

令和 2 年 6 月 4 日現在

機関番号：14401

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H06045

研究課題名(和文)色素含有タンパク質の高次集積化による高効率な光の捕集・集約・利用

研究課題名(英文)Efficient sun-light harvesting, collecting and utilizing systems constructed by assembly of pigment-containing proteins

研究代表者

大洞 光司(Oohora, Koji)

大阪大学・工学研究科・助教

研究者番号：10631202

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 20,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、色素含有タンパク質を構成要素として、集積化と色素の光増感色素への置換により光捕集系を構築し、その光捕集能の評価と人工光合成反応への展開を検討した。具体的には、天然色素であるヘムを含むヘムタンパク質を化学的手法で集積化する手法を複数、開発した。特に、ミセル様の球状集合体に注目し、光増感色素でヘムを置換すると、期待通りに天然光合成系類似の光捕集能を示した。また反応中心としてコバルトやニッケル錯体を検討した。今後、これらの技術を用いた太陽光による効率的な物質変換反応への応用が期待される。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は、人工光合成の実現に向けて、光子密度の低い太陽光を利用可能な光捕集系を開発した。タンパク質を用いた人工光捕集系はこれまでにいくつか報告されているが、本系は色素がタンパク質内に精密に固定されていることが特徴である。集合化したタンパク質内に色素を精密に配列し、高い光捕集能を示す系を構築した。さらに、物質変換反応の実現に向けて、コバルトやニッケルの反応中心を新規に開発した。国内外の学会や査読付きの国際学術誌にて本成果を発表し、高く評価されている。今後これらの技術を基盤とした人工光合成系の開発が期待される。

研究成果の概要(英文)：In this research, artificial light harvesting systems have been constructed toward efficient artificial photosynthesis systems. As scaffolds, a series of hemoprotein assemblies have been prepared and characterized. One of the assemblies shows the micelle-like sphere structure and is inverted to artificial light harvesting system by substitution of heme chromophores with photosensitizers. This system demonstrates efficient light harvesting function. The results will contribute to development of protein-based systems for artificial photosynthesis.

研究分野：生物無機化学

キーワード：ヘムタンパク質 超分子集合体 光捕集系 エネルギー移動 人工光合成

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

近年、持続可能社会の実現に向けて、世界規模で様々な試みが成されている。その中でも最も早急に解決すべき問題としてエネルギー問題が挙げられ、クリーンでリスクのないエネルギー生産手法の確立が求められている。これに対して、自然界では光合成系が、光子密度の低い太陽光で高いエネルギー生産効率を持ち、その産物として ATP や糖などの生産を行なっている。光合成系は現在までの研究で、反応中心と光捕集系から成り立っていることが分かっている。つまり、様々な波長の光を「捕集」し、反応中心に「集約」、多電子酸化還元反応を高効率で「利用」するシステムが成立している (図 1)。特に、捕集と集約を担う光捕集系は太陽光を用いる上で、効率的にエネルギーを取り出す重要なステップであり、自在に利用することで、クリーンな光駆動のエネルギーの創出が実現される。

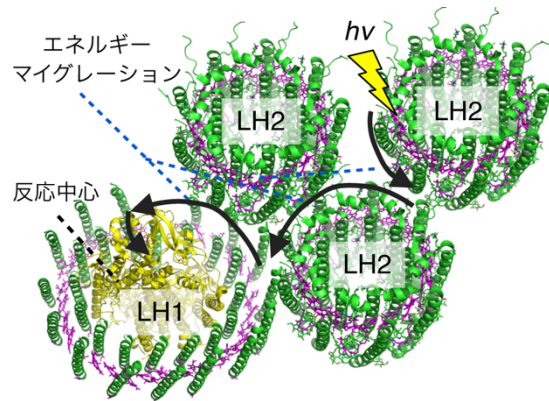


図 1. 紅色細菌が有する光化学系における光捕集系 (LH1 および LH2) と活性中心の模式図。

しかしながら、天然光捕集系を用いた人工システムの創製を目的として、植物や藻類から取り出す、あるいは大腸菌を用いた発現系で再構築する試みも多数行なわれているが、膜タンパク質であり、精製およびその取り扱いが煩雑である。一方、単純な可溶性タンパク質の集合体を用いて同様に光増感剤を集積し、さらに高次構造化できれば、高効率光利用系への展開は容易である。そこで、本申請研究では、可溶性の環状ヘムタンパク質集合体を基盤とした人工光捕集系の高次構造化およびエネルギー利用中心を組み合わせた人工光合成系の開発をめざす。

