

光化学系 I 反応中心における極低温でのエネルギー捕集過程の解析: アンテナ色素励起状態のエネルギー地形解明に向けて

(名大院・理) ○柴田 穰、山岸 篤史、小村 理行、伊藤 繁

[序] 光化学系 I(PS I)反応中心は、酸素発生型の光合成における二つの光化学系の一つである。700 nm 付近に吸収を持つ P700 と呼ばれるクロロフィル(Chl)-*a* 分子二量体で起こる光誘起電子移動により高い還元力を作り出し、NADPH を生成する。PS I は、コアタンパク質部分だけで約 100 個の Chl-*a* 分子を含む巨大タンパク質-色素複合体であり、高等植物のものではさらに、LHC I と呼ばれる周辺アンテナが結合して、一つの P700 あたり約 200 個の Chl-*a* がアンテナ色素として働く巨大システムである。理想的アンテナであれば、これら多数の色素の励起状態エネルギーは、P700 に距離が近いほど長波長になるように並んだ漏斗状をしているはずである。しかし、PS I では P700 よりも長波長、730 nm 付近に蛍光ピークを持つ red Chl があることが知られ、漏斗状のエネルギー配置とは言えない。では、200 個の色素群はどのような励起状態エネルギー地形を形成しているのか? Red Chl の生理学的な意味は何か? など、興味深い問題が PS I のエネルギー捕集に関して謎のままである。室温では、一つの色素が励起されると red Chl を含むすべてのアンテナ色素間で数 10 ps 以内に平衡化され P700 へとエネルギーが渡されるため、エネルギー移動ダイナミクスの詳細を知ることは難しい。極低温では、励起エネルギーの平衡化は部分的にしか起こらず、アンテナ色素群は低いエネルギー障壁で隔てられたいくつかの Compartment に分割される。本研究では、極低温での Compartment 間のエネルギー移動速度の温度依存性を調べることで、Compartment 間のエネルギー障壁の高さを見積もり、そこから PS I アンテナ色素の励起状態エネルギー地形を明らかにすることを目指す。

[方法] ホウレンソウから精製した PS I を、pH7.5 の Tricine 緩衝液に界面活性剤 Dodecyl maltoside で可溶化し、低温でも透明度を保つため体積比で 1:2 のグリセロールを混合した。サンプルは He 循環型クライオスタットに封入し、15 K の極低温まで冷却して蛍光ダイナミクスを測定した。50 ps 以降の時間領域にはストリークカメラ(SC)を用い、50 ps 以内の超高速領域には蛍光アップコンバージョン(FUC)法を用いた。SC の測定では、検出器感度の波長依存性を補正した時間分解スペクトルが取得できる。二つの測定でサンプル励起の光学配置は全く同一にしており、異なる時間領域での測定データを繋ぎ合わせることで、fs から ns までの広い時間領域での正確な蛍光ダイナミクスを測定可能なシステムとなっている。

[結果] 図 1 は、15 K での PS I の蛍光ダイナミクスである (A は SC、B、C は FUC による測定、励起波長 430 nm、検出波長 690 nm)。青線は 7 つの指数関数の和によるフィッティングで、全ての時間領域できれいに測定結果をフィットすることが出来た。図 2 は、以上の解析から得られた Decay Associated Spectra (DAS)を示す。短波長側から長波長側へかけて+/-のパターンは、長波長側での蛍光強度の立ち上がりを意味し、その時定数でのエネルギー移動を示す。室温では、同じ時間分解能の測定でも 2 つしか +/-パターンを示す成分はなかったが、15 K では 5 つの成分が +/-パターンを示した。このことは、励起エネルギーが部分的にしか平衡化せず、色素励起状態

は多くの **Compartment** に分割されていることを示唆する。また、蛍光ダイナミクスが励起波長に依存して異なることも分かった。**15 K** では独立の異なるエネルギー移動経路が存在することが示された。

[考察] DASに見られる5つの+/-パターンは、多くの色素 **Compartment** 間のエネルギー移動過程を示している。この結果から、予想される各 **Compartment** の蛍光波長とその間のエネルギー移動速度を大雑把にまとめたのが、図 3 である。蛍光ダイナミクスの励起波長依存性は、これらの **Compartment** の初期分布が異なることで生じると考えられる。講演では、蛍光ダイナミクスの温度依存性、励起波長依存性を総合的に説明できる **Compartment** モデルについて議論する。

