

単一高分子鎖の引き伸ばし時における構造転移の不可逆性

京都大学大学院 理学研究科 義永 那津人¹

1 背景

生体高分子の高次構造についての研究は、生体機能との関わりにおいてのみならず、物理学的にも興味深い。特に、最近の直接観察法の発達により、揺らぎの大きな単一分子スケールの構造を議論することが可能になってきている [1]。

このような研究の中で、光ピンセットや原子間力顕微鏡を用いた高分子の引き伸ばしの実験が最近注目されている [2, 3]。高分子を引き伸ばす際に必要な力は、その高分子の構造を反映した粗視変数としてのみならず、外力が系になした仕事を求める上でも重要な観測量であり、このことが引き伸ばし実験の大きな特徴となっている。しかし、実験での観測量は引き伸ばしの変位 z と力学応答 f のみであり、高分子の構造はここに縮約されてしまっているため、凝縮構造についてはあまり議論されてこなかった。また、理論やシミュレーションでの主に扱われているのは柔らかい高分子であり、凝縮構造の多様性が力学応答に及ぼす影響についてはこれからの課題である。

一方で生体高分子は有限の硬さを持っており、この効果は構造に大きな影響を及ぼす。例えば、DNA は中性高分子や多価カチオンの存在下でトロイド状やロッド状の様々な秩序凝縮構造をとることが実験的に明らかになってきており、シミュレーションでもこの結果は再現されている。

そこで本研究では単一セミフレキシブル高分子鎖の引き伸ばしのシミュレーションを行い、秩序構造間の構造転移のダイナミクスとその時の力学応答と調べた。

2 モデル

バネ・ビーズモデルを用いたランジュバンダイナミクスで、ポテンシャルとしてひもに沿った曲げ弾性ポテンシャルとモノマー間の 3 次元的な短距離相互作用 (レナードジョーンズ型) を用いた。端点を固定し、片方を等速で動かしながらその点にかかる力を計測した。引き伸ばし時の典型的なスナップショットを図 1 に示す。

3 結果と考察

図 2 は伸張、収縮過程でのモノマー密度と力学応答を示しており、モノマー密度の変化に伴った力学応答を示している事がわかる。さらにこの過程は、凝縮転移にかかる時間スケールに比べて

¹E-mail: yoshinaga@chem.scphys.kyoto-u.ac.jp

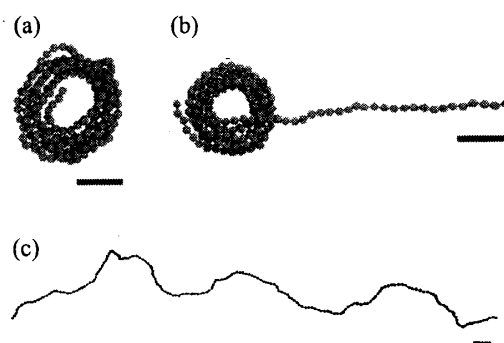


図 1: セミフレキシブル高分子鎖の引き伸ばし時の典型的な構造。(a) 初期状態のトロイド構造 (b) 引き伸ばし途中で現れるコイルとトロイドの相分離状態 (c) 完全に引き伸ばされた状態。スケールバーは $5a$. (a はモノマーサイズ)

十分遅いにもかかわらず履歴を示している。これは、完全にほどけた高分子が再び凝縮する時、ロッド状態を選びやすいことことからきていて、柔らかい高分子では見られない現象である。

また伸張過程では、力学応答が緩やかに上昇してからある点で急激に減少するというパターン (stick and release pattern) が確認できた。これは最近の DNA を用いた実験でも観測されている現象である [3]。また、このパターンは密度の急激な減少に伴って起きることが明らかとなった。

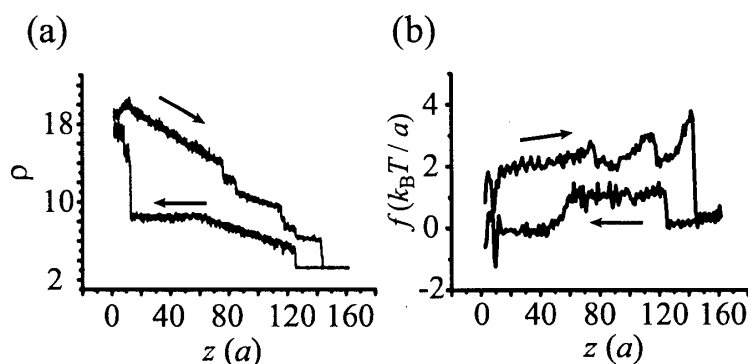


図 2: セミフレキシブル高分子鎖の伸張、収縮過程でのモノマー密度 ρ (a) と力学応答 f (b).

参考文献

- [1] N. Yoshinaga, K. Yoshikawa and S. Kidoaki, J. Chem. Phys. **116** (2002), 9926.
- [2] M. Rief, M. Gautel, F. Oesterhelt, J. M. Fernandez and E. Gaub, Science **276** (1997), 1109.
- [3] Y. Murayama, Y. Sakamaki and M. Sano, Phys. Rev. Lett. **90** (2003), 018102.