現在までに、ウイルスキャプシドやタンパク質結晶を用いた光増感剤の集積化が報告されているが、(M. Francis *JACS* 2007 等)、実際に利用可能な化学エネルギーや電気エネルギーとして取り出した例はない。また合成化学的手法で色素のみを環状に配列した系も報告されているが、調製が多段階の煩雑な合成が必要であると同時に他の増感色素への応用性が乏しい。

2. 研究の目的

本研究では、光の化学エネルギーへの変換をめざして、より簡便かつ汎用性の高い人工光捕集系の構築をめざした。特にヘムタンパク質におけるヘムとタンパク質の特異的かつ強い超分子相互作用に注目した。図 2a に示したヘムの配位子骨格であるポルフィリンは光増感剤として優れており、またその亜鉛錯体はヘムタンパク質内に挿入可能であり光増感剤として機能することが知られている。これまでヘムタンパク質やその多量体を用いた例は限られていたが、本研究では、様々なヘムタンパク質を多量化し、新しい光捕集系の開発とそれらの光触媒系への展開を目的とした。

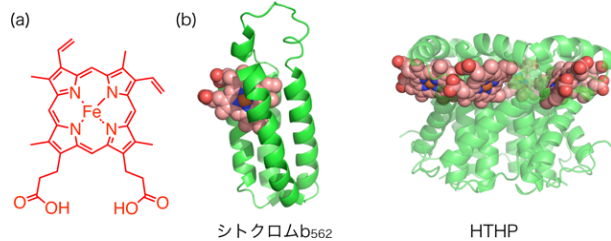


図 2. (a) ヘムの構造式。(b) シトクロム b562 および HTHP の結晶構造。

3. 研究の方法

本研究で用いるヘムタンパク質として、単純な構造の電子移動タンパク質であるシトクロム b562 およびヘムタンパク質環状 6 量体 HTHP (Hexameric Tyrosine-coordinated Heme Protein) を選択した。シトクロム b562 (図 2b) は大腸菌由来のヘムタンパク質であり、膜タンパク質の可溶性ドメインで、その単純な構造から半世紀近く、様々な研究に利用されている非常に取り扱いの簡便なタンパク質である。HTHP (図 2b) は 2007 年に H. Dobbek らにより報告された海洋細菌 *Silicibacter pomeroyi* 由来のヘムタンパク質である。結晶構造から、6 回対称軸を持つホモ 6 量体である。それぞれのドメインが 1 つのヘム分子を有しており、隣り合うドメイン内のヘム分子の鉄-鉄間距離は 18 Å である。またヘムはチロシンによる配位結合、疎水性相互作用、水素結合によりタンパク質マトリクス内に保持されている。これらのヘムタンパク質多量化や複数の色素の導入により、新規光捕集系の構築を実施し、評価を行った。また触媒部位については Co や Ni を含む錯体を模索し、Co のテトラデヒドロコリン錯体やビピリコロール錯体を新規に合成し、二酸化炭素還元反応を評価した。

4. 研究成果

a. シトクロム b562 集合体の構築と光化学的性質

シトクロム b562 の表面に合成ヘムを修飾し、自己集積化する超分子集合体を調製した。ヘムの修飾位置を 80 番目のアスパラギンにすることで、従来の柔軟な構造と異なり、らせん状の定義された構造を形成することを、分子動力学シミュレーション、変異導入実験、円二色性スペクトル、原子間力顕微鏡等を組み合わせて確認した (図 3)。原子間力顕微鏡の結果より、3 nm のピ

