

様 式 C - 7 - 1

平成 2 9 年度科学研究費助成事業（科学研究費補助金）実績報告書（研究実績報告書）

所属研究機関名称		奈良先端科学技術大学院大学	機関番号	1 4 6 0 3
研究 代表者	部局	物質創成科学研究科		
	職	准教授		
	氏名	松尾 貴史		

1 . 研究種目名 新学術領域研究（研究領域提案型） 2 . 課題番号 16H01029

3 . 研究課題名 タンパク質の構造変化で動的反応場変換するバイオ触媒の開発

4 . 研究期間 平成 2 8 年度 ~ 平成 2 9 年度 5 . 領域番号・区分 2702 公募研究

## 6 . 研究実績の概要

従来の金属イオン含有バイオ触媒の開発研究においては、金属配位部位の構造最適化によって標的とする触媒機能の開発が行われてきた。しかし、タンパク質を基盤とする場合、生体高分子としてのタンパク質構造の動的効果を利用すれば、外部刺激によって反応場変換が可能なバイオ触媒が創成できる。前年度において、核酸分子の結合によって大きな構造変化を示すアデニル酸キナーゼ変異体（A55C/C77S/V169C）の 2 カ所のシステイン残基に、Co(II)サレン錯体を導入したところ、遷移状態アナログであるAp5Aの結合によってタンパク質がCLOSED状態となった際に、金属錯体同士の相互作用が発現することが見いだされた。そこで、本年度は、2つの金属中心の相乗効果の有無による触媒反応制御を試みた。対象として、スチレンオキシドのエポキシドの開環反応を検討した。本反応系においては、1つの金属中心がエポキシドの酸素原子への配位を担い、もう片方の金属中心が水分子の活性化を行うことを想定している。反応条件として、pH = 7.0 から 9.0 までの範囲においては、pH = 7.5 において、最も高い触媒活性が見られた。この結果は、Co(II)のルイス酸性により、基質の配位、水の活性化の影響が最大になる条件であると考えられる。また、CLOSED状態においては、錯体同士が離れているOPEN状態よりも、高い触媒活性が観測された。以上の結果は、本バイオ触媒の分子設計の妥当性が示され、「タンパク質ダイナミクス」に基づくバイオ触媒の開発アプローチが学術的に意義のあるものとして提案できた。

## 7 . キーワード

生体触媒 反応場変換 タンパク質 コバルト錯体

## 8 . 現在までの進捗状況

区分	
理由	29年度が最終年度であるため、記入しない。

2 版

## 9. 今後の研究の推進方策

29年度が最終年度であるため、記入しない。

## 10. 研究発表（平成29年度の研究成果）

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著論文 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Matsuo Takashi, Kono Takamasa, Shobu Isamu, Ishida Masaya, Gonda Katsuya, Hirota Shun	4. 巻 24
2. 論文標題 Global Structural Flexibility of Metalloproteins Regulates Reactivity of Transition Metal Ion in the Protein Core: An Experimental Study Using Thiol-subtilisin as a Model Protein	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Chem. Eur. J.	6. 最初と最後の頁 2767 ~ 2775
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1002/chem.201705920	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 松尾貴史
2. 発表標題 タンパク質の動的構造効果による機能制御
3. 学会等名 第30回生物無機化学夏季セミナー（招待講演）
4. 発表年 2017年
1. 発表者名 三宅輝幸、松尾貴史、廣田俊
2. 発表標題 金属錯体-金属錯体相互作用のスイッチングを目指したCoサレン錯体修飾アデニル酸キナーゼの物性評価
3. 学会等名 錯体化学会第67回討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 松尾貴史、三宅輝幸、藤井亮、菖蒲勇、河野尊匡、廣田俊
2. 発表標題 タンパク質の構造的二面性に立脚した反応場の機能制御
3. 学会等名 第66回高分子討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Takashi Matsuo, Takefumi Yoshida, Chie Imai, Shun Hirota, Kazumo Wakabayashi,
2. 発表標題 Construction of “metathesase” with protein scaffold and potential application of olefin metathesis as a biochemical tool
3. 学会等名 International Congress of Pure and Applied Chemistry-2018(ICPAC-2018) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

1 1 . 研究成果による産業財産権の出願・取得状況

計0件 (うち出願0件 / うち取得0件)

1 2 . 科研費を使用して開催した国際研究集会

計0件

1 3 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

-

1 4 . 備考

松尾貴史ホームページ  
[http://mswebs.naist.jp/LABS/hirota/tmatsuo/matsuo\\_jpn.html](http://mswebs.naist.jp/LABS/hirota/tmatsuo/matsuo_jpn.html)