

光捕集複合体サブユニット B820 の
構造および自己組織化過程の理論的解明

(琉大院理¹, 分子研², 総研大³, 琉大理⁴) ○山内真梨江¹, 斉藤真司^{2,3}, 東雅大⁴

Theoretical understanding of the self-organization process and structure of B820
subunits of light-harvesting complexes

(University of the Ryukyus¹, IMS², SOKENDAI³)

○Marie Yamauchi¹, Shinji Saito^{2,3}, Masahiro Higashi¹

【序】

光捕集複合体LH1やLH2は紅色細菌の光合成において、光エネルギーを集める役割を担う。このLH1やLH2は、 α と β の2種類のポリペプチドとバクテリオクロフィル(BChl) *a*を構成分子とし、高い自己組織能力を持つ。例えば、界面活性剤の濃度を調節することによって基本ユニットB777からサブユニットB820へ、B820から高次会合体B873へと再構成が可能である(図1)。このうち、2種類のポリペプチドと2つの色素からなるサブユニットB820の構造や物性は、光捕集複合体の自己組織化過程を理解するために古くから研究されてきた。その結果、B820の再構成において、特にN末端のアミノ酸残基が重要と考えられている[1]。また、LH1由来の α ポリペプチドとLH2由来の β ポリペプチドのように、異なる光捕集複合体由来のB777間や、ポリペプチドの一部を削除、変異させたB777間でもB820を形成することが知られている[1,2]。しかし、現在においてもB820の構造の詳細や形成過程はよく分かっていない。そこで本研究では、分子動力学(MD)シミュレーションによりLH1、LH2由来のサブユニットB820並びにこれらの混成体と変異体の構造の同定を行う。さらに、B820の結合自由エネルギーや形成過程も計算し、実験結果と比較検討することで、どのアミノ酸残基がサブユニットB820の安定化や形成過程に重要か明らかにする。

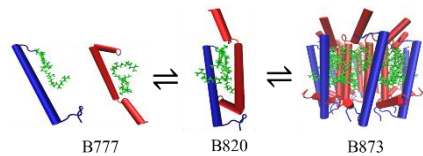


図 1. LH 複合体の会合状態

【計算詳細】

まず、LH2由来のB820の初期構造は *Phaeospirillum molischianum* 由来のLH2複合体のX線結晶構造(PDB code: 1LGH)から作成した。過去の実験結果[1,3]から示唆されるようにBChl *a*のring IIIとVが重なる形でBChl *a* 2分子と α ポリペプチドと β ポリペプチドを取り出し、これを初期構造とした。次に、作成したLH2のB820のアミノ酸配列を *Rhodospirillum rubrum* 由来のLH1の配列に変更してLH1由来のB820の初期構造を作成した。また、LH1 α とLH2 β により構成される混成体のB820も作成した。周囲の環境としてはPOPC二重膜を用い、全原子数は約100,000原子となった(図2)。分子力場として、ポリペプチドにAmber ff99SBildn、BChl *a*にAmber GAFF、POPCにはAmber LIPID14を用いた。計算プログラムはAmber 14を用いた。

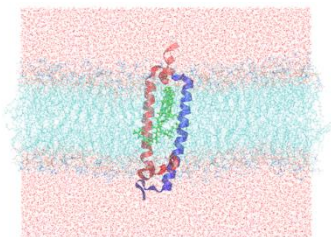


図 2. POPC 中の B820

【結果と考察】

まず、B820 の構造を明らかにするため、LH2 由来、LH1 由来とこれらの混成体である 3 種類の B820 に対して 300 ns の MD シミュレーションを行った。ポリペプチド間の相互作用エネルギーの 50 ns の移動平均の時間変化を図 3 に示す。3 種類の B820 において、250 ns から 300 ns にかけて安定した構造が得られた。その構造を解析したところ、LH2 複合体の結晶構造と比較して、ポリペプチド間にはより多くの水素結合が生成されることが確認された。また、相互作用エネルギーの大きさは LH2 由来、LH1 由来、混成体の B820 の順に小さくなり、結合自由エネルギーの実験値の順序と一致した。さらに、相互作用エネルギーを各アミノ酸残基に分解したところ、N 末端側のアミノ酸が安定化に大きく寄与していることがわかった(図 4)。また、どの B820 においても、 β ポリペプチド中の BChl *a* と結合したヒスチジンから C 末端側に 7 つ離れた残基が安定化に寄与していることもわかった。これらの結果もまた、実験結果と一致した。

