

鬼頭 宏任

筑波大学計算科学研究センター／科学技術振興機構
研究員／さきがけ研究者

量子シミュレーション技術による未知の生体電子移動/機能発現の探索

§ 1. 研究成果の概要

光合成反応の初期過程を担う反応中心(RC)蛋白質は大きく 4 種類に分類され、その中で非酸素発生 I 型 RC のみ三次元構造が未解明であった。2017 年にヘリオバクテリア I 型 RC(hRC)の X 線結晶構造が遂に報告され、図のように 60 個のクロロフィル分子が 2 回回転対称性を保つように配置されていることが分かった。この色素配置の構造情報と各クロロフィルが蛋白質環境下で持つ電子状態情報から、今まで未解明であった hRC の光捕集アンテナ機構と、その後起こる電子移動反応の実態を明らかにする理論的研究を行っている。

本研究[J. Phys. Chem. B (2020), 124(2), 389-403]では、hRC の持つ光捕集アンテナ機構を調べる為、クロロフィル色素間の励起子結合強度を計算し、シアノバクテリアが持つ酸素発生 I 型 RC(PSI)のものと比較した。従来のフェルスター理論では、遷移ダイポール(双極子)近似を用いて励起子結合強度が計算される。一方、図のように色素が密に会合している場合には、双極子近似が成り立たなくなることが良く知られている。そこで、量子化学計算から各色素の遷移電荷を求め、Poisson 方程式と組み合わせることで、蛋白質・溶媒の電子分極遮蔽効果も取り入れた、高精度な励起子結合強度の計算(P-TrESP)を実行した。

その結果は予想とは反して、図で示したように hRC 中では双極子近似は P-TrESP の励起子結合強度と良い相関を示した。一方、PSI では、双極子近似は P-TrESP 法の結果を再現できない。この性質の違いの原因を明らかにするため、両 RC 間で仮想的な色素置換を行い、励起子結合強度の変化を解析した。その結果、(1)hRC 特有の色素配置に(2)バクテリオクロロフィル g と呼ばれる hRC 特有のクロロフィルを保有することによって、双極子近似が適用し易い RC になっていることを明らかにする事が出来た。

ヘリオバクテリアI型反応中心色素配置と励起子結合強度の計算結果

