

電子衝突による DNA らせん崩壊の量子力学的アプローチ[†]

川野 聡 恭*・丸山 洋平**

ABSTRACT In the present paper, a simple model for electron-DNA scattering based on quantum theory is proposed. A mathematical formula for governing equations of e-DNA collisions is derived by use of the present model. A numerical code for solving the differential equations is developed. Furthermore, a simple prediction method based on the calculated total cross section is proposed for DNA double strand breaks. The comparison between the predictions and the previous experiments is made in detail for DNA double strand breaks. They are in qualitative agreement and the validity of the present model is confirmed.

1. 緒言

近年の技術革新は原子および分子のナノスケール制御を可能にし、バイオ・ナノデバイスなど様々な分野での応用が期待されている。特に、バイオおよび医療分野では Deoxyribonucleic acid (DNA) を用いた電子デバイスの開発や遺伝子治療など革新的な新技術が多い。

DNA を用いたナノデバイスとして注目されているものに、DNA ナノワイアがある。近年 DNA 内部は導電性を有することがわかった¹⁾。またバイオテクノロジーの発展により様々な DNA 分子加工技術を用いて、DNA 分子を自由に伸張収縮させ、目的の位置で切断する事も可能になりつつある²⁾。これらの技術を有効に利用して、DNA 分子を電子回路の線材として使い、高配向性グラファイト等の基板上に配線したバイオナノデバイスとして応用する試みがなされている^{3,4)}。現在、最先端の半導体チップでは、回路の線幅は 100nm 程度であるが、加工技術が進歩してもフォトリソグラフィを用いる従来の方法では、数 10nm 程度の線幅が限界だといわれている⁵⁾。それに比べ、DNA 分子らせんの直径は 2nm 程度であり、DNA を用いた配線が確立できれば、回路の集積化という点から見たときのメリットは非常に大きい。さらに、DNA の外部の絶縁性

により 3次元交差配線にも対応できる。DNA ナノワイアの他にも、DNA を用いて半導体、トランジスタなどの電子回路素子を創製する試みがある⁶⁾。

DNA 分子はアデニン (A)、チミン (T)、グアニン (G) およびシトシン (C) の 4種類の塩基からなっており、A は T と、また G は C とが水素結合することにより、その二重らせん構造を保持している。自然界で見られる DNA 分子は上述の、4種類の塩基からなるが、A-T や G-C のみからなる DNA を人工的に作り出すことが可能である。G と C だけを使った DNA は p 型半導体に似た性質を持つことが知られている。また A と T だけの DNA は、逆に n 型半導体と似た性質を持つ。さらに、シリコン基板上に作った電極を DNA で接続し、トランジスタとしての機能をもたせることに成功していることも知られている⁶⁾。

以上のように、DNA はナノデバイスとして様々な応用が期待されている。しかしながら、DNA は、その損傷によりらせん崩壊が生ずるという欠点を持つ。DNA の損傷は、その構成分子に光子や電子が衝突することにより発生し得る⁷⁾。我々は日常、電離性電磁波に曝された環境で生活している。それ故、DNA ナノデバイスの開発や使用に関して、将来これらが重大な問題となる可能性が高い。

また、DNA は生物の遺伝情報を担っており、生物にとって根本的に必要不可欠な物質でもある。DNA 分子の損傷は発癌や老化、突然変異など生物に様々な影響を及ぼす。この DNA 損傷は、複製の誤りや DNA 分子の自発的な生化学的変化、紫外線および宇宙線などによって引き起こされることが知られている⁷⁾。特に、紫外線および宇宙線による DNA 損傷は、将来、人間が宇

Theoretical Approach of DNA Double Strand Breaks by Electron Impact Based on Quantum Mechanics. By Satoyuki Kawano (Center for Interdisciplinary Research, Tohoku University / JST) and Youhei Maruyama (Dept. of Aeronautics and Space Engineering, Tohoku University).

