

研究報告書

「水圏生物のマイクロミラーによるエネルギー変換伝達機能の獲得」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 平成 23 年 10 月～平成 27 年 3 月

研究者: 岩坂 正和

1. 研究のねらい

さまざまな生物のもつ構造色は、屈折率の変化を利用して生物が生存淘汰するための生来備わった機能であり、遺伝的および自己組織化的に発現したものと考えられる。藻類や魚類は水中において太陽光を有効利用するための微結晶マイクロミラーを細胞表面付近で用いていると考えられるが、その生物学的機能は解明の途上にある。本さきがけ研究に取り組むきっかけは、魚類の体表に存在するグアニン結晶板がブラウン運動で引き起こすキラキラ光反射(flickering)が磁場で消える現象である。この水圏生物由来の微結晶の機能を解明するとともに、さまざまな藻類が産生する微結晶の光学特性を磁氣的に解明することを目標とした。

磁気に応答する水圏生物の代表的な物質として、これまで磁性バクテリアのマグネタイト(強磁性)の研究が目覚ましい発展をみせた。一方、本研究者がその磁気応答をみいだしたグアニンの場合は反磁性物質であるため、推測できるメカニズムとしてグアニン結晶板の磁化率異方性による磁場配向が挙げられる。魚類と同様に藻類も藻体表面に微結晶(外被結晶)を有するが、その磁場配向特性を調べた研究はみられない。特に藻類は太陽光を制御するためにこの微結晶を自ら産生していると考えられることが多い。しかし、植物生理的な光学機能の解明は十分に進んでいない。そこで、グアニン結晶板の光反射特性を磁気で制御する技術を確立することで、藻類外被結晶の光学機能解明を促進できると考えた。

今回の研究では、魚類の体表(鱗)の色素胞内のグアニン結晶、および藻類の外被結晶として構造色を呈する物体(本研究では“マイクロミラー”と表現する)を対象とし、その磁気応答性のメカニズムを解明すべく研究を進めた。水圏生物の微結晶が磁場によって回転する磁場配向メカニズムを解明し、結晶板の光散乱挙動を検出する手法を構築するため、魚類ウロコの色素胞に含まれるグアニン結晶板の磁場配向および構造色の高感度磁場応答を手掛かりとし、藻類の構造色提示部位における動的光散乱および構造色変化に対する磁場効果を藻類顕微分光解析装置により探索した。光合成機能を有する藻類の被殻成分の磁場配向を検出し、太陽光エネルギーを最適制御する藻類の天然光学素子の特性を解明し、得られた成果をバイオエネルギー生産効率化に導くための道筋を開拓した。

2. 研究成果

(1) 概要

水圏生物に特有の水中“マイクロミラー(微結晶、マイクロクリスタル)”を利用した高効率の光



制御技術の創成を目指し、この新技術の核となる“マイクロミラーの磁氣的制御法”を開拓した。水圏生物のマイクロミラー(炭酸カルシウムやグアニンの微結晶)が太陽光を制御し効率的に利用されている可能性に着目し、その反磁性的な磁場配向と光特性との関連を詳細に調べた。魚類の色素胞内のグアニン結晶板の特異な光反射機能の解明(研究テーマA)を進めつつ、藻類の外被結晶のフォトニック結晶特性と磁場配向特性の解明(研究テーマB)を行った。これらのマイクロミラーが低摩擦・低エネルギーのロスによってブラウン運動を起こすメカニズムを磁場下での光計測によって考察し、このマイクロミラーの配向を磁氣的に制御する技術を確立した。この新技術を展開する研究(研究テーマC)では、マイクロミラーによる微細な光磁気制御がクロロフィル蛍光に与える影響を藻類で検証した。

