

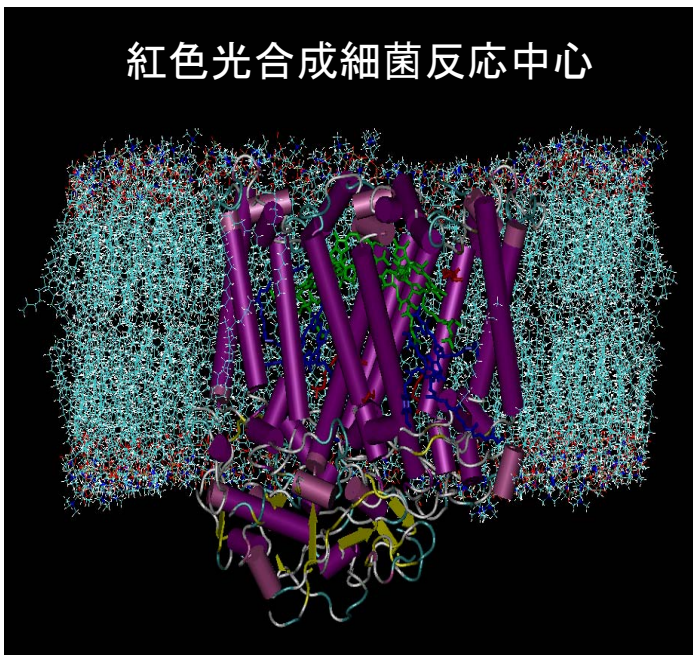
光合成初期過程における周辺蛋白質の“役割”の解明

計算対象：全電子計算による“蛋白質のつくる場”

