴⁾。この方法では、熱揺らぎという揺動力により引き起こされる、低温における滑らかな形と高温におけるしわくちゃな形の間の形態変化が相転移現象と見なせるかどうかを問題にしている。3 角形で分割された球面を用いても同様な研究がなされている⁽⁵⁾。

膜は当然ながら熱揺らぎ以外の外部の力でも變形する。例えば、赤血球については、様々な要因で變形することが知られている。外部流体として、一定のせん断流を赤血球に加えたときのせん断応力と赤血球の變形に関しては、せん断応力がある一定値以下の領域において、せん断応力の増加に伴って赤血球の變形が著しく進行することが報告されている⁽⁶⁾。また、壁面近傍のせん断流によって tank-treading 運動を起こすベクシルについては、安定傾き角と膨潤率の観点からのベクシルの變形に関し、安定傾き角には膜の局所的な挙動は大きな影響を与えず、

* 原稿受付 2011 年 4 月 15 日

^{*1} 学生員、茨城工業高等専門学校 専攻科 (〒312-8508 茨城県ひたちなか市中根 866)

^{*2} 茨城工業高等専門学校 機械システム工学科 (現(株)JR 東日本水戸支社)

^{*3} 正員、茨城工業高等専門学校 機械システム工学科

E-mail: koibuchi@mech.ibaraki-ct.ac.jp

膨潤率という幾何学的拘束条件が重要であることが報告されている⁽⁷⁾⁽⁸⁾。

さらに、赤血球の内部流体を液体粒子とした血液のミクロモデルを用いた SPH 法に基づくシミュレーションによる研究では、赤血球の tank-treading 運動を良好に再現できるという結果がある⁽⁹⁾。また、血流中の複数の赤血球間に働く力学的相互作用が赤血球の変形に及ぼす影響に関しては、赤血球の変形は赤血球間の相互作用によって抑制され、赤血球の変形能が大きいほど赤血球は大きく変形することが報告されている⁽¹⁰⁾。

外部圧力によって引き起こされる形状の変化に関しては、赤血球を内部流体とそれを包む薄い膜からなる薄殻構造物としてモデル化し座屈の考え方を用い、外部圧力を増加させると球殻は両凹円板状に変形することなどが報告されている⁽¹¹⁾。また、赤血球は静止流体中では両凹円板状、流れ中では片側だけ凹んだカップ状となることの両現象に関しては、両凹円板状の凹み部分は赤血球内部からの強い負圧によって生じること、流れの中では、カップ状に変形した後は安定して流れることが分かり、流れが無くなるとまた両凹円板状に戻るなどがシミュレーションの研究より報告されている⁽¹²⁾。また、必ずしも両凹円板状ではないが、膜骨格などを考慮すると熱揺らぎだけで平板状の形態が現れることなども報告されている⁽¹³⁾⁽¹⁴⁾。

しかしながら、非常に小さい直径を持つ血管の中にある赤血球は、周囲の流体のみならず、血管からの力を受けることは明らかであり、その内壁等から受ける力によっても形態変化を起こすと考えられる。ところが、そういった現象のメカニズムはまだ解明されていない。そこで、本研究では、膜内外の流動場や膜内外の圧力差を無視し、膜が 2 枚の板に挟まれていると仮定して、板の間隔や分子数等の諸条件を変化させ、板に束縛された膜の形態変化について研究する⁽¹⁵⁾。なお、膜のモデルには膜骨格などは考慮しておらず、また、2 枚の平行板も円筒状の実際の血管とは異なっており、これらは可能な限り単純化して構成している。

2. 膜 モ デ ル

Fig. 1 (a) A sphere of diameter D , (b) a spherical surface inside a couple of hard plates separated by d in the z direction, (c) a triangulated sphere of size $N = 5762$, and (d) an initial configuration for simulations of size $N = 5762$. The symbols x, y, z in (b) denote the coordinate axes.

