

荧光显微镜研究极端pH值诱导磷脂支撑膜的侧向再组织*

盛洁¹⁾²⁾ 张国梁²⁾ 李玉强³⁾ 朱涛¹⁾ 蒋中英^{1)2)†}

1)(南京大学物理学院, 南京 210093)

2)(伊犁师范学院电子与信息工程学院, 伊宁 835000)

3)(伊犁师范学院物理科学与技术学院, 伊宁 835000)

(2013年10月23日收到; 2013年12月9日收到修改稿)

利用荧光显微镜研究了极端pH值诱导支撑磷脂双层膜的侧向再组织. 结果表明, 在强酸/强碱性溶液中, 流动性较好的二油酰磷脂酰胆碱支撑膜出现破裂、分离、出芽或生出微管等与细胞内吞和外排相似的现象. 基于极性分子与 H^+/H_3O^+ 或 OH^- 的相互作用, 以电中性的磷脂首基为核吸附溶液中的 H^+/H_3O^+ 或 OH^- . 当磷脂膜上下叶吸附的电荷量不同时, 引起两叶有效面积差, 即磷脂膜曲率不对称, 从而诱发磷脂膜出现各种结构和动力学的响应. 本研究有助于理解极端环境对生物膜的影响, 为研究生物膜的形变过程提供了参考.

关键词: 支撑磷脂双层膜, pH值, 膜曲率, 侧向再组织

PACS: 87.16.D-, 87.16.Dj, 87.16.Dr

DOI: 10.7498/aps.63.068702

1 引言

在机体体液中, 生物膜作为分隔细胞和细胞器的结构基础, 参与了能量转化和细胞内通信等生命过程. 体液中离子种类和浓度以及pH值等因素可能诱发生物膜出现相分离、出芽或分裂等生命现象^[1,2]. 此外, 药物加载和缓释以及生物传感器的结构和功能都受到溶液环境的影响^[3]. 因此, 研究诱发生物膜侧向再组织的机理有助于理解一些生命过程和利于仿生器件的研发^[4].

近几年, 基于囊泡和支撑膜模型, 从理论、模拟和实验上研究磷脂膜的形变已经成为一个热门课题^[5,6]. 其中, 谢毓章等^[7]提出的膜泡普适形状方程为研究膜和囊泡的形变奠定了理论基础; Li等^[2]研究了管状囊泡实时出芽的动态, 以及近期利用耗散动力学模拟了囊泡的三维形态^[8]; Bandekar和Sofou^[9]借助荧光显微镜观察到溶液pH值降低

(从7.0到5.0), 可使含少量聚苯乙烯或聚酰胺的混合磷脂巨囊泡表面形成花瓣状微畴. 这些研究为更深入地理解生物膜和囊泡丰富的形变提供了支持. 但关于溶液的极端pH值诱导单组分磷脂膜形变的研究却鲜有报道. 2011年, Goertz等^[10]通过荧光显微镜和原子力显微镜成功捕获到油酰磷脂酰胆碱支撑双层膜在极端pH值($pH \leq 2$ 的HCl溶液或 $pH \geq 12$ 的NaOH溶液)条件下磷脂膜从二维到三维结构的侧向再组织过程. 这为有关极端pH环境下单组分磷脂膜形变的研究提供了参考, 但对其动力学机理的认识还有待深入了解.

本研究利用荧光显微镜观察二油酰磷脂酰胆碱(dioleoyl-phosphatidylcholine, DOPC)支撑磷脂双层(SLBs)在溶液pH值由7.1分别更换为1.0和12.0后, SLBs由二维到三维结构的侧向再组织过程. 分析两种极端pH值环境下可能引起单组分磷脂膜形变的因素, 提出了其结构变化的动力学机

* 国家重点基础研究发展计划(批准号: 2012CB821500)和国家自然科学基金(批准号: 21264016, 21364016)资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: jiangzhying@163.com

理. 解释了DOPC SLBs在强酸性环境中破裂和在强碱环境中突起、出芽及出微管等实验现象. 本研究为描述极端pH值对磷脂膜的影响提供了理论依据, 为载药系统或生物传感器的设计提供了参考.

2 实验部分

2.1 材料

纯度99%的DOPC, 罗丹明B磷脂酰乙醇胺[1,2-dipalmitoyl-sn-glycero-3-phosphoethanolamine-N-(lissamine rhodamine B sulfonyl), RhB-PE]和三(羟甲基)氨基甲烷盐酸盐-盐酸(Tris-HCl)购于美国Sigma公司. DOPC和RhB-PE的分子式如图1所示. 氯化钾(KCl)、浓盐酸(HCl)、氢氧化钾(KOH)、氯仿、无水乙醇、甲醇、氨水(25%)、双氧水(30%)均为分析纯试剂. 制备SLBs实验用Tris缓冲液(10 mM Tris, 150 mM NaCl, pH = 7.1). 实验所用KCl溶液(100 mM), 使用HCl和KOH调节pH值; 所用水为Milli-Q超纯水(Millipore Co.), 电阻率18.2 M Ω ·cm. SLBs的基底采用厚0.17 μ m的硼硅酸玻璃盖玻片, 购自美国的Fisher Scientific公司.

