

# 1. FÉLÉVI BESZÁMOLÓ

**Papp Eszter** ([epapp95@gmail.com](mailto:epapp95@gmail.com))

Statisztikus Fizika, Biológiai Fizika és Kvantumrendszerek Fizikája PhD program

Témavezető: Prof. Vattay Gábor

A dolgozat címe: Theory and Simulation of Anomalously High Conductance in Proteins

2021.01.22.

A fehérjéket sokáig szigetelőknek gondolták, ám az új kísérleti eredmények<sup>[1,2,3]</sup> nagyban eltérnek azoktól az elektrokémiai megfigyelésektől, melyekben a fehérjék szigetelőként viselkednek nagy HOMO-LUMO gap-pel.

Vattay Gábor által vezetett kutatócsoportunk ezen új kísérleti felfedezések megmagyarázására keresi a választ. Ennek eredményeként jött létre egy olyan általánosított Landauer formula, amely fehérjék és biomolekulák vezetőképességét hivatott leírni biológiai rendszerekben érvényes körülmények között (magas hőmérséklet, zajos környezet).<sup>[4]</sup>

## Kutatási tevékenység:

A fent említett általánosított formulát nem sok kísérleti adattal tudtuk tesztelni első cikkünk megjelenéséig; azonban a félév elején együttműködést kezdtünk egy, a területen jól ismert kísérleti csoporttal. Prof. David Cahen és munkatársai az izraeli Weizmann Intézetben fehérjék vezetőképességét mérik, többnyire annak hőmérsékletfüggését.<sup>[5,6,7,8]</sup> (Szemi)klasszikus elméletek szerint a fehérjéken átfolyó áram alakja:

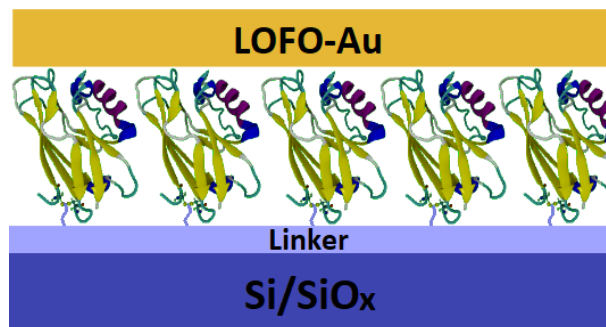
$$I = I_T e^{-\Delta_1/k_B T}$$

Ahol  $\Delta_1$  energiakülönbség a HOMO-LUMO gap. Ez az alak elég magas hőmérsékleteken érvényes, ám a megfigyelések azt mutatják, hogy a fehérjék árama a hőmérséklet csökkenésével egy konstanshoz tart. Az általánosított Landauer formula szerint:

$$I = I_0 + I_T e^{-\Delta_2/k_B T}$$

$\Delta_2$  értéke lehet a HOMO-HOMO-1 szintkülönbség (lyuktranszport) vagy LUMO+1-LUMO (elektrontranszport).

Alapvetően nem lehet egy univerzális határt húzni „elég magas” és „már alacsony” hőmérséklet között, hiszen a kétféle viselkedés függ az elektródok fehérjékhez való csatolásának erősségétől is.



Kísérleti berendezés sematikus ábrája

Mivel az áram hőmérsékletfüggését több feszültségnél is mérték, így az áramokra illesztett görbék paramétereit ( $I_0$ ,  $I_T$ ,  $\Delta$ ) feszültség függvényében is tudtuk vizsgálni.

Az adatfeldolgozás legelső lépéseként kivontuk a  $V=0$  feszültségnél mért áramot mindegyik mérésből, majd amelyik mérésnél célszerű volt, polinomot illesztettünk az áram-feszültség görbékre, ezzel csökkentve a mérés pontatlanságát.