図 1(a) は直径が D の膜の初期状態を表わし、図 1(b) は間隔が d の 2 枚の平行板とその間にある膜の模式図である。本論文では、これらの比を $d/D = 0.3$ と固定する。 D は膜の分子数によって変わるので、 d は分子数 N に応じて変化させる必要がある。 D の決め方については、以下に述べる。

膜モデルは 3 角形格子上で定義されるが、本論文ではその 3 角形格子は正 20 面体を細分することで作る。正 20

面体を構成する 20 個の 3 角形の各辺を ℓ 等分することによって各 3 角形を再分割すれば、分子数 (頂点の数) が $N = 10\ell^2 + 2$ となるような 3 角形分割格子ができる。この格子においては、ボンドの総数は $N_B = 30\ell^2$ 、3 角形の総数は $N_T = 20\ell^2$ で与えられる。図 1(c) には、このようにして作られた $N = 5762 (\ell = 24)$ の 3 角形分割格子を示す。なお、このような球面のままシミュレーションの初期状態として用いるには、平行平板内に入るように半径をかなり小さくしなければならないので、初期状態の格子としては z 方向を縮小した格子を用いる。図 1(d) には、同じく $N = 5762$ の大きさで z 方向を平板間の距離の 95% に縮小した格子を示す。即ち、初期状態としては、図 1(c) のような球面のデータを用いるのであるが、シミュレーションはその形状を一度図 1(d) のような扁平な形状にしてから開始するのである。もちろんシミュレーションは初期状態には依存しないので、半径を小さくした図 1(c) の球面を初期状態として用いても最終結果は同じになる。

膜モデルを定義するエネルギー関数、即ちハミルトニアンは以下ようになる：

$$\begin{aligned} S(X) &= S_1 + bS_2 + V(r_0), \\ S_1 &= \sum_{(ij)} (X_i - X_j)^2, \quad S_2 = \sum_{(ij)} (1 - \mathbf{n}_i \cdot \mathbf{n}_j), \\ V(r_0) &= \sum_i V(X_i). \end{aligned} \quad (1)$$

ここで、 $S(X)$ は 3 次元ユークリッド空間 $\mathbf{R}^3$ での頂点の位置 X についての関数である。 S_1 は全てのボンドの長さの 2 乗の和として定義されており、 S_1 は各ボンドがばねからできているとした時のエネルギーであり、 $\sum_{(ij)}$ は一つのボンドで結ばれている 2 つの頂点 (= 分子) (ij) に関する和を表わす。 S_1 はボンドポテンシャルなどと呼ばれる。 S_2 は、となりあう 3 角形 i と j の単位法線ベクトル $\mathbf{n}_i$ と $\mathbf{n}_j$ の内積によって定義され、曲げエネルギーと呼ばれる。 S_2 における $\sum_{(ij)}$ はとなりあう 2 つの 3 角形 (ij) に関する和を表わす。 $b[k_B T]$ は $k_B T$ と同じ単位を持ち、 $k_B T$ の何倍になっているかを表わすパラメータで、曲げ剛性と呼ばれる。例えば、 $b = 1$ は $b = k_B T$ を表わす。ここで、 k_B はボルツマン定数、 T は温度である。 $V(r_0)$ は平行板の剛体壁ポテンシャルであり、 $\sum_i$ はすべての分子についての和を表わす。 $V(X_i)$ は次のように定義される：

$$V(X_i) = \begin{cases} 0 & (|X_i^z| < r_0) \\ \infty & (\text{otherwise}). \end{cases} \quad (2)$$

ここで、 X_i^z は頂点 i にある分子の位置 (X_i^x, X_i^y, X_i^z) の z 成分である。式 (2) の剛体壁ポテンシャル $V(X_i)$ は、分子 i はその位置 X_i が壁よりも内側にあるときは壁から力を受けないことを意味し、分子が壁の外側へ行こうとするときには壁から ∞ の力を受けることを意味している。つまり、 V は膜を常に 2 枚の平行板の内側に閉じ込める役割を果たしている。また、 V のなかのパラメータ r_0 は、平行板の間隔 d を用いて、 $r_0 = d/2$ と定義される。

