

Title	多孔質金属の表面特性
Author(s)	袴田, 昌高
Citation	京都大学化学研究所スーパーコンピュータシステム研究 成果報告書 (2018), 2017: 55-55
Issue Date	2018-03
URL	http://hdl.handle.net/2433/230755
Right	
Type	Article
Textversion	publisher

多孔質金属の表面特性
Surface properties of porous metals

京都大学大学院 エネルギー科学研究科 袴田 昌高

研究成果概要

ナノポーラス金属は、ナノメートルオーダーにまで微細化された孔径・リガメント径の多孔質構造を有する金属であり、比表面積の大きさ・触媒特性・力学特性においてなど、バルクの金属にはない性質が現れる。最近、SAM(4-アミノチオフェノール)を修飾したナノポーラス金上に固定したラッカーゼが、2,6-ジメトキシフェノール(DMP)を分解する酵素活性が何も修飾しないナノポーラス金に比べ高くなるという実験結果が得られた。しかしながら、その詳しいメカニズムは明らかになっていない。本研究では分子動力学計算(ソフトウェア: Discovery Studio) 及びドッキングシミュレーションを用いて、SAM 上に固定したラッカーゼと DMP の結合エネルギーを計算し、酵素活性の向上メカニズムの解明に取り組んだ。

Protein Data Bank よりラッカーゼの計算モデル(PDB ID: 1V10)を入手し、分子動力学計算を用いて安定化計算を行った。半径 40nm の球状に水溶媒の中心にラッカーゼを配置した。エネルギー極小化計算を Steepest Descent algorithm で 200,000 ステップ、Conjugate Gradient algorithm でそれぞれ 200,000 ステップ行った。温度を 50K から 300K 及び 350K に徐々に上昇させ、NVT アンサンブルのもとで 1ns 平衡化計算を行ったのち、10ns の NVT 計算を行った。ラッカーゼはアミド結合を介して SAM と結合するが、本研究ではラッカーゼ表面に露出しているカルボキシル基及び C-terminal と SAM を結合させ、それぞれ結合エネルギーを計算した。その結果最も結合エネルギーの低いサイトは Glu91 であったため、SAM とラッカーゼの結合サイトは Glu91 とした。また、ドッキングシミュレーションを用いて DMP とラッカーゼの結合サイト及び立体的な結合状態を決定した。計算の結果、DMP は T1 銅付近の結合サイトである T1 サイトで最も安定に結合した。

300K と 350K でラッカーゼと SAM の結合エネルギーを計算した結果、両者が同程度の負のエネルギーを示すことが明らかになった。また、ラッカーゼを重ね合わせ(superimpose)して観察した結果、SAM との結合によってラッカーゼの構造が変化していることが明らかになった。以上から、ラッカーゼは SAM と結合することで構造が変化し、エネルギー的に安定化したと考えられる。また、ラッカーゼと DMP のドッキングシミュレーションの結果、疎水結合エネルギーが SAM 修飾ラッカーゼの場合で大きく低下していた。このことから、酵素活性向上の原因は疎水相互作用の向上に起因すると考えられる。

発表論文(謝辞なし):Molecular dynamics study of laccase immobilized on self-assembled monolayer-modified Au, N. Miyazawa, M. Tanaka, M. Hakamada and M. Mabuchi, J. Mater. Res. (2017) 52, 12848.