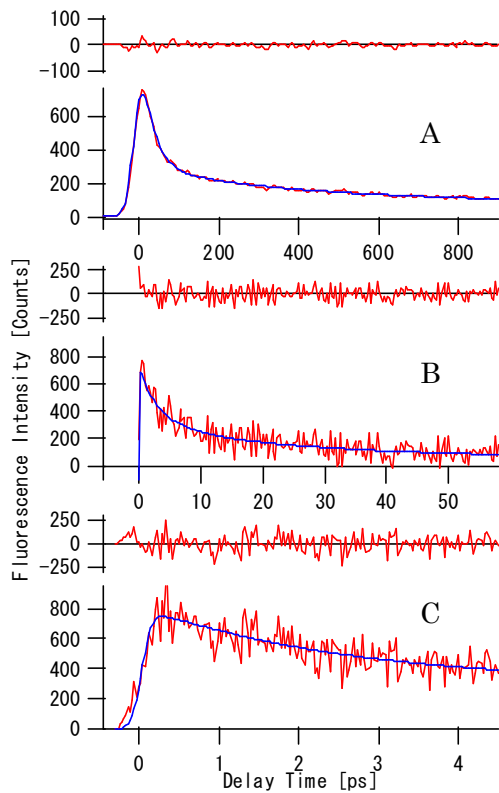


図 1

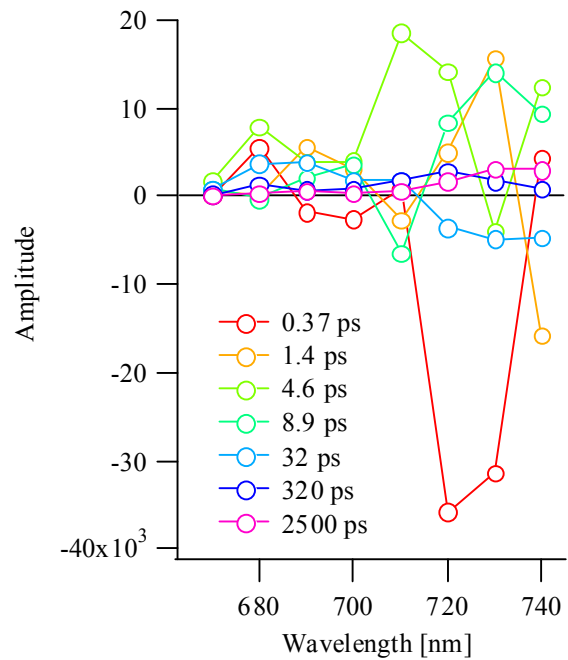


図 2

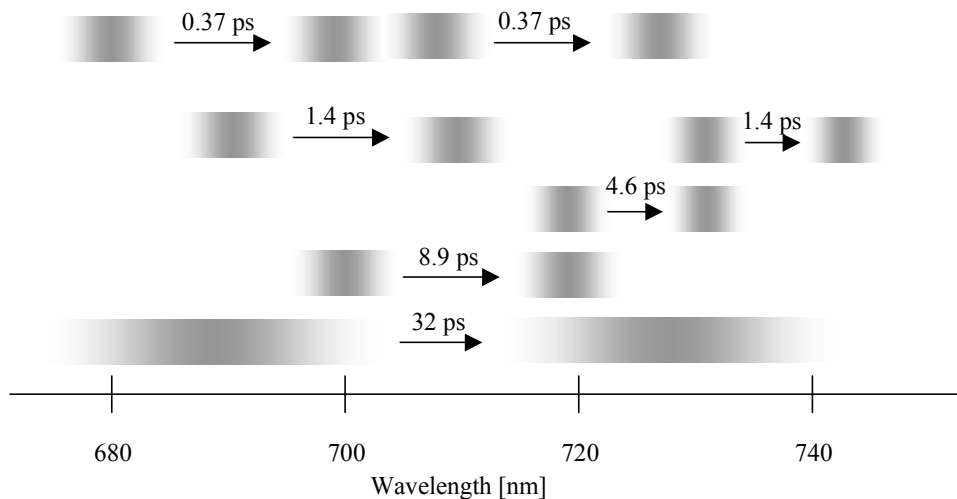


図 3