

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 2 年 6 月 16 日現在

機関番号：12101

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2019

課題番号：16H04174

研究課題名(和文) 結晶構造から解き明かす光合成の光捕集・光電変換とキノン輸送の分子機構

研究課題名(英文) Structural basis for the molecular mechanisms of photosynthetic light-harvesting, charge separation and quinone transport

研究代表者

大友 征宇 (Otomo, Seiu)

茨城大学・理工学研究科(理学野)・教授

研究者番号：10213612

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、これまで確立した好熱性光合成細菌由来の光捕集反応中心超分子複合体(LH1-RC)の構造研究を進展させ、様々な光捕集複合体の分光学的挙動と安定性を制御する構造因子を原子レベルで特定することができた。LH1-RCの結晶構造の分解能をさらに向上させることに成功し、電子伝達分子であるキノンや膜リン脂質ならびに機能の発現に重要な水分子を定量的に同定することができた。特異な分光学的挙動を示す新規なLH1-RCの構造を決定し、構造と機能の相関関係をより広い範囲で議論できる基礎を築いた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

好熱性光合成細菌から単離された光合成色素タンパク質は極めて高い熱安定性を示すことから、本研究から得られた知見は光合成初期過程における励起エネルギーの伝達機構、反応中心における光誘起電荷分離機構の解明に役立つだけでなく、将来の工学的応用を見据えた人工光合成における高効率のアンテナと光電変換素子の構築に対しても根拠となる設計指針を与えるものと考えられる。また、本研究で用いたLH1-RCの性質には金属イオンが深く関与していることから、色素膜タンパク質と金属イオン間における高度な分子認識機構の解明とともに、生物の極限環境への適応戦略の解明にもつながるものとして期待できる。

研究成果の概要(英文)：Early events in photosynthesis are carried out by the antenna apparatus for light-harvesting (LH) and the reaction center (RC) for energy conversion. Since our publication of the crystal structure of a bacterial LH1-RC core complex (Nature 508, 228; 2014 and accompanying News & Views, Nature 508, 196; 2014), photosynthesis researchers are keen to resolve two fundamental questions: (i) what is the structural basis for the significantly different absorption properties of LH1-RC complexes from different photosynthetic bacteria, and (ii) how does “up-hill” energy transfer proceed in a natural photosynthetic system. Our study addresses the two questions. The results obtained from purple phototrophic bacteria provide detailed structural and spectroscopic information on the photosynthetic mechanisms of excitation energy transfer, charge separation and quinone transport, and pave the way for elucidation of the structure-function relationships in bacterial photosynthesis.

研究分野：生物物理化学

キーワード：光合成 光捕集 光電変換

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

## 1. 研究開始当初の背景

(1) 緑色植物で代表される光生物は太陽光の希薄な密度のエネルギーを効率的に集めるため、多数の色素分子と膜タンパク質からなるアンテナのような光捕集複合体 (LH1, LH2) が用いられている。その特異なナノスケールの空間配置により、吸収された光エネルギーは色素間をフェムト秒からピコ秒単位で高速に移動し、ほぼ 100% の量子収率で反応中心 (reaction center, RC) に到達して光電変換反応を誘起する。

(2) 1985 年に植物の祖先に当たる紅色光合成細菌の反応中心 RC の立体構造が膜タンパク質複合体のものとして初めて決定された。この成果はその後の機能 (光誘起電荷分離、電子移動) 解明の引き金となり、光合成に止まらず、化学、物理と生物分野の全体にわたって革命的な波及効果をもたらした。その後、紅色光合成細菌の周辺光捕集複合体 LH2 の立体構造が解明された。この成果はその後の励起エネルギー移動と超高速分子分光学的の研究に対して大きな影響を及ぼした。一方、RC を取り囲むコア光捕集複合体 LH1 は LH2 と RC との間に挟まれているため、良い結晶試料の作成は極めて困難で、長年に及ぶ努力にもかかわらず、原子レベルでの構造解析が国内外とも成功していなかった。筆者はこれまで光合成細菌の光捕集複合体の研究に長く携わってきた。多くの光合成微生物を扱った中で、30 年前に米国 Yellow Stone 国立公園の温泉から採取された好熱性紅色光合成細菌は他に見られない特徴をもっていることに気づいた。特に、単離された LH1-RC 超分子複合体は高い熱安定性を示すことが判明され、このことが LH1-RC の構造解析の成功につながった。

## 2. 研究の目的

十年以上の歳月をかけて取り組んできた光合成細菌の光捕集反応中心超分子複合体 (LH1-RC) の結晶構造が筆者らによって 2014 年に決定された (*Nature* 508, 228; 2014)。この構造から、研究者たちが長年待ち望んでいた多くの情報 (光捕集、励起エネルギー移動、電荷分離とキノン輸送などに関わる構造基盤) が提示されている。本研究では、この結晶構造から明らかとなった原子レベルの情報に基づいて、

- (1) 光捕集複合体の吸収挙動と構造安定性を制御する因子の特定、
- (2) ハイブリッド型光捕集反応中心複合体の性質と特性評価、
- (3) より高分解能での結晶構造解析とリン脂質の同定、
- (4) 特異な分光学的挙動を示す光捕集反応中心複合体の構造解析