ッチを示すらせん構造であること、円二色性スペクトルよりヘム同士が立体的に固定された配向を有し、お互いに励起子相互作用可能であることが明らかになった。これらはナノメートルスケールでの規則正しい繊維状構造体が得られ、その中で固定された色素分子のエネルギー移動の可能性を示唆している。この構造に着目し、一部のヘムを亜鉛ポルフィリンに置換した系では、長距離の光誘起電子移動が可能であることを確認した。また規則正しい構造がクラスター効果を示すことが明らかになり、例えば、モノマーの末端にアルギニン4量体を修飾すると、集合化により始めて効率的に細胞に取り込まれることを確認している。

らせん状の集合体を与えるシトクロム b_{562} の変異体において、結合するヘムとタンパク質の間のリンカー分子を長くすると、希釈条件下において選択的に環状3量体を与えることをサイズ排除クロマトグラフィー、質量分析、光散乱および原子間力顕微鏡により確認した。この3量体は速度論的に安定であり、濃縮しても低温であれば維持していることが明らかになった。一連のタンパク質人工集合体が報告されているが、本系のように環状と繊維状が濃度条件において制御可能な系は非常に限られており、新たな光捕集系の開発に有用であると考えられる。

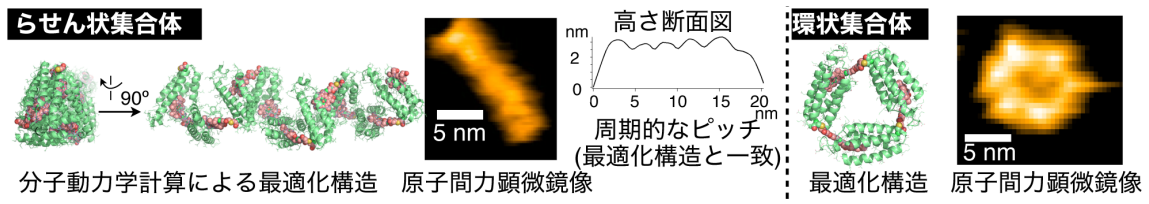


図3. シトクロム b_{562} のらせん状集合体と環状集合体の最適化構造と原子間力顕微鏡像。

b. HTHP を用いた多波長利用可能な光捕集システムの開発

本研究者は以前に HTHP のヘムを光増感剤である Zn ポルフィリンに置換した再構成 HTHP が光捕集系として機能することを報告している (Chem. Commun. 2015)。この光捕集系に Zn ポルフィリンのドナー蛍光色素アクセプターあるいは蛍光色素ドナー、あるいはその両方を共有結合を介して修飾し、多波長が利用可能な光捕集系を構築可能であると考えた。実際にドナー分子としてフルオレセイン、アクセプター分子としてテキサスレッドを選択し、それぞれの分子に連結したマレイミドと HTHP に変異導入したシステインのチオールとを反応させた。得られたドナー分子導入光捕集系、アクセプター分子導入光捕集系を詳細に評価し、それぞれ、フルオレセインから Zn ポルフィリンへのエネルギー移動、Zn ポルフィリンからテキサスレッドへのエネルギー移動が効率よく進行することを確認した。また図4のように、5分子のフルオレセインおよび1分子のテキサスレッドを修飾した6分子の Zn ポルフィリンを含む HTHP を調製したところ、5分子のフルオレセインで吸収された光のエネルギーが、6分子の Zn ポルフィリンを介して、1分子のテキサスレッドに捕集、集約されることを確認した。天然の光捕集系のように太陽光の幅広い波長域を利用可能な光捕集系に展開できると考えられる。