* 東北大学学際科学国際高等研究センター/科学技術振興機構

** 東北大学大学院工学研究科航空宇宙工学専攻

† 2003年10月1日受付 2004年1月8日再受付

宙に長期滞在する場合の宇宙線被曝を考えると興味深い。紫外線などによるDNA損傷は、光子が細胞内分子に衝突し、その衝突により飛び出した電子とDNA分子の直接的な相互作用(衝突現象)によって起こることが知られている⁸⁾。

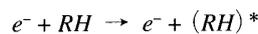
このように、DNAと電子の衝突は、DNAを用いたナノデバイス開発およびDNA損傷など様々な分野と関連しており、その理論的解明は非常に重要である。現在このような分野では、実験的手法による研究が主であり、理論解析による研究は、著者の知る限り少ない。このようなDNA損傷の基礎には、先に述べたような電子あるいは光子とDNAの衝突、および、それによる構成原子の励起現象がある。これらの現象は、古典力学に基づく理論では解析が困難であり、量子力学理論に基づく解析が必要である。

本論文では、まず、DNAらせん崩壊の主な原因となる系に着目し、電子-DNA衝突現象の量子力学的理論モデルの構築過程を説明する。次に、その理論モデルに基づき電子-DNA衝突の基礎方程式の定式化を行う。その後、導出した基礎方程式の数値解法について述べ、最後に、DNA崩壊頻度の実験データと本理論モデルによる推定値を比較し、理論の妥当性を検討する。

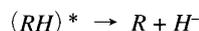
2. 電子-DNA衝突モデル

量子衝突によるDNA崩壊には、直接作用によるものと間接作用によるものがある。直接作用とは、紫外線などの光子が細胞内分子に衝突し、その衝突により飛び出した電子(2次電子)が直接DNA構成分子に衝突する場合である。一方、間接作用とは、2次電子が直接DNA分子に作用するのではなく、DNA分子の周りにはある水分子に衝突し、その水分子が解離したときに生じる OH^* がDNA分子に作用する場合である。本論文では、DNA分子の周りにはある水分子については考慮せず、**図1**に示すように、電子が直接DNA分子に衝突する直接作用について考える。

電子の直接作用によるDNA崩壊は、以下のような過程で起こるとする。まず電子がDNAに衝突することによりDNA構成分子に励起が生じる。



ここでDNA構成分子とは塩基A, T, GおよびCであり、 RH は、これらの塩基のうち任意のものを表す。次に、電子衝突により生じた励起エネルギーにより、DNA構成分子内の水素基が解離する。



これらの結果として、DNAらせん崩壊が起こる。した

がって、DNA構成分子内の水素原子を含む部分が電子衝突によるDNA崩壊と密接に関連していると考えられる。そこで本研究では、**図2**に示すように、ターゲットとしてDNA構成分子の一つであるT内の水素および窒素原子の系を選び、その系と電子の衝突現象の解析を試みる^{9~15)}。

3. 基礎方程式および数値解法

水素、窒素原子および入射電子が満たすべきSchrodinger方程式は、電子の運動エネルギーを表すオペレータ T 、ポテンシャル V および初期状態における系の全エネルギー E により

$$\left[\sum_{i=1}^9 T_i + \sum_{i=1}^9 \sum_{a=1}^2 V_{i,a} + \sum_{i>j} V_{ij} + V_R - E \right] |\Psi(r_1, r_2, \dots, r_9)\rangle = 0 \quad (1)$$

となる。 r_1, r_2, \dots, r_7 は窒素原子内電子の位置ベクトル、 r_8 は水素原子内電子の位置ベクトル、 r_9 は入射電子の位置ベクトルを表す。ここで、

$$T_i = -\frac{1}{2} \nabla_{r_i}^2 \quad V_{i,a} = -\frac{Z_a}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{R}_a|} \\ V_{ij} = \frac{1}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} \quad V_R = \frac{Z_H Z_N}{|\mathbf{R}_H - \mathbf{R}_N|} \quad (2)$$

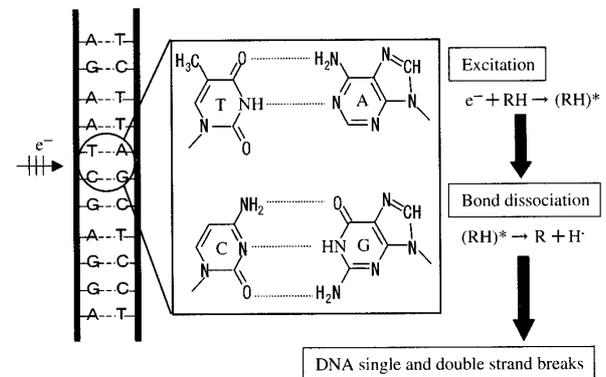


図1 Schematic of DNA double strand breaks.