(2) 詳細

(研究テーマA) グアニン結晶マイクロミラーの磁気応答

本研究の起点としたグアニン結晶板の精製プロセスを改良し、魚類(金魚、鯉)の鱗に付着している色素胞から均一な結晶板を分離精製するプロトコルを開発した。この結晶板を超伝導磁石および永久磁石の磁場下で高分解能観察可能な顕微グアニン結晶観察システムを構築した。そのシステムを用いたグアニン結晶板の光学特性解析の結果から、結晶板の表面が水に接しているときにブラウン運動が起きやすく光の flickering が増大すること、また、厚み 100nm の結晶板が光を 90 度曲げるプリズム特性をもつことが明らかとなった。X 線構造解析によりこのグアニン結晶板は幅 5 μm 、長さ 20 μm 、厚みが 70nm~100nm であり、X 線構造解析により無水結晶と水和結晶が混在している可能性が指摘できた。

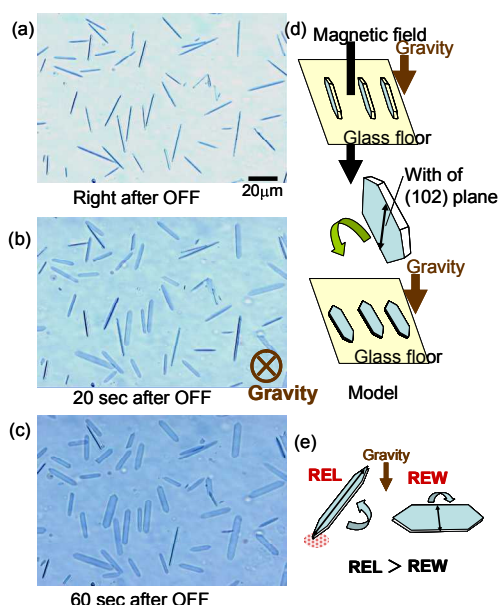


図1 永久磁石の磁場で重力方向に配向したグアニン結晶が、磁場オフ後に倒れていく様子を示す(左列)。右列は、反磁性磁気エネルギーと重力とが拮抗するモデル図。

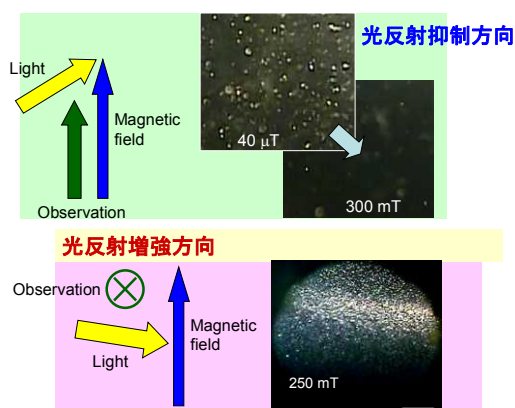


図2 水中に浮遊させたグアニン結晶集団の磁場配向による光反射増強と抑制。観察方向に垂直な方向からの光入射(暗視野)条件において、超伝導磁石内にて磁場をオン・オフした際、磁場が観察に平行な場合は光反射が抑制され、両ベクトルが直交する際には反射光が増強した。

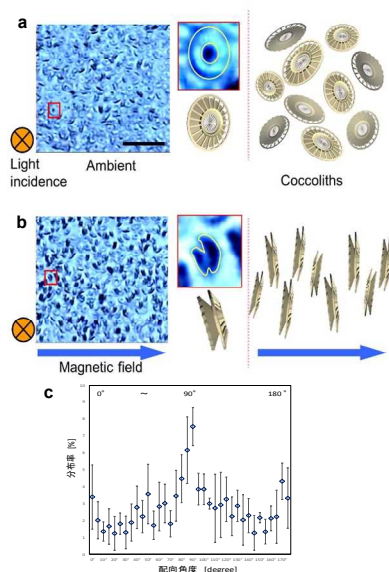


図3 藻類マイクロミラー(円石:ココリス)の磁場配向。磁場印加なし(a)および400mT磁場下での円石の配向状態。cは400mT磁場下での配向角度分布の偏りを示す。

