

2023 年度  
創発的研究支援事業 年次報告書

研究担当者	大岡英史
研究機関名	理化学研究所
所属部署名	環境資源科学研究センター (CSRS) 生体機能触媒研究チーム
役職名	研究員
研究課題名	非平衡状態における触媒反応ネットワーク理論の開拓
研究実施期間	2023 年 4 月 1 日～2024 年 3 月 31 日

### 研究成果の概要

今年度は速度論モデルを人工触媒から酵素反応に展開し、理論予測と実験検証を行った。具体的には、酵素と反応基質の結合親和性 ( $K_m$ ) に対して、酵素反応の速度がどのように変化するかの速度論モデルを構築し、基質濃度に対して反応速度を最大化する酵素の理論的な要件 ( $K_m = [S]$ ) を予測した。また、約 1000 件の酵素を対象としたバイオインフォマティクス解析を行うことで、実際に酵素の  $K_m$  と細胞内基質濃度  $[S]$  が  $K_m = [S]$  を中心に分布していることを示した (2023 *Nat. Commun.*)。

また、天然のアミノ酸生合成酵素 10 種類の活性を測定し、 $K_m = [S]$  で活性が最大化されるか、実験検証を行った。基質濃度を変えた際でも活性が最大化される  $K_m$  が変化しなかったため、上述の理論予測通りの結果にはならなかった。一方で、理論に従うセルロース分解酵素との違いを考察することで、 $K_m$  と同程度に活性を左右する物理化学因子を特定し、理論改良のきっかけを掴むことができた (2024 *Angew.*)

上述の酵素反応の理論開拓に加え、電気化学測定、in-situ 分光、速度論解析を組み合わせることで電極触媒の電圧依存性を説明することに成功した。特に、熱力学的な重要性が認識されてきた律速段階だけでなく、それ以外の素反応も触媒活性を大きく左右することを示すことができた。これまで活性向上に向けて律速段階に関する議論が主流であったが、本研究から触媒反応機構をより総合的に評価する必要があると考えられる (2023 *JPCO*)。