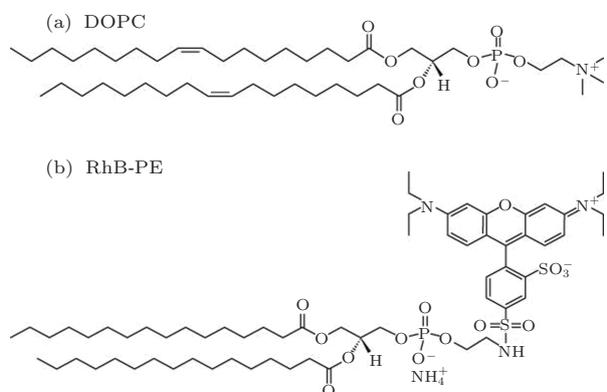


图1 DOPC和RhB-PE的分子式

2.2 荧光显微镜和反应舱室

利用倒置显微镜(IX71S8F-3, OLYMPUS)实时观测SLBs的形变过程(物镜: 10 \times , 40 \times 和60 \times). 显微镜热台(HCS60, INSTEC)用于实验过程中的温度控制. 实验反应舱室如图2所示, 用真空硅脂将开孔的聚四氟乙烯(PTFE)片(孔径3 mm, 厚1 mm)密封在干净的基底上, 隔出圆形成膜区; 用开孔的PTFE片(孔径10 mm, 厚5 mm)构成储液

室; 实验过程中用干净的普通玻璃片覆盖舱口, 避免蒸发和灰尘等因素对实验的影响.

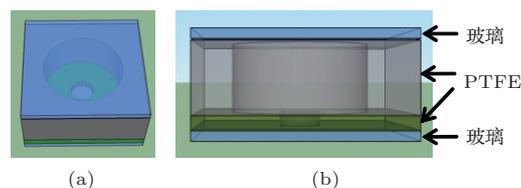


图2 实验反应舱室示意图 (a) 舱室俯视图; (b) 舱室平视图

2.3 样品制备

囊泡通过超声法制备^[11], 其过程简述如下: 在小烧杯中, 氮气干燥磷脂氯仿溶液(含罗丹明0.5 mol %)形成磷脂膜; 在25 $^{\circ}$ C的真空干燥箱中至少12 h以上, 使氯仿充分挥发; 缓冲液水化磷脂膜, 超声2 h形成粒径约20—100 nm的单室脂质体.

玻璃基底清洗步骤: 用乙醇和甲醇分别超声10 min, 高纯氮气吹干; 用超纯水: 氨水: 双氧水 = 5 : 1 : 1(v : v : v), 60 $^{\circ}$ C, 油浴加热15 min; 用大量超纯水冲洗后高纯氮气吹干; 使用前用紫外/臭氧(UV/Ozone)清洗30 min.

SLBs制备步骤: 将囊泡溶液滴在已处理好的玻璃基底的成膜区, 室温下孵化15 min, 即可自组装形成均匀完整的SLBs^[12]; 用Tris缓冲液替换舱内剩余的囊泡溶液, 以除去舱内和吸附在SLBs上的囊泡.

2.4 荧光漂白恢复(FRAP)实验

利用FRAP实验检测SLBs的流动性^[13]. 先用pH = 7.1的KCl溶液彻底替换Tris缓冲液, 保留很薄一层KCl溶液, 静置5 min. 然后对SLBs曝光60 s, 膜上出现直径 \sim 80 μ m的光斑; 光斑30 s后扩散恢复变淡, 180 s后完全恢复, 如图3(a)—(d)所示. 归一化荧光强度图3(e)定量的反映出SLBs的荧光强度自漂白到恢复的过程, 证明实验制备的SLBs是流动的, 这为膜形变提供了基本条件. 此后, 将pH = 1.0或pH = 12.0的KCl溶液加入舱内, 使用显微镜实时观察SLBs的形变.

