

[緒言] 生物の遺伝情報を運ぶ DNA は単極性の荷電高分子(Polyelectrolyte)である。この DNA が、電解質溶液で満たされた細胞中に埋め込まれた生体膜(水の約 1/40 の誘電率をもつ)を貫通するナノスケールの孔を通過する場合、DNA と周囲のイオン、膜とのあいだで強い静電相互作用が起きる[1,2]。その原因は、小さい誘電率をもつ膜で静電場が強められるため、そのため膜孔ではバルクの電解質中とは異なる対イオン凝縮が生じ、DNA の膜孔通過に影響を与えられ考えられる。今回はその手始めとして、膜孔中にある DNA 周囲の静電ポテンシャル構造とイオン分布について発表する。

[方法] 古典的分子動力学法を用いて研究を行う。簡単のため直方体の系をとり、その中央部を厚み H_{pore} の膜でしきり、そこに半径 R_{pore} の孔をあける。膜上方と下方のコンパートメント、および孔を濃度 1 M の塩イオンと水分子を表す中性粒子で満たし、誘電率は 80 とする。一方、膜の誘電率は 2 である。DNA は Spring-beads モデルで表し、主鎖上にあり電荷(-e)をもつリン酸基と中性のシュガーリングを、交互に連鎖した帯電モノマーおよび中性モノマーで置き換える。これらの電荷をもとに共役勾配法を用いて空間グリッド上でポアソン方程式を解き、静電ポテンシャルを決定する。ある初期条件から出発して、平衡に達するまで時間ステップを追跡する。はじめの研究段階では、膜孔中におけるイオン分布を調べることが目的なので、DNA の中心を膜孔に固定し、コンパートメント上端と下端はともにゼロ電位に固定する。

[結果] Fig.1 は、与えた誘電率の空間分布(左)とテスト電荷 e が膜孔の中心に存在する場合に計算された静電ポテンシャル(右)を示す。膜孔の壁は誘電率の図で一番離れたコンターの対の位置である。静電ポテンシャル場が膜孔内に閉じ込められ、1 次元的な構造を持つことが示されている。また、静電場は膜孔に接した膜の表面部分で濃縮されるが、これは誘電率がそこで急に小さくなるためである。

Fig.2 は、膜孔中に存在する DNA のスナップショットを示す。これらは初期状態から出発して約 400ps 後の定常状態に達した様子である。左パネルは直径 15Å(オングストローム)、長さ 50Å の膜孔中に存在する DNA である(オレンジ球が電荷をもつモノマーを表す)。膜孔の径は DNA の径の約 2 倍であるが、DNA が孔の形状のために縦長に伸ばされている。中央パネルの DNA は、孔の径が非常に大きくほとんど制約を受けないバルクの状態に対応し、単極性荷電高分子である DNA が 1 M 濃度の対イオンの凝縮を受けて収縮した状態にある。膜孔の基本状態として、DNA が存在しない場合を Fig.2 の右パネルに

DNA polyelectrolyte in a nanopore: Electrostatic potential and ion distributions

Motohiko Tanaka (National Institute for Fusion Science, Toki 509-5292, Japan), Yitzhak Rabin (Bar Ilan University, Israel); Email: mtanaka@nifs.ac.jp URL: <http://dphysique.nifs.ac.jp/>

Keywords: Nano-scale pore, membrane, DNA, ion condensation, electrostatic interactions

Abstract: DNA residing in a nanoscale pore embedded in the membrane of low dielectric constant is highly affected by the geometrical size of the pore and counterion condensation due to enhanced electrostatic interactions in the pore. We study the formation of electrostatic potentials and the behavior of counterions and coions in the nanopore. The DNA is elongated in the pore and its charges are balanced among counterions and coions, with enriched counterions. Interestingly, the coions are not depleted from the pore when the DNA is present.

