

Title	STRUCTURAL STUDIES ON BLUE COPPER PROTEINS
Author(s)	井上, 豪
Citation	
Issue Date	
Text Version	ETD
URL	https://doi.org/10.11501/3094148
DOI	10.11501/3094148
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

氏名	井上豪
博士の専攻分野の名称	博士(工学)
学位記番号	第11342号
学位授与年月日	平成6年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 工学研究科応用精密化学専攻
学位論文名	STRUCTURAL STUDIES ON BLUE COPPER PROTEINS (ブルー銅蛋白質に関する構造学的研究)
論文審査委員	(主査) 教授 大城 芳樹 教授 園田 昇 教授 黒澤 英夫 教授 村井 眞二 教授 甲斐 泰 教授 坂田 祥光 教授 田川 精一

論文内容の要旨

本論文は、蛋白質X線構造解析を用いたブルー銅蛋白質の構造と機能に関する研究をまとめたものであり、緒論、本論4章および結論からなっている。

緒論では、本研究の目的と意義、およびその背景について述べ、特にブルー銅蛋白質の特異的な構造と機能の相関関係について述べられたこれまでの研究例を紹介している。

第1章では、本研究でとりあげたアズリン・プラストシアニンおよび2種のシュウドアズリンの計4種のブルー銅蛋白質の結晶化について述べ、そのうち3種の結晶学的データを決定し、良好なデータの収集が可能であることを明らかにしている。

第2章では、分子置換法によるX線構造解析、それに引き続く精密化によって高分解能で分子構造が得られることを述べている。特にシュウドアズリンの解析では、分子置換法に多波長異常分散法を組み合わせるという従来にはない方法で構造解析に成功している。

第3章では、解析に成功したブルー銅蛋白質の分子構造および配位構造を原子レベルで特徴づけ、代表的なブルー銅蛋白質と比較検討し、新知見を得ている。特に、配位構造に関して、アズリンに代表される三角両錐型と、シュウドアズリンやプラストシアニンに代表される四面体型の、2つに分類できるということを明確に示している。

第4章では、第3章で述べた配位構造の違いが各種スペクトルデータや酸化還元電位等の相違と対応することを明らかにしている。さらに、構造機能相関について検討し、その配位構造の違いが生じる原因について、アミノ酸シーケンスと関係づけて解明している。

結論では、以上の研究成果をまとめて述べ、機能性材料開発への可能性を示している。

論文審査の結果の要旨

本論文は、ブルー銅蛋白質のX線構造解析により銅の配位構造と機能の相関関係について解明し、モデル銅錯体を合成するための構造原理を見出すことを目的とした研究をまとめたものである。主な成果を要約すると次のとおりである。

- (1) 2種のシュウダズリン, アズリン, プラストシアニンの計4種のブルー銅蛋白質について再現性良く結晶を得る方法を確立している。さらにシンクロトン放射光等を用いて高分解能データの収集を行っている。
- (2) プラストシアニンを除く3種のブルー銅蛋白質について, 分子置換法によるX線構造解析に成功している。このうち, 1種のシュウダズリンについては, 分子置換法に多波長異常分散法を組み合わせた方法で正解を得ているが, この方法は金属蛋白質の構造解析で今後有効と思われる解析法であることを示している。
- (3) 3種のブルー銅蛋白質の分子構造を高分解能で解析し, 個々の蛋白質の分子構造や銅の配位構造の特徴を原子レベルで明らかにし, 特に, ブルー銅蛋白質の配位構造について2種類に分類できることを明確にしている。
- (4) ブルー銅蛋白質に特徴的な吸収スペクトルやEPRスペクトルは大きく2つに分けることができるが, この違いを配位構造の違いに対応させて構造機能相関を解明している。
- (5) 配位構造の違いが生じる原因を, 銅の配位子の1つであるシステインの硫黄原子周りの分子内水素結合の数の違いによることを見出し, さらにこのことが, この部分のアミノ酸配列の保存性と深く関わるという事実を明らかにすることによって, ブルー銅蛋白質の構造原理を見出ししている。

以上のように, 本論文は長年論争の的であったブルー銅蛋白質の配位構造を, X線構造解析法で明らかにし, 構造と機能の相関関係について解明したものであり, さらにブルー銅蛋白質の特異的性質を有したモデル銅錯体を設計するための重要な構造原理について論じた意義は大きい。これらの成果は生物無機化学, および生物物理学の分野だけでなく, 広く機能性材料の分野に対して貢献するところが大きい。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。