膜モデルの分配関数 Z は次の式で与えられる：

$$Z(b, r_0) = \int' \prod_{i=1}^N dX_i \exp[-S(X)]. \quad (3)$$

ここで、 $S(X)$ は式 (1) で与えられるハミルトニアンである。 $\int' \prod_{i=1}^N dX_i$ は膜の x 方向と y の方向の重心を $\mathbf{R}^3$ のそれぞれの原点と一致するように定められていることを意味している。曲げ剛性 b と r_0 は独立なパラメータなので、分配関数 Z は 2 変数関数 $Z(b, r_0)$ のように書くことができる。ただし、 r_0 は既に述べたように 1 種類に固定するため、シミュレーションでは分配関数 Z の曲げ剛性 b についての依存性に着目する。

シミュレーションの初期条件としての膜の半径を R_0 とする。これは、図 1(a) で表わした膜の直径 D を用いて $R_0 = D/2$ で与えられるが、直径 D は $S_1/N = 1.5$ となるように選ばれたものである。 $S_1/N = 1.5$ という条件を用いる理由は、以下に述べるように、もし $V(r_0)$ の制限条件がなかったら、平衡状態において曲げ剛性 b の値によらずこの条件が満たされるからである。本論文での計算条件は、この R_0 と r_0 の比で表わすと、

$$r_0/R_0 = 0.3 \quad (4)$$

となる。

ここで、式 (1) における $S(X)$ の定義に関する注意事項について述べる。はじめに、 $S(X)$ は $S(X) = aS_1 + bS_2 + V(r_0)$ のように 3 つのパラメータ a, b, r_0 を用いて表わせることに注意する。ここで、 a は表面張力係数であるが、これはミ

クロな分子間の相互作用定数であり必ずしもマクロな表面張力とは対応していない．この a の次元は，長さの基本単位を L とすれば， aS_1 と S_1 がそれぞれ $k_B T[J]$ ， $L^2[M^2]$ と同じ次元を持つことから， $[J/M^2]$ で与えられる．次に， S_1/N の平均値 $\langle S_1/N \rangle$ は，分配関数を使って $\langle S_1/N \rangle = \int' \prod_{i=1}^N dX_i (S_1/N) \exp[-S(X)]/Z = -(1/N) \partial \log Z / \partial a$ で与えられるが，これは式 (1) の制限条件がなかったら， $a = 1$ のとき b の値によらず $3/2$ になるところ，この制限条件により， $3/2$ からずれてしまうことを説明する． $\langle S_1/N \rangle$ が $3/2$ からずれるという意味は，膜の面積が b の値によって変化する，即ち，膜が面内変形を起こすということである．このことは，第 4 章の最後で計算結果をもとにコメントする．さて， S_1/N が $3/2$ からずれる理由は，式 (1) の V_0 もパラメータ a に依存してしまうからであり，これは次のようにして分かる： $S(X) = S_1 + bS_2 + V(r_0)$ は $X \rightarrow \alpha X$ というスケール変換で， $S(\alpha X) = \alpha^2 S_1 + bS_2 + V(\alpha r_0)$ となるから， $\alpha = \sqrt{a}$ とおけば， $S(\sqrt{a}X) = aS_1 + bS_2 + V(\sqrt{a}r_0)$ となる．ここで，分配関数 Z は X で積分しており，また Z は定数倍しても同じものを表わすから， $X \rightarrow \sqrt{a}X$ のような変数変換しても変わらない．従って， $\sqrt{a}X$ を改めて X とおけば，ハミルトニアンは $S(X) = aS_1 + bS_2 + V(\sqrt{a}r_0)$ と同じことである．従って， $\langle S_1/N \rangle$ の計算のために $S(X)$ を a で偏微分するとき， V_0 の項も関係してしまうことになる．このため， $\langle S_1/N \rangle$ は $3/2$ からずれるのである．

