

(18) 「1光子-1電子反応系」構築

研究代表者 理学部 三室 守

研究目的

光合成は、光エネルギーを生物が利用可能な化学エネルギーに変換する化学反応であり、その最初の反応は光エネルギーの電気エネルギーへの変換反応である。この反応過程の量子効率ほぼ1、「1光子の吸収で1電子が駆動される」、という驚異的な反応効率を示すことが知られる。

この高効率化を実現する方法を知ることは今後のエネルギー生産にとって極めて重要である。そこで、今回は世界で唯一種知られているクロロフィル (Chl) *d* を持つ酸素発生型原核光合成生物 *Acaryochloris marina* について、光エネルギーの電気エネルギーへの変換過程である光吸収、光電変換素子へのエネルギー転移過程を検討した。

光電変換素子（反応中心）での電子供与体は酸素発生型光合成生物では総て Chl *a* で構成され、*A. marina* でもこのことは適用される。しかし光エネルギーを供給するためのアンテナ色素は Chl *d* であり、このエネルギー準位は Chl *a* のそれよりも低い。したがってエネルギー勾配に逆らってエネルギーが転移されなければならない (Up-hill energy transfer)。このことは実験的には確かめられていない。そこで我々は定常系の蛍光スペクトルの測定によってこの点を解析した。

研究成果

(1)77Kでの蛍光スペクトル 77Kで、Chl *a*, Chl *d* をそれぞれ励起した時の蛍光帯の波長、その強度に基づいて成分の帰属を行なった。その結果、Chl *a* 起源の 670nm, 682nm の蛍光バンド、Chl *d* 起源の 703 nm, 735nm バンドが検出された。これらは総て P S II アンテナに由来する事が判明した。

(2)室温 (295K) での蛍光スペクトル

生理的な温度での蛍光スペクトルをふたつの励起条件で測定し、さらにその差スペクトルを測定することによって、77Kで観測された総ての成分が室温でも検出され、アンテナ間でのエネルギー転移過程には変化がないことが示された。しかし波長位置は一般に blue-shift していた。

(3) Up-hill energy transfer の検出

Chl *d* を励起して Chl *a* の蛍光が検出されれば Up-hill energy transfer が起こっていることになるので、吸収スペクトルで Chl *d* の極大の 300cm^{-1} エネルギーの低い波長で励起したときの蛍光スペクトルを測定した。その結果、Chl *d* と Chl *a* の両方の蛍光が観測された。確認のために、有機溶媒中での Chl *d*, Chl *a* の混合物（この場合色素は単量体で存在する）の蛍光を、吸収極大から 300cm^{-1} エネルギーの低いところで励起して測定すると、Chl *d* の蛍光は観測されるものの Chl *a* の発光はまったく観測されず、Up-hill energy transfer の観測結果が正しいことが証明された。

(4)考察

Up-hill energy transfer は藍色細菌のアンテナ系での報告があるが一般的にはその頻度は低いと考えられ、こうしたエネルギー伝達様式で生育している生物が現存するとは予想されていなかったため、*A. marina* の発見、そこでのエネルギー転移様式は従来の考えを覆す画期的なものとなった。

室温の熱エネルギーは約 200cm^{-1} であり、今回の励起の条件 (300cm^{-1} のエネルギー差) では吸収したエネルギーの約20%が1ステップで転移されることになるが、全体の効率が低いことを勘案すると転移の回数は多くはないと結論できる。これを実現するには、アンテナ間のエネルギー差が小さいことが求められる。今後はこうしたことを実現している機

構の解明に取り組む予定である。

産業界への貢献

「1光子-1電子反応系」の研究の基本的な視点は21世紀のエネルギー問題である。しかし同時にこの研究は、現在の半導体が抱える基本的な問題、「多電子による制御を1電子で制御可能なデバイスに作りかえる」契機ともなるべき問題を扱っている。今後は電気エネルギーの消費を抑えながら、従来よりも効率の高い製品が必要とされる。こうした状況では、この研究は従来の物理学の概念を大きく変える可能性を秘めている。

現存する光合成生物の中で *A. marina* は唯一 Chl *d* を持ち、Up-hill energy transfer でエネルギーを獲得していることが明らかとなった。今後は光合成生物を用いたエネルギー獲得、またその代謝系を利用した廃棄物処理、環境浄化が推進されると考えられる。その意味では *A. marina* のような一見特殊に見える光合成生物をフィールドから単離することを疎かにしてはいけないという教訓をも教えるものである。

研究発表

1) *Mimuro, M., N. Tamai, A. Murakami, M. Watanabe, M. Erata, M. Watanabe, M. Tokutomi and I. Yamazaki (1998)*

Multiple pathways of the excitation energy flow in the photosynthetic pigment system of a cryptophyte, *Cryptomonas* sp. (CR-1). *Phycological Res.*, **46**, 155-164.

2) *Oba, T., H. Furukawa, Z-Y. Wang, T. Nozawa, M. Mimuro, H. Tamiaki and T. Watanabe (1998)*

Supramolecular structure of the chlorophyll a' aggregate, and the origin of diastereoselective separation of chlorophyll a and a'. *J. Phys. Chem. B.*, **102**, 7882-7889.

3) 三室 守、秋本誠志 (1998)

カロテノイドの励起状態ダイナミクス-生体系に

おける役割の決定因子

光化学 29巻 pp.6-13.

4) *M. Mimuro Excited State Dynamics of a Photosynthetic Pigment, Carotenoids, and its Relation to Physiological Functions. (Invited talk) 1998 Asian-Pacific Forum on Science and Technology, "Optical Probing and Creation of Advances Photoreactive Materials". Nov. 1998, Kanazawa (Japan)*

グループメンバー

氏名	所属	職 (学年)
三室 守	理・生物	教授
上園 勝久	理・生物	M1

連絡先

〒753-8512 山口市大字吉田1677-1

山口大学理学部自然情報科学科生物科学大講座

E-mail: mimuro@sci.yamaguchi-u.ac.jp