

光合成系の光捕集過程を構造に立脚して理解する： 理論と実験の融合で見えてきたこと

柴田 穰 (東北大学大学院理学研究科)

植物の光合成タンパク質には多くのクロロフィル (Chl) など色素分子が結合している。多数の色素のうちどれか一つが光子を吸収すると、励起状態はバケツリレー式のエネルギー移動により次々に隣の色素分子へと渡り、最終的に反応中心 Chl (最初の電子供与体, Primary Donor) へと到達しそこで光誘起電子移動反応に使われる。この光捕集と呼ばれる過程を担うのは、1つのタンパク質あたり数十個結合するアンテナ Chl である。アンテナ Chl は光合成タンパク質に非常に密に詰め込まれており、その励起状態はもはや一つの分子に局在しているという描像では記述できず、多数の分子間に量子力学的に非局在化した励起状態を考える必要がある。

21 世紀に入り、植物型の光合成タンパク質の立体構造が次々に明らかにされた。一方、光合成タンパク質の光捕集過程を、上述した励起の非局在化を考慮しつつ構造情報に立脚して再現する微視的な理論的枠組みは、既に物理学者が概ね整備していた。具体的には、久保-豊沢のスペクトル形状理論、エネルギー移動の Förster 理論およびそれを非局在化した励起状態に拡張した一般化 Förster 理論、そして非局在化した励起状態間の緩和を取り扱う Redfield 理論などである。これらは摂動論的な理論であるが、適切に組み合わせることで調節パラメータなしに光合成系の光捕集ダイナミクスを定量的に再現することも原理的には可能である。しかし、現実には構造情報のみから予想することは困難なパラメータがある。タンパク質の低振動モードと電子励起状態とのカップリングを反映するスペクトル密度関数は、光学スペクトル形状の再現

に必須でエネルギー移動速度を決める重要な因子であるが、構造情報からの予測は難しく実験から求めたものが利用されている。さらに困難なのは、タンパク質に結合する各 Chl 分子の励起状態のエネルギー (サイトエネルギー) を決定することである。タンパク質に結合する色素分子のサイトエネルギーを、構造情報から精度高く予測する量子化学的な手法は現在でも確立していない。

現時点でサイトエネルギーを決める最も有効な手段は、吸収や蛍光、円偏光二色性、直線偏光二色性といった実験で得られる様々なスペクトルを最もよく再現するサイトエネルギーの組み合わせをフィッティングにより求めることである。この手法により、ようやく植物型光合成の光化学系 II タンパク質の光学スペクトルを概ね再現できる微視的理論モデルができてきた。とは言え、フィッティングから求められたサイトエネルギーの信頼性にはさらなる検証が必要であった。最近我々は、上述の微視的理論モデルを使って、光化学系 II のピコ秒時間分解蛍光ダイナミクスを再現することに成功した。5 K から 180 K までの広い温度領域で時間分解蛍光スペクトルを再現できたことは、この理論モデルがエネルギー移動経路などを概ね正しく再現していることを示している。こうした研究から、光化学系 II に存在する Primary Donor よりも低い励起状態を持つアンテナ Chl が、既知のタンパク質構造中のどの分子であるかが解明された。低い励起状態を持つ Chl の生物学的な機能は何なのか、今後の研究による解明が待たれる。

—Keywords—

Primary Donor :

光合成タンパク質に結合する色素分子のうち、光誘起電荷分離反応が起きる特定の分子のことを、最初の電子供与体という意味で Primary Donor という。紅色細菌の光合成タンパク質の Primary Donor は、タンパク質複合体中央付近に結合する二つのバクテリオクロロフィルで構成されるスペシャルペアであることが知られている。

サイトエネルギー :

タンパク質媒質中の様々な位置に結合しているクロロフィルは、各結合場所でそれぞれに異なる電場を感じるとともに、さまざまな立体障害を受けることでコンフォメーションも少しずつ異なっている。こうした環境の違いから、各クロロフィル分子の励起エネルギーは結合サイトごとに少しずつ異なる値となる。周囲の環境からの影響によりシフトした励起エネルギーをその分子のオンサイトエネルギー、または単にサイトエネルギーという。