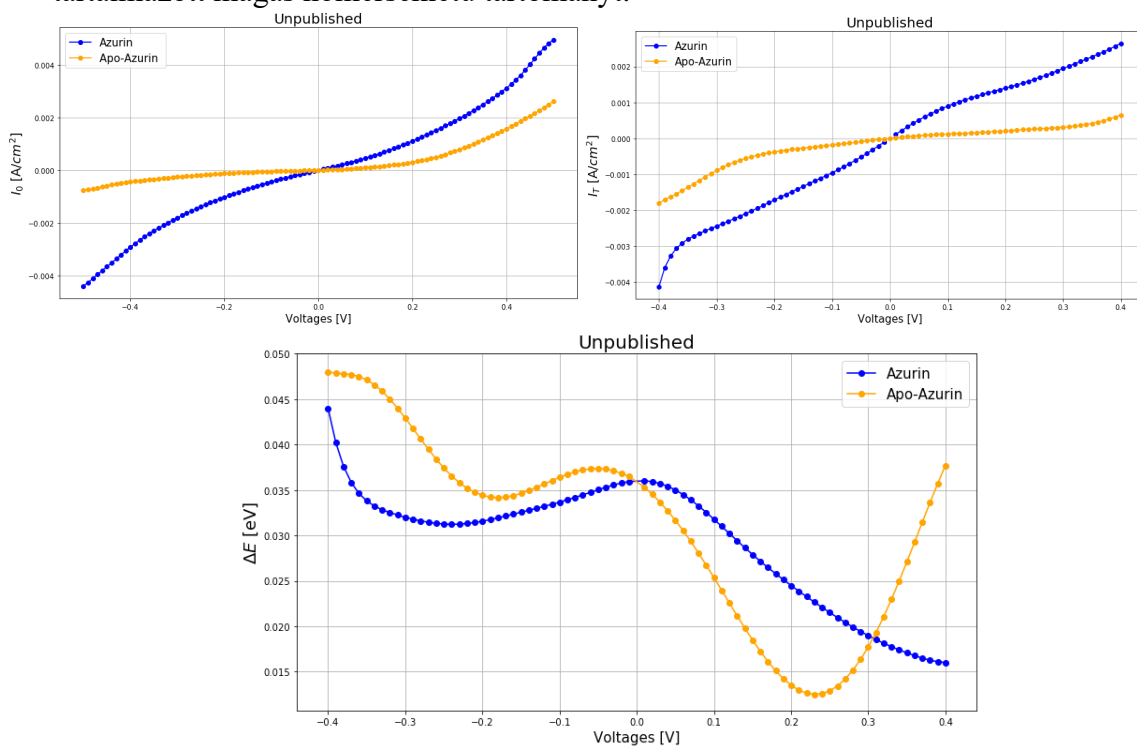
Többféle fehérjéhez tartozó adatsor állt rendelkezésünkre, ezek közül két kisebb kiértékelése:

- Azurin és Apo-Azurin:

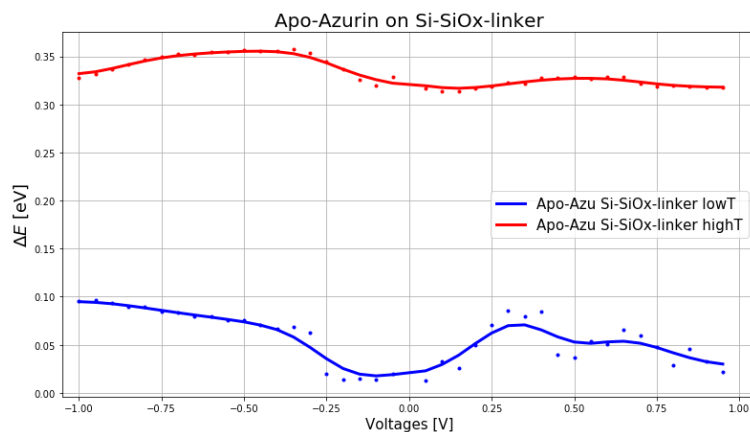
Az Azurin egy kicsi fehérje (14kDa), mely tartalmaz egy  $\text{Cu}^{2+}$  kofaktort, ezzel szemben az Apo-Azurin szerkezete csak annyiban tér el az Azurintól, hogy nem található meg benne a fém ion.

A fehérjéket egy linker segítségével kapcsolják egy oxidréteghez, aminek tulajdonságai nagyban befolyásolják a fehérjék vezetőképességének hőmérsékletfüggését. Emiatt többféle eljárással készített réteggel is végeztek mérést (Apo-)Azurinnal.

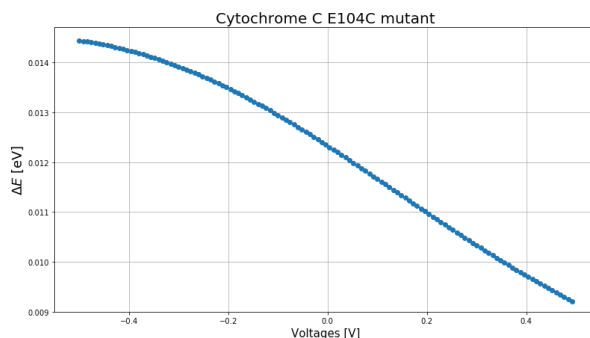
Az egyik oxidréteg esetében mindkét fehérje adatsora kiértékelhető volt és nem tartalmazott magas hőmérsékletű tartományt.