なお，モデルのスケール不変性ということから，長さの基本単位 L は自由に決められるため，本論文では，特に膜の大きさを指定していない．物理量の次元としては，例えば X^2 は L^2 と同じ次元， S_2 は無次元になるが，これらの次元に関しては本論文では省略することにする．

3. シミュレーションの方法

本研究でのシミュレーションはモンテカルロ法に基づいて行う．乱数を用いて式 (3) の X に関する積分を実行する方法である．ある頂点 X を δX だけ動かして新しく頂点 $X' = X + \delta X$ とする．ここで， δX は式 (2) の $V(X)$ の条件のもとで，小さな球の中でランダムに選ぶ．その小さな球の半径はシミュレーションの初めに固定する．この新しい頂点 X' の位置は，

$$\text{Min}[1, \exp(-\delta S)] \quad (5)$$

の確率で更新される．ここで， $\delta S = S_{\text{new}} - S_{\text{old}}$ である． δS は頂点 X が X' となった時のエネルギー変化である．即ち， $\delta S < 0$ で $\exp(-\delta S) > 1$ となり， X は確率 1 で X' に更新される．また， $\delta S > 0$ では $\exp(-\delta S) < 1$ となり， X は確率 $\exp(-\delta S)$ で X' に更新される．これらの更新を順番に N 個の分子に対して行ったものを 1 Monte Carlo sweep (MCS) と呼ぶ．このメトロポリス法に関する X' の accept または reject の acceptance rate は，小さな球の半径を調節することで，55% ~ 65% としている．一方，式 (1) 中の $V(r_0)$ の条件に関する X' の acceptance rate は 75% ~ 80% となる．

計算に用いた格子のサイズは分子数で $N = 2562$ ， $N = 5762$ ， $N = 7292$ ， $N = 10242$ ， $N = 15212$ である．総計算回数は， $N = 15212$ の格子で相転移点付近では $1.6 \times 10^9 \sim 2 \times 10^9$ MCS であり，また相転移点からずっと離れたところ，およびこれより小さな格子では，もう少し少ない計算回数とした．データは，十分に長い thermalization MCS の後，500 MCS 毎に sample した．格子サイズと総計算回数ともに十分な精度の結果が得られる規模であると考えられる．

4. シミュレーション結果

4.1 コンケーブ相とパンケーキ相

図 2 は膜のスナップショットであり， r_0/R_0 の比率は $r_0/R_0 = 0.3$ で，分子数は $N = 15212$ となっている．図 2(a) は $b = 16.4$ で凹円板形となった膜表面のスナップショットである．その形は赤血球において典型的に見られる形に酷似している．本論文では，この形に代表される相をコンケーブ相と呼ぶ．図 2(b) は $b = 24.4$ で凹凸のない平らな円板形となった膜表面のスナップショットである．本論文では，この形の相をパンケーキ相と呼ぶ．また，図 2(c) と図 2(d) はそれらの断面である．

これらの各断面の違いは壁の効果による影響によって現れている．即ち，膜は熱揺らぎで膜面と垂直方向にも動くため，壁とぶつからないように壁から斥力を受けるのである．つまり，膜が壁のすぐ近くにあるときには，膜分子がランダムなブラウン運動によって膜と垂直方向に動いて壁と衝突するため，熱揺らぎの速度を得られる程

Fig. 2 Snapshots of surfaces of size $N = 15212$ in (a) the concave phase at $b = 16.4$ and in (b) the pancake phase at $b = 24.4$, (c) the surface section of (a), and (d) the surface section of (b). The snapshots are obtained at $r_0/R_0 = 30\%$.

