

## MD 及び DFT 計算による DNA 二重鎖の水和構造とその電子状態の解析

(豊橋技科大院工<sup>1</sup>、プエルトリコ大<sup>2</sup>)塚本貴志<sup>1</sup>、Yasuyuki Ishikawa<sup>2</sup>、夏目貴行<sup>1</sup>、出立兼一<sup>1</sup>、栗田典之<sup>1</sup>

tsukamoto@theo.tutkie.tut.ac.jp

## 【はじめに】

DNA中の長距離の電荷移動は、ホールがグアニン塩基を介して移動することで起こり、DNA中のグアニン塩基間に複数のアデニン塩基が存在すると、ホールの移動効率が指数関数的に減少することが知られている。また、DNA周囲の湿度が高いとDNAの電気伝導度が上がる現象など、DNA周囲の環境に依存した特性変化も報告され、DNA中の電荷移動機構の解明には、溶媒などDNA周囲の環境を考慮した解析が必要とされている。

本研究では、DNA周囲の水和水がDNAの電子状態に与える影響を明らかにする目的で、DNA水和構造の構造変化に伴う電子状態変化を解析した。その結果、DNAのアデニン-チミン (A-T) 塩基対を含むDNA副溝内に、ホールの移動に関与する特異的な水和水が存在する可能性を明らかにした。

## 【計算手法】

本研究では、塩基配列が 5'-d(CCATTAATGG)<sub>2</sub>-3'の水和した 10 塩基対 DNA の実験構造を基に水和構造を作成した。この構造に含まれる cross-strand water bridge (Fig.1(b)-(d)) に関与する特異的な水和水(以下、CSBW)の熱的構造変化を、300 Kでの 1 nsの古典分子動力学 (MD) 計算で解析し、構造変化に伴うDNAの電子状態変化を密度汎関数法 (DFT) により解析した。

## 【計算結果】

Fig.1 (a) に示すように、MD計算で得た構造において、A-T塩基対の副溝内に5つのCSBWが存在することを確認した。Fig.1 (b)-(d) に示すように、これらのCSBWはアデニン又はチミン塩基に水素結合し、グアニン-シトシン (G-C) 塩基対副溝内には存在しない。また、これらのCSBWは他の水分子に比べ長い時間、副溝内に特異的に水素結合することをMD計算により明らかにした。

次に、MD計算で得たDNA水和構造から、100 psごとの構造をサンプリングし、それらの電子状態をDFT計算により求めた。各水和構造のHOMO周辺のMOを重ね合わせた図をFig.2に示す。ホール移動に関与するHOMO周辺のMOが、Gua19、Gua9及びA-T塩基対副溝内に水素結合した5つのCSBWに分布することが明らかになった。従って、CSBWがホールの移動サイトとして働き、Gua19 CSBWとGua9 というホール移動が実現すると考えられる。

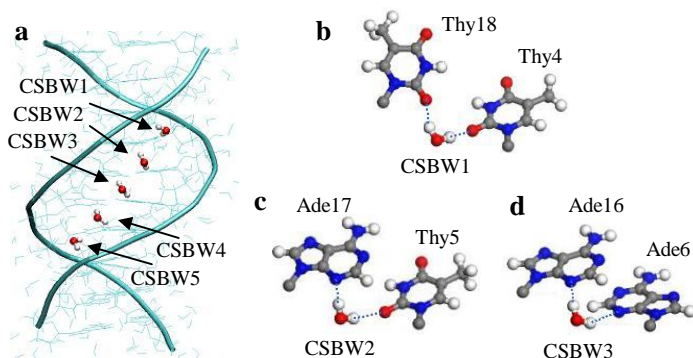


Fig.1(a) Structures of Cross-Strand binding Water molecules (CSBW) in the minor groove of the hydrated DNA; (b)-(d) CSBW1-3

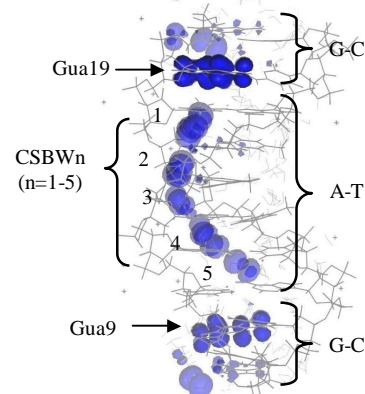


Fig.2 Superimposed HOMO distribution for the nine structures obtained by MD simulation.