

分子シミュレーションによる光捕集アンテナ中の

色素の励起状態の理論的解明

○東 雅大¹, 斉藤 真司^{2,3}¹ 琉大理, ² 分子研, ³ 総研大

higashi@sci.u-ryukyu.ac.jp

光合成系において反応中心に光エネルギーを伝達する役割を担う光捕集アンテナは、内部に複数の色素を持つ。光捕集アンテナは、この色素の励起エネルギーの大きさと揺らぎを最適化することで、高速・高効率な励起エネルギー移動を達成している。しかし、このように複雑に相関している系について、タンパク質の微細な構造や揺らぎの役割を実験結果だけから理解することは難しい。一方、理論計算においても、色素の励起状態が密集して揺らいでいるために、それを適切に記述する量子化学計算手法を用いる必要がある。また、タンパク質の構造や揺らぎの役割の解析には、従来の手法では非常に多くの構造で高コストな量子化学計算を行わなければならない、現在の計算機環境でもほぼ不可能である。そこで本研究では、溶液中の色素の励起状態の性質を適切に記述可能な量子化学計算手法(M. Higashi et al., *J. Phys. Chem. B* **2014**, *118*, 10906)と色素の励起エネルギーの大きさと揺らぎを効率的に解析可能な手法(Molecular Mechanics with Shepard Interpolation Correction, MMSIC 法)を開発し、これらの手法を用いて光捕集アンテナ中の異なる環境に置かれた色素の励起エネルギーの大きさと揺らぎを解析した。

本研究では、光捕集アンテナとして実験・理論の両面で古くから広く研究されてきた光捕集アンテナである Fenna-Matthews-Olson (FMO)タンパクに着目する。FMO タンパクは3量体からなるタンパク質であり、1つのサブユニットに7つの色素バクテリオクロロフィル*a* (BChl *a*) を含む。*Prosthecochloris aestuarii* 由来の FMO タンパクでは、図1のようにサイト3の励起エネルギーが最も低く、サイト5の励起エネルギーが最も高いことが実験的に知られている。我々の計算ではこの結果をほぼ定量的に再現することに成功した(図1)。また、色素の励起エネルギーの揺らぎの大きさを表す Spectral Density も定量的に再現することに成功し、周囲の環境によって揺らぎが異なることを明らかにしている(図2)。さらに、励起エネルギーの大きさや揺らぎを決める要因がサイトによって異なり、色素の構造の歪みや周囲のタンパク質の環境の違いによることも判明した。これらの結果は、励起エネルギー移動ダイナミクスに大きな影響を与えるものであり、本研究で初めて明らかになったものである。

さらに当日は、同じく励起エネルギー移動ダイナミクスに重要な色素の励起状態間のカップリングの解析についても議論する予定である。

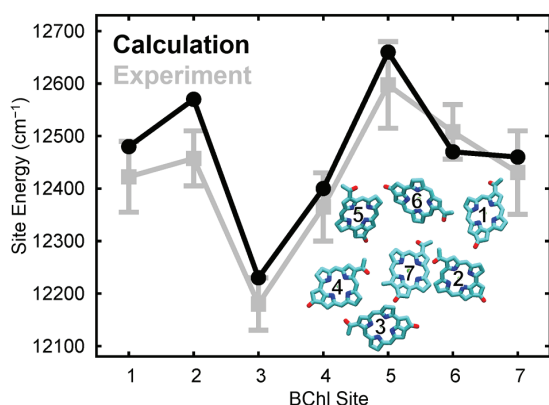


図1: 計算により得られたサイトエネルギーと実験値の比較

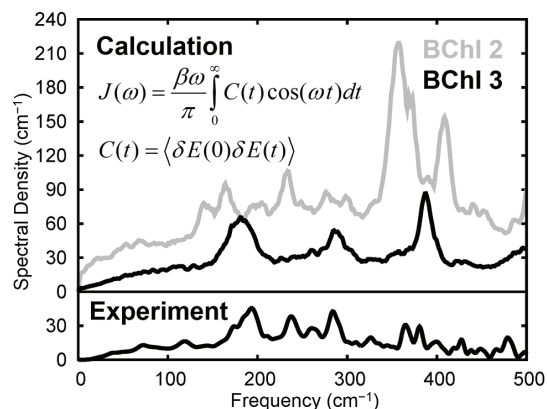


図2: 色素の揺らぎの大きさを表す Spectral Density (サイト2とサイト3のみ抜粋)