3 结果与讨论

3.1 极端环境中的磷脂分子和基底

磷脂分子中羟基脂的键和磷酸脂的键在强酸性或强碱性溶液中易水解^[14]. 在 $\text{pH} = 1.0$ 时磷脂的水解速率为 $10^{-5} \sim 10^{-6} \text{ s}^{-1}$, $\text{pH} = 12.7$ 时磷脂的水解速率为 $10^{-3} \sim 10^{-6} \text{ s}^{-1}$. 换言之, 这个速率的半衰期约为 20 min—50 h, 具体情况取决于温度、离子强度以及磷脂的聚集状态. 实验观察到, 当改变溶液 pH 后仅几秒, SLBs 即出现形变. 因此,

在此研究中磷脂水解不作为主要影响因素考虑.

DOPC 的首基是由负电性的甘油磷酸和对环境敏感的四铵盐阳离子构成的亲水链, 可等效为一对偶极子, 即整体上表现为电中性. 亲水链与疏水的尾部之间存在一个夹角 θ ^[15], 如图 4(a) 所示. 由于离子吸附作用, $\text{H}^+/\text{H}_3\text{O}^+$ 吸附于亲水链尾部的甘油磷酸, 而 OH^- 则吸附在亲水链头部的四铵盐阳离子上, 如图 4(b) 所示. 因此, 磷脂分子的电性依赖于磷脂首基在不同 pH 溶液中吸附的 $\text{H}^+/\text{H}_3\text{O}^+$ 或 OH^- ^[16].

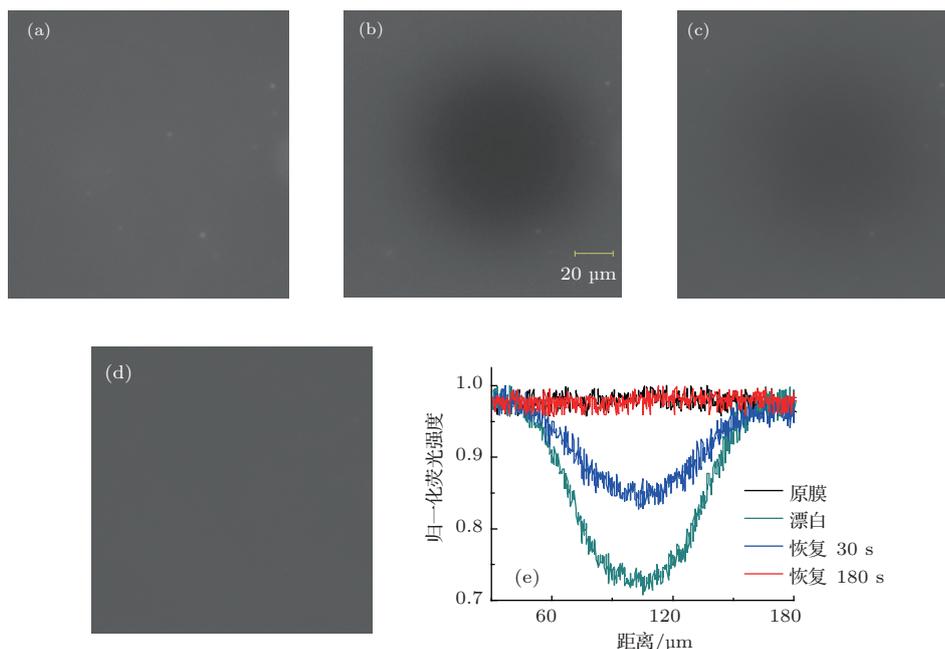


图3 (网刊彩色) FRAP 实验显微镜荧光图像 (物镜 40 \times) (a) SLBs; (b) 漂白; (c) 恢复 30 s; (d) 恢复 180 s; (e) 归一化荧光强度叠加图

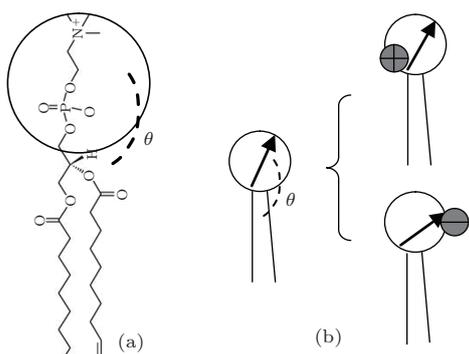


图4 DOPC 分子简化示意图

硼硅酸玻璃经亲水处理后, 表面的 Si 和 B 原子绑定羟基官能团显负电性. 由于玻璃和溶液接触时, 吸附溶液中的正离子或负离子, 使玻璃表面在酸性溶液中带正电, 在碱性溶液中带负电^[17]. 因此, 当溶液变为强酸/强碱性后, SLBs 和基底表面

之间产生的静电斥力使两者的物理吸附减弱, 更利于 SLBs 形变.

