

課題名:

基板表面上の脂質分子膜構造の分子軌道計算

利用者氏名:

山田太郎

理研における所属研究室名:

KIM 表面界面科学研究室

1. 本課題の研究の背景、目的、関係するプロジェクトとの関係

利用者はKIM表面界面科学研究室に所属し、表面界面科学のうち、固体と液体の界面、すなわち固液界面の微視的観測の研究を担当している。具体的には2015年度まで所属していた旧小林脂質生物学研究室のテーマであった、固体表面展開生体分子の走査プローブ手法による研究を行っている。また平成25年度後期からは理研が参画するJSTの「COIアクアイノベーション拠点」（信州大学）の研究に関与して、海水の淡水化に用いられるろ過膜の微視的構造及びろ過のメカニズムについて研究を行ってきた。

最近の一連の研究により、走査トンネル顕微鏡が生体分子にも幅広く利用可能であることが多彩な実例によって示されてきて、単純な金属表面に吸着した単一孤立分子の電子構造、振動構造のようなレベルから、モデル細胞膜に組み込まれたタンパク分子の可視化に話題が広がってきている。得られた個々の実験結果についても、生体分子を対象とする理論計算と具体的に对比することが必要な課題となっている。

固体表面吸着系の各種理論計算のプログラミングについては、既に多くの研究成果が世に現れており、それらに基づいたプログラミング業者製造の高性能のソフトウェアも各種販売されているので、そのようなものを購入して使用することで解決する。計算機資源については、Linuxクラスタレベル以上のリソースが必要であり、我々は平成16年度に旧表面化学研究室の研究成果全般に対し、理論計算の裏付けを可能な限り施す為のインフラ整備として、米国アクセルリス社の分子軌道計算ソフトウェア"Dmol3"を購入し、これをスーパーコンピュータ上で動作させ、算出された計算結果が実際我々の実験結果とどのような関係にあるか、また未だ結果のない企画中の実験系に対し、分子軌道計算による予測がどの程度妥当であるかも検討した。そ

れらの努力により、リン脂質分子基板上的単分子膜の研究においても、分子軌道計算が有用に利用できたケースが数多く挙がってきた。Gaussianへの移行によりこのDMol3は使用困難となったため、昨年度は新しい分子軌道計算ソフトウェアやバンド構造計算ソフトウェアを利用してリン脂質分子吸着構造の計算を模索している。

2. 具体的な利用内容、計算方法

新しいソフトウェアとして Gaussian 及び Castep (Dassault ソフトウェア社) の利用を、まずパソコンレベルの計算で試用して検討した。その結果により、HOKUSAI に展開する際の利用をスムーズに行うことを意図した。

計算のテーマは、アルミニウム基板上をアルカンチオール類単分子で修飾した上にリン脂質分子単分子膜を展開した際の安定構造を求めることである。金属アルミニウムは空気中や水溶液中で酸化しやすく、アルミニウムの表面は常に酸化アルミニウムで覆われているものとして実験を行わなければならない。しかしアルカンチオール類単分子膜を利用すれば、少なくとも実験の空気中・水中のハンドリングの間だけでも酸化膜の形成を防いで観測を完遂することができると思われる。金属アルミニウムは金や銀に比べても高いプラズモン励起エネルギーを有し、走査トンネル顕微鏡によるプラズモン励起で脂質分子を励起して観測する新しい方法が期待された。

3. 結果

結果的には、上記のようなパソコン上の Castep ソフトウェアによって、アルミニウム上のドデカンチオール単分子層の分子構造は、軌道放射光を用いたX線吸収スペクトルや蛍光スペクトル測定や高分解能電子エネルギー損失分光などのデータとよく一致する結果

を示した。実験結果との詳細な比較検討は現在進行中であるが、HOKUSAI に進めるほどの計算ではないことが判明した。この結果からすると、リン脂質分子についても分子量がドデカンチオール の 2 倍から数倍までは概ね実験と一致する結果を出すことができると推測される。さらにドデカンチオールと、リン脂質分子と、アルミニウム基板を含めて一体の系とした場合の電子構造計算となると、これは HOKUSAI を利用しなければ困難な計算規模となる。新しい独自ソフトウェアの開発と利用が、この目標のためには望ましいであろう。市販のソフトウェアを利用するにしても、それらを組織的に組み合わせて実験結果と比較する検討が必要となる。

結果的には本年度内にこのような検討を行って HOKUSAI に進むことは間に合わなかった。本年度は HOKUSAI を利用していない。

4. 今後の計画・展望

報告者らはリン脂質分子の単分子膜、2重層等の実験的観測を行い、理論計算によって観測事実を統合的に説明することを常套手段としてきた。今まで利用してきた走査トンネル顕微鏡、赤外吸収スペクトルや高分解能電子エネルギー損失などの振動分光手法、X線軌道放射光等を用いた各種の電子分光等、個々のデータを解釈し構造を明らかにする点では、計算機資源の拡大によって、過去には困難だったことが簡単にできるようになってきた。すなわち、HOKUSAI を利用するほどでもないことを本年度は確認した結果となった。

もちろん生体細胞膜モデル系であるリン脂質分子の単分子膜、2重層は個々のコンポーネントよりはずっと複雑であり、各種スペクトルや画像データと統合的な比較を行うには、我々にとって新しい段階の計算に進まなければならない。

そこで本テーマによる HOKUSAI の利用はひとまず休止して、新しいリン脂質分子 2重層の実験研究を進めると同時に、大規模計算の利用法の探索を行うための時間的余裕をとりたい。

5. 利用がなかった場合の理由

本年度は、HOKUSAI を利用して上記テーマに関連

した計算結果を得ることができなかった。

これは以下のような理由による。昨年度は在来利用してきた Dmol³ を HOKUSAI 上で利用することが困難となり、本年度は新しいソフトウェアを模索することから始めた。その際研究室のパソコンやワークステーション程度の規模のハードウェア上での計算で、少なくとも個々の実験データの解釈に有用な計算データが意外にたやすく得られることが分かってきた。そこで我々としては、細胞膜としてのリン脂質分子膜を大型の系としてとらえる計算に進むことを希望したが、そのためには数多くの新たな検討が必要であり、それらをこの年度内に収束させることは間に合わなかった。

従って令和元年度の本テーマによる簡易利用は今年度で終了し、具体的な理論計算の道筋が固まった段階で、新たなテーマでの簡易利用を申し込むこととした。