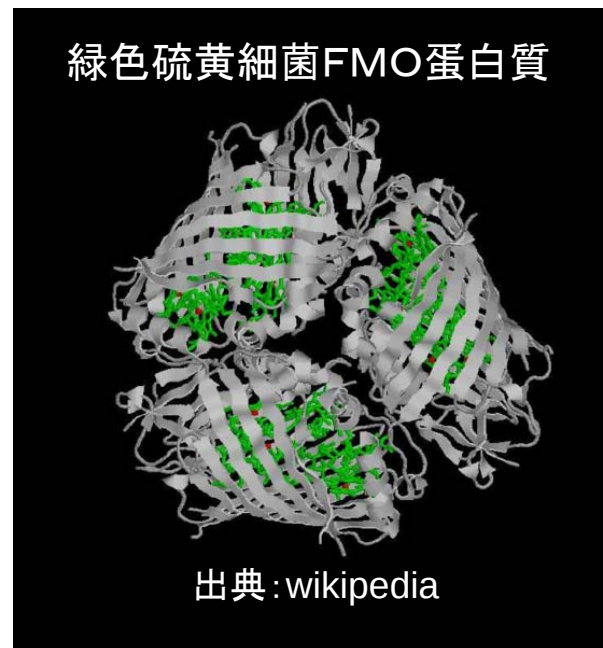
計算手法：Hartree-Fock法、フラグメント分子軌道法、DFT法

原子数：～数万原子

紅色光合成細菌反応中心



綠色硫黄細菌FMO蛋白質



＜光励起による電荷分離・電子伝達＞

＜光エネルギー伝播＞

解くべき謎：両者は、同じ部品（**クロロフィル**、**蛋白質他**）からなっているのに、
電荷分離と**エネルギー伝播**の違いが起こるのは、なぜか？



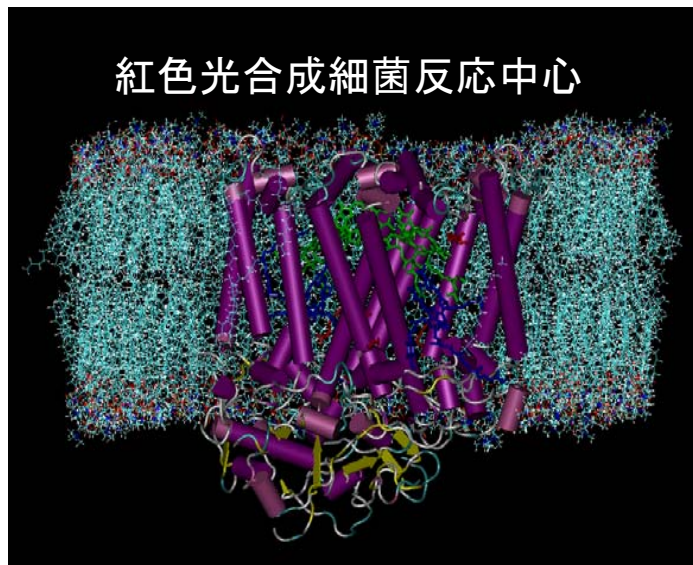
高効率電荷分離デバイス開発の手がかりを期待

光合成における高効率電荷分離メカニズムの解明

計算対象: 色素分子の励起状態

計算手法: QM/MM法、SAC-CI法、TDDFT法、LC-TDDFT法、CIS(D)法、
MRSCI+DFT法、MM法

原子数 : ~2千原子(QM空間)、~10万原子(MM空間)



4クロロフィル+2フィオフィチン系(6色素分子)

解くべき謎: 色素分子間距離が $10 \text{ \AA}$ もあるのに、高速に**電荷分離**が起こるのは、なぜか？



高効率電荷分離デバイス開発の手がかりを期待

参照: JST-CREST“マルチフィジクス・マルチスケール現象の統合シミュレーション”

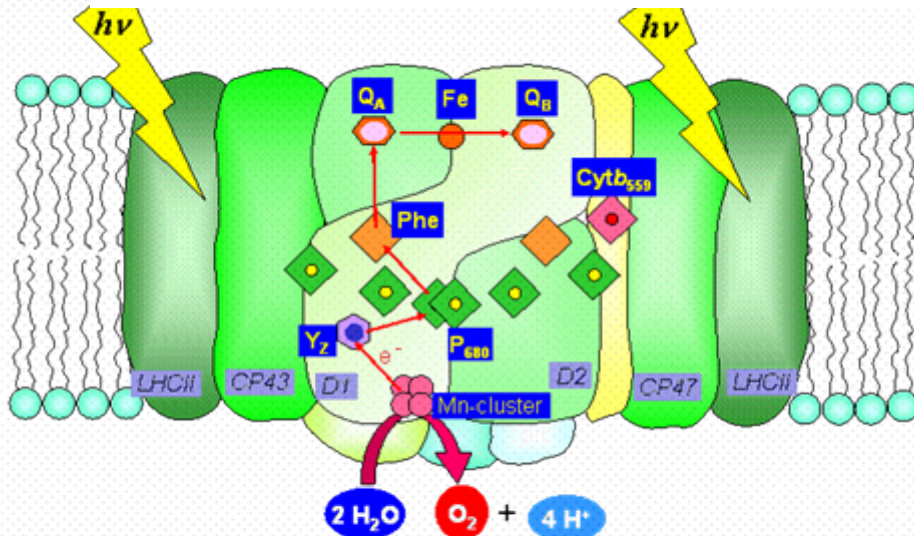
開発課題“QM(MRSCI+DFT)/MM法による生体電子伝達メカニズムの理論的研究”(研究代表: 高田俊和)

植物光合成系Ⅱの構造と酸素発生メカニズムの解明

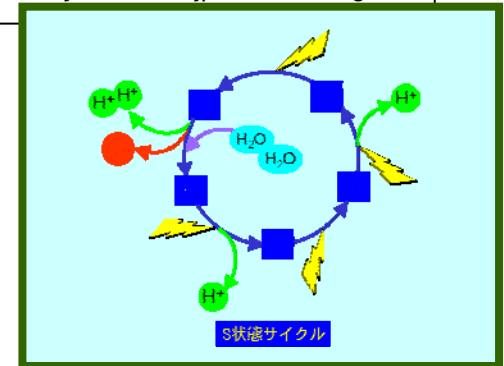
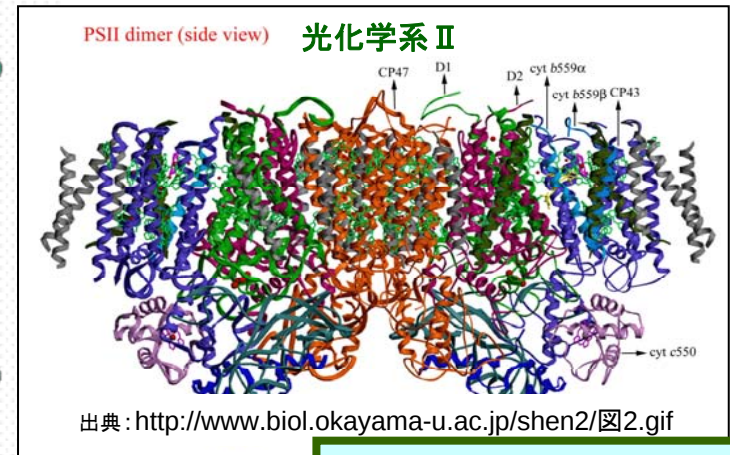
計算対象:Mnクラスター酸素生成触媒反応経路

