

## 1P132

### 第一原理分子シミュレーションによる DNA 二重鎖の電気伝導特性の解析

(豊橋技術科学大学<sup>1</sup>、プエルトリコ大学<sup>2</sup>)

○前田躍<sup>1</sup>、塚本貴志<sup>1</sup>、岡本晃澄<sup>1</sup>、干場靖浩<sup>1</sup>、Ishikawa Yasuyuki<sup>2</sup>、栗田典之<sup>1</sup>

#### 【はじめに】

ナノテクノロジーの発達に伴い、単一分子を用いた電子デバイスが提案されている。DNA 二重鎖中を電荷が長距離移動できることが実験[1,2]で示され、DNA 二重鎖をナノサイズの電気伝導体として応用する研究が進められている。DNA 二重鎖の直径は数 nm 程度であり、DNA 二重鎖を集積回路の配線として利用できれば、ナノサイズの集積回路が実現可能である。しかし、DNA 二重鎖の電気伝導特性は実験環境に大きく影響され、実験ごとに異なる電気伝導特性が報告されてきた[3-5]。これらの特性変化が起きる原因は未解明であり、DNA 二重鎖を伝導性ワイヤーとして利用する際のボトルネックとなっている。

本研究では、塩基配列の異なる 2 種類の DNA 二重鎖の電子状態を、真空中及び水中において密度汎関数(DFT)法を用いて計算し、量子輸送理論に基づいて電気伝導特性を解析した。その結果を基に、DNA 二重鎖の塩基配列、周囲の水和水、及び電極との結合構造が、DNA 二重鎖の電気伝導特性に及ぼす影響を明らかにした。

#### 【DNA 二重鎖と電極の構造】

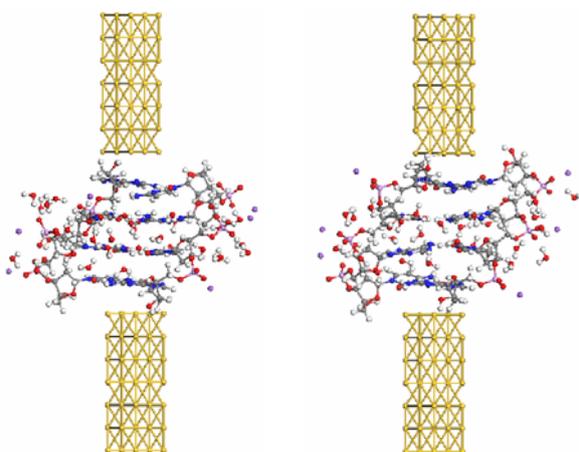
本研究では電気伝導特性の塩基配列依存性を調べるため、5' -CGCG-3' 及び 5' -CATG-3' の塩基配列を持つ 2 種類の DNA 二重鎖の立体構造を作成した。その構造の周囲に 8 Å 以上の空きができるよう周期境界条件を適用し、内部を水分子で満たした。古典分子力学計算プログラム AMBER9 を用い、まず水分子の構造を最適化し、その後、300 K まで温度を上げ、1 ns の分子動力学計算を行い、1000 個の構造の中から最安定構造を決定した。その際、DNA 二重鎖には AMBER99、水分子には TIP3P の分子力場を用いた。

次に、Fig. 1 に示すように、DNA 二重鎖のそれぞれの鎖の末端塩基部分に金電極を付加した。その際、金電極の中心軸が DNA 二重鎖のらせん軸と平衡になるように、金電極を塩基にスタックさせた。金電極のモデルとして、Au(111)表面の構造から 44 個の金原子を抜き出した構造を用いた。なお、金電極と接する塩基と金電極表面間に存在する水分子は削除した。DNA 二重鎖の塩基と金電極のスタッキング距離を決定するため、その距離を 3.0~3.8 Å の範囲で 0.2 Å 刻みごとに変化させ、DNA 二重鎖+金電極の電子状態を DFT 計算プログラム SIESTA で計算した。その際、DNA 二重鎖として 5'-CGCG-3' の塩基配列を持つ DNA 二重鎖を用い、密度汎関数には Revised PBE、基底関数には Double Zeta の Numerical basis set を用いた。Fig. 2 に示すように、スタッキング距離が 3.2 Å の構造において、DNA 二重鎖と金電極間の結合エネルギーが最大になった。そこで、他の DNA 二重鎖に関しても、この距離を用いて、金電極を付加した。作成した水中の DNA 二重鎖+金電極の構造を Fig. 1 に示す。なお、真空中の構造は Fig. 1 の構造より水分子を削除した構造とした。

