

非経験的 quantum mechanical/molecular mechanical シミュレーションによる生体内の 化学反応に関する理論的研究

林 重彦 (京都大学福井謙一記念研究センター)

化学反応は多くの生体分子過程に含まれている。しかしながらその生体機能に対する重要性にも関わらず、電子的及び分子的な詳細は良く分かっていない。これは、複雑な生体分子内における化学反応分子の電子波動関数を記述することが困難であるからである。本研究では、非経験的 quantum mechanical/molecular mechanical (QM/MM) シミュレーションを用いて、ロドプシタンパク質と F₁-ATP 合成酵素の化学反応を調べる。この手法はそのような化学反応のエネルギーや動力学をタンパク質環境による静電場や立体障害などの影響の中で直接記述することが可能である。我々は初めて多電子状態を含む非経験的 QM/MM 分子動力学計算を行いバクテリオロドプシン (bR) の発色団の光異性化動力学を調べた。その結果、その反応に特徴的な速度論的振るまいや高い反応選択性に対するタンパク質環境の重要性を明らかにした。また、bR 光サイクルの初期中間状態の構造を予測しその状態がどのように光エネルギーを貯めているかを明らかにした。予測された構造は最近の x 線結晶構造学実験により確認されている。さらに QM/MM 法を F₁-ATP 合成酵素中の ATP 加水分解反応に適用し、新たな反応経路を見出した。