計算手法:QM/MM法、DFT法、GSO-DFT法、MM法、3D-RISM法

原子数 : ~数百原子(QM空間)、~10万原子(MM空間)



出典: http://www.ims.tsukuba.ac.jp/~noguchi_lab/syn/photosyn.html



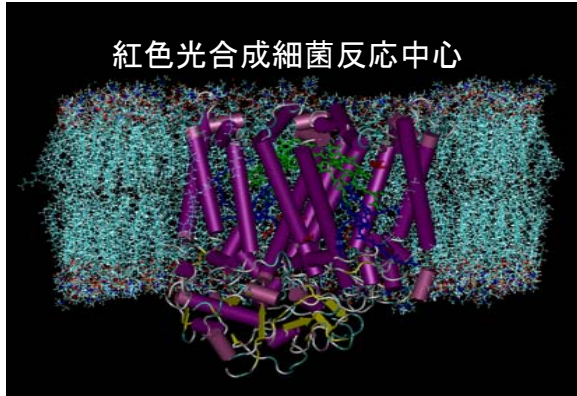
- 解くべき謎: 1) Mnクラスター(4Mn+Ca)の酸素発生メカニズム
2) Mnである所以とCaの存在理由
3) 光触媒酸化チタン(本多・藤嶋効果)との違い



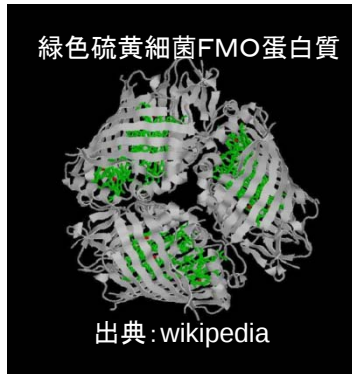
高効率光触媒開発の手がかりを期待

計算1: 高効率電荷分離メカニズムの解明

紅色光合成細菌反応中心



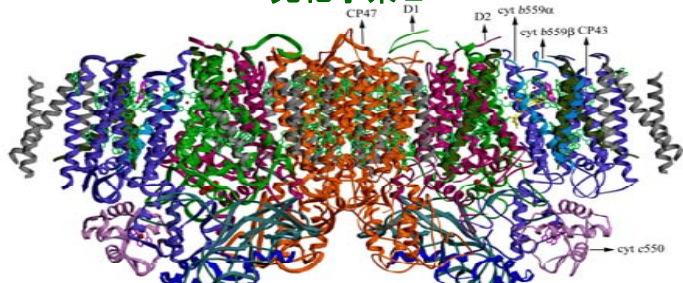
綠色硫黄細菌FMO蛋白質



出典: wikipedia

PSII dimer (side view)

光化学系 II



出典: <http://www.biol.okayama-u.ac.jp/shen2/図2.gif>

1) 蛋白質＋色素分子の全電子計算

目的: 周辺蛋白質の色素分子とMnクラスタの
電子状態への影響を解明

対象: 電荷分離過程、エネルギー伝播過程、
Mnクラスタの触媒機能

2) 色素分子＋蛋白質のQM/MM計算

目的: 蛋白質の影響下での、色素分子の電荷分離と
エネルギー伝播における役割を解明

対象: 電荷分離過程、エネルギー伝播過程

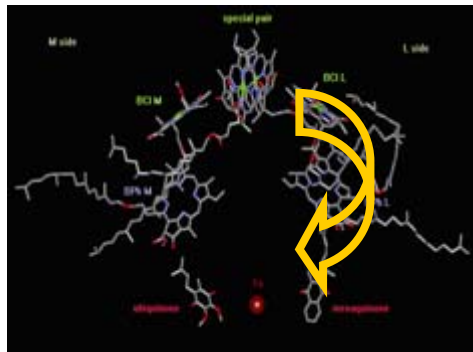
特徴: 複数色素分子を一括計算し、エネルギー準位、波動関数の
正しい相対関係の総合的理解から、メカニズムを解明