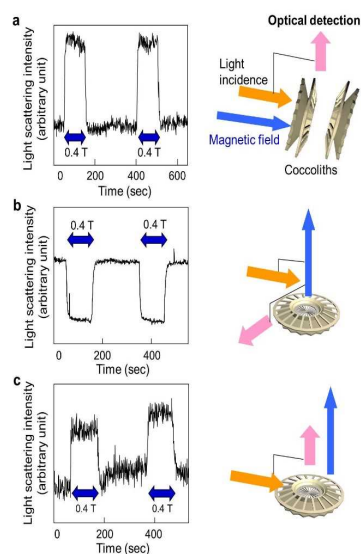


図4 円石を磁場配向させることで光の反射方向をコントロールした例。青矢印: 磁力線方向、オレンジ矢印: 入射光、ピンク矢印: 観察(採光)方向

反磁性のグアニン分子がシート状に積層しており、外部磁場を遮蔽する反磁性的分子の挙動による磁場配向が図1のように観察された。水中に結晶板を浮遊させた状態にて磁場と入射光の方向を組み合わせることで、反射光の抑制と増強を制御可能であることも明らかにした。

この結晶板一枚に磁場を印加し約20度回転させることで、瞬時に光の明滅を制御することに成功した。グアニン結晶板集団を水中に分散した浮遊型マイクロミラー液体を調整し、流体回路内で利用可能な光スイッチングを実現した。これまで数テスラ以上の強磁場が必要とされてきた反磁性磁場配向であるが、微結晶を水中で程よくブラウン運動させた結果、永久磁石で得られる数百ミリテスラ程度の磁場での回転制御を可能とした。

(研究テーマB) 藻類マイクロミラーの磁気応答

円石藻 *E. huxleyi* が沈着する炭酸カルシウム結晶の複合体(ココリス)が、その円盤面の法線方向が磁力線に対し主に平行になる磁場配向を起こすことを発見した(図3)。炭酸カルシウムのカルサイト結晶の *c* 軸が磁力線に垂直になるような磁気回転運動が 400mT 以上の磁場下で生じるため、グアニン結晶とほぼ同様の光スイッチングが可能である。また、円石藻 *E. huxleyi* の表面の円石を磁場で配向させることで、直径約2μmの円石が光を効率的に反射し、光を波長分離する配位を明らかにすることに成功した。図4は円石の配向方向を磁場で変化させ、入射光の増減を藻類顕微分光システムで調べた例を示す。

以上の結果をもとに、円石藻の円石集団が光を遮蔽する配向角と光を細胞内へ導入しやすくする配向角について、その光波長依存性を議論することが可能となった。円石の円盤面に平行に入射した光は側方散乱が抑制され、かつ面の法線方向への反射は光波長依存性をもつ。円石の円盤面に垂直に入射した光は強く散乱されることが明らかとなった。

さらに、藻類由来セルロース微結晶や人工的に作製した核酸塩基結晶および尿酸結晶の磁場配向を比較して知見を拡充し、照射光、磁力線、観察方向の3つのベクトルの組み合わせによって微結晶の配列方向を高感度に検出することに成功した。

(研究テーマC) マイクロミラー磁気変調によるバイオエネルギー生産効率化

研究テーマAとBで得られた成果をバイオエネルギー生産効率化に導くための道筋を開拓するための基礎研究として、円石藻 *P.carterae* のクロロフィル蛍光に対するマイクロミラー光反射の影響を調べた。グアニン結晶板を円石藻浮遊液に加え、波長 475nm のレーザ光で励起した際の 685nm での蛍光強度は、結晶板の添加量にほぼ比例した。この円石藻の周囲のグアニン結晶板を外部磁場で配向させた場合、研究テーマ A で得られた光反射異方性の原理に従った蛍光強度の異方性が得られた。従って、藻類細胞の近傍のマイクロミラーの配位角度を外部磁場でコントロールし光合成を効率化させる手法のヒントが得られたといえる。さらに、円石藻 *E.huxleyi* に対し、この細胞由来の円石を添加することによって、同様のクロロフィル蛍光強度のコントロールを円石の磁場配向で実現した。

3. 今後の展開

今回の研究成果をもとに、藻類および多くの生物のつくるマイクロメートルサイズの結晶板が光を目標の方向に向けて強く反射し、しかも永久磁石程度の低磁場で容易に回転制御できる条件を有する例をさらに多く示すことが可能と思われる。藻類がつくる結晶の中でも円石はグアニン結晶に匹敵する磁気応答性をもつため、藻類から得られる有用な天然マイクロ光学材料としてバイオセンサー等へ活用する道筋を切り拓くことは、産業応用上の付加価値を高めると期待される。そのためには、円石の炭酸カルシウム結晶の表面での屈折率を改良する手法の開発も必要であろう。

