

2021 年度 大阪大学蛋白質研究所 拠点事業

研究成果報告書

(1) 事業名 (下記より該当事業名を選択し、ほかは削除して下さい。)

共同研究員

(2) 研究代表者

氏名：本郷 やよい

所属機関名・部局名・職名：沖縄科学技術大学院大学・進化神経生物学ユニット・テクニシャン

(3) 研究課題名 (申請時に記載したものと同一課題名を記入して下さい。)

タンパクアミノ酸の起源

(4) 蛋白質研究所受入担当教員

教員名：藤原 敏道 教授

(研究室名：機能構造計測学 研究室)

(5) 研究成果の概要 (公開)

本課題では、原始地球上でタンパク構造が自発的に生まれ得たことを示す包括的なシナリオの提案に至った。アミノ酸は宇宙空間に遍在する分子群一つであることが明らかになって以降、生命誕生の起源についてはどのように homochiral(L-form) α -アミノ酸の α -ペプチド結合の繰り返しからなるタンパク一次構造が生じたのか、偏在分子から生命分子への進化過程の解明が課題となっていた。

非生命合成されるアミノ酸は常にアミノ酸以外の有機物、 α -アミノ酸以外のアミノ酸、エナンチオマーの混合物であり、化学平衡論のみからタンパク一次構造への構造選択を説明することはほぼ不可能である。無機鉱物などの吸着濃集や鑄型に相当する触媒様作用に注目が集まったものの、タンパク構造を導くことが可能な触媒物質は発見されていない。また、生体ではタンパク構造に関与しない代謝物では α -アミノ以外、エナンチオマーアミノ酸、 α -アミド結合以外のアミド結合分子の構造は許容されており、ここではタンパク構造に特異的な分子進化と構造選択が起きた可能性を検証した。

本課題で、分子構造解析手法を駆使し、固相・水相・気相の不均一界面に生じる coffee-ring effect が、水溶液からのグリシンの自己組織化、結晶化自体を比較的頻繁に促すことを確かめた。申請者の研究チームは、HPLC 定量と合わせ、X 線結晶回折、質量分析、固体 NMR 観測により特定のグリシンモノマー結晶のみが効率的に長鎖ポリマーへと重合し、かつそのポリマーが自発的に結晶となることを確かめた。ポリグリシンは実際に観測されているタンパク一次構造骨格でもあり、局所的非平衡によって生命分子の生成が促されることを確かめたことになる。グリシンポリマーが螺旋構造をとる場合、引き続く熱分解による部分的な α 炭素への付加反応過程は、ペプチド骨格への側鎖導入に相当するが、その化学性に依存せず螺旋構造の安定化のため (ラムチャンドランプロットとして知られるアミノ酸ユニットと立体安定性の傾向)、ホモキラルのユニットとなる可能性がある。実際に固体 NMR と X 線での分析で、グリシンポリマーがらせん構造の結晶性が確かめられた。しかし、繰り返し構造のポリグリシンは構造情報が乏しく、また、局所に集積する試料は実験スケールアップで回収量を増やすことが難しいため、微量試料解析は容易ではなかった。 $^{13}\text{C}^{15}\text{N}$ 安定同位体ラベル化グリシンを原料とし信号強度を高めるなどの工夫を行った。これまでの観測結果をもとに、原始地球環境中、地熱水活動域でグリシンの合成からタンパクペプチド断片が水圏に供給されるまでが一括して説明できるシナリオを提案した。