3.2 磷脂膜在强酸性溶液中

强酸性溶液可导致 SLBs 出现明显的形变. 当注入 $\text{pH} = 1.0$ 的 KCl 溶液后, 平整的 DOPC SLBs 上出现分布均匀的缺陷 (无荧光区域), 如图 5(a) 和 (b) 所示. 磷脂分子首基中的甘油磷酸吸附 $\text{H}^+/\text{H}_3\text{O}^+$ 后, 磷脂分子显正电性. 这可以造成磷脂分子极性头的屏蔽效应, 进而影响到周围偶极子的分布, 形成最初的微区^[18], 如图 6(a) 所示. 相邻的微区相互融合, 且融合增大的微区间静电排斥增强.

甘油磷酸位于磷脂分子亲水链的下端, 则 $\text{H}^+/\text{H}_3\text{O}^+$ 将插入磷脂膜的亲水层内部, 故

H^+/H_3O^+ 的吸附对 θ 的改变较小. 相对磷脂分子的有效面积约为 0.2 nm^2 , 直径较小的 H^+ (约 $1.6 \times 10^{-6} \text{ nm}$) 对其尺寸的影响可忽略不计, 但较大半径的 H_3O^+ (约 0.2 nm) 则可增大磷脂分子的横截面积, 如图 6(b) 所示. 由于强酸性溶液中的 H^+/H_3O^+ 扩散优先接触到 SLBs 的上叶, 且磷脂膜对 H^+/H_3O^+ 的渗透性差, 导致了 SLBs 两叶对 H^+/H_3O^+ 的吸附量不对称^[10]. 在很短的时间内, 插入的 H^+/H_3O^+ 增大了磷脂上叶的有效面积. 因此, SLBs 上 H^+/H_3O^+ 富集的微区在自发曲率和不对称的表面张力以及微区间静电排斥的共同作

用下, 自发隆起并撕裂, 如图 6(b) 和 (c) 所示. 如图 5(b) 和 (c) 所示, 几秒钟内, SLBs 被撕裂, 即产生了缺陷, 缺陷区域的面积先增大后逐渐缩小, 但最终没有愈合.

缺陷的出现使 H^+/H_3O^+ 快速扩散进入 SLBs 和基底间水层中. 当 SLBs 两边的 H^+/H_3O^+ 浓度逐渐一致后, 两叶吸附的 H^+/H_3O^+ 量趋于相等, 则隆起的微区因两叶的曲率达到一致而铺平, 即缺陷的面积停止增大并缩小. 由于磷脂膜碎片边缘的亲水性和静电排斥, 膜碎片不易愈合, 如图 5(c) 中插图所示.

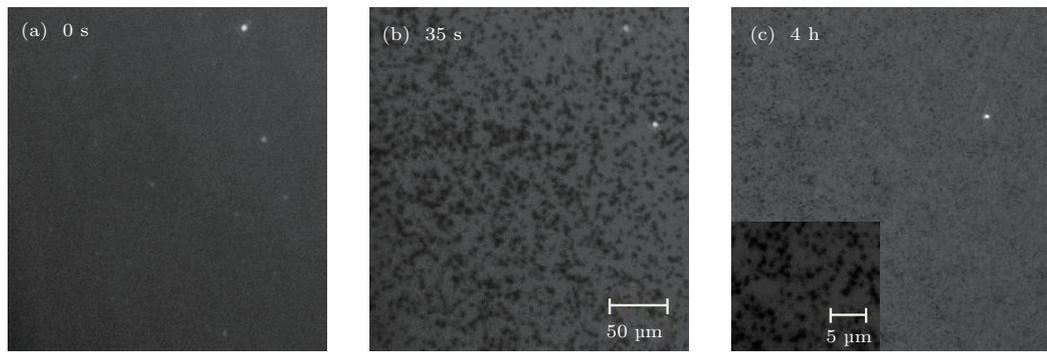


图 5 注入 pH = 1.0 的 KCl 溶液 (0.1 mol/L) 后, DOPC SLBs 形变的荧光图像 (a)—(c) 为物镜 10 \times , (c) 中插图为物镜 60 \times

