

吸着工学・乾燥工学等に関する分子論的検討

Theoretical Studies on Microscopic Problems in Separation Engineering and Drying

京都大学大学院 工学研究科 化学工学専攻 分離工学分野 鈴木哲夫

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、乾燥工学、食品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科学的手法を用いて検討を行うことを目的としている。今年度は糖水溶液中におけるセレンテラジンの動的挙動について、分子動力学(MD)計算により検討した。MD 計算に用いたソフトウェアは Amber24 である。以下その概要を報告する。

セレンテラジンは発光タンパク質の基質となり、酸素と反応して青色発光を呈する。当研究室では糖添加により酵素の凍結変性が抑制されることを検証した実験を行なった。その実験において、添加するトレハロースの濃度が 20 wt%を超えると、凍結過程を経おらず、失活してないはずの酵素の発光強度が著しく低下する現象が観察された。本研究では、この強度低下の要因について分子動力学計算を用いて考察した。

セレンテラジンのモデル作成にあたっては、Gaussian と antechamber を用いて Resp 電荷を決定した。セレンテラジン分子10個、水分子100,000個に対し、糖濃度が0、3、10、20、30、40、45 wt%となるようにトレハロース分子をそれぞれ0、163、586、1,319、2,261、3,517、4,316個加えた合計7つの系を作成した。これらのモデルに3次元周期境界条件を適用して熱平衡計算を行った後、温度25 °C、圧力1 bar、時間の刻み幅2 fs で計50 ns の NPT アンサンブル計算を実施した。分子力場はセレンテラジンに GAFF2、トレハロースに GLYCAM-06j、水分子に TIP4P/Ice を適用した。

セレンテラジンの拡散係数の糖濃度依存性を調べたところ、糖濃度が高くなるにつれて拡散係数の値は小さくなるが、特に20 wt%を超えると拡散係数の値が大きく低下するという結果が得られた。これは当研究室で行なった実験において、糖濃度が20 wt%を超えると発光強度が著しく低下する挙動と符合しており、セレンテラジンの拡散速度の低下が発光強度が減少する要因の1つであることを示唆する。

また、各糖濃度における水素結合数について調べたところ、糖濃度の上昇に伴い、糖-糖間の水素結合数が増加して糖同士の水素結合数が1を超えることから、糖濃度上昇に伴い糖同士の水素結合によるネットワークが鎖状から網目状に変化する可能性が示唆された。

そこで、水溶液中において糖同士で形成するクラスターの構成について検討した。20 wt%までの糖濃度では、糖が形成するクラスターのサイズは数十分子程度の小規模なものが大半だった。これに対し、30 wt%では 1,000 個を超える糖分子で構成されるクラスターが出現した。糖濃度がさらに高くなると、系内の9割方の糖が1つの巨大クラスターを形成するようになった。こうしたクラスタの出現により、セレンテラジンの拡散が著しく阻害されと考えられる。