

I タンパク質内プロトン輸送機構の理論解析

Theoretical analyses of proton transport processes in Cytochrome *c* Oxidase

神谷克政・重田育照・押山 淳
Kamiya, K., Shigeta Y., Oshiyama, A.

立体構造と電子状態の間の表裏一体性に着目し、蛋白質の構造と機能の間の相関関係を電子論的に調べている。高分解能で立体構造が決定されているチトクロム酸化酵素に対し、本酵素が駆動するプロトン移動や電子移動の反応機構を、量子論に基づく第一原理電子状態計算により調べた。プロトン移動経路を構成するアミノ酸や水分子により形成される水素結合環境の機能的な重要性が明らかになった。

II 人工 DNA の構造と安定性の理論解析

Theoretical analyses of structure and stability of artificial DNA

重田育照
Shigeta Y.

近年、DNA類似塩基を持つ人工DNAの合成やチミンミスマッチ構造への金属配位等が注目を浴びている。我々は、Hg含有チミンミスマッチ構造のUVスペクトルの第一原理計算から、濃度に依存したスペクトルのピークシフトの原因が、最低非占有軌道のHg-Hg間の直接相互作用によって引き起こされる事を明らかにした。またCu含有人工DNAの電気伝導の理論計算から、Cu配位によって1000倍程度の伝導性の向上が見られる事も明らかにしている。

III 生体ナノシステム解析のための 第一原理分子動力学計算法の開発

Development of first principle molecular dynamics for nano-bio systems

重田育照・押山 淳
Shigeta Y., Oshiyama, A.

ピコメーターサイズの現象は、量子力学に基づいている。特に、機能を司る化学反応を理解する為

には、系の電子状態変化を解析する必要がある。一方、系を構成する粒子数が多くなると、動力学的揺らぎや統計力学的な取り扱いも必要になる。我々は、生体ナノシステム解析のため実空間密度汎関数理論+メタダイナミクス法を開発し、タンパク質内での構造揺らぎを伴う水素移動を研究している。また、水素の量子同位体効果を扱う新規手法開発も行っている。

発表論文 List of Publications

- I -1 K. Kamiya, M. Boero, K. Shiraiishi, A. Oshiyama, Y. Shigeta, “*Energy Compensation Mechanism for Charge-Separated Protonation States in Aspartate-Histidine Amino Acid Residue Pairs*”, *J. Phys. Chem. B*, **114**, 6567-6578, 2010.
- I -2 神谷克政、「理論計算によるピコバイオロジー研究」生物物理 50, 5, 2010.
- I -3 K. Kamiya, Y. Shigeta, “*First-principles Molecular Dynamics Studies on the Atomistic Behavior of His503 in Bovine Cytochrome c Oxidase*”, *Biochim Biophys Acta* in press (2011).
- II -1 T. Matsui, A. Oshiyama (東京大学), Y. Shigeta, “*A Simple scheme for estimating the pKa values of 5-substituted uracils*”, *Chem. Phys. Lett.*, **502**, 4-6, 248-252 (2011).
- II -2 Y. Nakanishi (大阪大学), T. Matsui, Y. Shigeta, Y. Kitagawa (大阪大学), T. Saito (大阪大学), Y. Kataoka (大阪大学), T. Kawakami (大阪大学), M. Okumura (大阪大学), K. Yamaguchi (大阪大学), “*Sequence-Dependent Proton-Transfer Reaction in Stacked GC Pair III: The Influence of Proton Transfer to Conductivity*”, *Int. J. Quantum Chem.*, **110**, 2221-2230, 2010.
- II -3 H. Miyachi (千葉大学), T. Matsui, Y. Shigeta, K. Hirao (理研), “*Effects of Mercury (II) on Structural Properties, Electronic Structure and UV Absorption Spectra of Thymine-Mercury (II)-Thymine Nucleobase Pair Containing Duplex*”, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **12**, 909-917, 2010.
- II -4 Y. Shigeta, “Theoretical study on artificial and mismatch DNA bases”, *Symposium #5 Pacificchem 2010*, Hawaii, Dec. 14th-20th 2010, USA.
- III -1 Y. Shigeta, “Analyses of bio-molecular reactions based on first-principles calculations”, *Frontier in reaction path theory*, Fukui Institute, Kyoto University, Sep. 12th 2010.
- III -2 重田育照、“量子揺らぎと熱揺らぎの動的分子理論の研究”、平成22年度文部大臣表彰若手科学者賞。

大学院生命理学研究科

なし

科学研究費補助金等

- 1 科研費補助金（平成 22～25 年度） 若手研究 A 課題番号: 22685003
研究課題 タンパク内で起こる協同的プロトン・電子移動反応の量子論的解析
研究代表者 重田育照
- 2 CREST・JST(平成 20～22 年度)
研究課題 計算機科学によるナノアーキテクチャ構築
研究代表者 押山 淳（東京大学教授・兵庫県立大学客員教授）