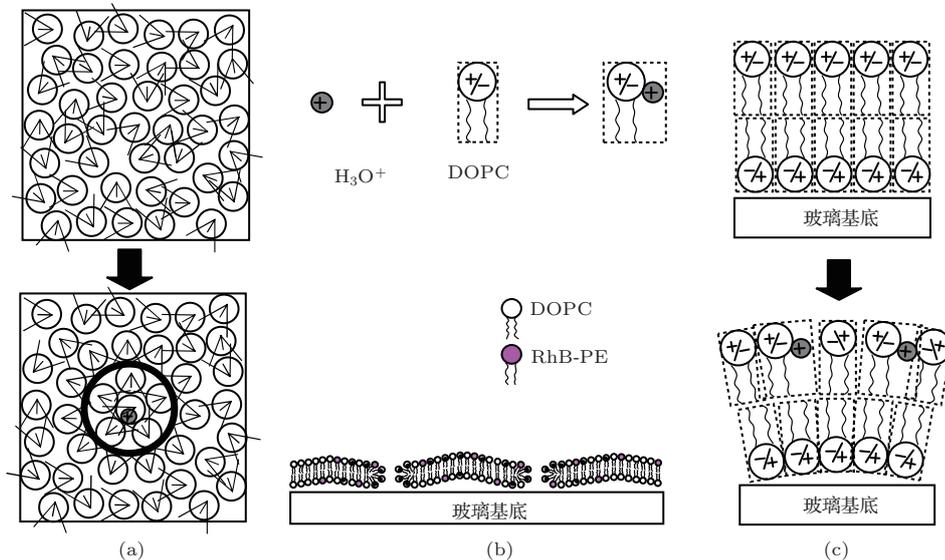


图 6 强酸性条件下 DOPC SLBs 形变示意图 (a) 微区形成; (b) 缺陷形成 (与图 5(b) 对应); (c) 不对称曲率的产生过程

3.3 磷脂膜在强碱性溶液中

磷脂膜浸入强碱性溶液中后, SLBs 发生一系列复杂的形变, 其中包括 SLBs 的重组、出芽、出微

管、微管团聚、微管脱离以及 SLBs 撕裂等现象. 这与 Goertz 等^[11] 观察到 NaOH 使 POPC 支撑膜分层、愈合和产生补丁等现象有差异. 如图 7(a)—(b) 所示, 加入 pH = 12.0 的 KCl 溶液初期, 均匀的

DOPC 双层呈现亮暗区域相间的状态. 其中, 亮区似云朵状, 暗区虽然荧光减弱, 但非强酸环境下 SLBs 撕裂的缺陷, SLBs 依旧完整.

四铵盐阳离子位于磷脂分子首基的上端, 不同于 H^+/H_3O^+ 插入磷脂膜亲水层内部, OH^- 的吸附将减小 θ , 进而增大疏水链的横截面积. OH^- 半径约为 0.137 nm, 相对于磷脂分子首基的有效半径 (约 0.25 nm) 不可忽略. 因此, 磷脂分子吸附 OH^- 后, 使磷脂分子从柱状变成倒圆台状, 如图 8(a) 所示. 当注入强碱溶液后, 溶液中的 OH^- 首先扩散吸附到 SLBs 的上叶, 因屏蔽效应形成微区. 随着 OH^- 吸附量增加, 临近的微区融合. 微区内磷脂分子间的有效面积和分子间静电排斥均显著增大. 另外, SLBs 与基底间水层中的 OH^- 数量和分布取决于 SLBs 的渗透性^[10]. 对于低渗的微区, SLBs 两叶不对称的 OH^- 吸附量导致上叶有效面积增大, 在自发曲率和表面张力以及静电斥力的共同作用下, 此处 SLBs 自发轻微隆起, 如图 8(b) 所示. 磷脂膜纵向隆起的区域拉动其周围磷脂膜, 使其横向变得

疏松. 这利于 OH^- 从此处渗入磷脂膜和基底间的水层中. OH^- 渗透较多的区域, 简记为高渗区, 反之亦为低渗区. 高渗区 SLBs 两叶的表面和分子间静电排斥均增大, 则挤压低渗区隆起. 高渗区磷脂分子间距增大使其中的荧光分子更分散, 即表现为荧光变暗.

实验观察到, 暗区面积逐渐减小, 亮区相互链接, 如图 7(b) 和 (c) 所示. 约 2 min 后, 一块平整的新 SLBs 形成. 由 FRAP 实验验证可知, 新 SLBs 是流动性较好的双层膜. 在强碱环境中的新 SLBs 较酸性条件下更容易被缓冲液冲离基底. 说明随着渗透入水层中 OH^- 量的增多, 吸附了负电荷的磷脂膜与负电性玻璃表面间的静电排斥越强. 这导致基底对 SLBs 的吸附减弱, 确保了 SLBs 较好的流动性和完整性. 由于 OH^- 不断的渗透以及在水层中的扩散, 低渗区磷脂膜的曲率将减小, 则此处 SLBs 停止继续纵向隆起. 在分子间范德华力的作用下, 此处 SLBs 拉动其周围磷脂膜浮起, 即形成新的 SLBs.

