

氏名	さか うえ たか ひろ 坂 上 貴 洋
学位の種類	博士 (理 学)
学位記番号	理 博 第 2732 号
学位授与の日付	平成 16 年 3 月 23 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研究科・専攻	理学研究科物理学・宇宙物理学専攻
学位論文題目	Conformational transition of a semiflexible polymer chain: effect of chain length, stiffness and electrostatics (半屈曲性高分子鎖の構造転移：鎖長，硬さ，静電相互作用の効果)
論文調査委員	(主 査) 教授 吉川 研 一 助教授 瀬戸 秀 紀 教授 小 貫 明

### 論 文 内 容 の 要 旨

本学位論文は，単一高分子鎖の折り畳み転移についての理論的研究をまとめたものである。この問題については，これまで高分子物理学において coil-globule 転移として研究が活発に進められてきた。ところが，高分子鎖の硬さ (stiffness) の効果や，荷電高分子の振る舞い (electrostatics) については，未だ不明な点が多い。本研究では，高分子鎖の硬さや電荷の効果，特にこれら二つが同時に働くことにより引き起こされるであろう新たな折り畳み転移の描像を捉えることを目指した。学位論文は，大きく分けて 3 部構成となっており，以下個別に述べる。

#### 1. 半屈曲性荷電高分子鎖の凝縮構造

従来の高分子物理学では，高分子鎖の凝縮構造としては，液体様の球状構造，いわゆるグロビュールが想定されてきた。最近になって，硬い高分子鎖は，折り畳みにより，分子鎖が局所的に配向した，全体としてはトーラス状の形状をした秩序凝縮構造をとることが分かってきた。本研究では，そのトーラスの構造，サイズが高分子鎖の物性，溶液環境にどのように依存するかを理論的に考察した。中でも，特に興味深い結果として，荷電高分子の場合は，鎖長が長くなるとトーラスが分裂して複数のトーラスが連なった構造 (multiple-tori structure) が理論的に予想される。また，モンテカルロシミュレーションにより，理論の検証も行った。

#### 2. 半屈曲性荷電高分子鎖の折り畳み転移

第 1 部では，半屈曲性荷電高分子鎖の凝縮構造のみに着目したが，ここではそれを拡張して，折り畳み転移について考察をした。トーラス内部の残留荷電という概念を導入して，現象理論的なモデルを構築して解析を行った。その結果，半屈曲性荷電高分子鎖の折り畳み転移は，多段階転移となる得ること，また，転移の各ステージでは複数のトーラスがコイル状の鎖によって繋がった rings-on-a-string 構造というユニークな構造が見られるということを示した。さらに，このような構造が何故得られるかについて，高分子鎖の硬さ，電荷の効果からそのメカニズムを明らかにした。

#### 3. 半屈曲性高分子鎖の折り畳み・解きほぐし過程の速度論

第 3 部では，半屈曲性高分子鎖の折り畳み転移のダイナミクスをブラウニアンダイナミクスシミュレーションにより研究を行った。半屈曲性高分子鎖は，核形成・成長の過程により，トーラスまたはロッド状の秩序構造へと折り畳まれることを示し，従来よく研究されてきた柔らかな鎖 (屈曲性高分子鎖) の折り畳み過程との質的な差異を明らかにした。また，逆過程 (解きほぐし) についても考察をし，折り畳み過程との経路の差異について指摘した。

### 論 文 審 査 の 結 果 の 要 旨

本論文は，単一高分子鎖の凝縮転移についての理論的な研究をまとめたものである。学問的な背景としては，単一高分子鎖の凝縮転移については高分子物理学におけるコイル・グロビュール転移という理論体系がある。通常のコイル・グロビュール転移においては，分子鎖の硬さの効果や静電相互作用の効果は，軽視，もしくは無視されてきた。ところが，実際の高

分子鎖、特にDNAやタンパク質などの生体高分子鎖の振る舞いを考える際には、これらの寄与が本質的に重要な意味をもつものと予想される。本論文はこの点に着目し、DNAやタンパク質などの生体高分子鎖においてのみみられる興味深い現象を、長くて硬い荷電高分子鎖の統計物理という視点から捉えようと試みている。

本論文は、具体的には、(1)半屈曲性荷電高分子鎖の凝縮構造について (2)半屈曲性荷電高分子鎖の凝縮転移について (3)半屈曲性高分子鎖の折り畳み過程の速度論 の3テーマから成っている。(1)では、現象論的な理論から、半屈曲性高分子鎖の凝縮構造であるトーラスのサイズが静電相互作用によりどのように影響を受けるかを考察し、その結果としてトーラスが複数に分裂したmultiple-tori構造が得られる可能性を示している。また、モンテカルロシミュレーションにより理論の検証を行っている。(2)では、半屈曲性の荷電高分子鎖では、分子鎖の硬さと静電相互作用の協同効果により、段階的な凝縮転移が起きるであろうことが理論的に示されている。また、そこではこれまで高分子物理学では考えられてこなかったrings-on-a-string構造という新奇な構造が安定に存在するメカニズムについて考察が行われている。(3)では、ブラウニアンダイナミクスシミュレーションを用いて、半屈曲鎖の折り畳み過程は、単一分子鎖レベルでの核生成・成長過程であることを示している。また、凝縮状態からの解きほぐし過程についての考察もされている。

全体を通して、半屈曲鎖は秩序凝縮構造を形成するということが、すなわち、半屈曲鎖の凝縮転移は、秩序・無秩序転移であるという概念が主張されている。これは、分子鎖の硬さを評価した帰結であって、従来のコイル・グロビュール転移の枠組みを書き換え、より一般化したものとなっている。このように、本論文で取り扱われている主題は斬新なものであり、高分子物理学の立場から生体高分子鎖の振る舞いを考えていくうえで非常に興味深いものであるといえる。半屈曲性の荷電高分子鎖の振る舞いについては、まだまだ未解明な部分も多く、今後の研究の発展が期待される。

よって、本論文は博士(理学)の学位論文として価値のあるものと認める。また、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。