

3P085

水和ペプチドのイオン化ダイナミクス
(加古川市立少年自然の家¹、北大院工²) 福澄孝博¹, 田地川浩人²

Direct Ab Initio MD Study on the Ionization of Micro-hydrated Formanilide FA(H₂O)_n
(n=1-3)

(Kakogawa city Youth Outdoor Learning Center and Hokkaido Univ.) Takahiro Fuuzumi and Hiroto Tachikawa

■ 諸言 ■

水分子は生体内で非常に重要な役割を担っている。例えば、タンパク質の立体構造の安定化や酵素機能の発現、タンパク質間の分子認識等に関与していることが知られている。そのため、宇宙線等の外部刺激による DNA 損傷を考える場合、常に水和を考慮したモデルの構築が必要となる。

本研究では、水和したアミノ酸残基やペプチド鎖への宇宙線の照射効果を明らかにするため、ペプチド結合のモデルである trans-formanilide (FA) Kakogawa city Youth Outdoor Learning Center 用いて研究を行った。具体的には FA の少数水和クラスターの溶媒和構造、およびイオン化ダイナミクスについて研究し、損傷ダイナミクスの理論モデルを構築した。

■ 計算方法 ■

FA(H₂O)_n (n=1-3) のイオン化ダイナミクスを、direct ab initio 分子動力学計算により行った [1, 2]。まず、中性の水和ペプチド FA(H₂O)_n (n=1-3) を 10K の温度で 3 ps 熱浴状態とし、構造および初期運動量ベクトルを発生させた。この計算は、B3LYP/6-311G(d, p) レベルで行った。これらの構造 (核座標) および運動量ベクトルを各原子の初期条件とし、垂直イオン化したカチオンポテンシャル面上でのトラジェクトリー計算を行った。

■ 結果と考察 ■

中性 FA(H₂O)₃ の最適化構造を、図 1 に示す。水分子は、三つの結合部位に水素結合により水和した。それぞれの水分子の結合サイトを、N-H、C=O、および架橋ブリッジサイトと呼ぶ。N-H および C=O サイトにおける水分子は、それぞれ、-NH-CO-ペプチド結合の NH 基および C=O 基に結合して

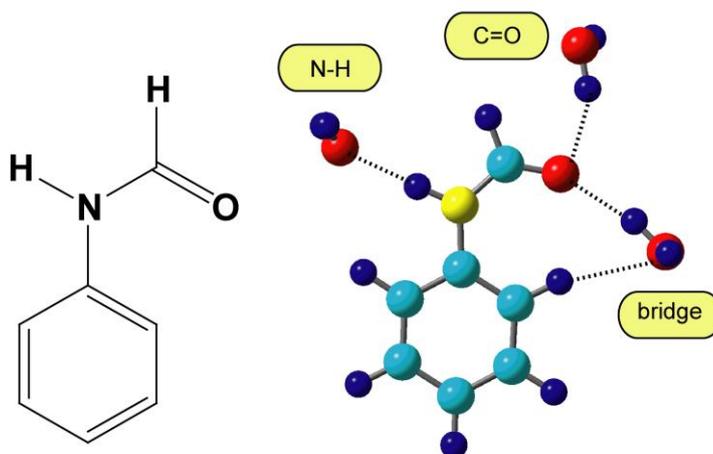


図 1 水和ホルムアミド(水和ペプチドのモデル分子)の構造と水分子の結合サイト。MP2/6-311++G(d,p) 計算による最適化構造。

いる。架橋ブリッジサイトにおける水分子は、C=O カルボニル基の酸素と芳香環の水素原子との橋渡しをしている構造を取っている。

本研究では、これら三つの中性 FA (H_2O) $_n$ ($n=1-3$) の各最適化構造から垂直イオン化し、その後のトラジェクトリーをそれぞれ追尾した。図 2 に水 3 分子が付加した水和ペプチドのイオン化後のスナップショットを示す。イオン化後、NH サイトの水分子は、移動せず、そのサイトにとどまり、振動するのみであった。これに対し、C=O および架橋サイトの水分子は、イオン化後、大きく移動した。C=O サイトの水分子は、N-H サイト側に大きく移動し、500 fs 後に N-H サイトの水分子とダイマー形成した。

架橋サイトの水分子は、イオン化後、ベンゼン側に移動し、大きくベンゼン環のふちを周回運動的に移動したのち、1600 fs 後に、水 3 量体を生成した。これらの計算結果に基づき、反応のモデルを構築した。

[1] Tachikawa, H. ; Fukuzumi, T., *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 13, 5881-5887 (2011).