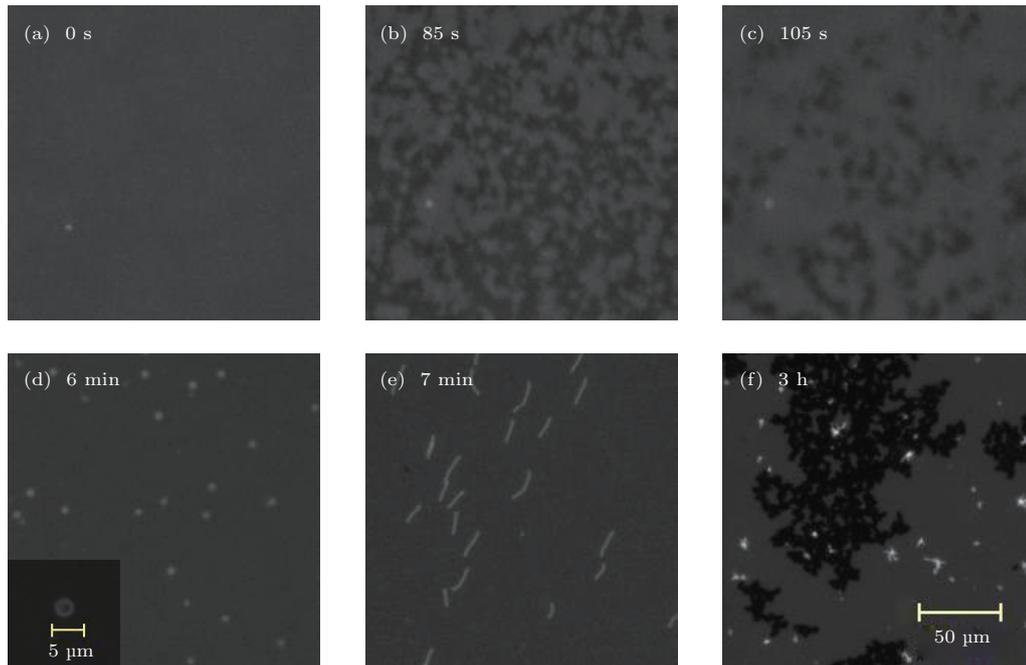


图7 注入 pH = 12.0 的 KCl 溶液 (0.1 mol/L) 后, DOPC SLBs 形变的显微镜荧光图 (a)–(f) 为物镜 10 \times , (d) 中插图为物镜 60 \times

新 SLBs 保持平整状态仅几分钟, 随即出现分布均匀的小亮点且亮点增大. 用 60 倍物镜在不同聚焦层面上观察, 发现亮点是直径约 3 μm 的“球形”凸芽, 如图 7(d) 及插图所示. 受到 SLBs 与基底间水层厚度的限制, 即使 SLBs 两侧 OH^- 浓度直接

近相等, 渗入水层中的 OH^- 数量仍远少于 SLBs 上方溶液中的数量. 因此, 在 SLBs 上叶 OH^- 较富集的微区内, 磷脂分子间的静电排斥和表面张力导致此处膜自发产生“帽形”凸起. 此后, 将是微区到“球形”凸芽的过渡期, 其中包括微区、“帽形”凸起

和“球形”凸芽这三种状态间的相互融合^[18]. 最后, 磷脂膜上则以“球形”凸芽占主导. 对显微镜荧光图 8(c) 做水平和垂直方向的荧光强度分析, 其两个方向的荧光强度相似, 且光强峰间距相近. 这表明该图像是一个空心球, 如 8(e) 所示. 对于 SLBs 而言, 微区的形变主要取决于膜的曲率和界面张力, 其中界面张力是微区形成凸芽的推动力^[18]. 显然曲率和界面张力的改变都源于磷脂中极性头对 OH⁻ 的吸附. 此外, 钾离子不能直接渗透磷脂膜使 SLBs 两边存在渗透压对膜形变的也具有一定的贡献; 并且也不排除钾离子对磷脂膜上微区结构和稳定性的影响^[19], 这一点尚需进一步证实.

生出的“球形”凸芽约 1 min 后被拉长成微管, 如图 7(e) 所示. 在 SLBs 上方水层剪切力和膜界面

张力等因素的共同作用下, “球形”凸芽伸出 SLBs, 形成了如图 8(f) 所示的微管. 柔软且细长的微管在溶液中极易团聚, 如图 7(f) 所示. 流动的双层膜为形成微管提供了所需的磷脂分子, 但微管不会无限增长. 微管数量和长度的增加, 消耗了很多 SLBs 中的磷脂分子, 使 SLBs 中磷脂分子侧向间距增大, 即疏松的磷脂膜随时面临崩溃. 微管团聚后, 其质量集中且受力面积增大, 受到溶液剪切力也增大. 实验观察到, 在 1.5 h 后部分团聚的微管被拔离表面, 该处出现缺陷, 3 h 后出现大片面积的缺陷, 如图 7(f) 所示. 显然, 当微管脱离 SLBs 表面后, 在分子间范德华力的作用下稀疏的磷脂膜聚集收缩, 则膜上出现撕裂的缺陷. 流动的磷脂膜中缺陷可以合并, 生成更大面积的缺陷.