従来計算: 計算機の問題から、複数色素分子を分割して
計算(中辻1998、Siegbahn1998)

6色素分子1括CASCI+DFT(予備)計算結果

励起スペクトル(eV)

主たる電子配置



原子数: 約1000

軌道数: 約3300

条件: 真空中

本格計算では、1TFLPOSで、>数千時間を想定

(参考: http://www.multi.jst.go.jp/theme/01_Takada.html)

計算2: Mnクラスタの酸素発生メカニズムの解明

1) MnクラスタのQM/MM計算

目的: Mnクラスタの水分解過程(酸素発生)の
反応メカニズムの解明

対象: Mnクラスタの触媒反応経路

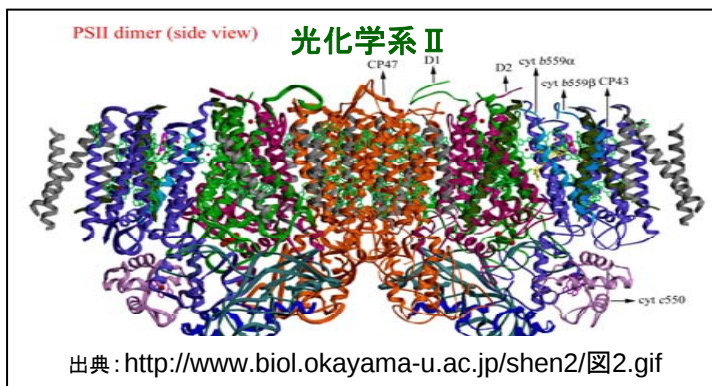
特徴: 光化学系 II の構造未確定のため、実験研究者の協力の下、
構造の特定と水分解反応機構を分子レベルで解明

従来計算: Mnモデルクラスタ(Siegbahn2001他多数)、
光化学系 II の QM(DFT)/MM計算(Batista2008)