度に壁からその内側に向かって反力を受けるのである。中央だけが凹むのは、そのように変形してもあまり曲率エネルギーが増えないためと考えられる。この斥力は、多層膜間に働く Helfrich 斥力⁽¹⁶⁾と同じものと考えられる。また、膜が壁からこの斥力を受けても、曲げ剛性 b が非常に大きければ膜は中央が凹むようには変形しないと考えられる。 b の値が大きい状態とは、膜揺らぎの小さな状態のことであるから、これは当然のことである。この場合、膜分子の熱揺らぎ自体が膜の硬さによって抑えられていると考えることもできる。逆に、 b が小さい場合には、膜は熱揺らぎによって自由に変形してしまい、この斥力の効果は相対的に少なくなってしまう、あるいは見えなくなってしまう。丁度よい b の値があってコンケーブ相が現れるものと考えられる。

なお、本論文の膜モデルでは膜表面同士が交わらないようにする自己回避の条件を導入してないけれども、曲げ剛性 $b = 16.4$ は十分に大きな値であるため、コンケーブ相、パンケーキ相においては、膜は自己交差をしていない。また、これらの曲げ剛性の領域においては snapshot を見る限り、コンケーブ相、パンケーキ相共に十分に滑らかな状態となっている。

膜の中央が凹んだコンケーブ相が存在することは分かったが、コンケーブ相が安定的に存在できるかどうかの問題である。これを見るためには、コンケーブ相とパンケーキ相の間に相転移が存在するかどうかを調べればよい。このために、図 3(a) に膜の平均 2 乗サイズ X^2 対曲げ剛性 b を示す。ここで、 X^2 は次のように定義される：

$$X^2 = \frac{1}{N} \sum_i (X_i - \bar{X})^2, \quad \bar{X} = \frac{1}{N} \sum_i X_i. \quad (6)$$

ここで、 $\bar{X}$ は膜の重心を表わしており、 X^2 は膜の重心から頂点までの距離の 2 乗の平均である。図 3(a) を見ると、 X^2 は b に対して少しずつ大きくなっているけれども、ほぼ滑らかに変化しているように見える。このことは分子数 N が大きい場合にも同様である。このようなことから、コンケーブ相とパンケーキ相との間に起こる形態変化の相転移は図 3(a) からは、すぐには見つけることはできない。

一方、図 3(b) には X^2 の揺らぎ C_{X^2} を示す。ここで、 C_{X^2} は X^2 を用いて以下のように定義される：

$$C_{X^2} = \frac{1}{N} \left\langle (X^2 - \langle X^2 \rangle)^2 \right\rangle. \quad (7)$$

ここで、 $\langle Q \rangle$ は MC シミュレーションで計算した物理量 Q の平均値を表わす。 C_{X^2} は X^2 の平均値からのずれの 2

Fig. 3 (a) The mean square size X^2 vs. b , (b) the variance C_{X^2} vs. b , (c) the peak values $C_{X^2}^{\max}$ vs. N in a log-log scale, and (d) X_c^2/N vs. $1/N$, where X_c^2 is the mean square size at the transition point. The straight line in (c) is drawn by fitting the data to $C_{X^2}^{\max} \sim N^\sigma$. The letters 30% drawn in the figures represent $r_0/R_0 = 30\%$. The expression $\sigma = 0.182(12)$ in (c) represents $\sigma = 0.182 \pm 0.012$. The number 0.0225 shown in (d) is the value of X_c^2/N at $1/N \rightarrow 0$. The straight line in (d) is obtained by a linear fitting of the largest three data.

乗に関する平均値；即ち分散，であり， X^2 の 1 分子あたりの揺らぎになっている．図 3(b) を見ると C_{X^2} にはピークが見られ，これらのピークは分子数 N が大きくなればなるほど大きくなること分かる．このことは， X^2 の揺らぎが極大になる b の値が存在し，更にその揺らぎは分子数と共にいくらかでも大きくなるということである．