を目的とする。本研究より得られる知見は、高効率の集光アンテナ素子の作成と人工光合成システムの構築に対して根拠となる設計指針を与えるものと考えられる。

## 3. 研究の方法

好熱性光合成細菌 *Thermochromatium* (*Tch.*) *tepidum* 由来の LH1-RC 複合体の立体構造から、主に以下の項目に焦点を絞り、研究を進める。

- (1) LH1 と LH2 の構造的類似性は高いが、近赤外領域における LH2 の吸収極大 ( $Q_y$  遷移) が 850nm にあるのに対して、LH1 の  $Q_y$  は 880nm 以上にある。異なる  $Q_y$  遷移をもつ (Ca, Ba, Sr) LH1-RC を用いて、光捕集複合体の吸収挙動及び構造安定性を制御する因子を特定する
- (2) 単独な形で単離された RC と LH1-RC 複合体中に存在する RC との間に構造の異なる部分が見られたことから、より自然に近い後者の状態の RC の構造と特性 (光誘起電荷分離、電荷移動速度など) を再検証する。また、LH1 から RC へのエネルギー移動速度とその環境変化による影響も計測する。
- (3) 閉じた LH1 のリング構造に電子運搬体であるキノン分子の通り道となるチャンネルの存在が突き止められたことから、キノン種類の同定とその輸送機構を解明する。
- (4) 現時点の分解能では、まだ見えていない配位水と脂質分子および電子密度が明瞭でない末端と運動性の高い部位を特定するために、より高い分解能の回折像を与える結晶の作成とその構造解析を行う。

## 4. 研究成果

### (1) $\text{Sr}^{2+}$ 、 $\text{Ba}^{2+}$ 置換型 LH1-RC の分光学的挙動と構造的特徴との相関解明

一般に、光合成色素バクテリオクロフィル (BChl) *a* をもつ紅色細菌の LH1 は約 880 nm に吸収ピーク ( $Q_y$  遷移) を示す。一方、紅色硫黄細菌 970 株の場合 960 nm、好熱硫黄細菌 *Tch. tepidum* の場合 915 nm、非硫黄細菌 *Roseospirillum parvum* 930I の場合 909 nm にそれぞれ  $Q_y$  ピークをもつことが知られている。*Tch. tepidum* の天然型 LH1 の異常吸収挙動に  $\text{Ca}^{2+}$  が直接関与していることは LH1-RC の結晶構造が明らかになる前から生化学と分光学的手法によりわかっていた。 $\text{Ca}^{2+}$  と同族の  $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{Sr}^{2+}$ 、 $\text{Ba}^{2+}$  や  $\text{Ca}^{2+}$  と同じイオン半径をもつ  $\text{Cd}^{2+}$ 、荷電数は異なるがほぼ同じイオン半径をもつ  $\text{Dy}^{3+}$  を添加し、 $\text{Ca}^{2+}$  と置換された LH1 複合体の近赤外吸収極大はいずれも  $\text{Ca}^{2+}$  のものに比べ、約 25 nm 短波長側へシフトした。さらに、EDTA で  $\text{Ca}^{2+}$  を除去した場合吸収極大が 876 nm まで移動した (図 1)。これらの金属置換

LH1-RC の内、Sr-LH1-RC と Ba-LH1-RC から結晶が得られ、X線構造解析の結果、LH1 中における  $\text{Sr}^{2+}$  と  $\text{Ba}^{2+}$  の結合部位は  $\text{Ca}^{2+}$  のものと異なっていたことが判明した。 $\text{Ca}^{2+}$  の場合 LH1- $\alpha$  と  $\beta$  鎖で構成された二重リングの間に  $\text{Ca}$  イオンが均等に位置し、リンカーとして両リングを架橋して強固な二重リングのネットワークを形成しているのに対して、 $\text{Sr}^{2+}$  と  $\text{Ba}^{2+}$  の場合内側の  $\alpha$  リングのみが架橋され、単一リング内でのネットワークを形成していることが明らかになった。この特異な構造によって色素の配向性に変化が生じ、吸収極大がブルーシフトするとともに LH1-RC 全体の熱安定性の低下を引き起こしていると考えられる。この微生物が生息する米国イエローストーン国立公園の温泉周辺に豊富な炭酸カルシウムが存在することから、進化の過程において環境適応のために  $\text{Ca}^{2+}$  が取り込まれたものと考えられる。この成果は米国化学会の学術誌 (*Biochemistry* **55**, 6495; 2016) に発表した<sup>1</sup>。