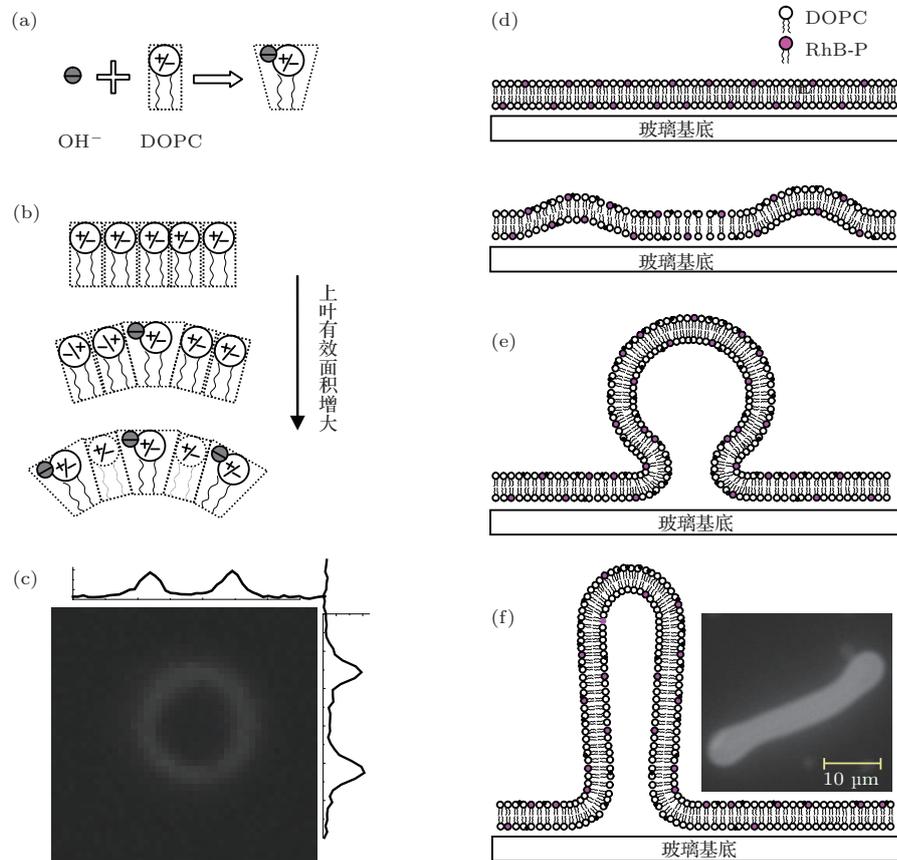


图 8 强碱性条件下 DOPC SLBs 形变示意图 (a) DOPC 吸附 OH⁻; (b) 曲率变化; (c) “球形凸芽” 荧光图及对应的荧光强度; (d) SLBs 隆起 (与图 7(b) 对应); (e) “球形凸芽” (与图 7(d) 对应); (f) 微管示意图和荧光图 (物镜 60×) (与图 7(e) 对应)

4 结 论

以平面支撑仿生膜为研究对象, 利用荧光显微镜观测和分析极端 pH 值溶液中 DOPC 双层膜侧

向再组织的行为. 根据质子化和离子吸附可知, 磷脂分子和玻璃基底的电性依赖于 pH 环境. 在极端 pH 条件下, 磷脂膜吸附 H⁺/H₃O⁺ 或 OH⁻ 而形成的微区, 因不对称的吸附量导致微区曲率不对称, 磷脂膜在自发曲率、表面张力和静电斥力的作用下

形变. 强酸性溶液中, H^+/H_3O^+ 插入磷脂膜亲水层, 增大磷脂分子横截面积, 使磷脂膜迅速隆起且撕裂; 强碱性溶液中, 吸附在亲水链上端的 OH^- 使圆柱体的磷脂分子变为圆台, 显著增大了磷脂膜的有效表面积, 进而在自发曲率、界面张力、渗透压和剪切力等因素的共同作用下产生了一系列复杂的形变. 该研究为更深刻地理解生物膜侧向再组织行为的机理提供了参考, 有助于生物膜形变在实际中的应用.