X^2 の揺らぎが分子数と共にどのように大きくなるかを見るために，図 3(c) に N の変化に対する揺らぎ C_{X^2} の最大値 $C_{X^2}^{\max}$ を，log-log スケールで表示する．図の直線は，それらのデータを最小 2 乗近似によって

$$C_{X^2}^{\max} \sim N^\sigma, \quad \sigma = 0.182 \pm 0.012 \quad (8)$$

に fit させたものである． σ はこの直線の傾きになっているが，これは，相転移の臨界指数の一種である． $C_{X^2}^{\max}$ が N に対して式 (8) のように変化することから， X^2 の揺らぎは $N \rightarrow \infty$ で発散し，確かに相転移が起こっていることがわかる．また， $\sigma < 1$ であることから，この形態変化は連続的な相の変化，即ち 2 次相転移と考えられる．

図 3(d) には， X_c^2/N 対 $1/N$ を示す． X_c^2 は相転移点における X^2 を表わす．図の直線は大きい方の 3 つのデータのみを線形に最小 2 乗近似して得られたものである． X_c^2/N は，もしボンドの長さが一定値（例えば $S_1/N = 3/2$ が成り立つ）ならば，少なくとも相転移点を含む十分に大きな b の領域では， N に依存しない一定値になると期待できるが，式 (2) の $V(X)$ により， $S_1/N \neq 3/2$ となるため，このことは自明ではない．しかしながら，図は X_c^2/N が $N \rightarrow \infty$ で一定値： $\lim_{N \rightarrow \infty} X_c^2/N = 0.0225[L^2]$ ，になることを示している．この数値が表わす大きさは L^2 によって変わるため，数値自体にはあまり意味はなく，むしろこの極限值が存在することが重要である．極限值が存在するということは，モデルの相転移点近くの計算結果はこの極限において実際の現象の性質を反映していると考えられる．問題は， N はどのくらい大きくすればよいかということであるが，それは，相転移点の近くで起こる臨

界現象⁽¹⁷⁾が明確に現れる程度の N ということである．ここで，臨界現象とは一般に物理量 Q が相転移温度 T_c の近くの温度 T で $Q \sim (T_c - T)^\alpha$ のように $T_c - T$ のべき乗で表わせるということである．図 3(c), 3(d) の直線は C_{X^2} と X_c^2/N の，温度に関する依存性ではないけれども，一種の臨界現象の性質の現われである． C_{X^2} は計算に用いた全ての N で，一方， X_c^2/N は $N \geq 7292$ で臨界現象の性質が現れている．

ここで，相転移の意味について補足する．この相転移は曲げ剛性 b を変化させると，ある有限の値 b_c で，急にコンケーブ相とパンケーキ相の一方から他方へと変化するものである．この相転移は潜熱を伴う 1 次相転移ではなく，潜熱は伴わない 2 次の相転移に分類される．曲げ剛性 b は既に述べたようにミクロな分子間の相互作用からくるもので，マクロな意味で測定可能な膜の曲げ剛性とは異なり，直接に実験値と比較することはできない． b は脂質分子の種類によって変わるものであり，また，既に述べたように $k_B T$ を単位として表わしたものである．従って，同じ物質でも温度を変えると b は変化する．従って，この論文の結果は，膜骨格などが無い均質な脂質分子膜では，平行平板内に置かれた場合，温度を変化させることでこの相転移がおこる可能性があること示しているといえる．

4.2 膜表面の揺らぎと面内変形について

Fig. 4 (a) The bending energy S_2/N_B vs. b and (b) the corresponding specific heat C_{S_2} vs. b and (c) the Gaussian bond potential S_1/N vs. b

形態変化は 2 次相転移であることがわかったが，膜表面の滑らかさについても相転移があるかどうかを調べる．このために，図 4(a) に曲げエネルギー S_2/N_B を示す．ここで， $N_B(=3N-6)$ はボンドの総数を表わす．図 4(a) を見ると， S_2 は連続的に変化しているように見える．また，分子数を大きくした場合にもその違いはほとんど無いといえる．従って， S_2 からは，形態変化の相転移に伴った表面の滑らかさに関する相転移は見つけれない．そこで， S_2 の揺らぎについてみるために，図 4(b) には比熱 C_{S_2} を示す．ここで， C_{S_2} は以下のように定義される：

$$C_{S_2} = \frac{b^2}{N} \langle (S_2 - \langle S_2 \rangle)^2 \rangle. \quad (9)$$