これら微結晶の磁気応答は、その回転特性と磁化率解析をもとに、反磁性とよばれる万物がもつ弱い誘導磁化（分子内での電子が外部磁場に対して起こす運動による磁気特性）が積分された結果であると説明できるが、詳細な機構を解明することは磁気物理化学の分野の知見としても有意義といえる。

特に、外被結晶をもつ藻類が太陽光を制御するしくみを理解する道筋を切り拓くことは重要である。強磁場を用いることで、藻体に付着した微結晶の光学機能の解析も可能と考えられる。また、光反射特性に改良を加えた人工微結晶を用いることで、藻類の光合成活性を促進するフォトバイオリアクターの開発が期待できる。直径がマイクロメートル・オーダーの微細藻類の微結晶を単離し、マイクロ光学素子の部品として微小光学機械へ応用することも可能であり、他分野への波及効果も期待できる。

4. 評価

(1) 自己評価

(研究者)

本研究では、藻類および魚類由来の微結晶の構造と磁場による配向特性との比較を高感度に行う技術を創製し、この手法が水中でブラウン運動する微結晶の磁場配向検出法として普遍的に適用可能であることを明らかにできた。この手法は、円石が太陽光をどのように制御し円石藻の光合成に役立つのか理解することに寄与できると期待できる。しかし、本研究では、磁場を用いて円石の配位を制御するという手法上の有用性を示した段階であり、今後の研究展開において植物生理学的な意義を証明する段階が必要である。

水中でブラウン運動を行いつつ磁場に高感度応答する微結晶の新奇な知見を得ることに成功し、電磁工学的に新しい光エネルギー変換手法のモデル構築に至ったといえるが、その発電装置としての実用化はまだ遠いといえる。

一方、藻類の近傍に漂う微結晶による光反射環境が、光合成微生物にとって有効な光反応場(フォトバイオリクター)として機能するのでは?という仮説を支持する成果を得るに至った。この知見はさまざまな藻類の培養と光合成活性制御に有用と見込まれる。今後、藻類バイオエネルギー生産において効果的な微結晶の活用を、さらに推進して参りたい。

(2) 研究総括評価(本研究課題について、研究期間中に実施された、年2回の領域会議での評価フィードバックを踏まえつつ、以下の通り、事後評価を行った)

(研究総括)

研究目標として掲げたマイクロミラーによる光エネルギーの制御を主軸としつつ、藻類のマイクロミラー機能を発見するという、領域のねらいに合致する成果を成し遂げたことは評価できる。

研究者自身と学生数名の実施体制で研究費を最大限活用して藻類培養や磁場実験をこなし、テンポの早い研究の進め方であったことが公表論文の数から察せられる。

また、植物生理学分野以外(電子工学)からの参入研究者として、領域会議では当初は異色の存在であったが、藻類のさまざまな結晶を試すようアドバイスを与えたこと、および本領域のCRESTの研究チームやさきがけ研究者との交流を通し、次第にこの領域の研究者メンバーの一人として、藻類バイオエネルギーの効率的生産のヒントを獲得する道筋を切り拓いたようだ。

さきがけ研究者として採用されてから多くの共同研究を行い、バイオテクノロジーと電子工学を融合するポジションを得るなど、研究者としてのアクティビティーが急上昇している。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1. M Iwasaka, Y Miyashita, M Kudo, S Kurita, N Owada. Effect of 10-T magnetic fields on structural colors in guanine crystals of fish scales. Journal of Applied

