

6-4 理論・計算分子科学研究領域

理論分子科学第一研究部門

齊 藤 真 司（教授）（2005 年 10 月 1 日着任）

甲田 信一（助教）

松村 祥宏（学振特別研究員）

KALATHINGAL, Mahroof（大学院生）

ZHU, Zhe（大学院生）

千葉 史朱香（事務支援員）

A-1) 専門領域：物理化学，理論化学

A-2) 研究課題：

- a) 生体分子系の機能に関する理論研究：時計タンパク質 KaiC における概日リズム
- b) 生体分子系の機能に関する理論研究：光合成タンパク質における励起エネルギー移動
- c) 凝縮系反応に関する理論研究：遅い揺らぎの中で進む構造変化・反応の一分子解析
- d) 凝縮系動力学に関する理論研究：水の構造変化ダイナミクス

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 生体分子系の機能に関して、シアノバクテリアにおける KaiC の概日リズムの解析を進めている。周期決定に重要な KaiB-KaiC 複合体形成は、ATP 加水分解により生じる ADP の C1 ドメインへの結合により引き起こされ、逆反応である ADP/ATP 交換の阻害により複合体形成が促進されることが知られている。KaiC の 6 量体構造に関連し、6 つの KaiB モノマーが協調的に C1 に結合し、C1 が 6 個の ADP を結合した時に C1 の結合可能構造がとくに安定化するモデルを提案した。
- b) 生体分子系の機能に関して、高等植物の光化学系 II 光捕集アンテナ複合体 LHCII における励起エネルギー移動の研究を行っている。励起エネルギー移動の解析には、LHCII 中のクロロフィルの励起エネルギーやその揺らぎが必要となる。溶液中のクロロフィルの励起エネルギーを適切に記述する電子状態計算に基づき、分子動力学計算に用いる LHCII 中のクロロフィル分子の基底状態の分子パラメータを決定した。現在、LHCII 中のクロロフィル分子の励起状態に対する分子パラメータの開発を進めている。
- c) 凝縮系の反応・構造変化に関して、凝縮系の動的な不均一揺らぎの下、構造変化や化学反応が如何に進行するか解析を進めている。とくに、時間依存の反応速度理論を展開し、水溶液中の BPTI タンパク質の超長時間の分子動力学データを利用し、構造変化速度の揺らぎを解析した。
- d) 凝縮系の反応・構造変化に関して、過冷却水の構造変化ダイナミクスの解析を進めている。その結果、過冷却水において、再生過程で記述されるジャンプ運動的な局所的構造変化が稀に起こることを見出した。さらに、構造変化の起源を解析し、構造変化の起こる遙か前から周囲の構造が変化し始めていることも明らかにした。

B-1) 学術論文

- H. NAKAMURA, H. MIYANISHI, T. YASUNAGA, S. FUJIWARA, T. MIZUGUCHI, A. NAKATA, T. MIYAZAKI, T. OTSUKA, T. KENMOTSU, Y. HATANO and S. SAITO**, “Molecular Dynamics Study on DNA Damage by Tritium Disintegration,” *Jpn. J. Appl. Phys.* **59**, SAAE01 (5 pages) (2020). DOI: 10.7567/1347-4065/ab460d
- M. MAURYA, A. K. METYA, J. K. SINGH and S. SAITO**, “Effects of Interfaces on Structure and Dynamics of Water Droplets on a Graphene Surface: A Molecular Dynamics Study,” *J. Chem. Phys.* **154**, 164704 (12 pages) (2021). DOI: 10.1063/5.0046817
- Y. MATSUMURA and S. SAITO**, “Microscopic Insights into Dynamic Disorder in the Isomerization Dynamics of the Protein BPTI,” *J. Chem. Phys.* **154**, 224113 (11 pages) (2021). DOI: 10.1063/5.0055152
- H. LI, S. FUJIWARA, H. NAKAMURA, T. MIZUGUCHI, A. NAKATA, T. MIYAZAKI and S. SAITO**, “Structural Change of Damaged Polyethylene by Beta-Decay of Substituted Tritium Using Reactive Force Field,” *Jpn. J. Appl. Phys.* **60**, SAAB06 (7 pages) (2021). DOI: 10.35848/1347-4065/abbd8c
- S.-I. KODA and S. SAITO**, “Multimeric Structure Enables the Acceleration of KaiB-KaiC Complex Formation Induced by ADP/ATP Exchange Inhibition,” *PLoS Comput. Biol.* **18**, e1009243 (24 pages) (2022). DOI: 10.1371/journal.pcbi.1009243
- Y.-W. KUO, P.-H. TANG, H. WANG, T.-M. WU and S. SAITO**, “Tetrahedral Structure of Supercooled Water at Ambient Pressure and Its Influence on Dynamic Relaxation: Comparative Study of Water Models,” *J. Mol. Liq.* **341**, 117269 (2021). DOI: 10.1016/j.molliq.2021.117269
- M. KALATHINGAL, T. SUMIKAMA, S. OIKI and S. SAITO**, “Vectorial Insertion of a β -Helical Peptide into Membrane: A Theoretical Study on Polytheonamide B,” *Biophys. J.* **120**, 4786–4797 (2021). DOI: 10.1016/j.bpj.2021.09.028
- T. INAGAKI and S. SAITO**, “Hybrid Monte Carlo Method with Potential Scaling for Sampling from the Canonical Multimodal Distribution and Imitating the Relaxation Process,” *J. Chem. Phys.* **156**, 104111 (12 pages) (2022). DOI: 10.1063/5.0082378
- Z. ZHU, M. HIGASHI and S. SAITO**, “Excited States of Chlorophyll *a* and *b* in Solution by Time-Dependent Density Functional Theory,” *J. Chem. Phys.* **156**, 124111 (13 pages) (2022). DOI: 10.1063/5.0083395