A régebbi mérés esetében csak az Apo-Azurin volt kiértékelhető, de ebben az esetben nem volt olyan erős a csatolás és a magas hőmérsékletű tartományt is tudtuk vizsgálni.



- Cytochrome-C:



Mivel mind a három fehérje kicsi, így az energiaszintjeik DFT-vel könnyen kiszámolhatók viszonylag nagy pontossággal. Ebben volt segítségünkre egy másik kutatócsoport, akik szintén fehérjék vezetőképességével és szerkezetével foglalkoznak.<sup>[9]</sup> Az ő eredményeiket tudtuk összevetni a  $V=0$  feszültségnél kapott  $\Delta_1$  és  $\Delta_2$  paraméterekkel.

	Illesztési paraméter	DFT számolás
Apo-Azurin (alacsony T)	$\approx 0.036$ eV (újabb mérés)	$\approx 0.035$ eV (LUMO+1-LUMO)
Azurin (alacsony T)	$\approx 0.036$ eV	$\approx 0.032$ eV (HOMO-HOMO-1)
Apo-Azurin (magas T)	$\approx 0.33$ eV	$\approx 0.28$ eV (HOMO-LUMO)
Cyt C (alacsony T)	$\approx 0.012$ eV	$\approx 0.014$ eV (HOMO-HOMO-1)

Látható, hogy az általunk kapott értékek nem térnek el nagyban a DFT-vel kiszámoltaktól. Az is megfigyelhető, hogy míg az Apo-Azurin esetében az elektronok transzportja dominál, addig a Cyt C és Azurin esetében a lyuktranszport a domináns.

#### Tanulmányi tevékenység:

A félév során az alábbi kurzusokat végeztem el:

- Az érzékelés biofizikája (jeles)
- Makromolekulák (jeles)
- Új kísérletek a kvantummechanikában (jeles)

#### Publikációk:

Folyamatban van egy közös cikk írása az említett két kutatócsoporttal.

#### Szakmai közéleti tevékenység:

Kísérletek bemutatása a Kutatók Éjszakáján online.

#### Hivatkozások:

[1] Zhang, Bintian et al. 2017. "Observation of Giant Conductance Fluctuations in a Protein." Nano Futures 1(3):035002.

[2] Amdursky, Nadav et al. 2014. "Solid-State Electron Transport via Cytochrome c

Depends on Electronic Coupling to Electrodes and across the Protein.” *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America* 111(15):5556–61.

- [3] Raichlin, Sara, Israel Pecht, Mordechai Sheves, and David Cahen. 2015. “Protein Electronic Conductors: Hemin-Substrate Bonding Dictates Transport Mechanism and Efficiency across Myoglobin.” *Angewandte Chemie International Edition* 54(42):12379–83.
- [4] Papp, Eszter, Dávid P. Jelenfi, Máté T. Veszeli, and Gábor Vattay. 2019. “A Landauer Formula for Bioelectronic Applications.” *Biomolecules* 9(10):599.
- [5] Fereiro, Jerry A. et al. 2019. “A Solid-State Protein Junction Serves as a Bias-Induced Current Switch.” *Angewandte Chemie - International Edition* 58(34):11852–59.
- [6] Fereiro, Jerry A. et al. 2018. “Tunneling Explains Efficient Electron Transport via Protein Junctions.” *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America* 115(20):E4577–83.
- [7] Garg, Kavita et al. 2018. “Interface Electrostatics Dictates the Electron Transport via Bioelectronic Junctions.” *ACS Applied Materials and Interfaces* 10(48):41599–607.
- [8] Kayser, Ben et al. 2020. “Solid-State Electron Transport via the Protein Azurin Is Temperature-Independent down to 4 K.” *Journal of Physical Chemistry Letters* 11(1):144–51.
- [9] Romero-Muñiz, Carlos et al. 2018. “Ab Initio Electronic Structure Calculations of Entire Blue Copper Azurins.” *Physical Chemistry Chemical Physics* 20(48):30392–402.