[2] Tachikawa H., Fukuzumi, T., *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 12, 15399 - 15405 (2010)

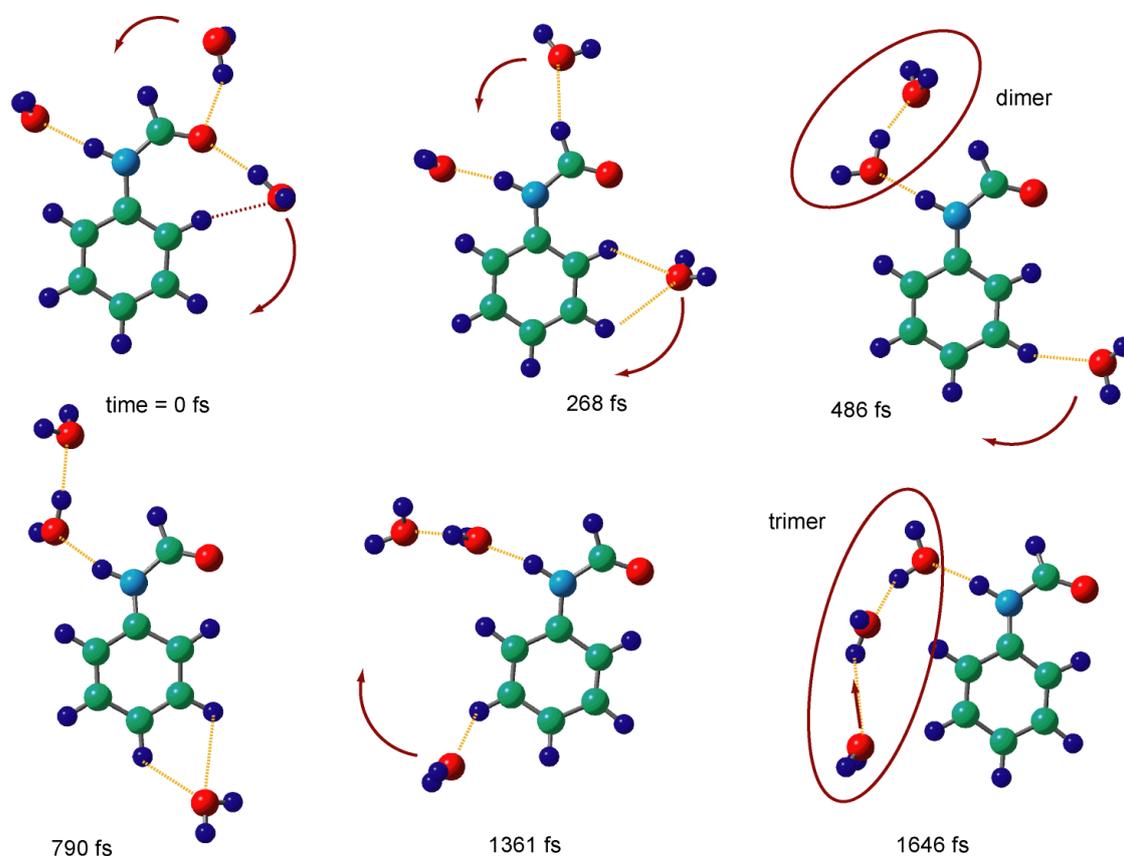


図 2 水和ホルムアミド(3水和体)のイオン化後のスナップショット。構造と水分子の結合サイト。B3LYP/6-311G(d,p)計算によるトラジェクトリー。