## 【DNA 二重鎖の電気伝導特性】

DFT 計算によって得られるハミルトニアンを基に、非平衡 Green 関数を作成し、電気伝導特性計算プログラム[6]を用い、金電極で挟んだ DNA 二重鎖の電気伝導特性を解析した。

Fig. 3、4 に水中の DNA 二重鎖の透過関数と水中及び真空中の電流電圧曲線を示す。Fig. 3 に示すように、フェルミレベル付近の透過率は CGCG の方が高いため、0 V 付近の電気伝導度は CGCG の方が高くなる (Fig. 4)。一方、フェルミレベルから  $\pm 0.2$  eV 付近の透過率は、CATG の方が高くなり、4 V 以上の電圧では CATG の方が電気伝導が高くなると考えられる。また、低電圧領域での電気伝導度を比較すると、Fig. 4 に示すように、水和の影響で伝導度が大幅に増大する。これらの結果は Xu らの実験値[3]と定性的に一致し、本研究で用いた構造モデルと計算手法により、他の DNA 二重鎖の伝導度も高精度に解析できると考えられる。



(a) 5'-CGCG-3'

(b) 5'-CATG-3'

Fig. 1 Structures for DNA duplex + Water and Au Electrodes

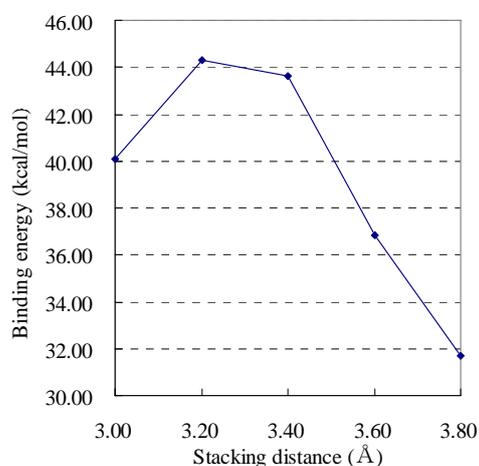


Fig. 2 Binding energy of CGCG duplex attached to the Au electrodes depending on the stacking distance

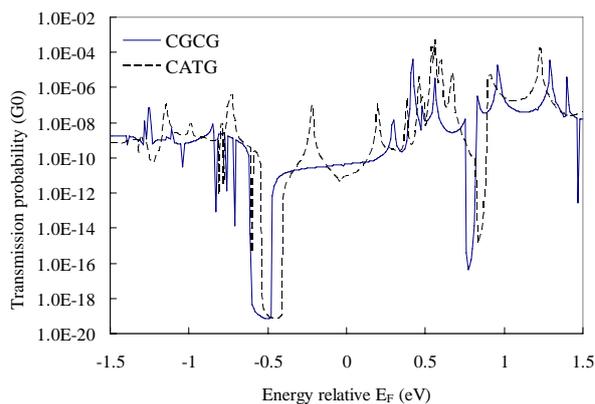


Fig. 3 Transmission probability for DNA duplexes in water

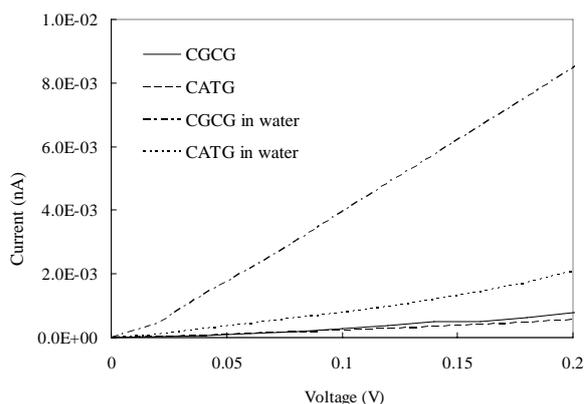


Fig. 4 I-V curves for DNA duplexes

## 【参考文献】

[1] Y. A. Berlin et al., *Chem. Phys.* 2002, 275, 61. [2] M. Bixon et al., *J. Am. Chem. Soc.* 2001, 123, 12556. [3] B. Xu et al., *Nano Lett.* 2004, 4, 1105. [4] L. Cai et al., *Appl. Phys.* 2000, 77, 3105. [5] T. Tada et al., *J. Chem. Phys.* 2004, 121, 8050. [6] V. Meunier, et al., *J. Chem. Phys.* 2005, 123, 024705.