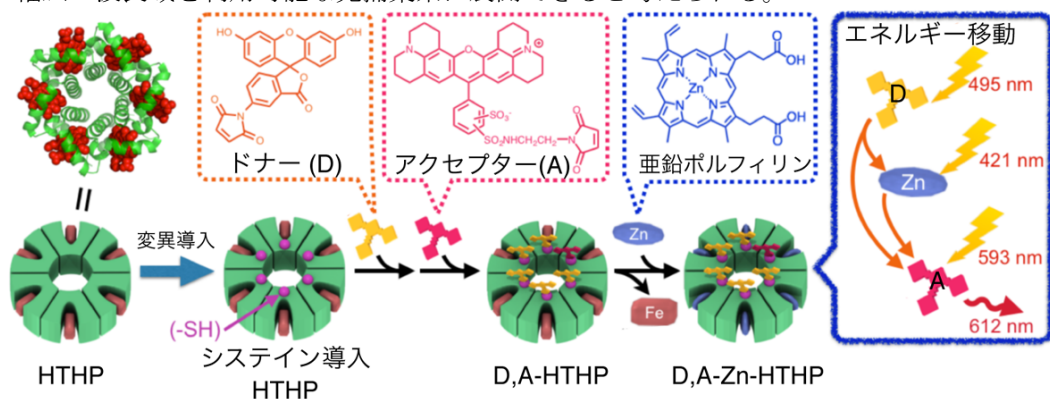


図4. HTHP を基盤とした複数の波長を利用できる光捕集系の模式図。

c. HTHP の2次元集積化

HTHP をさらに巨大な光捕集系として利用するために、二次元集積化を試みた。集積化の相互作用として、ホストゲスト相互作用を選択した。図5に示すように、HTHP にシステインを導入し、フェニルアラニン-フェニルアラニン-グリシン (FGG) のトリペプチドタグをマレイミドとのカップリングを介して導入し、2分子の FGG タグと相互作用するクルビットウリル (CB8) を添加した。HTHP のシステイン導入位置を最適化した結果、数百マイクロメートルの大きさに達するフィルム状の集積体を形成することを明らかにした。また高速原子間力顕微鏡を用いてマイカ基板上における集積挙動の初期段階を明らかにした。数量体の核形成が起こり、それらが連結して2分ほどで、数十ナノメートル四方の観察領域を覆うほど成長することを明らかにし

た。またマイカ上では単層で HTHP が集積化していることを明らかにした。本系は、HTHP を速やかかつ巨大に集積化することができる有用な手法であり、効率的な光捕集系への展開のために重要な指針を与えた。

d. HTHP のミセル状集積化と光捕集系の開発

温度応答性高分子であるポリイソプロピルアクリルアミドを HTHP に修飾し、集積化を実施した。37 度程度の加温により 40 nm ほどの大きさの球状の集積体が得られることを、光散乱、原子間力顕微鏡測定により明らかにした (図 6)。計算上、100 分子ほどの HTHP が集合していることになり、600 分子の色素を集めることが可能である。本系のへみを Zn ポルフィリンあるいは Zn クロリンに置換した場合においても、同様のミセル状集積体を構築することがわかったため、光捕集能の評価を実施した。結果として、モデルとして調製した HTHP ユニットに 1 つだけ色素が存在する系と比較して、光捕集能によって、効率的に蛍光が消光することを確認した。また、時間分解偏光蛍光解消測定を実施した結果、測定領域よりも早い段階で偏光の解消が確認され、高速のエネルギーマイグレーションが天然の光捕集系と同様に起こっている事を示唆している。特に Zn クロリンを用いた場合、10 分子の色素のエネルギーを 1 箇所に集約して利用可能である事を示す結果を得ている。今後、活性中心と複合化する事で人工光合成系へと展開可能と期待される。