B-3) 総説, 著書

- I. OHMINE and S. SAITO**, “Dynamical Behavior of Water; Fluctuation, Reactions and Phase Transitions,” *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **94**, 2575–2601 (2021). DOI: 10.1246/bcsj.20210269

B-4) 招待講演

- 斉藤真司, 「サイト依存ゆらぎによる FMO タンパク質の率的励起エネルギー移動」, 名古屋大学, 名古屋, October 2021.
- S. SAITO**, “Excitation energy transfer in the Fenna-Matthews-Olson protein optimized by site-dependent fluctuations,” Symposium on Frontiers in quantum and classical molecular dynamics for complex systems, The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies 2021 (Pacifichem 2021), Honolulu (U. S. A.) (online), December 2021.
- S. SAITO**, “Molecular mechanism of acceleration and retardation of collective orientation relaxation of water molecules in aqueous solutions,” Symposium on Structure and function of complex molecular clusters—challenges in theory and experiment, Pacifichem 2021, Honolulu (U. S. A.) (online), December 2021.

S. SAITO, “Supercooled water: Structure, dynamics, thermodynamics, and glass transition,” Symposium on Exploring complex and real systems using large-scale molecular dynamics calculations, Pacifichem 2021, Honolulu (U. S. A.) (online), December 2021.

斉藤真司, 「シミュレーションによる水の不思議の解明」, 階層と全体シンポジウム, 自然科学研究機構, January 2022.

S. SAITO, “Structure, dynamics, and thermodynamics of supercooled water,” SNU Leaders in Chemistry Symposium on Quantum and statistical fluctuations in molecular materials, Seoul National University, Seoul (Korea) (online), February 2022.

B-6) 受賞, 表彰

斉藤真司, 第6回分子科学国際学術賞 (2021).

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

分子科学会運営委員 (2008–2012, 2016–2020, 2022–2026).

日中韓理論化学ワークショップ幹事 (2013–).

学会の組織委員等

5th China-Japan-Korea Tripartite Workshop on Theoretical and Computational Chemistry, Organizing Committee (2020–2022).

Pacifichem2021国内実行委員 (Computational and Theoretical 分野) (2017–2022).

文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

東北大学金属研究所計算材料科学センター 運営委員会委員 (2015–2021).

その他

森野基金 運営委員会委員 (2020–).

計算物質科学協議会 運営委員会委員 (2020–).

B-8) 大学での講義, 客員

Department of Physics, Stockholm University, “Structure, dynamics, and thermodynamics of supercooled water,” Stockholm (Sweden), 2022年3月18日.

名古屋大学大学院大学理学研究科, 「化学特別講義3」, 2021年10月26日–27日

総合研究大学院大学物理科学研究科, 「基礎物理化学I」, 2021年7月6日–8日.

Indian Institute of Technology Kanpur, 客員教授, 2020年4月–2024年3月.

B-9) 学位授与

KALATHINGAL, Mahroof, 「Theoretical Studies on Structure, Dynamics, and Membrane Insertion of Polytheonamide B」, 2021年9月, 博士 (理学).

B-10) 競争的資金

科研費基盤研究(A),「高等植物の光捕集アンテナタンパク質における効率的励起エネルギー移動の理論研究」, 齊藤真司 (2021年度-2025年度).

C) 研究活動の課題と展望

我々は、生体分子系の機能および凝縮系のダイナミクスに関する理論研究を進めている。生体分子系の機能に関する研究の1つとして、時計タンパク質 KaiC の概日リズムの分子機構の解明に向け、微視的・巨視的解析を行っている。とくに、周期の決定に重要な KaiB と KaiC の複合体形成について数値モデルや分子動力学シミュレーションに基づく研究を進める。これらの結果をもとに、概日リズムに対する包括的な数値モデルを構築したい。また、生体分子系の機能に関する2つ目の研究として、高等植物の LHCII における励起エネルギー移動の分子機構の解明を目指している。とくに、現在、LHCII 中の色素の電子状態を適切に再現するパラメータの決定を進めている。今後、励起エネルギーおよびその揺らぎ(スペクトル密度)の解析を進め、LHCII における効率的励起エネルギー移動の分子機構を解明していきたい。さらに、凝縮系のダイナミクスに関する研究として、生体分子や水を例に、構造変化がいかに起こるのかについて解析を進めている。生体分子に関しては、これまで進めてきた遅い構造変化ダイナミクス(動的乱れ)から機能の解析へと展開していく。また、水のダイナミクスに関しては、過冷却水の動力学過程の分子機構の解明を進める。