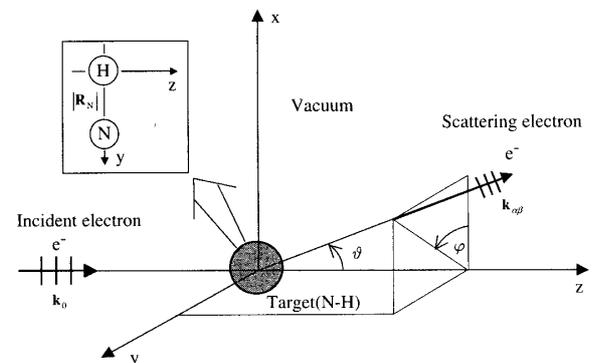


図2 Theoretical model of electron-DNA collisions.

はそれぞれ、電子の運動エネルギーを表すオペレータ、電子と原子核の相互作用ポテンシャル ($a=1$: 水素原子, $a=2$: 窒素原子), 電子間相互作用ポテンシャル, および原子核間相互作用ポテンシャルを表す. z_H, z_N はそれぞれ水素原子核および窒素原子核電荷を表す定数であり, $z_H=1, z_N=7$ となる. また, \mathbf{R}_H は水素原子の位置ベクトル, \mathbf{R}_N は窒素原子の位置ベクトルを表す. 入射電子のエネルギー $\frac{1}{2}k_0^2$, 水素原子の基底状態エネルギー $E_{0,H}$, 窒素原子の基底状態エネルギー $E_{0,N}$, 電子衝突後の水素原子のエネルギー $E_{\alpha,H}$, 窒素原子のエネルギー $E_{\beta,N}$, 散乱電子のエネルギー $\frac{1}{2}k_{\alpha\beta}$ とすると

$$E = \frac{1}{2}k_0^2 + E_{0,H} + E_{0,N} = \frac{1}{2}k_{\alpha\beta}^2 + E_{\alpha,H} + E_{\beta,N} \quad (3)$$

となる. 本論文では, $V_{i,a}, V_R$ について,

$$V_{i,a} = \frac{z_a}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{R}_a|} \rightarrow \frac{1}{4\pi} \int_{\Omega} -\frac{z_a}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{R}_a|} d\Omega \quad (4)$$

$$V_R = -\frac{z_H z_N}{|\mathbf{R}_H - \mathbf{R}_N|} \rightarrow A \text{ (constant)} \quad (5)$$

という近似を行う. 式(4)は, 電子と原子核の相互作用ポテンシャルについて, 球面平均値を用い¹⁶⁾, 式(5)は水素-窒素原子間距離が固定されているという物理的意味を持つ. 式(4)の積分は解析的に計算することができ, 以下のようになる.

$$\begin{aligned} \tilde{V}_{i,a} &= -\frac{z_a}{4\pi} \int_{\Omega} \frac{1}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{R}_a|} d\Omega \\ &= -\frac{z_a}{4\pi} \int_{\Omega} \sum_{l,m} \frac{4\pi}{2l+1} \frac{r_i^l}{r_a^{l+1}} Y_{lm}^*(\mathbf{r}_i) Y_{lm}(\mathbf{R}_a) d\Omega \\ &= -z_a \frac{1}{r_a} \end{aligned} \quad (6)$$

ここで $\tilde{V}_{i,a}$ は球面平均を取ったポテンシャルとする. r_i および R_a の内, 大きい方を $r_>$ で表す.

ターゲットの系を構成する原子の内部座標 $\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_8$ は 24 個の座標となり, 式(1)は入射電子座標 \mathbf{r}_9 も加え, 27次元空間での連立微分方程式になるため, 解析的な取り扱いには困難である. その困難を避けるため, 内部座標 $\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_8$ の関数の集まりで完全系を作るもの, すなわち, ここでは水素および窒素原子の固有関数を用いて, 波動関数 $\Psi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_9)$ を

$$|\Psi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_9)\rangle = \sum_{i,j} |F_{ij}(\mathbf{r}_9) \phi_{i,H}(\mathbf{r}_8) \phi_{j,N}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_7)\rangle \quad (7)$$

と展開する. その結果, 展開の係数を入射電子の位置ベクトル \mathbf{r}_9 だけの関数として記述することができる.