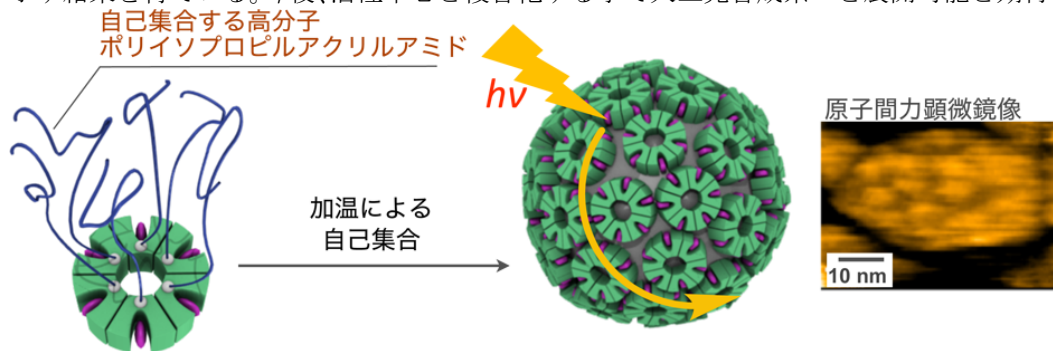


図 6. HTHP のミセル状集積化による光捕集系の構築と原子間力顕微鏡像

e. 二酸化炭素還元触媒の開発

活性中心の反応として、二酸化炭素の還元反応に注目し、触媒の開発を実施した。Co を金属中心とするポルフィリノイド錯体を新規に合成し、その構造、物性、電極触媒としての活性の評価を実施した。当初高い活性を期待した Co テトラデハイドロコリン (図 7a) は溶媒である水との反応が高速に進行し、効率的に水素が発生することが明らかになった。この結果を受けて、図 7b に示す Co ビピリコロールを新規に調製し、同様に評価を行った。結果として、高いファラデー効率で二酸化炭素の還元による一酸化炭素の生成を確認した。この系では、水素やさらに還元されたギ酸の生成は起こらず、生成物選択性が高いことが明らかになった。