Physics. 2012, 111 (7), 07B316(1-3)
2. M Iwasaka, Y Miyashita, Y Mizukawa, K Suzuki, T Toyota, T Sugawara. Biaxial alignment control of guanine crystals by diamagnetic orientation. Applied Physics Express. 2013, 6 (3), 037002
3. M Iwasaka, Y Mizukawa. Light reflection control in biogenic micro-mirror by diamagnetic orientation. Langmuir, 2013, 29 (13), 4328-4334
4. Y Mizukawa, M Iwasaka. Electromagnetic Viability Control of Aquatics by the Combination of Weak Electric Currents and 10 T Magnetic Fields. IEEE Transactions on Magnetism, 2013, 49 (7), 3480-3483
5. M Iwasaka, Y Mizukawa, Y Miyashita. Rapid magnetic wiper featuring biogenic guanine particles: Magnetic non-contact switching of opto-fluidic mirrors featuring biogenic guanine crystals. Applied Physics Letters, 2014, 104 (2), 024108
6. Y Takeuchi, Y Miyashita, Y Mizukawa, M Iwasaka. Two-stage magnetic orientation of uric acid crystals as gout initiators, Applied Physics Letters, 2014, 104 (2), 024109
7. M Iwasaka, Y Mizukawa. Magneto-optical properties of biogenic photonic crystals in algae. Journal of Applied Physics, 2014, 115 (17), 17B501(1-3)
8. Y Miyashita, M Iwasaka, T Kimura. Microcrystal-like cellulose fibrils as the diamagnetic director for microfluidic systems. Journal of Applied Physics, 2014, 115 (17), 17B519(1-3)
9. Y Mizukawa, K Suzuki, S Yamamura, Y Sugawara, T Sugawara. Magnetic Manipulation of Nucleic Acid Base Microcrystals for DNA Sensing. IEEE Transactions on Magnetism, 2014, 50 (11), 5001904
10. Y Takeuchi, Y Sugawara, T Sugawara, M Iwasaka. Magnetic Rotation of Monosodium Urate and Urinary Tract Stones for Clinical Treatment Applications. IEEE Transactions on Magnetism, 2014, 50 (11), 6101204
11. Y Mizukawa, Y Ikemoto, T Moriwaki, T Kinoshita, F Kimura, T Kimura. Synchrotron Microscopic Fourier Transform Infrared Spectroscopy Analyses of Biogenic Guanine Crystals Along Axes of Easy Magnetization. IEEE Transactions on Magnetism, 2014, 50 (11), 5001804(1-4)
12. Y Miyashita, Y Mizukawa, H Endo, M Iwasaka, Magnetically Controlled Biogenic Crystals as Photo-Bioreactors for Algae. IEEE Transactions on Magnetism, 2014, 50 (11), 5001504(1-4)
13. Y. Miyashita, M. Iwasaka. FDTD Analysis of Light Control by Magnetically Oriented Guanine Crystal Plates. IEEE Transactions on Magnetism, 2014, 50 (11), 5001404(1-4)

14. Yuri Mizukawa, Masakazu Iwasaka. Magnetic control of the inclination of biogenic guanine crystals fixed on a substrate. Journal of Applied Physics, 2015, in press
15. Masakazu Iwasaka, Yuri Mizukawa. Effect of intense magnetic fields on the convection of biogenic guanine crystals in aqueous solution. Journal of Applied Physics, 2015, in press
16. Yuka Takeuchi, Masakazu Iwasaka. Effects of magnetic fields on dissolution of arthritis causing crystals. Journal of Applied Physics, 2015, in press
17. Yuito Miyashita, Masakazu Iwasaka, Hiroto Endo. Chlorophyll fluorescence control in microalgae by biogenic guanine crystals. Journal of Applied Physics, 2015, in press

(2)特許出願

研究期間累積件数:0 件

(3)その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

- ・千葉大学にて、グアニン結晶の光反射の磁気制御に関する論文(Langmuir, 2013)に関し、ニュース・リリースとして報道関係者への連絡と大学のHP掲載を行った。
<http://www.chiba-u.ac.jp/general/publicity/press/pdf/2012/20130313iwasaka.pdf>
- ・以下の学会にて招待講演を行った。
 - 日本磁気学会第38回学術講演会 S-3. Creation of novel materials and new analytical system using external magnetic field
 - 第 64 回コロイドおよび界面化学討論会で開催するシンポジウム
 - The 35th Annual International Conference of the IEEE Engineering in Medicine and Biology Society (EMBC' 13)
 - 他