ここで $\phi_{i,H}(\mathbf{r}_8), \phi_{j,N}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_7)$ は, それぞれ水素原子, 窒素原子の固有関数であり以下の固有方程式を満たす.

$$[T_8 + T_{8,H} - E_{i,H}] |\phi_{i,H}(\mathbf{r}_8)\rangle = 0 \quad (8)$$

$$\left[\sum_{j=1}^7 T_j + \sum_{j=1}^2 V_{j,N} + \sum_{i>j} V_{ij,N} - E_{i,N} \right] |\phi_{i,N}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_7)\rangle = 0 \quad (9)$$

式(1)に式(7)代入し, 式(8)および式(9)を用いてオペレータ $T_8, V_{8,H}$ などを消去した後, 水素原子および窒素原子の固有関数 $\langle \phi_{\alpha,H} |, \langle \phi_{\beta,N} |$ へ射影すると,

$$\begin{aligned} [T_9 - (E - E_{\alpha,H} - E_{\beta,N})] |F_{\alpha\beta}(\mathbf{r}_9)\rangle \\ + \sum_{p,q} \langle \phi_{\alpha,H} \phi_{\beta,N} | V_{9,H} + V_{9,N} \\ + \sum_{i>j} (V_{ij} - V_{ij,N}) + V_R | \phi_{p,H} \phi_{q,N} \rangle |F_{pq}(\mathbf{r}_9)\rangle = 0 \end{aligned} \quad (10)$$

を得る. オペレータ T_9 の具体的な形(式(2)参照)を代入し, 式(10)を整理すると

$$[\nabla_9^2 + k_{\alpha\beta}^2] |F_{\alpha\beta}(\mathbf{r}_9)\rangle = \sum_{p,q} C_{pq,\alpha\beta}(\mathbf{r}_9) |F_{pq}(\mathbf{r}_9)\rangle \quad (11)$$

となる. ただし,

$$\begin{aligned} C_{pq,\alpha\beta}(\mathbf{r}_9) &= 2 \langle \phi_{\alpha,H} \phi_{\beta,N} | V_{9,H} + V_{9,N} \\ &+ \sum_{i>j} (V_{ij} - V_{ij,N}) + V_R | \phi_{p,H} \phi_{q,N} \rangle \end{aligned} \quad (12)$$

としている. ここで, α, β および p, q は主量子数 n , 方位量子数 l , 磁気量子数 m をまとめて書いたものとし, エネルギーの低い順にその番号を付けているものとする. 例えば $\alpha=0$ は $n=0, l=0, m=0$, $\alpha=1$ は $n=1, l=0, m=0$ である. 球面調和関数 $Y_{lm}(\hat{\mathbf{r}})$ の完全性により, $F_{\alpha\beta}(\mathbf{r}_9)$ は以下のように展開できる.

$$F_{\alpha\beta}(\mathbf{r}_9) = \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^{m=l} \frac{4\pi}{2l+1} |r_9^{-1} u_l^{\alpha\beta}(\mathbf{r}_9) Y_{lm}(\hat{\mathbf{k}}) Y_{lm}(\hat{\mathbf{r}}_9)\rangle \quad (13)$$

ただし, w を水素原子の動径方向波動関数として,

$$\phi_{\alpha,H}(\mathbf{r}_8) = \frac{w_{n\alpha} Y_{l\alpha m_\alpha}(\hat{\mathbf{r}}_8)}{r_8} \quad (14)$$

また, u は波動関数の動径に依存する部分である. 式(10)に部分波分解した波動関数を代入し, $\langle Y_{lm}(\hat{\mathbf{r}}_9) |$ に射影する. 以上より, 最終的な基礎方程式が得られ, 以下のようになる.

$$\begin{aligned} \left[\frac{d^2}{dr_9^2} - \frac{l(l+1)}{r_9^2} + k_{\alpha\beta}^2 \right] |u_l^{\alpha\beta}(\mathbf{r}_9)\rangle \\ = \sum_{p,q} C_{pq,\alpha\beta}(\mathbf{r}_9) \delta_{p\alpha} \delta_{q\beta} |u_l^{pq}(\mathbf{r}_9)\rangle \end{aligned} \quad (15)$$