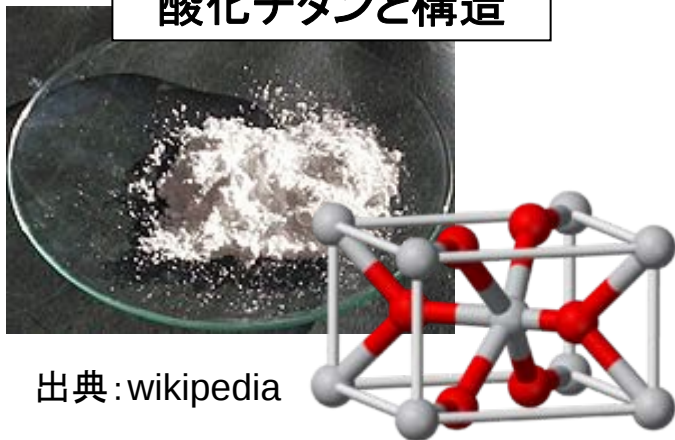
2) 酸化チタンのQM/MM計算

目的: 酸化チタンは酸素と水素を同時に発生
(本多・藤嶋効果)するので、Mnクラスタ
との違いを解明

対象: 酸化チタンの触媒反応経路

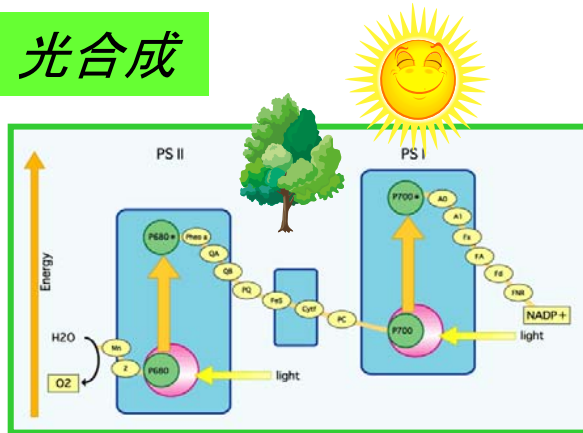


酸化チタンと構造



太陽エネルギー利用のための新動作原理の検討

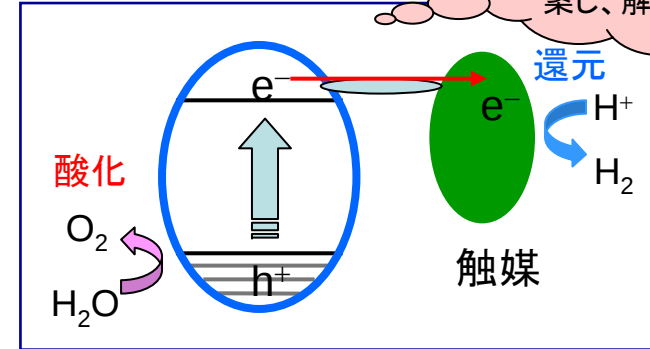
光合成



光合成の動作
原理を模倣

新概念デバイスの
開発

人工光合成



自由な発想で
材料・構造を考
案し、解析評価

光合成系

人工光合成

電子・正孔
対生成

色素分子
クロロフィル



ナノ構造物質
の材料設計

高効率な
電荷分離

蛋白質の
つくる場



ポテンシャル場
の設計

高効率な
光触媒

Mnクラスタ

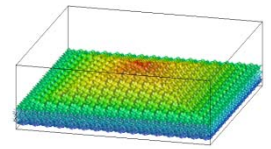


反応場の設計

半導体ナノ構造、
有機・生体材料、
CNT、等の材料設計

自己組織・微細加工
誘電遮蔽、溶媒効果

稀少元素対策



ナノ構造、及びナノ
構造複合体に対す
る大規模DFT計算

課題: 新たに考案した材料・デバイス構造の信憑性を事前に評価



新概念デバイス開発に向けた基礎固め

使用想定マテリアルシミュレーション技術

光合成系は、“高度に組織化された複雑系”のため、
種々のシミュレーション手法の適用が必須であり、下記の
プロジェクトで開発中のプログラムを総合的に活用

計算手法、プログラム名を色別に表す。

1. CRESTマルチスケール・マルチフィジックス現象の統合シミュレーション

SAC／SAC-CI、ONIOM、MRSCI+DFT、UTCHEM

2. グランドチャレンジ:ライフサイエンス(分子スケール)

ハイブリッド量子化学計算(QM/MM)、分子動力学、分子力場法

3. グランドチャレンジ:ナノサイエンス

3D-RISM、動的密度行列繰り込み群法、RS-DFT

4. イノベーション基盤シミュレーションソフトウェアの研究開発

ProteinDF、ABINIT-MP、PHASE



これらのプログラム開発者とその他個別に、今後協力を要請

応用物理学会 エネルギー・環境研究会

◇設立 2006年11月 会員約30名(増加中)