図 4(b) を見ると，わずかながらにピークが確認できる．しかし，このピークは分子数の増大と共に大きくはなっていない．つまり，膜表面の滑らかさの揺らぎは，膜の大きさの揺らぎが大きくなった転移点においても，大きくはならないといえる．結局，このモデルは，形態変化の 2 次相転移を起こすけれども，膜表面の滑らかさに関しては相転移を起こさないと考えられる．

最後に，図 4(c) に S_1/N 対 b を示す． S_1/N の値は，もし壁がなかったら， b の値によらず $S_1/N = 1.5$ になるはずである．壁がない場合に $S_1/N = 1.5$ となる理由は，式 (3) の分配関数 Z のスケール不変性の帰結である．しかし，本論文のモデルの場合は，壁の影響でこの値が少し小さくなっているのが分かる．即ち，本モデルでは，第 2 章の最後で述べたように，分配関数 Z のスケール不変性から，式 (2) の剛体壁ポテンシャル $V(r_0)$ も a についての依存性を持ってしまい，その結果として $S_1/N \neq 1.5$ となっているのである．なお，本論文のモデルにおいても，ボンドポテンシャル S_1 が近接する分子間の距離を， b に依存して変化するある値に保つ役割を担っているのは，図

4(c) から明らかである。モデルのスケール不変性という性質から、Gauss 型ポテンシャル S_1 が丁度 Lennard-Jones ポテンシャルのような役割を果たしているといえる。一方において、注目すべきことは、 $V(r_0)$ のような外力のポテンシャルが、本来面積一定 ($S_1/N = 1.5$) の膜の面積を b に依存して変化させていることである。即ち、一般に膜の大きさに制限を与えるような外部の力は、膜の形の変形のみならず面内の変形も引き起こすことがわかる。ただし、一般には膜の面内変形は膜上の分子の流動性にも関係し、面外の変形に比べると実際に観測するには困難が予想される。

5. まとめと結論

本論文では、3 角形分割された球面状の膜を平行な 2 枚の板の間に閉じ込めた場合の形態変化の相転移を、Monte Carlo シミュレーションの方法で研究した。板の間隔と初期球面直径の比は、 $r_0/R_0 = 30\%$ とし、分子数は最大 $N = 15212$ までとした。その結果、曲げ剛性 b が比較的大きいところで、膜の中央が凹んだコンケーブ相と中央が平らなパンケーキ相が確認された。更に、膜の平均 2 乗サイズ X^2 の揺らぎ C_{X^2} の計算から、これらの 2 つの相は連続的な相変化つまり、2 次相転移によって隔てられていることも分かった。これは、コンケーブ相が外部の板の存在と熱揺らぎだけで出現し、しかもある条件で安定的であることを意味している。一方、この相転移点において膜の滑らかさに関しての相転移は存在しないことが分かった。更に、コンケーブ相とパンケーキ相の相転移が起こる条件の領域で、ボンドポテンシャル S_1 (即ち膜の面積) が b に依存してわずかに変化することが分かった。これは、膜の形の変化には、形に必ずしも関係しない面内変形が伴うことを意味している。

なお、これらの結果は赤血球に現れる両凹円盤形状に関する従来の研究結果と矛盾しない。序論でも述べたように、両凹円盤状の形に影響する因子としては、これまでの研究から、外部流体から受ける力、膜内外の圧力差、内部流体の存在、膜同士の相互作用、などが挙げられている。本研究の結果は、これらの結果と矛盾するものではなく、むしろ、もう 1 つの要因となるものである。即ち、狭い 2 枚の平行平板という固い壁の拘束条件によって脂質分子膜は両凹円盤状の形に変形する。

本論文のモデルでは膜骨格などの非均質性や膜分子の流動性を仮定しなかったが、実際の生体膜ではこれらの付加的な要素が加わる。従って、非均質で流動性があるような場合にも膜が狭い 2 枚の平行平板の中で両凹円盤状に変形して安定的かどうかは興味深い問題である。