ここで,

$$\begin{aligned}
 C_{pq,\alpha\beta} = & 2 \left[V_{9,H} \delta_{\alpha p} \delta_{\beta p} + V_{9,N} \delta_{\alpha p} \delta_{\beta p} + V_R \delta_{\alpha p} \delta_{\beta p} \right. \\
 & + \sum_{i=1}^7 \sum_{l=-\infty}^{+\infty} \sum_{m=-l}^{m=l} \frac{4\pi}{2l+1} \sqrt{\frac{(2l_\alpha+1)(2l_p+1)(2l+1)}{4\pi}} \\
 & \times \int_0^{r_{i<}} \frac{r_{i<}^l}{r_{i>}^{l+1}} w_{n_\beta l_\beta}(r_i) w_{n_q l_q}(r_i) dr_i \times \begin{pmatrix} l_\beta & l_q & l \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_\beta & l_q & l \\ m_\beta & m_q & m \end{pmatrix} \delta_{\alpha p} \\
 & + \sum_{l=-\infty}^{+\infty} \sum_{m=-l}^{m=l} \frac{4\pi}{2l+1} \sqrt{\frac{(2l_\alpha+1)(2l_p+1)(2l+1)}{4\pi}} \\
 & \times \int_0^{r_{8<}} \frac{r_{8<}^l}{r_{8>}^{l+1}} w_{n_\alpha l_\alpha}(r_8) w_{n_p l_p}(r_8) dr_8 \times \begin{pmatrix} l_\alpha & l_p & l \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_\alpha & l_p & l \\ m_\alpha & m_p & m \end{pmatrix} \delta_{\beta p} \left. \right] \quad (16)
 \end{aligned}$$

である。また、 δ_{ij} はクロネッカのデルタである。散乱電子の波数 $k_{\alpha\beta}$ は以下ようになる。

$$\frac{k_{\alpha\beta}^2}{2} = \frac{k_0^2}{2} + (E_{0,H} - E_{\alpha,H}) + (E_{0,N} - E_{\beta,N}) - (V_R - V_{\alpha\beta}) \quad (17)$$

式(17)の右辺第4項は電子衝突による原子間距離の变化をエネルギー保存の式に取り込んだ結果生じた項である。 $\begin{pmatrix} l_\alpha & l_p & l \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$ はウイグナー-3j記号である。 r_i と r_8 の内、小さい方を $r_{i>}$ 、大きい方を $r_{i<}$ で表している。また計算の過程で V_{ij} に対し、次の展開を行っている。

$$\frac{1}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} = \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^{m=l} \frac{r_{i<}^l}{r_{i>}^{l+1}} \frac{4\pi}{2l+1} Y_{lm}(\hat{\mathbf{r}}_i) Y_{lm}(\hat{\mathbf{r}}_j) \quad (18)$$

式(15)の δ は、 $p = \alpha$ かつ $q = \beta$ の $C_{pq,\alpha\beta}$ が他の値に比べ十分大きい、ということ考慮し加えた。これについては後述の図3で検討する。

式(3)からわかるように、 α および β の値により、 $u_i^{q\beta}$ は、以下のような系の状態を記述する。

- $(\alpha, \beta) = (0, 0) \Rightarrow$ 弾性散乱
- $(\alpha, \beta) = (1, 0) \Rightarrow$ 水素原子のみ励起(1s \rightarrow 2s)

- $(\alpha, \beta) = (0, 1) \Rightarrow$ 窒素原子のみ励起(1s \rightarrow 2s)
- $(\alpha, \beta) = (1, 1) \Rightarrow$ 水素および窒素原子励起(1s \rightarrow 2s)

境界条件は、無限遠方において波動がクーロン波に一致することであるが、ここでは、位相差を許容する。また、解は規格化されている必要がある。式(16)中の積分は、精度を重視してGauss-Legendre求積法を用いた。また、微分衝突断面積 $d\sigma_{ij}$ は、 $d\Omega = \sin\theta d\theta d\varphi$ として、次のように求められる。

$$\frac{d\sigma_{ij}}{d\Omega} = \frac{k_{ij}}{k_0^3} \left| \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) e^{i\Delta_{ij,l}} \sin\Delta_{ij,l} P_l(\cos\theta) \right|^2 \quad (19)$$

$u_i^{q\beta}$ を精度良く求め、位相差 $\Delta_{ij,l}$ を得ることが解析の目的となる。本論文における数値解析スキームは、既報で開発された手法^{10,11)}を用いた。また、ここでは、Mathematica等の数式処理ソフトは用いていない。

4. 結果および考察

図3より、式(16)で定義される関数 $C_{pq,10}$ ($p, q = 0, 1$)は十分遠方では、 p, q の値によらず0に収束することがわかる。また、 $r = 0.1$ 近傍を除いて、 $C_{10,10}$ の値が支配的である。この傾向は、他の $C_{pq,\alpha\beta}$ においても変わらないことを確認してある。つまり、 $p = \alpha$ かつ $q = \beta$ の時の値が支配的であると考えられるので、式(15)において導入した δ の妥当性が示された。図4は式(15)で $\alpha = 1, \beta = 0, k_0 = 2.0$ とした場合のs波の数値解析結果である。平面波として入射した電子は、原点付近でターゲット分子と相互作用し、その結果クーロン波との位相差が生じる。原点近傍でターゲット分子により生じた位相差は、十分遠方まで保持され、遠方での波形はクーロン波と一致している事がわかる。また解は規格化されていることが確認できる。図5は数値解析

