

中空球状アロフェンナノ粒子による DNA 分子の吸着特性

豊田工大院工 ○松浦洋航, 伊與田文俊, 林修平, 荒川修一, Baiju John, 岡本正巳, 槌屋 林秀共

< 緒言 >

粘土鉱物(クレイ)によるデオキシリボ核酸(DNA)吸着を研究することは生命の起源を解明する上で有用な知見を与える。火山活動などにより、土壌中のクレイが水中に放出され、その吸着機能から DNA 分子が凝集させられ、それが生命の誕生に寄与すると仮に想定すると、クレイがより効率的に DNA 分子を吸着する条件を見つけ出す必要がある¹⁾。そこで、本研究では吸着剤として中空球状非晶質であるアロフェンナノ粒子を検討した。アロフェンは主に火山灰土中に存在する含水アルミニウムケイ酸塩であり、中空球状の構造モデルが考案されている。構造は SiO₄ と Al(OH)₃ 由来の 2 層のシートから構成され、球壁に約 0.3 nm の欠陥(perforation)を持ち、大きな表面積を有するため、様々な物質を吸着できる。本研究の目的は、アロフェンによる DNA の吸着メカニズムの解明である。

< 実験 >

吸着剤として群馬県赤城山産の天然由来のアロフェン(AK70)と、水熱合成にて作製した合成アロフェンを用いた。adenosine 5'-monophosphate(5'-AMP)と仔牛の胸腺由来の single-stranded deoxyribonucleic acid (ss-DNA) (Sigma-Aldrich: D8899, $M_w = 1.635 \times 10^7$ Da, 5.0×10^4 base)を吸着質とした。アロフェンと所定濃度の吸着質溶液、NaCl 溶液を混合し、室温で 60 時間振とうさせ、遠心分離処理(6000 rpm, 10 分間, 2 回)をし、上澄み液の全有機炭素(TOC), 全窒素(TN)濃度を燃焼法(800 °C)にて測定し、吸着量を評価した。また、pH 条件・吸着時間を変化させ、吸着特性に及ぼす影響を調べた。

< 結果・考察 >

TOC/TN から算出した平衡濃度 $[A]_e$ に対する吸着量 Q を用いて Freundlich の吸着等温式 $Q = K_f [A]_e^{1/N}$ から K_f と N を算出し、この値を Table に纏めた。吸着能を表す K_f は 5'-AMP の方が ss-DNA より非常に大きいことが分かる。これは、ss-DNA の分子鎖の立体障害とリン酸基の反発によるものと示唆される。また、Fig は所定の pH における ss-DNA の吸着特性を評価したもので、Table に得られた K_f と N の値を示す。pH の増加に伴い ss-DNA の吸着能は低下していることが分かる。これは pH の変化におけるアロフェンの表面電荷特性が原因であり、pH の変化に伴ってアロフェンの表面に存在する Al-OH 基がプロトン化もしくは脱プロトン化し、ss-DNA 分子鎖との静電相互作用が変化するためと考えられる²⁾。また、合成アロフェンでの吸着実験結果や時間依存性の評価については当日に報告する。

< 参考文献 >

- 1) 中沢弘基, “生命の起源: 地球が書いたシナリオ”, 新日本出版社 (2006)
- 2) Saeki K, Sakai M, Wada SI, Appl. Clay Sci., 50, 493, (2010)

Table. The Freundlich isotherm parameters for 5'-AMP and ss-DNA

Adsorbents	Adsorbates	pH	K_f $10^5 \text{ mol/g mol}^{-1/N}$	N	$R^{2 \text{ a)}}$
AK70	5'-AMP	-	15700	1.23	0.954
	ss-DNA	-	0.283	2.39	0.960
AK70	ss-DNA	3	453	1.38	0.993
		7	1.59	2.04	0.984
		9	0.031	2.97	0.966

a) The values are calculated by linear regression.

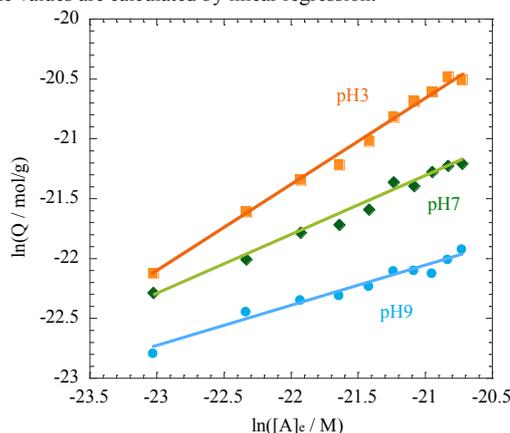


Fig. Freundlich adsorption isotherms of ss-DNA under different pH conditions.

DNA adsorption characteristics of hollow spherical allophane nano-particles

Yoko Matuura¹, Fumitoshi Iyoda¹, Syuhei Hayashi¹, Syuichi Arakawa¹, Baiju John¹, Masami Okamoto¹, Hidetomo Hayashi²¹Graduate School of Engineering, Toyota Technological Institute, 2-12-1, Hisakata, Tempaku, Nagoya, Aichi 468-8511, Japan ²Tsuchiya Co., Ltd., 22-4, Higashinamikita, Yamamachi, Chiryu, 472-0006, Japan)¹Tel: 052-809-1863, Fax: 052-809-1864, E-mail: sd08095@toyota-ti.ac.jp**Key Word:** allophanes / nanoparticles / DNA / adsorption

Abstract: We synthesized three allophanes from precursors by a hydrothermal reaction at 100 °C for 48 h. The precursors were formed from the solutions of Na₄SiO₄ and AlCl₃ · 6H₂O. The adsorption of single-stranded deoxyribonucleic acid (ss-DNA) (adsorbate) by the natural (AK70) and synthesized allophane (adsorbent) was investigated as a function of time and pH of the medium and compared with the adsorption of the same on 5'-AMP (adsorbate). The adsorption data were fitted by the Freundlich equation and the adsorption parameters were discussed in relation to the properties of the natural and synthetic allophanes. The adsorption capacity (K_f) of the natural allophane for ss-DNA was small as compared to that for 5'-AMP. With the increase of pH, the adsorption of ss-DNA on AK70 showed a decrease due to the deprotonation of Al-OH groups on the surface.