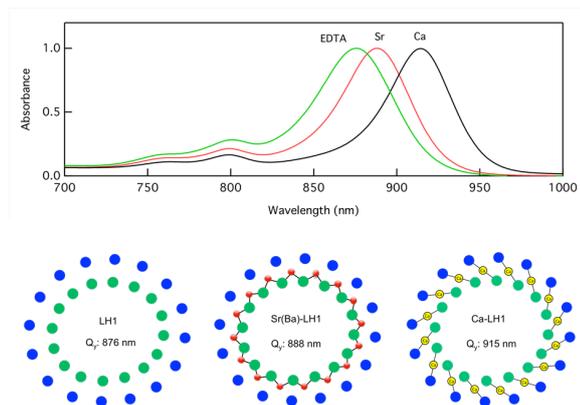


図1 金属イオン置換による LH1 吸収スペクトルの変化とその結合様式の違い。

## (2) 異種発現によるキメラ型 LH1-RC の作製とその特性評価

常温菌では、LH1 の近赤外領域における吸収極大 ( $Q_y$  遷移) が 880nm に位置するのに対して、本研究で用いる好熱性光合成細菌 *Tch. tepidum* 由来の LH1 は約 35nm も長い 915nm に吸収極大をもっている。これらの挙動に  $\text{Ca}^{2+}$  が深く関わっていることがわかっている。そこで、結晶構造から推測された  $\text{Ca}$  配位アミノ酸残基の役割と寄与の度合いを調べるために遺伝子工学的手法により変異を導入し、改変することによって  $Q_y$  遷移がどのような挙動を示すのかを検証するとともに、各種変異体の特性評価と構造解析を行った。具体的に、遺伝子操作が可能な常温性の紅色光合成細菌である *Rhodobacter sphaeroides* を研究材料として用いて、遺伝子の入れ替え技術を活用した。この菌の光捕集複合体は他の多くの菌と同様に 880nm の光吸収ピークを示すが、そのタンパクの遺伝子を除去し、代わりに *Tch. tepidum* の光捕集タンパク遺伝子を導入したところ、光吸収ピークが 916nm に移動した。このことは、特殊な *Tch. tepidum* の光捕集複合体を *R. sphaeroides* という別の菌種に合成させることに成功したことを示す (図2)。合成された光捕集複合体にキレート剤を加えて金属イオンを除去すると光吸収ピークは 880nm に移動したことから  $\text{Ca}^{2+}$  の結合も確認された。このような遺伝子入れ替え株をベースとして、*Tch. tepidum* の光捕集タンパクに様々な点変異 (特定のアミノ酸のみを変化させる変異) を加えて *R. sphaeroides* に導入し、光吸収ピークの位置や微細な構造変化を調べることで、光捕集タンパクのうち LH1  $\alpha$  鎖における 49 位のアミノ酸残基 Asp49 と、 $\beta$  鎖におけるの終末端に位置するアミノ酸残基  $\beta$ -L46 が  $\text{Ca}^{2+}$  の結合に必須であることを明らかにした。一方、LH1  $\alpha$  鎖中の 50 位 Asn が  $\text{Ca}^{2+}$  配位に関与しないこともわかった。これらの結果は以下に述べる高分解能の結晶構造解析 (*Nature* **556**, 209; 2018) によって実証され、米国科学アカデミー紀要に掲載された (*Proc. Natl Acad. Sci. USA* **114**, 10906; 2017)<sup>2</sup>

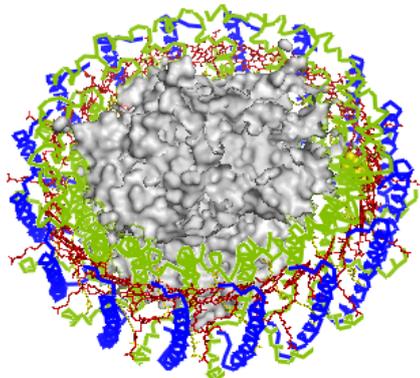
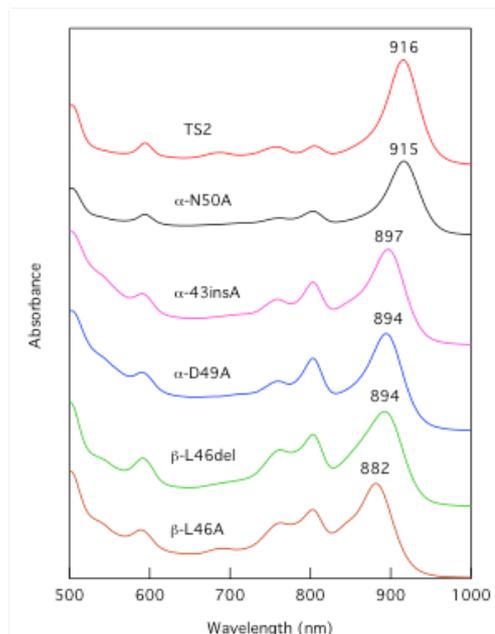