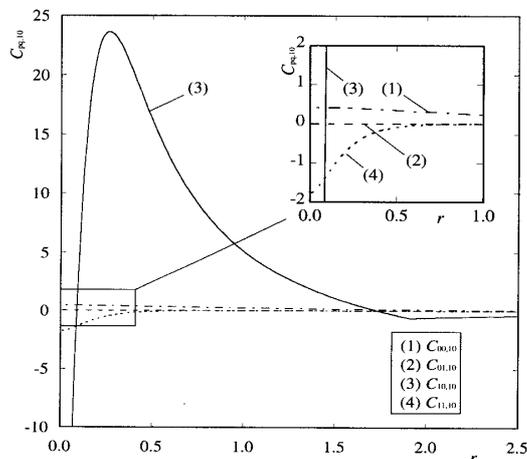


図3 Values of $C_{pq,10}$ in Eq. (16).

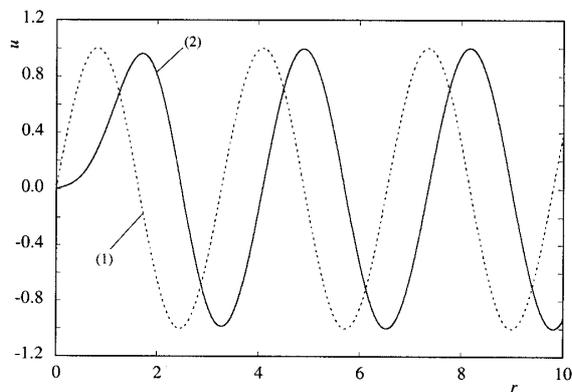


図4 Comparison between the wave functions for the coulomb wave (1) and for the s wave (2) at $k_0 = 2.0$.

により得られた $1s \rightarrow 2s$ 励起および弾性散乱衝突断面積を示す。図5より、全ての状態において peak が見られるが、弾性散乱および窒素原子のみが励起する場合の衝突断面積は、他の状態の衝突断面積の値と比較して非常に小さいことが分かる。

DNA 構成分子内の水素基を含む部分が DNA らせん崩壊と密接に関連していることを前述した。本論文で考慮している系で窒素原子のみが励起 ($(\alpha, \beta) = (0, 1)$) する場合の衝突断面積 σ_{01} は、水素原子のみが励起する場合や水素原子および窒素原子が励起する場合の衝突断面積 σ_{10} , σ_{11} に比べ小さい。また、弾性散乱の衝突断面積は、我々の理論モデルでは、DNA らせん崩壊には関与しないと考えられる。そこで、本論文では DNA らせん崩壊頻度 N と衝突断面積 σ を以下の式で結びつけることにする。

$$N(x) = a [P(x) \sigma_{10}(x) + (1 - P(x)) \sigma_{11}(x)] \quad (20)$$

ここで、 $P(x)$ は入射電子エネルギー x [eV] の関数であり、衝突断面積に重み付けを行う関数である。 $P(x)$ について、本論文では図6に示すような最も簡単な入射電子エネルギー x に対する線形関数を用いる。また、 a は衝突断面積と DNA らせん崩壊頻度との換算係数であり、その値は数値解析による結果を実験値⁸⁾と比較することにより決定される。

図7は、式(20)による DNA 崩壊頻度の予測値と実験データ⁸⁾の比較である。実験データが示す主な特徴は、入射電子エネルギー 10eV 付近 1st Peak をとり、DNA 崩壊が顕著に見られること、14eV 程度で崩壊が見られなくなるが、15eV 以上で再び増加に転ずることである。数値解析による DNA らせん崩壊の予測値を見る

と、DNA 崩壊頻度は入射電子エネルギーが約 5eV 付近まで 0 となり、約 7eV で最大を持ち、約 13eV 付近で再び 0 となることから、実験値と定性的に良く一致しているといえる。さらに、数値解析による予測では DNA 崩壊頻度は 13eV 付近で 0 となった後、20eV 付近にかけて増加している。高エネルギーにおけるデータが不足しているため、詳細な議論はできないが、傾向として 1st Peak より右方の実験データと良く一致している。したがって、本理論モデルにより、DNA 二重らせん崩壊頻度の 1st Peak 付近においては水素原子のみの $1s \rightarrow 2s$ 励起衝突が崩壊の主要因であり、より大きな電子衝突

