

1P131 DNA および人工 DNA 中の電荷移動に関する理論的研究

(東大院工¹・産総研計算²) ○島崎智実¹⁾、浅井美博^{1,2)}、山下晃一¹⁾

【序】 近年、DNA 中の電荷移動が実験および理論の観点から注目を集めている。これは、DNA 分子の 2 重螺旋構造を取る性質や、相補的な塩基対を認識する性質を利用することにより、DNA 分子ワイヤーを持つ分子回路や、バイオセンサーなどへの応用が広く期待できるためである。我々は、溶液中の DNA のホール移動に注目し古典マーカス理論に基づき考察ならびに数値シミュレーションを行った。

【計算方法】 溶液中の DNA は結晶中の分子とは異なり様々な構造を取ると考えられる。このような DNA コンフォメーションの違いが電荷移動にどのように影響するかを調べるために、我々は古典 MD のトラジェクトリーからホール移動可能な DNA 構造をフランク・コンドン原理およびエネルギー保存則に基づき抽出した。また、電子的なカップリングを抽出した座標を用いて一般化 Mulliken-Hush 法に基づき量子化学計算により求めた。さらに、フランク・コンドン因子を古典分子力学法により求めた。計算したこれらの因子から DNA 中のホール移動に関する速度を計算した。

【計算結果】 計算結果から、電子的なカップリングは強く DNA 構造に依存することが分かった。さらに、塩基ペア間の距離が遠くなるほどカップリングは小さくなることが分かった。計算した電荷移動の速度は TIH (Thermal Induced Hopping) 機構では、A-T 塩基ペア数に対して変化することはないが、Super Exchange 機構ではドナーとアクセプター間のブリッジ数に強く依存し、A-T 塩基ペアの増加と共に急激に減少した。この結果は Giese らが行った実験と一致する (図 1)。

さらに、天然型 B-DNA 中の電荷移動だけでなく、様々な化学修飾が施された人工 DNA および A-DNA についても計算を行った。人工 DNA として、塩基部に図 2 のような修飾が施された人工 DNA や、ペプチド結合をバックボーンにもつような PNA 中のホール移動についても計算を行った。これらのモデルに関する速度についても報告する。

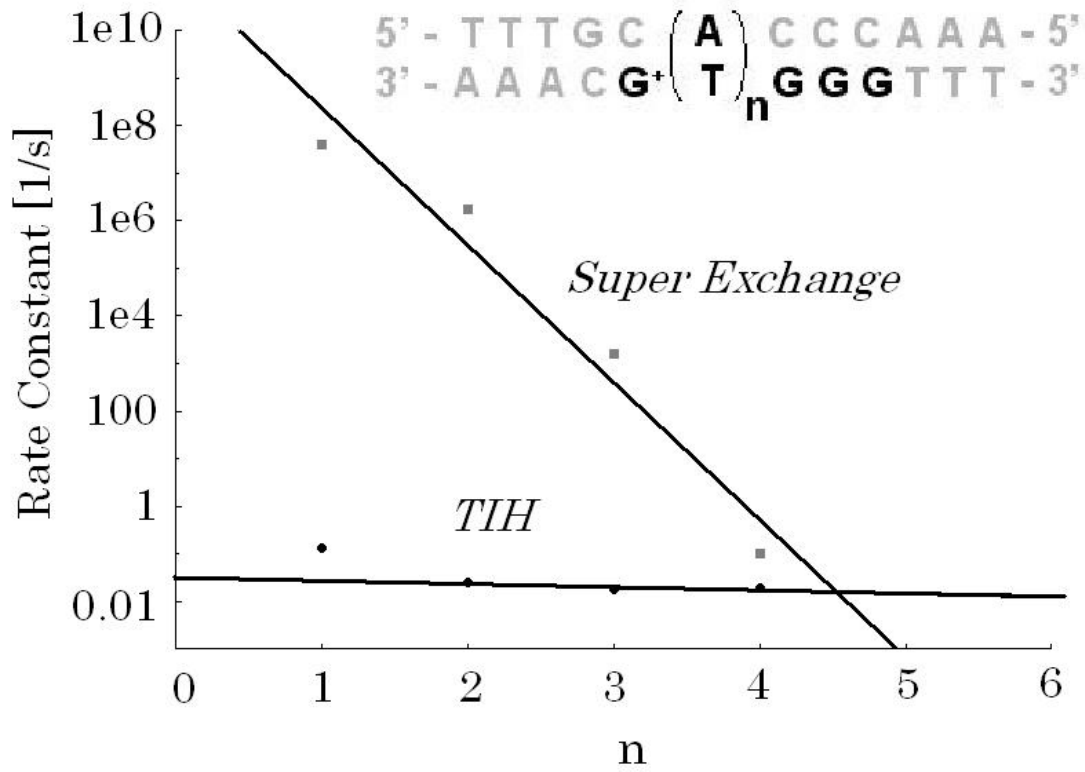


図1 計算により求めた DNA 中のホールの移動速度

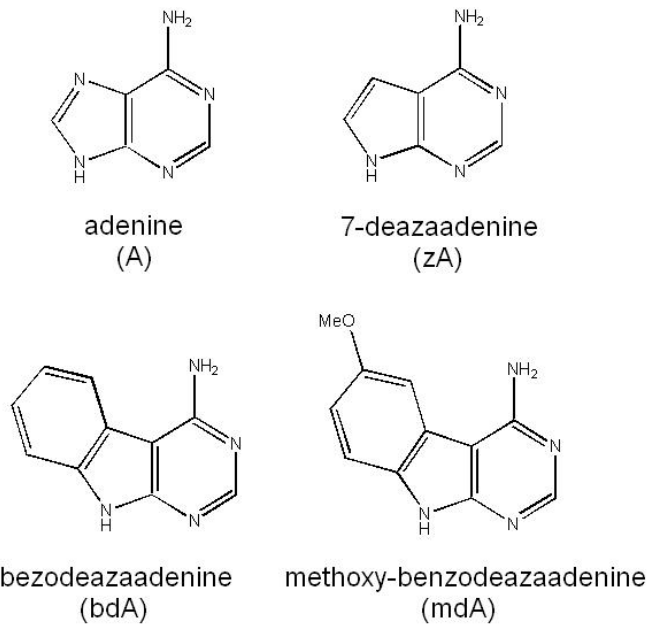


図2 シミュレーションを行った修飾塩基