参考文献

- [1] Suresh S, Edwardson J M 2010 *Biochem. Bioph. Res. Co.* **399** 571
- [2] Li L, Liang X Y, Lin M Y, Qiu F, Yang Y L 2005 *JACS* **127** 17996
- [3] Li R T, Xie L, Zhu Z S, Liu Q, Hu Y, Jiang X Q, Yu L X, Qian X P, Guo W H, Ding Y T, Liu B R 2011 *PLoS One* **6** 24172
- [4] Li D X, He Q, Cui Y, Li J B 2007 *Chem. Mater.* **19** 412
- [5] Yang K, Ma Y Q 2012 *Soft Matter* **8** 606
- [6] Zhou X H, Zhang S G, Yang J Q, Qu X M, Liu Y S, Wang S G 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 6137 (in Chinese) [周晓华, 张劭光, 杨继庆, 屈学民, 刘渊声, 王斯刚 2007 物理学报 **56** 6137]
- [7] Xie Y Z, Liu J X, Ouyang Z C 2002 *Elastic Theory of Surfaces of Biomembrane-Vesicle* (Shanghai: Shanghai Scientific and Technical Publishers) p87 (in Chinese) [谢毓章, 刘寄星, 欧阳钟灿 2002 生物膜泡曲面弹性理论 (上海: 上海科学技术出版社) 第 87 页]
- [8] Xia B K, Li J F, Li W H, Zhang H D, Qiu F 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 248701 (in Chinese) [夏彬凯, 李剑锋, 李卫华, 张红东, 邱枫 2013 物理学报 **62** 248701]
- [9] Bandekar A, Sofou S 2012 *Langmuir* **28** 4113
- [10] Goertz M P, Goyal N, Montano G A, Bunker B C 2011 *Langmuir* **27** 5481
- [11] Liu X H, Huang W M, Wang E K 2005 *J. Electroanal. Chem.* **577** 349
- [12] Jiang Z Y, Zhang G L, Ma J, Zhu T 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 018701 (in Chinese) [蒋中英, 张国梁, 马晶, 朱涛 2013 物理学报 **62** 018701]
- [13] Yamazaki V, Sirenko O, Schafer R J, Groves J T 2005 *JACS* **127** 2826
- [14] Zhang J A A, Pawelchak J 2000 *Eur. J. Pharm. Biopharm.* **50** 357
- [15] Wang B, Zhang L F, Bae S C, Granick S 2008 *PNAS* **105** 18171
- [16] Garcia-Manyes S, Oncins G, Sanz F 2006 *Electrochim. Acta* **51** 5029
- [17] Wang C Y, Tao Y 1993 *Glass Surface and Surface Treatment* (Beijing: China Building Materials Press) p123 (in Chinese) [王承遇, 陶瑛 1993 玻璃表面和表面处理 (北京: 中国建材工业出版社) 第 123 页]
- [18] Liang X Y 2007 *Ph. D. Dissertation* (Shanghai: Fudan University) (in Chinese) [梁新宇 2007 博士学位论文 (上海: 复旦大学)]
- [19] Vacha R, Siu S W I, Petrov M, Bockmann R A, Barucha-Kraszewska J, Jurkiewicz P, Hof M, Berkowitz, M L, Jungwirth P 2009 *J. Phys. Chem. A* **113** 7235

Extreme pH-induced lateral reorganization of supported lipid bilayer by fluorescence microscope*

Sheng Jie¹⁾²⁾ Zhang Guo-Liang²⁾ Li Yu-Qiang³⁾ Zhu Tao¹⁾ Jiang Zhong-Ying¹⁾²⁾†

1) (Physics School of Nanjing University, Nanjing 210093, China)

2) (College of Electronic and Information Engineering, Yili Normal University, Yining 835000, China)

3) (Physical Science and Technology, Yili Normal University, Yining 835000, China)

(Received 23 October 2013; revised manuscript received 9 December 2013)

Abstract

The extreme pH-induced lateral reorganization of supported lipid bilayer membranes are studied by fluorescence microscopy. The results show that the fluid dioleoyl-phosphatidylcholine bilayers in extreme acidic or basic solution presents a similar phenomenon to endocytosis and exocytosis, such as rupture, detachment, budding, formation of microtubules etc. In the view of the interaction of polar molecules with H^+/H_3O^+ or OH ions, we conclude that the zwitterionic phospholipid headgroup as core adsorbs the H^+/H_3O^+ or OH ions in electrolyte solution. The asymmetric charge adsorption quantity of the lipid headgroups leads to the effective area discrepancy between the outer and inner leaflets of lipid bilayers. The asymmetric membrane curvatures induce a variety of structures and dynamic responses. The present study helps explain lipid membranes reorganization under extreme pH conditions and provides some guidelines for deformation process of lipid membranes.

Keywords: supported lipid bilayers, pH value, membrane curvature, lateral reorganization

PACS: 87.16.D-, 87.16.Dj, 87.16.Dr

DOI: 10.7498/aps.63.068702

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2012CB821500) and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 21264016, 21364016).

† Corresponding author. E-mail: jiangzhying@163.com