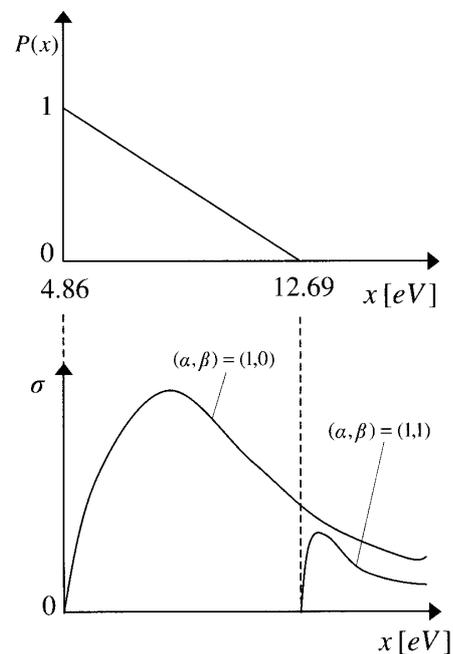


図6 Assumption of probability function P .

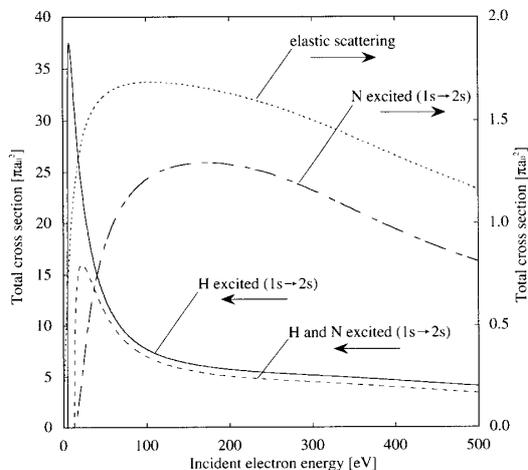


図5 Total cross section for various collision states.

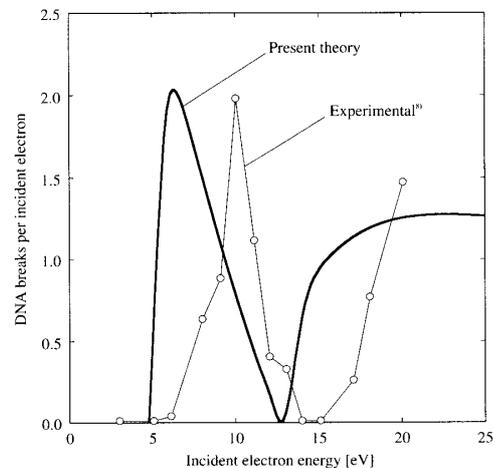


図7 Comparison between experimental results⁸⁾ and theoretical predictions for DNA double strand breaks.

エネルギー範囲では、水素-窒素分子の $1s \rightarrow 2s$ 励起が主要因となっている可能性が強く示唆される。

なお、本論文では、研究の第一段階として、DNA内の水素原子を含む部分の励起がその崩壊と関連していると考えた。今後、実験結果との定量的な一致を得るためには、より複雑かつ多様な衝突形態(例えば、解離性付着： $RH + e^- \rightarrow R + H^-$)をモデル化する必要があると考えられる。また、本来異方性分子であるDNA塩基について球面平均的ポテンシャルを仮定している点も改良の余地がある。

5. 結 言

本論文では、電子衝突によるDNAらせん崩壊の量子力学的理論モデルを構築し、数値解析によって得られる衝突断面積データからDNA崩壊頻度を予測する簡易式を提案した。得られた知見を要約すると以下のようになる。

1. 電子-DNA衝突における簡易モデルの構築および基礎方程式の定式化を行い、電子衝突の量子力学的振る舞いを常微分方程式に帰着させることができた。
2. DNA二重らせん崩壊頻度の1st Peak付近では水素原子のみの $1s \rightarrow 2s$ 励起衝突が、より大きな電子衝突エネルギー範囲では、水素-窒素分子の $1s \rightarrow 2s$ 励起が崩壊の主要因となっている可能性が示唆された。
3. 数値解析によるDNAらせん崩壊頻度の予測値と実験値は定性的に良い一致を示し、本理論モデルの妥当性が示された。