図2 各種ハイブリッド型 LH1-RC の吸収スペクトルと構造模式図。

### (3) 高分解能 LH1-RC の結晶構造解析

2014 年に筆者と共同研究者らが *Tch. tepidum* 由来の光捕集反応中心超分子複合体 LH1-RC の結晶構造を 3.0 Å 分解能で決定した。その後多くの改善によって 2018 年にはさらに同複合体の原子レベル分解能 (1.9 Å) での構造を決定した (*Nature* **556**, 209; 2018)<sup>3</sup>。これによって特に  $\text{Ca}^{2+}$  の結合部位の詳細が明らかになった。16 個の  $\text{Ca}^{2+}$  が LH1  $\alpha$  と  $\beta$  鎖のリング間に均等に分布し、隣り合う  $\alpha\beta$  サブユニットの間に入っている。 $\text{Ca}^{2+}$  の結合部位は  $\alpha$  と  $\beta$  鎖の C 末端領域にあり、両タンパク質のアミノ酸によって  $\text{Ca}^{2+}$  が配位されている。 $\alpha$  鎖の C 末端ループ領域に存在する  $\alpha$ -Trp46、 $\alpha$ -Asp49、 $\alpha$ -Ile51 と隣のサブユニットに属する  $\beta$  鎖の  $\beta$ -Trp45 のカルボニル基、さらに 2 つの水分子を加えた 6 配位の八面体構造をとっている (図 3)。 $\alpha\beta$  サブユニット同士が  $\text{Ca}^{2+}$  との結合によって結ばれたネットワークを形成し、LH1 全体の構造を安定化させていることが LH1-RC の熱安定性に寄与していると考えられる。一方、この  $\text{Ca}^{2+}$  結合部位が色素 BChl *a* の近傍に位置していることから、BChl *a* 自身のコンフォメーションおよび BChl *a* 同士の配置に影響を及ぼすものと考えられる。特に、 $\text{Ca}^{2+}$  に配位する  $\alpha$ -Trp46 と  $\beta$ -Trp45 残基は色素 BChl *a* と強固な水素結合を形成していることからより強い影響を与えると思われる。このような  $\text{Ca}^{2+}$  結合の効果は結果として *Tch. tepidum* LH1 の  $Q_y$  遷移が通常のものより約 35nm 長波長側に現れることをもたらしたと解釈できる。類似の現象が周辺光捕集複合体 LH2 についても観測されている。

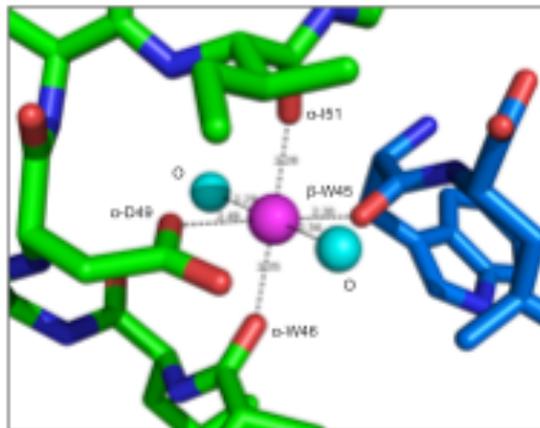


図 3 LH1-RC 中の  $\text{Ca}^{2+}$  (マゼンタ) 結合部位。

### (4) 光合成膜と LH1-RC 中のリン脂質分子の同定

光合成細菌の光合成膜は脂質と膜タンパク質から構成され、その割合は菌種によって異なるが、*Tch. tepidum* が属する紅色硫黄細菌では膜全体の約 50-70% が脂質であることが知られている。光合成細菌の脂質は一般的にリン脂質を主成分としており、それらはすべて *sn*-グリセロール-3-ホスフェートを基本骨格としたグリセロリン脂質である。膜タンパク質の機能や性質を理解する上で膜中で特異的に相互作用する脂質成分に関する知見が必要不可欠である。そこで、様々な紅色細菌の光合成膜中に含まれるリン脂質の組成および単離精製された光捕集反応中心複合体 LH1-RC に結合しているリン脂質を  $^{31}\text{P}$ -NMR 測定によって同定し、リン脂質組成と菌体の生育条件や膜タンパク質の性質との関連性を調べた。菌種によってリン脂質の組成が大きく異なることがわかる。*Tch. tepidum* の光合成膜から 3 種類のリン脂質 Phosphatidylethanolamine (PE)、Cardiolipin (CL) と Phosphatidylglycerol (PG) が検出され、PE が主成分であることが明らかになった。*Blastochloris* (*B.*) *viridis*、*B. tepida* と *Rhodobacter sphaeroides* 241 株には PE、CL と PG に加え、Phosphatidylcholine (PC) が含まれていることがわかった。*Thiorhodovibrio* sp. 970 (Strain 970) にはさらに Phosphatidylserine (PS) の存在が示唆された。一方、大部分の光合成細菌から精製された LH1-RC には CL が主成分であることが判明された (図 4)。これは膜中にマイナー成分の CL が LH1-RC に特異的に強く結合していることを示唆している。この結果は上記の LH1-RC の高分解能の結晶構造からも確認され、CL がこれらの複合体の機能発現と構造安定性に大きな役割を果たしていることがわかった。この成果は国際学術誌 (*Biochim. Biophys. Acta-Bioenergetics* **1860**, 461; 2019) に掲載された<sup>4</sup>。

