

2P125

アデニン - チミン対・水クラスターにおける 原子核の量子効果の影響

(横浜市大院・生命ナノ*, 東大院・総文**) ○渡邊紗羅*, 緒方勇大*, 河津励**, 立川仁典*

Nuclear quantum effect on adenine-thymine pair with a water molecule

(Graduate School of Nanobioscience, Yokohama City Univ.*,

Graduate School of Arts and Sciences, Tokyo Univ.**)

○Sara Watanabe*, Yudai Ogata*, Tsutomu Kawatsu**, Masanori Tachikawa*

【序論】 デオキシリボ核酸(DNA)は四種類の塩基とリン酸、糖から構成され、二重らせん構造を成す[1]。この二重らせん構造を維持するためには、核酸塩基対間で形成される水素結合の存在が必要不可欠であり、それらの詳細な構造を得ることは DNA の構造を理解する上で大変重要である。しかし、塩基対間に存在する水素結合の構造を実験的に直接観測することは困難であり、理論的な解析が期待される。大道らは、塩基対単体に対し

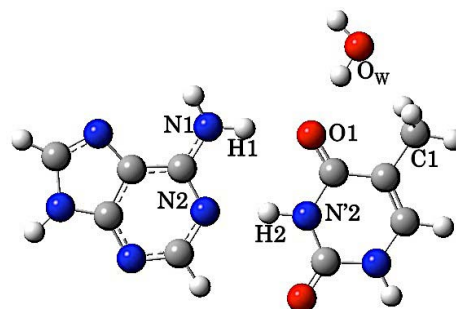


Figure 1 Schematic illustration of Adenine-Thymine pair with one water molecule (AT-W)

て行った理論計算[2, 3]より、塩基対間の水素結合の構造を精密に再現するためには、電子状態の寄与だけではなく、原子核の量子効果と温度効果を共に考慮した計算が重要であることを明らかにした。さらに原子核の量子効果により、塩基対間の揺らぎ成分が定性的に異なることも明らかにした。一方、現実の DNA 環境下では塩基対の周囲にはリン酸、糖、水が存在するため、より精密に水素結合構造を再現するためには、それら周囲環境の寄与も考慮すべきである。そこで本研究では、まず周囲環境を考慮した最も簡単な系として、アデニン - チミン対に水分子を一つ付加させた系(AT-W)に着目し、原子核の量子効果と温度効果を共に考慮できる経路積分分子動力学(PIMD)法を用いて、水分子が塩基対の構造や揺らぎに与える影響を解析した。

【計算詳細】 経路積分法は、 N 体の量子的な粒子を $N \times P$ 体の古典的な粒子(P : ビーズ数)として扱うことで原子核の量子性を表現することができる[4]。また、配置生成には分子動力学法を用いた。計算条件は、温度 150K、ビーズ数 $P=32$ 、ステップ数 500,000 steps とした。また原子核の量子効果を評価するために、原子核を古典的に扱う従来の分子動力学(MD)計算

も行った。その計算条件は、温度 150K、ビーズ数 $P=1$ 、ステップ数 2,000,000 steps である。PIMD と MD の各ステップにおける全てのエネルギー・力は半経験的手法である PM6-DH+法[5]による電子状態計算で *on-the-fly* で求めた。

【結果・考察】 水分子が分子全体の揺らぎに与える影響を調べるために、各 MD サンプルング構造に対する主成分解析を行った。水分子を付加しない AT pair に対する主成分解析から得られた主成分モードの中で、寄与の大きな三つの振動モードの略図を Figure 2 に示す。Figure 3 には PIMD の結果から得られた(a) AT pair と(b) AT-W それぞれの主成分の割合を円グラフで示す。まず、(a) AT pair では、propeller モードが最も多くの割合を占めており、次に buckle モード、opening モードの順に割合が小さくなるのがわかる。一方、(b) AT-W の主成分は、AT pair とは異なり、buckle モードが最も多くの割合を占めていることが見て取れる。また、AT pair と水分子が対となって曲がるような新しいモード buckle (AT and W) が見られた。その上、AT pair で見られていた主成分 propeller モードと opening モードの割合がなくなり、propeller モードと opening モードが合成されたような、捻れながら水素結合部分が開く新たなモード propeller + opening が現れた。これらの解析により、水分子の存在は、塩基対の支配的な主成分モードを入れ替えるという、大きな影響を及ぼすことを明らかにした。また MD の主成分解析結果においても同様の傾向が見られた。これらに関する詳細な議論は当日のポスターにて発表する。

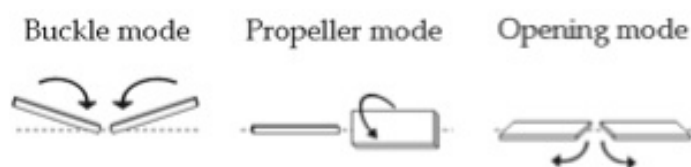


Figure 2 Simplified schematic illustrations of lowest 3 modes in base pairs [3].

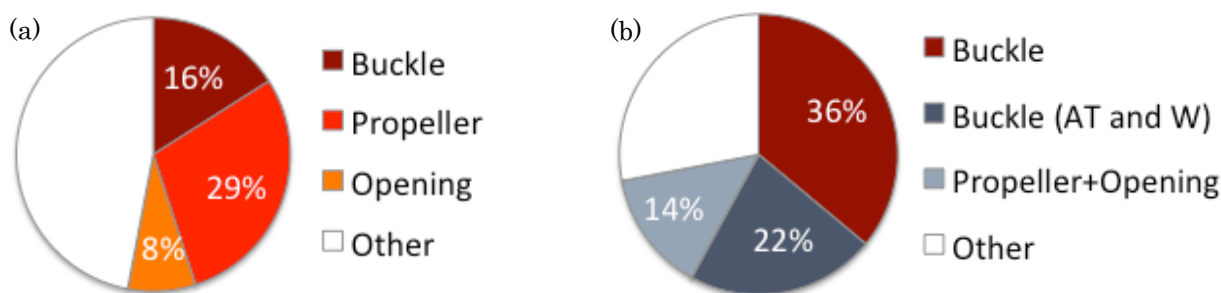


Figure 3 The ratios of the contribution of buckle, propeller, opening modes in (a) AT pair and (b) AT-W from PIMD simulations.

- [1] J. D. Watson, F. H. C. Crick, *Nature*, **171**, 737 (1953)
- [2] M. Daido, A. Koizumi, M. Shiga, M. Tachikawa, *Theor. Chem. Acc.* **130**, 385 (2011)
- [3] M. Daido, Y. Kawashima, M. Tachikawa, *J. Comput. Chem.* **34**, 2403 (2013)
- [4] M. J. Gillan, *Computer Modelling of Fluids Polymer and Solids NATO ASI Series* **293**, 155 (1989)
- [5] M. Korth, *J. Chem. Theory Comput.* **6**, 3808 (2010)