

**情報解禁** 日本時間 2023年4月12日(水) 18:00

配布先: 京都大学記者クラブ、草津市政記者クラブ、大阪科学・大学記者クラブ、文部科学記者会、科学記者会、報道関係各社



2023. 4. 10

報道関係者 各位

< 配信枚数3枚 >

## 葉緑素(クロロフィル)の生合成に関わる酵素の反応機構を分子レベルで解明

～天然の光合成機能を超越した人工光合成システムの実現を目指して～

立命館大学生命科学部の民秋 均教授と同大学大学院生命科学研究科元院生の廣瀬光了さん(本年 3 月学位早期取得後に現在、成蹊大学理工学部助教)は、久留米大学医学部の原田二郎講師と福井工業大学環境学部の柏山祐一郎教授と共同し、光合成における葉緑素(クロロフィル)分子の生合成中間体※1を発見しました。加えて、その中間体の産生に関与する生合成酵素※2 が二重の反応性を持っており、それらの反応機構を分子レベルで解明することにも成功しました。本研究成果は、2023 年 4 月 12 日 18 時(日本時間)に、米国化学会の雑誌「Biochemistry」に掲載されます。

### 本件のポイント

- 光合成における葉緑素(クロロフィル)分子の生合成経路で働く BciC 酵素の一部を変異することで、その分子の合成中間体を検出できることを発見した。
- BciC 酵素は、加水分解反応と脱炭酸反応の二重機能を兼ね備えており、その 2 つの酵素反応機構を分子レベルで解明することに成功した。
- 光捕集系に存在する複雑な葉緑素を人工的に作り出した天然を凌駕する光合成システムの実現への展開が期待される。

### <研究成果の概要>

自然界で行われている光合成は、クロロフィル色素分子が重要な役割を担っています。そのクロロフィル分子は、様々な酵素反応を経由することで生合成されています。それらの生合成酵素の機能については解明が進んでいるものの、詳細な反応機構についてはほとんどわかっていません。今回、その生合成酵素の 1 つである BciC が、加水分解反応と脱炭酸反応を触媒する二重機能を兼ね備えていることと、それらの反応機構を詳細に解明することに成功しました。右の図 1 は、BciC 酵素を擬人化し、さらにその酵素の二重機能性を 2 つのピアスで表現しています。これら 2 つのピアスの間に描かれたのが、クロロフィル分子の中間体の一部です。

このような生合成酵素の反応機構を解明していくことで、人工的に作製が困難な光捕集系のクロロフィル分子を容易に作製する手がかりになることが期待されます。



図 1. BciC 酵素の二重機能を擬人化したイラスト

## <研究の背景>

これまで、様々な酵素の反応機構を解明してきた研究では、結晶構造解析が必須でした。しかし、結晶構造解析は、酵素の精製および結晶化が困難であるため、解析に数年から数十年かかるケースも少なくありません。近年、(酵素)タンパク質の3次元構造モデルを高精度に予想できるディープラーニングを利用した計算科学が急激に発展してきました。そこで、その計算科学と、酵素で反応する基質分子を改変する有機化学と、酵素の活性部位の変異を行う遺伝子工学の3つの分野を複合化させることで、光合成色素であるクロロフィル分子の生合成に関わる酵素の1つである BciC の酵素反応機構の解明を目指しました。また、これまでの研究で、この BciC 酵素がある特別なクロロフィル中間体を経由させていることは推定されていましたが、その天然型の中間体は、化学的な安定性の面から検出困難であると考えられていました。

## <研究の内容>

今回研究者らは、図2左の構造式で示されたクロロフィル分子を図2右で示された分子に変換する BciC 酵素反応に関わるアミノ酸残基を、計算科学を駆使して予想しました。そして、天然 BciC 酵素の部分変異を行うことで、検出困難なクロロフィル中間体の検出が可能になることを発見しました(図2中)。その中間体の発見により、BciC 酵素は、加水分解反応と脱炭酸反応を触媒する二重機能を兼ね備えていることが明らかとなりました(映像参照)。さらに、BciC 酵素の加水分解反応に関与するアミノ酸残基の部分変異を行うことで、加水分解反応機構を予想できました(図2下:Hydrolysis)。また pH 変化による、中間体モデル分子の脱炭酸過程を追跡することで、脱炭酸反応機構を推定することもできました(図2上:Decarboxylation)。