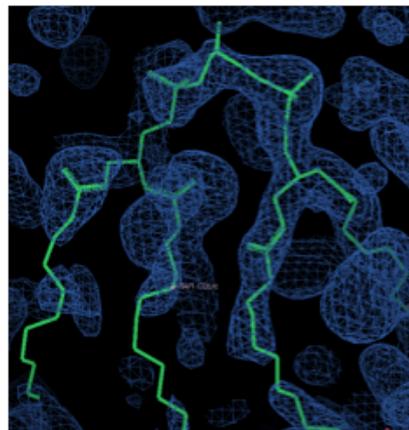


図 4 LH1-RC 中の CL 結合部位。

### (5) 特異な分光学的挙動を示す光捕集反応中心複合体の構造解析

ドイツ北部バルトーム島沿岸から採取された紅色硫黄細菌 *Thiorhodovibrio* strain 970 の LH1-RC 複合体は通常のものより LH1 の近赤外の吸収極大が約 80 nm 長波長側 (960 nm) に現れる。これはバクテリオクロロフィル *a* をもつ既知の光合成生物の中で最長の吸収極大を示す。最近研究協力者との共同研究でその原因は  $\text{Ca}^{2+}$  によるものであることが明らかになった (Imanishi, M., et al., *Biochemistry* **58**, 2844; 2019) <sup>5</sup>。高純度に精製された LH1-RC を用いて負染色による粒子の均一度を確認した後 (図 5)、低温電子顕微鏡による単粒子解析を行った。その結果、高分解能の立体構造が決定された。LH1 中における  $\text{Ca}^{2+}$  結合部位、複数種類の LH1 ポリペプチドの配置、さらにタンパク質と相互作用している界面活性剤の同定に成功した。現在これらの成果を取りまとめ、近く国際学術誌に投稿する予定である。

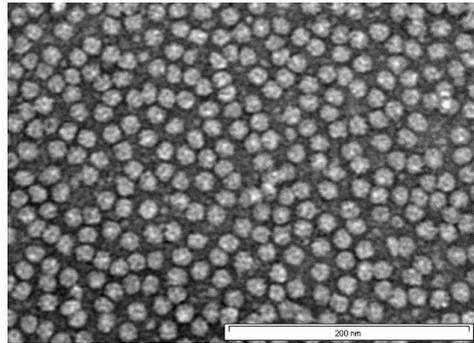


図 5 *Thiorhodovibrio* strain 970 由来の LH1-RC の負染色電顕像。

#### 引用文献

- [1] Yu, L.-J., Kawakami, T., Kimura, Y., and Wang-Otomo, Z.-Y. (2016) Structural basis for the unusual  $Q_y$  red-shift and enhanced thermostability of the LH1 complex from *Thermochromatium tepidum*, *Biochemistry* **55**, 6495-6504.
- [2] Nagashima, K. V. P., Sasaki, M., Hashimoto, K., Takaichi, S., Nagashima, S., Yu, L.-J., Abe, Y., Gotou, K., Kawakami, T., Takenouchi, T., Shibuya, Y., Yamaguchi, A., Ohno, T., Shen, J.-R., Inoue, K., Madigan, M. T., Kimura, Y., and Wang-Otomo, Z.-Y. (2017) Probing structure-function relationships in early events in photosynthesis using a chimeric photocomplex, *Proc. Natl Acad. Sci. USA* **114**, 10906-10911.
- [3] Yu, L.-J., Suga, M., Wang-Otomo, Z.-Y., and Shen, J.-R. (2018) Structure of photosynthetic LH1-RC supercomplex at 1.9 Å resolution, *Nature* **556**, 209-213.
- [4] Nagatsuma, S., Gotou, K., Yamashita, T., Yu, L.-J., Shen, J.-R., Madigan, M. T., Kimura, Y., and Wang-Otomo, Z.-Y. (2019) Phospholipid distributions in purple phototrophic bacteria and LH1-RC core complexes, *Biochim. Biophys. Acta - Bioenergetics* **1860**, 461-468.
- [5] Imanishi, M., Takenouchi, M., Takaichi, S., Nakagawa, S., Saga, Y., Takenaka, S., Madigan, M. T., Overmann, J., Wang-Otomo, Z.-Y., and Kimura, Y. (2019) A dual role for  $\text{Ca}^{2+}$  in expanding the spectral diversity and stability of light-harvesting 1 reaction center photocomplexes of purple phototrophic bacteria, *Biochemistry* **58**, 2844-2852.