付 録

電子と原子の衝突問題においては、標的原子の固有関数について波動関数を展開し、問題を展開係数に対する無限個の連立微分方程式に帰着させる方法が一般的である。

$$(\nabla^2 + k_\alpha^2) F_\alpha(\mathbf{r}) = \sum_\beta U_{\alpha\beta}(\mathbf{r}) F_\beta(\mathbf{r}) \quad (21)$$

$$\frac{\hbar^2 k_\alpha^2}{2\mu} = E - E_\alpha \quad (22)$$

$$U_{\alpha\beta}(\mathbf{r}) = \frac{2\mu}{\hbar^2} \int \varphi_\alpha^*(\mathbf{r}') V(\mathbf{r}', \mathbf{r}) \varphi_\beta(\mathbf{r}') d\mathbf{r}' \quad (23)$$

ここで μ は入射粒子と標的粒子の換算質量、 $V(\mathbf{r}', \mathbf{r})$ は両粒子間の相互作用とする。実際には、無限個の式を考慮することはできない。そこで1960年以降様々な近似計算法が開発されてきた。Born近似では、相互作

用 $U_{\alpha\beta}$ がすべて小さいとして、近似計算を行う。一方、歪曲波近似では、対角項 $U_{\alpha\alpha}$ および U_{00} は考慮し、

$$[\nabla^2 + k_0^2 - U_{00}(\mathbf{r})] F_0(\mathbf{r}) = 0 \quad (24)$$

$$[\nabla^2 + k_\alpha^2 - U_{\alpha\alpha}(\mathbf{r})] F_\alpha(\mathbf{r}) = U_{\alpha 0}(\mathbf{r}) F_0(\mathbf{r}) \quad (25)$$

という方程式を考える。Close coupling法¹⁷⁾では、数値計算が可能な範囲でできるだけ多くの $U_{\alpha\beta}$ を取り入れ、連立微分方程式を近似なしに解く。

著者らが用いた近似法は、このclose coupling法を窒素-水素の系に対し適用したものである。入射電子と原子核間のポテンシャルに球面平均値を用いることによって問題を連立微分方程式に帰着させることができた。

参 考 文 献

- 1) S. O. Kelley and J. K. Barton: Electron Transfer between Bases in Double Helical DNA, *SCIENCE*, **283**, 375/381 (1999)
- 2) 松重, 田中: 分子ナノテクノロジー, 化学同人 (2002)
- 3) T. Kanno et al.: Formation and Control of Two-Dimensional Deoxyribonucleic Acid Network, *Appl. Phys. Lett.*, **77-22**, 3848/3850 (2000)
- 4) S. Kawano, et al.: Molecule Dynamics Simulation in Nanowiring of Poly(dG)-Poly(dC) DNA on Highly Orientated Pyrolytic Graphite, *MST 2003*, 568/570 (2003)
- 5) 小林: ナノテクノロジー, 東洋経済新報社 (2001)
- 6) K. H. Yoo, et al.: Electrical Conduction through Poly(dA)-Poly(dT) and Poly(dG)-Poly(dC) DNA Molecules, *Phys. Rev. Lett.* **87-19**, 198102 (2001)
- 7) 川喜田: 遺伝子, 朝倉書店 (2002)
- 8) B. Boudaïffa, P. Cloutier and D. Hunting: Resonant Formation of DNA Strand Breaks by Low-Energy (3 to 20eV) Electrons, *SCIENCE*, **287**, 1658/1660 (2000)
- 9) C. J. Joachain: Quantum Collision Theory, North-Holland (1987)
- 10) P. J. P. Roche et al.: Many-Particle Spectroscopy of Atoms, Molecules, Clusters, and Surfaces, Kluwer/Plenum Publishers, New York, 81 (2001)
- 11) 川野: 電子衝突イオン化現象の歪曲波ボルン近似による定式化, シミュレーション, **21-4**, 261/264 (2002)
- 12) 原島: 初等量子力学, 裳華房 (1972)
- 13) 里子, 大西: 密度汎関数法とその応用, 講談社サイエンスティフィク (1994)
- 14) B. H. Brasden and C. J. Joachain: Physics of Atoms and Molecules, LONGMAN (1983)
- 15) N. F. Mott and H. S. W. Massey: The Theory of Atomic Collisions, 701 Oxford (1965)
- 16) C. Champion, J. Hanssen and P. A. Hervieux: Theoretical Differential and Total Cross Sections of Water-molecule Ionization by Electron Impact, *Phys. Rev. A* **65**, 022710 (2002)
- 17) 高柳: 電子・原子・分子の衝突, 培風館 (1996)