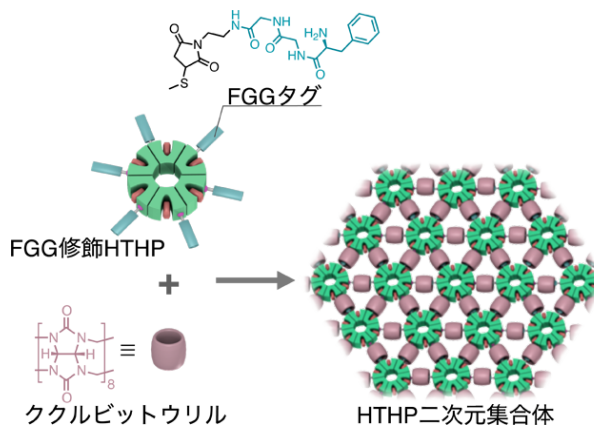


図 5. HTHP 二次元集合体の模式図。

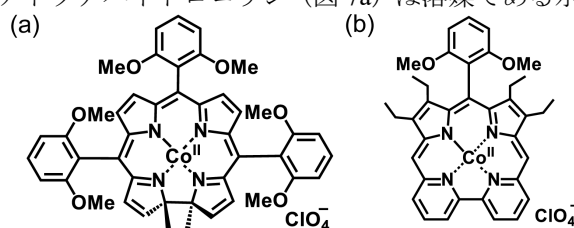


図 7. (a) Co テトラデハイドロコリンおよび (b) Co ビピリコロールの構造式。

上記の通り、色素タンパク質であるヘムタンパク質を集積化することで、光エネルギーを捕集・集約可能な光捕集系として機能することを示した。今後、活性中心との複合化により人工光合成の実現が可能になる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計19件（うち査読付論文 19件 / うち国際共著 2件 / うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Oohora Koji, Fujimaki Nishiki, Kajihara Ryota, Watanabe Hiroki, Uchihashi Takayuki, Hayashi Takashi	4. 巻 140
2. 論文標題 Supramolecular Hemoprotein Assembly with a Periodic Structure Showing Heme?Heme Exciton Coupling	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of the American Chemical Society	6. 最初と最後の頁 10145 ~ 10148
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/jacs.8b06690	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 Ogawa Ayumu, Oohora Koji, Hayashi Takashi	4. 巻 57
2. 論文標題 Synthesis and Characterization of meso-Substituted Cobalt Tetradehydrocorrin and Evaluation of Its Electrocatalytic Behavior Toward CO ₂ Reduction and H ₂ Evolution	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Inorganic Chemistry	6. 最初と最後の頁 14644 ~ 14652
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.inorgchem.8b02333	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 Ogawa Ayumu, Oohora Koji, Gu Wenting, Hayashi Takashi	4. 巻 55
2. 論文標題 Electrochemical CO ₂ reduction by a cobalt bipyridine complex: decrease of an overpotential value derived from monoanionic ligand character of the porphyrinoid species	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Chemical Communications	6. 最初と最後の頁 493 ~ 496
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C8CC08876D	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 Oohora Koji, Kajihara Ryota, Fujimaki Nishiki, Uchihashi Takayuki, Hayashi Takashi	4. 巻 55
2. 論文標題 A ring-shaped hemoprotein trimer thermodynamically controlled by the supramolecular heme?heme pocket interaction	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Chemical Communications	6. 最初と最後の頁 1544 ~ 1547
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C8CC09314H	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 Kajihara Ryota, Oohora Koji, Hayashi Takashi	4. 巻 193
2. 論文標題 Photoinduced electron transfer within supramolecular hemoprotein co-assemblies and heterodimers containing Fe and Zn porphyrins	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Inorganic Biochemistry	6. 最初と最後の頁 42 ~ 51
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jinorgbio.2019.01.001	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 -