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計23件（うち査読付論文 23件 / うち国際共著 19件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Nagatsuma S., Gotou K., Yamashita T., Yu L.-J., Shen J.-R., Madigan M.T., Kimura Y., Wang-Otomo Z.-Y.	4. 巻 1860
2. 論文標題 Phospholipid distributions in purple phototrophic bacteria and LH1-RC core complexes	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Biochimica et Biophysica Acta (BBA) - Bioenergetics	6. 最初と最後の頁 461 ~ 468
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.bbabi.2019.04.001	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Imanishi Michie, Takenouchi Mizuki, Takaichi Shinichi, Nakagawa Shiori, Saga Yoshitaka, Takenaka Shinji, Madigan Michael T., Overmann Jorg, Wang-Otomo Zheng-Yu, Kimura Yukihiro	4. 巻 58
2. 論文標題 A Dual Role for Ca <sup>2+</sup> in Expanding the Spectral Diversity and Stability of Light-Harvesting 1 Reaction Center Photocomplexes of Purple Phototrophic Bacteria	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Biochemistry	6. 最初と最後の頁 2844 ~ 2852
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.biochem.9b00351	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Madigan Michael T., Resnick Sol M., Kempfer Megan L., Dohnalkova Alice C., Takaichi Shinichi, Wang-Otomo Zheng-Yu, Toyoda Atsushi, Kurokawa Ken, Mori Hiroshi, Tsukatani Yusuke	4. 巻 201
2. 論文標題 Blastochloris tepida, sp. nov., a thermophilic species of the bacteriochlorophyll b-containing genus Blastochloris	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Archives of Microbiology	6. 最初と最後の頁 1351 ~ 1359
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s00203-019-01701-4	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Yu Long-Jiang, Suga Michihiro, Wang-Otomo Zheng-Yu, Shen Jian-Ren	4. 巻 556
2. 論文標題 Structure of photosynthetic LH1?RC supercomplex at 1.9A resolution	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Nature	6. 最初と最後の頁 209 ~ 213
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41586-018-0002-9	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Chen Jing-Hua, Yu Long-Jiang, Boussac Alain, Wang-Otomo Zheng-Yu, Kuang Tingyun, Shen Jian-Ren	4. 巻 139
2. 論文標題 Properties and structure of a low-potential, penta-heme cytochrome c552 from a thermophilic purple sulfur photosynthetic bacterium Thermochromatium tepidum	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Photosynthesis Research	6. 最初と最後の頁 281 ~ 293
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s11120-018-0507-y	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Kimura Yukihiro, Hashimoto Kanako, Akimoto Seiji, Takenouchi Mizuki, Suzuki Kengo, Kishi Rikako, Imanishi Michie, Takenaka Shinji, Madigan Michael T., Nagashima Kenji V. P., Wang-Otomo Zheng-Yu	4. 巻 57
2. 論文標題 Biochemical and Spectroscopic Characterizations of a Hybrid Light-Harvesting Reaction Center Core Complex	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Biochemistry	6. 最初と最後の頁 4496 ~ 4503
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.biochem.8b00644	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Yu Long-Jiang, Suga Michihiro, Wang-Otomo Zheng-Yu, Shen Jian-Ren	4. 巻 285
2. 論文標題 Novel features of LH1-RC from Thermochromatium tepidum revealed from its atomic resolution structure	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 The FEBS Journal	6. 最初と最後の頁 4359 ~ 4366
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1111/febs.14679	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yu Jie, Tan Li-Ming, Kawakami Tomoaki, Wang Peng, Fu Li-Min, Wang-Otomo Zheng-Yu, Zhang Jian-Ping	4. 巻 122
2. 論文標題 Cooperative Photoprotection by Multicompositional Carotenoids in the LH1 Antenna from a Mutant Strain of Rhodobacter sphaeroides	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry B	6. 最初と最後の頁 8028 ~ 8036
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.8b06080	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Tan Li-Ming, Yu Jie, Kawakami Tomoaki, Kobayashi Masayuki, Wang Peng, Wang-Otomo Zheng-Yu, Zhang Jian-Ping	4. 巻 9
2. 論文標題 New Insights into the Mechanism of Uphill Excitation Energy Transfer from Core Antenna to Reaction Center in Purple Photosynthetic Bacteria	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 3278 ~ 3284
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcllett.8b01197	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Dai Ling, Tan Li-Ming, Jiang Yang-Lin, Shi Ying, Wang Peng, Zhang Jian-Ping, Otomo Zheng-Yu	4. 巻 705
2. 論文標題 Orientation assignment of LH2 and LH1-RC complexes from Thermochromatium tepidum reconstituted in PC liposome and their ultrafast excitation dynamics comparison between in artificial and in natural chromatophores	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Chemical Physics Letters	6. 最初と最後の頁 78 ~ 84
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cpllett.2018.05.043	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Nagashima Kenji V. P., Sasaki Mai, Hashimoto Kanako, Takaichi Shinichi, Nagashima Sakiko, Yu Long-Jiang, Abe Yuto, Gotou Kenta, Kawakami Tomoaki, Takenouchi Mizuki, Shibuya Yuuta, Yamaguchi Akira, Ohno Takashi, Shen Jian-Ren, Inoue Kazuhito, Madigan Michael T., Kimura Yukihiro, Wang-Otomo Zheng-Yu	4. 巻 114
2. 論文標題 Probing structure-function relationships in early events in photosynthesis using a chimeric photocomplex	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Proceedings of the National Academy of Sciences	6. 最初と最後の頁 10906 ~ 10911