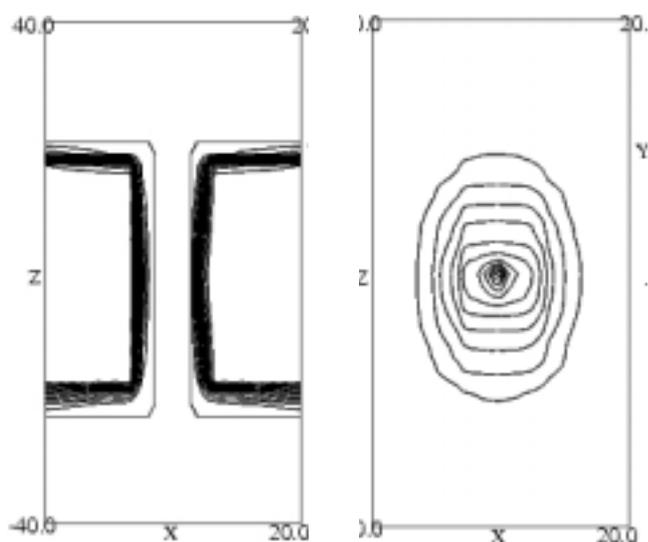


Fig.1 For a test charge (+e) at the center of the pore, contours of the model dielectric constant (left) and calculated electrostatic potential (right) are shown as crosscuts along the pore. The pore walls are located at the most distant (innermost) pairs of the contours. Note the quasi 1d structure of the potential inside the pore, and the enhancement of the electric field in the membrane just facing the pore.

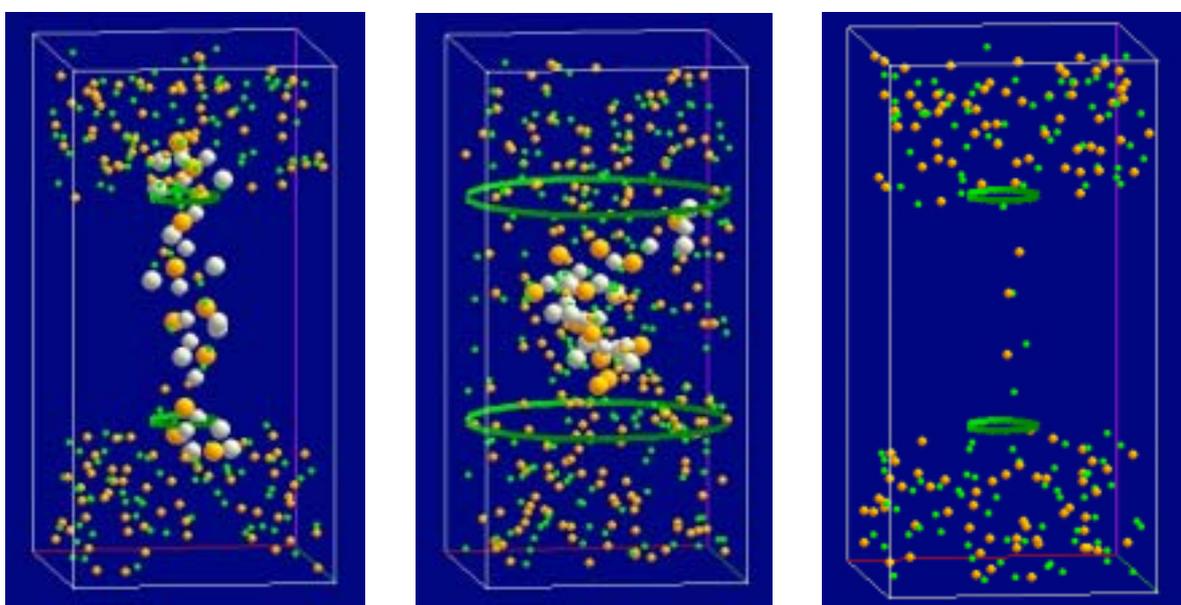


Fig.2 A single-stranded DNA residing in a narrow pore of 15 Å diameter and 50 Å length (left), DNA in a very wide pore of 56 Å diameter (middle), and an empty narrow pore (right). Connected large orange and white spheres represent ($-e$) charged and neutral monomers, respectively. Small green and orange spheres are counterions and coions of 1M concentration, respectively. Two green rings represent the location of the upper and lower rims of the pore. Solvent particles are not drawn for the purpose of clarity.

示す。この膜孔中の平均イオン数は 4.0 個であり、1M 濃度と膜孔体積から予想されるイオン数 5.3 個よりも小さい。これは誘電率が膜内で小さいため静電場が膜孔壁近くで局所的に強められるため、イオンが膜孔から排除されるためと考えられる。また、DNA がある場合、狭い膜孔内に存在するイオンの数は、DNA は 7.1 個、対イオン 10.7 個、共イオン 4.1 個である。基礎状態 (DNA が無い場合) に比べて、DNA 電荷に見合う量の対イオンが増加する一方で、共イオンは排除されない。膜孔内では負電荷がわずかに多くなっている。

参考文献

- [1] D.K.Lubensky and D.R.Nelson, Biophys.J., 77, 1824 (1999).
- [2] E.Slonkina and A.B.Kolomeisky, J.Chem.Phys., 118, 7112 (2003).