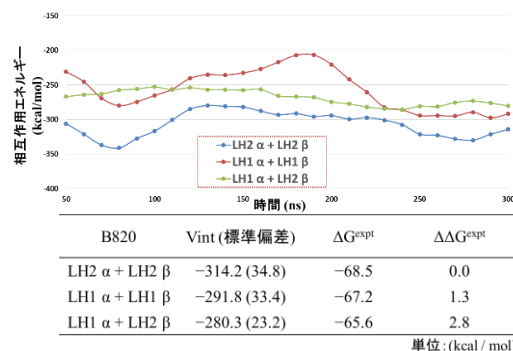


図 3. 計算による平均相互作用エネルギーと結合自由エネルギーの実験値[1,2]

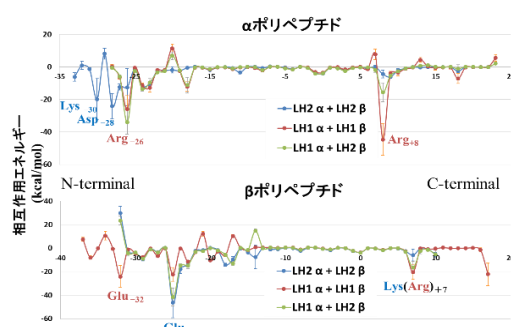


図 4. 各アミノ酸残基の相互作用エネルギー

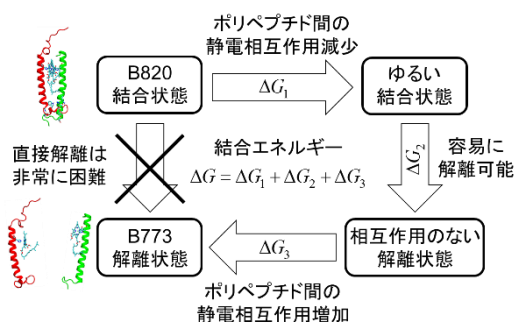


図 5. Decharging を用いた結合自由エネルギー計算法

次に、タンパク質の会合において重要な物理量である結合自由エネルギーの計算を試みた。しかし、従来用いられるアンブレラサンプリング法では、ポリペプチド間の強固な水素結合により、B820 が解離するより前にヘリックスが崩壊してしまい、結合自由エネルギーを適切に計算できないと判明した。

そこで、現在はポリペプチド間の安定化に寄与する静電相互作用を減衰させたのち、アンブレラサンプリング法を用いる手法で B820 の結合自由エネルギーを計算中である(図 5)。また、B820 の変異体の構造と、B777 から B820 への再構成過程も解析中である。詳細は当日議論する予定である。

そこで、現在はポリペプチド間の安定化に寄与する静電相互作用を減衰させたのち、アンブレラサンプリング法を用いる手法で B820 の結合自由エネルギーを計算中である(図 5)。また、B820 の変異体の構造と、B777 から B820 への再構成過程も解析中である。詳細は当日議論する予定である。

【謝辞】

本研究は日本化学協会の笹川科学研究助成(研究番号: 28-224)の支援により行いました。ここに感謝いたします。

【参考文献】

- [1] Pamela S. Parkes-Loach et al. *Biochemistry* **2004**, 43, 7003-7016.
- [2] John B. Todd et al. *Biochemistry* **1998**, 37, 17458-17468.
- [3] Zheng-Yu Wang et al. *J. Am. Chem. Soc.* **2002**, 124, 1072-1078.