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1073/pnas.1703584114	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Yu Jie, Fu Li-Min, Yu Long-Jiang, Shi Ying, Wang Peng, Wang-Otomo Zheng-Yu, Zhang Jian-Ping	4. 巻 139
2. 論文標題 Carotenoid Singlet Fission Reactions in Bacterial Light Harvesting Complexes As Revealed by Triplet Excitation Profiles	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Journal of the American Chemical Society	6. 最初と最後の頁 15984 ~ 15993
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/jacs.7b09809	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Ratsep Margus, Timpmann Kou, Kawakami Tomoaki, Wang-Otomo Zheng-Yu, Freiberg Arvi	4. 巻 121
2. 論文標題 Spectrally Selective Spectroscopy of Native Ca-Containing and Ba-Substituted LH1-RC Core Complexes from <i>Thermochromatium tepidum</i>	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry B	6. 最初と最後の頁 10318 ~ 10326
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.7b07841	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Ma Fei, Yu Long-Jiang, Llansola-Portoles Manuel J., Robert Bruno, Wang-Otomo Zheng-Yu, van Grondelle Rienk	4. 巻 18
2. 論文標題 Metal Cations Induced -BChl a Heterogeneity in LH1 as Revealed by Temperature-Dependent Fluorescence Splitting	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 ChemPhysChem	6. 最初と最後の頁 2295 ~ 2301
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/cphc.201700551	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Ma Fei, Yu Long-Jiang, Hendrikx Ruud, Wang-Otomo Zheng-Yu, van Grondelle Rienk	4. 巻 8
2. 論文標題 Excitonic and Vibrational Coherence in the Excitation Relaxation Process of Two LH1 Complexes as Revealed by Two-Dimensional Electronic Spectroscopy	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 2751 ~ 2756
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcclett.7b00824	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Kimura Yukihiro, Lyu Shuwen, Okoshi Akira, Okazaki Koudai, Nakamura Natsuki, Ohashi Akira, Ohno Takashi, Kobayashi Manami, Imanishi Michie, Takaichi Shinichi, Madigan Michael T., Wang-Otomo Zheng-Yu	4. 巻 121
2. 論文標題 Effects of Calcium Ions on the Thermostability and Spectroscopic Properties of the LH1-RC Complex from a New Thermophilic Purple Bacterium <i>Allochromatium tepidum</i>	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry B	6. 最初と最後の頁 5025 ~ 5032
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.7b03341	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Shi Ying, Yu Jie, Yu Long-Jiang, Wang Peng, Fu Li-Min, Zhang Jian-Ping, Wang-Otomo Zheng-Yu	4. 巻 16
2. 論文標題 Dependence of the hydration status of bacterial light-harvesting complex 2 on polyol cosolvents	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Photochem. Photobiol. Sci.	6. 最初と最後の頁 795 ~ 807
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c6pp00270f	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Ma Fei, Yu Long-Jiang, Hendrixx Ruud, Wang-Otomo Zheng-Yu, van Grondelle Rienk	4. 巻 139
2. 論文標題 Direct Observation of Energy Detrapping in LH1-RC Complex by Two-Dimensional Electronic Spectroscopy	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Journal of the American Chemical Society	6. 最初と最後の頁 591 ~ 594
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/jacs.6b11017	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Yu, L.-J., Kawakami, T., Kimura, Y., Wang-Otomo, Z.-Y.	4. 巻 55
2. 論文標題 Structural basis for the unusual Qy red-shift and enhanced thermostability of the LH1 complex from Thermochromatium tepidum	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Biochemistry	6. 最初と最後の頁 6495-6504
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) doi:10.1021/bi401033y	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kimura, Y., Yura, Y., Hayashi, Y., Li, Y., Onoda, M., Yu, L.-J., Wang-Otomo, Z.-Y., Ohno, T.	4. 巻 120
2. 論文標題 Spectroscopic and Thermodynamic Characterization of the Metal-Binding Sites in the LH1-RC Complex From Thermophilic Photosynthetic Bacterium Thermochromatium tepidum	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 J. Phys. Chem. B	6. 最初と最後の頁 12466-12473
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ma, F., Yu, L.-J., Ma, X.-H., Wang, P., Wang-Otomo, Z.-Y. & Zhang, J.-P.	4. 巻 120
2. 論文標題 Bacterial light-harvesting complexes showing giant second-order nonlinear optical response as revealed by hyper-Rayleigh light scattering.	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 J. Phys. Chem. B	6. 最初と最後の頁 9395-9401
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Reimers, J. R., Biczysko, M., Bruce, D., Coker, D., Frankcombe, T., Hashimoto, H., Hauer, J., Jankowiak, R., Kramer, T., Linnanto, J., Mamedov, F., M., R, M., Renger, T., Styring, S., Wan, J., Wang, Z., Wang-Otomo, Z.-Y., Weng, Y.-X., Yang, C., Zhang, J.-P., Freiberg, A., and Krausz, E.	4. 巻 1857
2. 論文標題 Challenges facing an understanding of the nature of low-energy excited states in photosynthesis	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Biochim. Biophys. Acta	6. 最初と最後の頁 1627-1640
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Ma, F., Yu, L.-J., Wang-Otomo, Z.-Y. & Van Grondelle, R.	4. 巻 1857
2. 論文標題 Temperature dependent LH1 RC energy transfer in purple bacteria Tch. tepidum with shiftable LH1-Qy band: A natural system to investigate thermally activated energy transfer in photosynthesis	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Biochim. Biophys. Acta	6. 最初と最後の頁 408-414
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計21件 (うち招待講演 2件 / うち国際学会 3件)