1. 著者名 Oohora Koji, Kajihara Ryota, Jiromaru Misa, Kitagishi Hiroaki, Hayashi Takashi	4. 巻 48
2. 論文標題 Arginine Residues Provide a Multivalent Effect for Cellular Uptake of a Hemoprotein Assembly	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 295 ~ 298
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/cl.180897	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 Oohora Koji, Miyazaki Yuta, Hayashi Takashi	4. 巻 58
2. 論文標題 Myoglobin Reconstituted with Ni Tetrahydrocorrin as a Methane Generating Model of Methyl coenzyme M Reductase	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Angewandte Chemie International Edition	6. 最初と最後の頁 13813 ~ 13817
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/anie.201907584	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 Wolf Maximilian, Ogawa Ayumu, Bechtold Mareike, Vonesch Maxime, Wytko Jennifer A., Oohora Koji, Campidelli Stéphane, Hayashi Takashi, Guldi Dirk M., Weiss Jean	4. 巻 10
2. 論文標題 Light triggers molecular shuttling in rotaxanes: control over proximity and charge recombination	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Chemical Science	6. 最初と最後の頁 3846 ~ 3853
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C8SC05328F	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 Miyazaki Yuta, Oohora Koji, Hayashi Takashi	4. 巻 901
2. 論文標題 Methane generation via intraprotein C?S bond cleavage in cytochrome b562 reconstituted with nickel didehydrocorrin	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Organometallic Chemistry	6. 最初と最後の頁 120945 ~ 120945
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jorganchem.2019.120945	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 Oohora Koji, Hirayama Shota, Mashima Tsuyoshi, Hayashi Takashi	4. 巻 24
2. 論文標題 Supramolecular dimerization of a hexameric hemoprotein via multiple pyrene-pyrene interactions	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Porphyrins and Phthalocyanines	6. 最初と最後の頁 259 ~ 267
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1142/S1088424619500949	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 Oohora Koji, Hirayama Shota, Uchihashi Takayuki, Hayashi Takashi	4. 巻 49
2. 論文標題 Construction of a Hexameric Hemoprotein Sheet and Direct Observation of Dynamic Processes of Its Formation	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 186 ~ 190
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/cl.190855	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 Hirayama Shota, Oohora Koji, Uchihashi Takayuki, Hayashi Takashi	4. 巻 142
2. 論文標題 Thermoresponsive Micellar Assembly Constructed from a Hexameric Hemoprotein Modified with Poly(N-isopropylacrylamide) toward an Artificial Light-Harvesting System	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of the American Chemical Society	6. 最初と最後の頁 1822 ~ 1831
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/jacs.9b10080	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Oohora Koji, Onuma Yoshitaka, Tanaka Yuta, Onoda Akira, Hayashi Takashi	4. 巻 53
2. 論文標題 A supramolecular assembly based on an engineered hemoprotein exhibiting a thermal stimulus-driven conversion to a new distinct supramolecular structure	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Chemical Communications	6. 最初と最後の頁 6879 ~ 6882
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C7CC02678A	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 Oohora Koji, Meichin Hiroyuki, Zhao Liming, Wolf Matthew W., Nakayama Akira, Hasegawa Jun-ya, Lehnert Nicolai, Hayashi Takashi	4. 巻 139
2. 論文標題 Catalytic Cyclopropanation by Myoglobin Reconstituted with Iron Porphycene: Acceleration of Catalysis due to Rapid Formation of the Carbene Species	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Journal of the American Chemical Society	6. 最初と最後の頁 17265 ~ 17268
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/jacs.7b10154	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 Oohora Koji, Meichin Hiroyuki, Kihira Yushi, Sugimoto Hiroshi, Shiro Yoshitsugu, Hayashi Takashi	4. 巻 139
2. 論文標題 Manganese(V) Porphycene Complex Responsible for Inert C-H Bond Hydroxylation in a Myoglobin Matrix	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Journal of the American Chemical Society	6. 最初と最後の頁 18460 ~ 18463
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/jacs.7b11288	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 Mashima Tsuyoshi, Oohora Koji, Hayashi Takashi	4. 巻 21
2. 論文標題 Substitution of an amino acid residue axially coordinating to the heme molecule in hexameric tyrosine-coordinated hemoprotein to enhance peroxidase activity	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Journal of Porphyrins and Phthalocyanines	6. 最初と最後の頁 824 ~ 831
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1142/S1088424617500936	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 Mashima Tsuyoshi、Oohora Koji、Hayashi Takashi	4. 巻 20
2. 論文標題 Successive energy transfer within multiple photosensitizers assembled in a hexameric hemoprotein scaffold	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 3200 ~ 3209
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C7CP05257J	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 Meichin Hiroyuki、Oohora Koji、Hayashi Takashi	4. 巻 472
2. 論文標題 Preparation and characterization of myoglobin reconstituted with Fe(II) oxaporphyrin: The monoanionic macrocycle provides unique cyanide binding behavior for the ferrous species	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Inorganica Chimica Acta	6. 最初と最後の頁 184 ~ 191
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ica.2017.06.054	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 Morita Yoshitsugu、Oohora Koji、Sawada Akiyoshi、Kamachi Takashi、Yoshizawa Kazunari、Hayashi Takashi	4. 巻 56
2. 論文標題 Redox Potentials of Cobalt Corrinoids with Axial Ligands Correlate with Heterolytic Co-C Bond Dissociation Energies	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Inorganic Chemistry	6. 最初と最後の頁 1950 ~ 1955
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.inorgchem.6b02482	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 -

〔学会発表〕 計19件 (うち招待講演 4件 / うち国際学会 4件)

