

研究成果報告書

(国立情報学研究所の民間助成研究成果概要データベース・登録原稿)

研究テーマ (和文) AB		蛋白質結晶への金属錯体触媒固定化による不斉触媒の開発			
研究テーマ (欧文) AZ		Development of asymmetric catalysts using protein crystals containing metal complex catalysts			
研究氏 代表名 者	カタカナ CC	姓)ウエノ	名)タカフミ	研究期間 B	2010 ~ 2011年
	漢字 CB	上野	隆史	報告年度 YR	2011 年
	ローマ字 CZ	Ueno	Takafumi	研究機関名	京都大学
研究代表者 CD 所属機関・職名		京都大学・准教授			
概要 EA (600字~800字程度にまとめてください。)					
<p>生体内では蛋白質集積体により形成された空間が分子輸送、酵素反応、貯蔵、電子伝達などを緻密に制御する。これら、蛋白質の特異な構造及び性質を利用した化学反応場の構築により不斉触媒反応を実現した例は多く報告されている。この反応特異性を有機溶媒中や、不均一触媒としての利用に拡張できれば、さらに蛋白質の分子材料としての有用性が広がると考えた。そこで、蛋白質結晶を分子テンプレートとする触媒開発を目指した。蛋白質結晶の多くは、サブユニット配列の空隙に由来する 5-100 Å 程度の細孔を持つ「多孔性蛋白質結晶(Porous Protein Crystal, PPC)」であり、細孔表面の側鎖に由来する官能基が規則正しく配列しているために、それらを用いた緻密な触媒設計が可能となる。我々はこれまでに、PPC内部空間の配位性側鎖への金属イオン集積、および側鎖とのカップリング反応を用いた分子集積による細孔表面のデザインについて報告してきた。本研究では、細孔環境とその細孔に固定化された触媒分子を組み合わせた蛋白質結晶の触媒機能創出を試みた。本研究で用いた鶏卵リゾチーム(HEWL)は、結晶化条件によって正方晶(Tetragonal)、斜方晶(Orthorhombic)などの異なる晶系を持つ結晶が生成する。この違いにより細孔環境をコントロールし、触媒活性や選択性の制御を目指した。反応は野生型 HEWL では触媒できない、ルテニウム錯体触媒による芳香族ケトンの還元をターゲットとした。ルテニウム錯体は窒素に配位することで、水素移動型還元反応を触媒する。HEWL結晶内部の特定のヒスチジンへルテニウム錯体を配位させ、触媒反応を行ったところ、不斉選択的反応を達成し、結晶系の異なる細孔空間で反応を行う事により、不斉選択性の反転にも成功した。</p> <p>本手法は様々な蛋白質結晶へ応用できるばかりでなく、異なる触媒分子の同時集積や蛋白質自身の酵素反応能との組み合わせによる多段階反応や生体内での蛋白質集積体への反応場構築などへ展開したい。</p>					
キーワード FA	蛋白質結晶	生物無機化学	不斉触媒	リゾチーム	

(以下は記入しないでください。)

助成財団コード TA					研究課題番号 AA								
研究機関番号 AC					シート番号								

発表文献（この研究を発表した雑誌・図書について記入して下さい）									
雑誌	論文標題 GB	Development of asymmetric catalysts using protein crystals containing metal complex catalysts							
	著者名GA	田部博康・北川進 ・上野隆史・	雑誌名GC	投稿準備中					
	ページGF	～	発行年GE					巻号 GD	
雑誌	論文標題 GB								
	著者名GA		雑誌名GC						
	ページGF	～	発行年GE					巻号 GD	
雑誌	論文標題 GB								
	著者名GA		雑誌名GC						
	ページGF	～	発行年GE					巻号 GD	
図書	著者名HA								
	書名HC								
	出版者HB		発行年HD					総ページ HE	
図書	著者名HA								
	書名HC								
	出版者HB		発行年HD					総ページ HE	

欧文概要EZ（ワープロ作成原稿の切り貼りで結構です。）

Protein crystals, which are protein assemblies in solid state, can form highly ordered frameworks ranging in size from 1 to 10 nm. In this study, new types of catalytic reactors were constructed by using protein crystals containing metal complex catalysts coordinated to specific amino acid residues located in solvent channels of protein crystals. We prepared the hen egg white lysozyme crystals (HEWL) with two different crystal systems of tetragonal and orthorhombic forms, because each crystal can provide the different types of chiral solvent channels. We succeeded in controlling enantioselectivity of the products by the catalytic reactions promoted in the HEWL crystals containing Ru complexes.