1. 発表者名 S. Otomo
2. 発表標題 METAL ION-INDUCED STRUCTURAL AND FUNCTIONAL CHANGES IN BACTERIAL LIGHT-HARVESTING COMPLEXES
3. 学会等名 The 3rd International Conference on Solar Fuels (ISF-3), International Conference on Artificial Photosynthesis 2019 (ICARP2019) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名	Michie Imanishi , Shinichi Takaichi , Shinji Takenaka, Michael T. Madigan, Seiu Otomo and Yukihiro Kimura
2. 発表標題	Spectroscopic characterization of a bacteriochlorophyll b-based LH1-RC complexes from thermophilic purple bacterium <i>Blactochloris tepida</i>
3. 学会等名	第57回日本生物物理学会大会
4. 発表年	2019年

1. 発表者名	Michie Imanishi, Mizuki Takenouchi, Shinichi Takaichi, Shiori Nakagawa, Yoshitaka Saga Shinji Takenaka, Michael T. Madigan, Jorg Overmann, Seiu Otomo and Yukihiro Kimura
2. 発表標題	A dual role for calcium in expanding the spectral diversity and stability of LH1-RC photocomplexes of purple phototrophic bacteria
3. 学会等名	第57回日本生物物理学会
4. 発表年	2019年

1. 発表者名	山下琢也, 川上知朗, 大友征宇
2. 発表標題	好熱性光合成細菌由来のチトクロムbc1複合体、シャペロニン及びリン酸結合タンパク質の単離精製と結晶化
3. 学会等名	日本光合成学会
4. 発表年	2019年

1. 発表者名	大友 征宇
2. 発表標題	Where is the quinone gate in purple photosynthetic bacterial LH1-RC complex?
3. 学会等名	日本生物物理学会大会 (招待講演)
4. 発表年	2018年

1. 発表者名 今西三千絵, 小林正幸, 竹中慎治, M. T. Madigan, 大友征宇, 木村行宏
2. 発表標題 Origin of the anomalous uphill energy gap in the light-harvesting reaction center from purple photosynthetic bacterium strain 970
3. 学会等名 日本生物物理学会大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 川上知朗, 鈴木駿平, 本田舞, 竹之内瑞貴, 高市真一, 塚谷祐介, 木村行宏, M. T. Madigan, 大友征宇
2. 発表標題 BChl bをもつ好熱性紅色非硫黄細菌 <i>Blastochloris tepida</i> 由来LH-RCの特性評価
3. 学会等名 日本光合成学会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 竹之内瑞貴, 川上知朗, 高市真一, 木村行宏, Michael T. Madigan, Jorg Overmann, 大友征宇
2. 発表標題 963 nmにQy遷移をもつ紅色細菌 <i>Thiorhodovibrio</i> strain 970由来LH1-RCの特性評価
3. 学会等名 日本光合成学会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 大越 慧, 川上知朗, 大友征宇
2. 発表標題 光合成色素タンパク質複合体中の多元素同時測定
3. 学会等名 日本光合成学会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 後藤健太、佐々木舞、阿部悠人、小沼里沙、永島賢治、永島咲子、大友征宇
2. 発表標題 ハイブリッド型光捕集反応中心複合体の機能解析
3. 学会等名 生体分子討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 川上 知朗, 梁 泰, 岡崎 航大, 木村 行宏, 大友 征宇
2. 発表標題 Co-crystallization of a bacterial photosynthetic electron-transfer complex
3. 学会等名 第55回日本生物物理学会大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 鈴木駿平、竹之内瑞貴、川上知朗、大友征宇
2. 発表標題 BChl bをもつ好熱性光合成細菌Blastochloris strain GIのLH1-RCの特性評価
3. 学会等名 日本化学会関東支部茨城地区交流会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 長妻将吾、大越慧、梁泰、神田修人、大友征宇
2. 発表標題 光合成細菌におけるリン脂質組成の分析
3. 学会等名 日本化学会関東支部茨城地区交流会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 川上知朗、于龍江、大友征宇
2. 発表標題 金属イオンがもたらす光捕集反応中心の構造と特性変化
3. 学会等名 日本光合成学会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 吉村未来、木村優花、川上知朗、大友征宇
2. 発表標題 紅色光合成細菌におけるキノン組成の同定
3. 学会等名 日本光合成学会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 川上知朗、于龍江、大友征宇
2. 発表標題 光捕集反応中心におけるキノン分子の輸送機構について
3. 学会等名 生体分子討論会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 于龍江、川上知朗、木村行宏、大友征宇
2. 発表標題 888 nmにQy遷移をもつ紅色細菌LH1の構造解析
3. 学会等名 光合成セミナー2016
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Z.-Y. Wang-Otomo, L.-J. Yu, T. Kawakami, Y. Kimura
2. 発表標題 Crystal structures reveal molecular basis for the bacterial LH1 Qy transition and its thermostability
3. 学会等名 第17回国際光合成会議（国際学会）
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 T. Kawakami, N. Nakamura, Y. Kimura, K. Okazaki, A. Ohkoshi, M. T. Madigan, Z.-Y. Wang-Otomo
2. 発表標題 Characterization of the LH complexes from a new thermophilic purple bacterium Allochromatium tepidum
3. 学会等名 第17回国際光合成会議（国際学会）
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 中村夏紀, 呂淑文, 大越慧, 岡崎航大, 川上知朗, Madigan M. T., 木村行宏, 大友征宇
2. 発表標題 Purification and spectroscopic study of the light-harvesting complexes from thermophilic purple bacterium Allochromatium tepidum
3. 学会等名 第54回日本生物物理学会大会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 川上知朗、于龍江、木村行宏、大友征宇
2. 発表標題 Structural basis for the metal-ion recognition of the bacterial light-harvesting core complex
3. 学会等名 第54回日本生物物理学会大会
4. 発表年 2016年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

大友研ホームページ  
<http://biophys.sci.ibaraki.ac.jp>

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
連携研究者	木村 行宏  (Kimura Yukihiro)  (20321755)	神戸大学・農学研究科・准教授   (14501)	
連携研究者	海野 昌喜  (Unno Masaki)  (10359549)	茨城大学・理工学研究科・教授   (12101)	
連携研究者	于 龍江  (Yu L.-J.)  (40749090)	岡山大学・自然科学研究科・助教   (15301)	