文 献

- (1) W. Helfrich, "Elastic properties of lipid bilayers: theory and possible experiments", *Zeitschrift für Naturforschung*, **28c**, (1973), pp. 693-703.
- (2) H.-G. Döbereiner and U. Seifert, "Giant vesicles at the prolate-oblate transition: A macroscopic bistable system", *Europhysics Letters* **36** No. 5 (1996), pp. 325-330.
- (3) R. Dimova R., S. Aranda, N. Bezlyepkina, V. Nikolov, K. A. Riske and R. Lipowsky, "A practical guide to giant vesicles; Probing the membrane nanoregime via optical microscopy", *Journal of Physics: Condensed Matter*, **18**, (2006), S1151-S1176.
- (4) Y. Kantor and D.R. Nelson, "Phase transitions in flexible polymeric surfaces", *Physical Review A* **36**, (1987), pp. 4020-4032.
- (5) 鯉淵弘資, "液体界面の形状変動相転移とその液体性に関する数値的研究", 日本機械学会論文集 B 編, Vol. **68**, No. 671 (2002), pp. 1926-1932.
- (6) 橋本成広, 疋田伸治, 笹田直, "せん断流中における赤血球の変形 (平行円板型レオスコープによる変形指数評価)", 日本機械学会論文集 A 編, Vol. **56**, No. 567 (1993), pp. 2795-2799.
- (7) 畠中龍太, 高木周, 松本洋一郎, "単純せん断流中における脂質二分子膜ベクシルの挙動 (第 1 報, Tank-treading 運動における安定傾き角と膨潤率の関係の検証)", 日本機械学会論文集 B 編, Vol. **74**, No. 739 (2008), pp. 530-535.
- (8) 畠中龍太, 高木周, 松本洋一郎, "単純せん断流中における脂質二分子膜ベクシルの挙動 (第 2 報, Tank-treading 運動における内部流動場の解析)", 日本機械学会論文集 B 編, Vol. **74**, No. 740 (2008), pp. 856-861.
- (9) 高野龍雄, 田中伸厚, 増澤徹, "血流のミクロ・シミュレーション", 日本機械学会論文集 B 編, Vol. **70**, No. 699 (2004), pp. 2705-2711.

- (10) 坪田健一, 和田成生, 山口隆美, “赤血球の変態能が血流に及ぼす影響 (粒子法シミュレーションによる検討)”, 日本機械学会論文集 B 編, Vol. **72**, No. 718 (2006), pp. 1483-1489.
 - (11) 中村雅英, 帆効政幸, “赤血球の形状に関する力学的考察”, 日本機械学会論文集 B 編, Vol. **61**, No. 582 (1995), pp. 587-591.
 - (12) 田中正幸, 越塚誠一, “粒子法を用いた赤血球の変形シミュレーション”, 日本流体力学会誌「ながれ」, Vol. **26**, (2007), pp. 49-55.
 - (13) H. Koibuchi, “Phase structure of a surface model on dynamically triangulated spheres with elastic skeletons”, *Physical Review E* **75**, (2007), 051115(1-9).
 - (14) H. Koibuchi, “Shape transformations of a compartmentalized fluid surface”, *Physical Review E* **76**, (2008), 021104(1-8).
 - (15) 畑岡進也, 鯉淵弘資, “狭い領域に閉じ込められた膜モデルの形態変化”, 日本機械学会茨城講演会講演論文集, (2009), pp.157-158.
 - (16) W. Helfrich and R. -M. Servuss, “Undulations, Steric Interaction and Cohesion of Fluid Membranes”, *Physics and Astronomy IL NUOVO CIMENTO D*, Vol. **3**, No. 1 (1984), pp. 137-151.
 - (17) 田崎晴明, 統計力学 II, 新物理学シリーズ 38 (2008), p.418, 培風館.
-