

# 単一高分子鎖から時空間構造を作り出す

CREST (JST)、京都大学大学院理学研究科 眞山 博幸

## 1 緒言

生体中では数多くの生体分子機械(筋肉、チャンネルタンパク質、酵素、RNA、DNA 等)が高次構造をスイッチングすることにより、機能を発現をし、生命活動の維持に重要な寄与を果たしている。この問題に関連し、我々は熱力学的開放条件下にあるメゾスコピックな1次相転移系(1次相転移を示す高分子単分子鎖)が適当なフィードバック条件の下(1次相転移の外場応答性と非平衡条件の競合)、2状態間で周期的な高次構造変化(単一高分子鎖の自励振動)を引き起こすことを理論的に予測しており[1]、その高次構造変化から機能発現が調節され、最終的に時空間構造(生命現象)が形成・維持されると推測している。本研究では、単一高分子鎖の自励振動を実験的に検証し、その一般論を構築することを旨とした[2,3]。

## 2 結果および考察

実験は次のように行った。まず、1次相転移を示す高分子鎖として、凝縮-脱凝縮状態間で不連続転移を示す T4DNA を用いた。次に T4DNA を poly(ethylene glycol)溶液に溶かした(同溶液に溶かすことにより、低温側では凝縮状態、高温側では脱凝縮状態の DNA をつくることできる[4])。そして、IR レーザー光ピンセット(波長 1064 nm)を用いて凝縮状態の DNA 単分子鎖を捕捉した(同ピンセットを用いることにより、①凝縮状態の DNA を捕捉すること、②局所的に温度勾配を形成すること、この2点が同時に可能になる)。

実験の結果、図1のような DNA 単分子鎖の自励振動が観測された。すなわち、熱力学的開放条件下で DNA は2状態間で周期的な高次構造転移を示し、その過程で1次相転移の kinetics (核形成、結晶成長、結晶融解)が観測された。図2は自励振動の周波数のレーザー出力依存性である。閾値の存在、レーザー出力依存性が示されており、同現象が非線形振動であることが示された。また、IR レーザーを吸収しない重水を用いて同じ実験を行った結果、DNA 単分子の振動は観測されなかった。すなわち、これらの結果は熱力学的開放条件が DNA 単分子の非線形振動に必須であることを示している。

以上のように観測された DNA 単分子鎖の自励振動は、環境との間にフィードバックの関係を持つメゾスコピック系の1次相転移の描像から導出される。秩序変数  $\eta$  が 0 から +1 まで変化するとき、非平衡条件下に置かれた1次相転移系からは、次の2式で表されるリットサイクル振動が発現する[2]。

$$\varepsilon \frac{d\eta}{dt} \cong -\frac{\partial \mathcal{F}}{\partial \eta} = -4a\eta^3 + 3b\eta^2 - 2c\eta - \tau + \xi(t) \quad (1)$$

$$\frac{d\tau}{dt} = h - \beta(1 - \eta)^{\gamma} \quad (2)$$

ここで、 $\tau$ は”環境”に依存する変数であり、ここではDNAが感じる温度勾配に相当する(細胞中では、生体高分子周辺のイオンや ATP 等の化学ポテンシャルに相当する)。 $\eta$ は規格化した高分子鎖のセグメント密度(0 - コイル状態、+1 - 凝縮状態)、 $h$  は非平衡度であり、ここでは局所加熱に相当する。 $a$ 、 $b$ 、 $c$ 、 $\beta$ 、 $\gamma$ は正の定数、 $\xi(t)$ はホワイトノイズである。ここで、 $\eta$ を以下のようにDNAの慣性半径  $R$  で定義した。

$$\eta = (R^{-3} - R_{\text{unfold}}^{-3}) / (R_{\text{fold}}^{-3} - R_{\text{unfold}}^{-3}) \quad (3)$$

$R_{\text{fold}}$ 、 $R_{\text{unfold}}$  は、それぞれ凝縮状態、コイル状態の慣性半径である。式(1)と(2)を適当なパラメータ領域で数値計算するとリミットサイクル振動が得られる[2]。ここで論じた理論のエッセンスは、環境と”対話”するメソスコピックな1次相転移系からリミットサイクル振動が作り出されるという点にある[2,5]。

以上の結果から、熱力学的開放系に配置した1次相転移を示す高分子鎖から非線形振動が発現することが示された。この結果は様々な生体分子機械の高次構造変化を通じて時空間構造(生命現象)が作り出されることを理解する上で極めて重要な知見である。

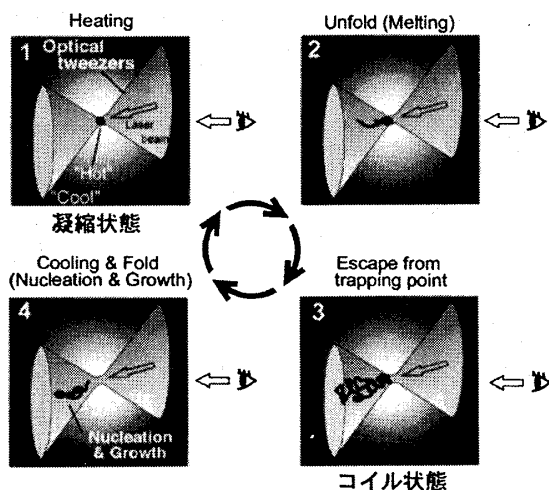


図1 DNA単分子鎖の自励振動(模式図)。文献[2]より改変。

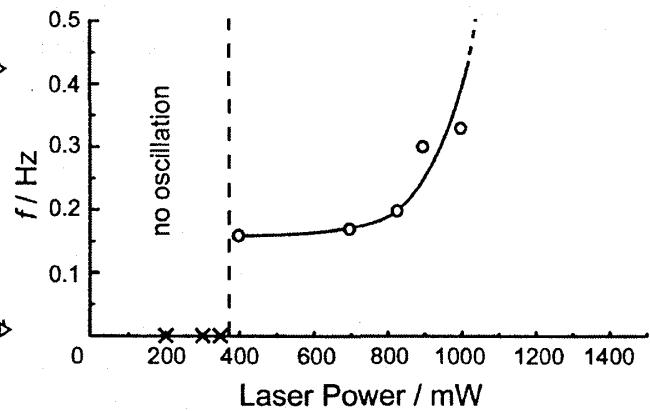


図2 振動周期(基本波)のレーザー出力依存性。文献[2]より改変。

## 参考文献

- [1] K. Yoshikawa and H. Noguchi, Chem. Phys. Lett. **303**, 10 (1999).
- [2] H. Mayama and K. Yoshikawa, Faraday Discussion **120**, 67 (2001).
- [3] H. Mayama, S. M. Nomura, H. Oana and K. Yoshikawa, Chem. Phys. Lett. **330**, 361 (2000).
- [4] H. Mayama, T. Iwataki and K. Yoshikawa, Chem. Phys. Lett. **318**, 113 (2000).
- [5] 眞山博幸、吉川研一、電気学会誌 **121**, 238 (2001).