

菅 倫寛

岡山大学異分野基礎科学研究所
准教授

量子ビームが拓く光合成膜タンパク質のマルチモーダル構造解析

§ 1. 研究成果の概要

本研究では量子ビームの特性を活かし、光合成膜タンパク質複合体の光化学系 II(PSII)を対象として、活性中心を構成する金属の価数とスピン状態の情報を与え、かつ、原子レベルの立体構造をフェムト秒時間で解析することのできる技術を開発することを目指している。大量のサンプル試料の確保と高い原子分解能を与える高品質のサンプル調製は本研究の成否を握るので継続して行っている。2019 年度は固定ターゲット法による実験が可能になり、これによりサンプル消費量をこれまでのシリアルフェムト秒結晶構造法の手法に比べ 1/10 に、原子分解能を 2.0-Å に改善できた。そこで水分解反応における PSII の周期的な反応中間体のうち、 S_1 , S_2 , S_3 状態の立体構造を決定した。原子分解能の改善により、従来よりも正確に触媒の立体構造を決定することができた。その結果、酸素分子の形成に必要と考えられる 2 つの酸素原子を触媒中に発見し、これらの化学的な性質を明らかにすることができた。解析により、反応の開始時(S_1 状態)には触媒部分の中間にある O5 と呼ばれる酸素原子が、次のステップ(S_2 状態)で少し移動してスペースをつくり、さらにその次のステップ(S_3 状態)で O6 と呼ばれる酸素原子が取り込まれる仕組みが見いだされた。さらに触媒部分の周辺で起きたタンパク質の立体構造の変化に注目したところ、反応に必要な水分子を取り込むための経路や反応で生じた水素イオンを排出するための仕組みが明らかになった。

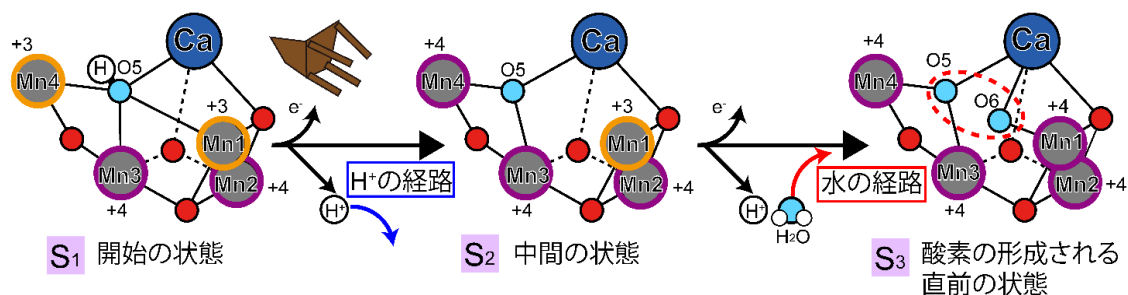


図. 酸素分子を形成する反応における触媒部分の立体構造の変化

反応サイクルは光化学系 II の特別なクロロフィルが光を受け取り励起されて進み、次の状態に進むときに触媒部分付近から電子を 1 つ取り出す。S₁ と呼ばれる反応の開始状態では O₅ と呼ばれる酸素原子(水色)に水素イオン(H⁺) (白色)が結合しているが、次の S₂ と呼ばれる反応の中間状態では O₅ は水素イオンを失い、Mn₄ の方へ引き寄せられる。すると O₅ の近くに少しスペースができる。次の S₃ と呼ばれる酸素形成の直前の状態になると水の経路から新しい水分子が O₆ (水色)として取り込まれる。O₅ と O₆ は酸素分子を形成するのにちょうどよい位置関係にある(赤色破線の丸囲み)。Mn 原子(灰色)の近くの数字(+3, +4)は Mn 原子の電荷状態を表している。