

研究成果概要

本研究では、京都大学化学研究所スーパーコンピュータシステムを利用し、吸着工学や乾燥工学などの種々のプロセスに関連する物理化学的な諸問題を取り上げ、分子軌道法や分子動力学法などの計算機化学的手法を用いて検討を行うことを目的としている。今年度はアガロオリゴ糖の水和状態を分子動力学(MD)シミュレーションにより検討した。以下その概要を報告する。

糖鎖高分子であるアガロースは、寒天の主要成分であり、食品や電気泳動用支持体に用いられている。そのアガロースを低分子化して得られるアガロオリゴ糖は、抗炎症作用、発がん予防作用などの固有の性質が報告されており、機能性食品への応用が期待されるユニークなオリゴ糖である。本研究では、食品工学、生化学などで有用な基礎的知見を得ることを目的として、分子動力学(MD)計算を用いたアガロオリゴ糖の水和状態に関する研究を行った。特に、糖鎖の水和状態に及ぼす共存成分の影響の検討例として、KCl や NaCl のイオンが共存する場合の水和状態を調べた。

MD 計算には Amber 14 を用いた。糖残基数 6 のアガロオリゴ糖を取り上げ、糖鎖 1, 2 本、糖鎖の質量濃度 0.6, 1.8 wt%, KCl, NaCl の質量モル濃度 0, 0.19 mol/kg、の各場合について、NPT アンサンブル (1 atm, 25°C, 75°C) の MD 計算を実施した。なお糖鎖 2 本の系では、糖濃度 0.6, 1.8 wt% の各場合に糖鎖がそれぞれ 40 Å, 30 Å 離れて独立に水和した状態を初期配置とした。2 本の糖鎖の会合状態について、糖鎖間距離 D [Å]、糖鎖同士がなす角度 θ [deg]、片方の糖鎖の一方の末端水素原子と他方の糖鎖の両末端水素原子までの距離 d_1, d_2 [Å]などを調べ、アガロオリゴ糖の動的挙動について検討した。

各条件における MD シミュレーションの結果から、2 本の糖鎖は共存イオンの有無に関わらず会合することがわかった。計算結果の一例として、糖鎖 2 本、糖濃度 1.8 wt%、25 °C、KCl 濃度 0.19 mol/kg の場合の θ および d_1, d_2 の経時変化の概要を述べる。この系の場合、糖鎖は初期配置から 20 ns 後に会合した。会合後の θ の経時変化に着目すると、55 ns 付近と 160 ns 付近にて θ の値が大きく変化した。これは、会合中の 2 本の糖鎖が 55 ns にて最初の向きから完全に反転し、160 ns で再び反転して元の向きに戻ったためである。この反転に伴い、 d_1, d_2 の値の大小は、 θ の変化と対応した時刻で入れ替わった。さらに、 d_1, d_2 のうち、大きい方の値に着目すると、55 ns から 160 ns では約 30 Å であるのに対し、160 ns 以降は約 20 Å であった。この変化を動画で調べたところ、前者は 2 本の糖鎖が比較的伸びた状態で会合しているのに対し、後者は比較的縮んだ状態で会合していた。以上、糖鎖は会合後でも互いの向きが反転するなど、数 ns から数十 ns の時間スケールで絶えず形状が変化していることがわかった。