1. 発表者名 Koji Oohora
2. 発表標題 Hemoproteins reconstituted with metal corrinoids as functional models of natural enzymes related to bioorganometallic species
3. 学会等名 9th International Symposium on Bioorganometallic Chemistry (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大洞 光司、浦山 貴大、古川 泰祐、林 高史
2. 発表標題 de Novo ヘムタンパク質を構成要素とするポリマーおよびゲルの構築
3. 学会等名 第15回ホスト-ゲスト・超分子化学シンポジウム
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 真島剛史・大洞光司・林高史
2. 発表標題 ヘムタンパク質環状六量体を基盤とする異種色素の集積化と色素間エネルギー移動
3. 学会等名 第15回ホスト-ゲスト・超分子化学シンポジウム
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Shota Hirayama, Koji Oohora, Takashi Hayashi
2. 発表標題 Artificial protein assemblies of chemically engineered hexameric hemoprotein with functional molecules
3. 学会等名 14th International Symposium on Applied Bioinorganic Chemistry (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 大洞 光司
2. 発表標題 ヘムタンパク質集合体を基盤とする人工光捕集系の構築
3. 学会等名 第38回光化学若手の会 (招待講演)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 梶原 竜太・大洞 光司・林 高史
2. 発表標題 ヘムおよび亜鉛ポルフィリンを有するヘムタンパク質共集合体および二量体における光誘起電子移動の評価
3. 学会等名 第27回金属の関与する生体関連反応シンポジウム
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 大洞 光司
2. 発表標題 生体材料および人工酵素を指向したヘムタンパク質の化学的改変
3. 学会等名 錯体化学若手の会夏の学校2017（招待講演）
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 仲山健大・真島剛史・大洞光司・林高史
2. 発表標題 環状六量体ヘムタンパク質を基盤とする人工光捕集系への水素発生触媒の導入
3. 学会等名 第11回バイオ関連化学シンポジウム
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 大洞 光司、浦山 貴大、林 高史
2. 発表標題 柔らかなヘムタンパク質を素材とするポリマーの調製と弾性評価
3. 学会等名 第66回高分子討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 大洞光司
2. 発表標題 ヘムタンパク質の化学的改変による人工酵素・酵素モデルの開発
3. 学会等名 ITbM/IGER Chemistry Workshop 2017 (招待講演)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 真島剛史・大洞光司・林高史
2. 発表標題 Enhanced peroxidase activity of hexameric hemoprotein by substitution of an amino acid residue axially coordinating to the heme molecule
3. 学会等名 BIOTECHNOLOGY AND CHEMISTRY FOR GREEN GROWTH (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Shota HIRAYAMA, Koji OOHORA, Takashi HAYASHI
2. 発表標題 Self-assembly of hexameric hemoprotein modified with functional molecules
3. 学会等名 BIOTECHNOLOGY AND CHEMISTRY FOR GREEN GROWTH (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 HIRAYAMA Shota; OOHORA Koji; HAYASHI Takashi
2. 発表標題 Self-assembly of hexameric hemoprotein chemically modified with functional molecules
3. 学会等名 日本化学会第98春季年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 仲山健大、大洞光司、林高史
2. 発表標題 ヘムタンパク質環状六量体を基盤とする色素集積体を用いた光水素発生触媒系の構築
3. 学会等名 日本化学会第98春季年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 浦山貴大、大洞光司、林高史
2. 発表標題 De Novoヘムタンパク質を架橋ユニットとしたハイドロゲルの刺激応答性評価
3. 学会等名 日本化学会第97春季年会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Tsuyoshi Mashima, Koji Oohora, Takashi Hayashi
2. 発表標題 Successive Energy Transfer in Zn-substituted Hexameric Hemoprotein with Multiple Photosensitizers as an Artificial Light Harvesting Antenna
3. 学会等名 日本化学会第97春季年会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 真島剛史、大洞光司、林高史
2. 発表標題 ヘムタンパク質環状六量体を基盤とした異種色素を含む人工光捕集系における色素間エネルギー移動
3. 学会等名 第26回金属の関与する生体関連反応シンポジウム
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 大洞光司
2. 発表標題 ヘムタンパク質の機能操作：超分子集合体および人工酵素の構築
3. 学会等名 機能物性セミナー
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 大洞光司、古川泰祐、浦山貴大、林高史
2. 発表標題 共有結合で連なるヘムタンパク質ポリマーの調製とその単分子力学特性評価
3. 学会等名 第10回バイオ関連シンポジウム
4. 発表年 2016年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 Koji Oohora, Takashi Hayashi	4. 発行年 2019年
2. 出版社 World Scientific	5. 総ページ数 18
3. 書名 “Artificial Hemoprotein Assemblies in Development of Nanobiomaterials” In Bioinspired Chemistry From Enzymes to Synthetic Models	

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>大阪大学大学院工学研究科応用化学専攻林研究室 http://www.chem.eng.osaka-u.ac.jp/~hayashiken/index.html</p>
--

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
--	---------------------------	-----------------------	----