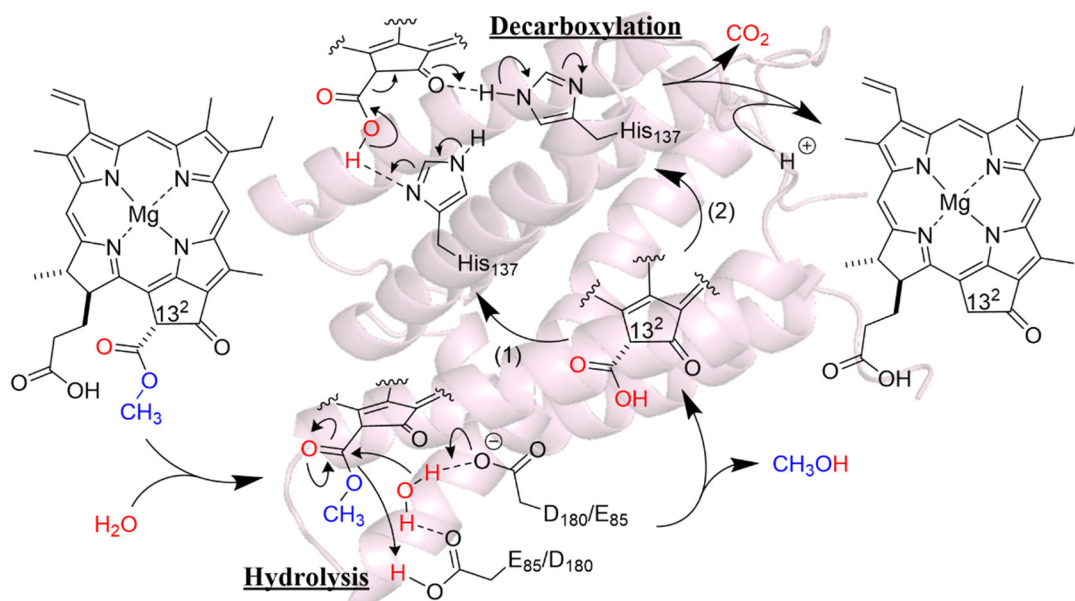


図2. BciC 酵素が触媒する加水分解反応と脱炭酸反応の予想機構

「葉緑素(クロロフィル)の生合成で働く酵素 BciC の内部で行われる2段階的な脱メキシカルボニル化反応機構」

【動画リンク】<https://youtu.be/VUwYMrGoR3Q>

## <社会的な意義>

自然界で行われている光合成機能において、クロロフィル分子は、(太陽)光の吸収、伝達、そして(電気)化学エネルギーへの変換を担っている重要な分子です。今回は、このクロロフィル分子の生合成で働く酵素の反応機構を分子レベルで解明したことから、光捕集系のクロロフィル分子を人工的に作製する大きな手がかりと考えられます。そして、光捕集能が最大のクロロフィル分子を生み出すことで、天然の光合成機能を越えた人工光合成システムの創製を目指した展開にまで貢献できることが期待されます。

## <論文情報>

論文名 : Predicted structure of the BciC enzyme catalyzing the removal of the C13<sup>2</sup>-methoxycarbonyl group for biosynthesis of chlorosomal chlorophylls: A mechanism for dual catalytic functions of hydrolysis and decarboxylation inside its active site

著者 : Mitsuaki Hirose<sup>1</sup>, Jiro Harada<sup>2</sup>, Yuichiro Kashiyama<sup>3</sup>, and Hitoshi Tamiaki<sup>1,4</sup>

所属 : <sup>1</sup>立命館大学大学院生命科学研究科

<sup>2</sup>久留米大学医学部

<sup>3</sup>福井工業大学環境学部

<sup>4</sup>立命館大学生命科学部

発表雑誌 : Biochemistry

掲載日 : 2023年4月12日18時(日本時間)

D O I : 10.1021/acs.biochem.2c00715

U R L : <https://doi.org/10.1021/acs.biochem.2c00715>

## <用語説明>

※1 (生合成)中間体:目的とする反応の途中で現れる生成物(化合物)。

※2 (生合成)酵素:葉緑素などが順次につくられていく過程の中で働くタンパク質(触媒)。

以上

---

### ●本件に関するお問い合わせ先

(研究内容について)

立命館大学 生命科学部 教授 民秋 均

TEL.077-561-2765 Email. tamiaki@fc.ritsumei.ac.jp

福井工業大学 環境学部 環境食品応用化学科 教授 柏山 祐一郎

Email. chiro@fukui-ut.ac.jp

久留米大学 医学部医化学講座 原田二郎

Email. jiro\_harada@kurume-u.ac.jp

(報道について)

立命館大学広報課 担当:名和

TEL.075-813-8300 Email. r-koho@st.ritsumei.ac.jp

福井工業大学社会連携推進課 担当:西尾

TEL. 0776-29-2661 Email. shakai-u@fukui-ut.ac.jp

久留米大学総合企画部広報室

TEL.0942-31-7510 Email. kikakukouhou@kurume-u.ac.jp