会員の主な所属機関：九大、阪大、名大、東海大、東大、千葉大、福島大、東北大、理研、産総研、物材機構、東芝、日立、富士通、NEC、など

◇エネルギー持続可能社会の将来ビジョン(2040年まで)を策定
太陽光利用への大転換 → 光分解水素製造技術を最重視

◇異分野交流の舞台： 他学会にオープン、化学系の有力研究者も多数参加
応用物理学の関連分野との連携・融合で、人工光合成の研究を加速可能

◇応用物理学会の当分野推進の利点：

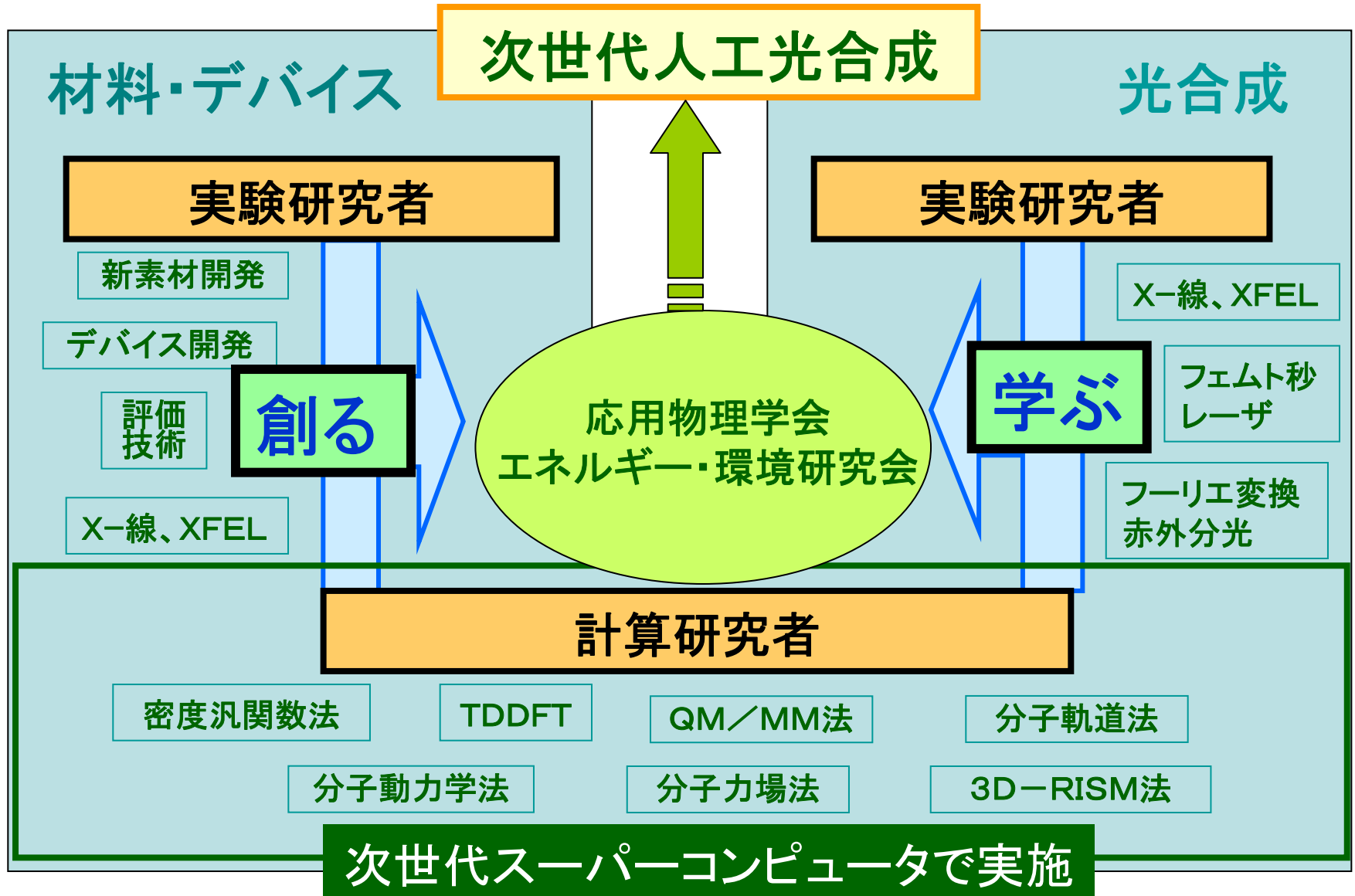
1. 太陽電池や光・半導体デバイスの幅広い研究実績
2. 光量子科学の先端研究基盤を保有(ナノ領域の光反応系など)
3. 他学会との連携活動を積極的に推進
4. 活発な企業参加(会員の約半数は企業所属、産学連携や開発力に強み)

応用物理学会

エネルギー・環境研究会

参照：<http://annex.jsap.or.jp/apee/index.html>

望まれる共同研究開発体制



戦略拠点は、シミュレーション体制の構築・維持と、
実験研究者との連携を含めたプロジェクト全体統括を、エネルギー・環境研究会の協力を得て行う。

達成目標と活動方針

◇ 光合成初期過程のメカニズム解明

光合成実験研究者の協力の下、種々のシミュレーション技術を活用して、

電荷分離過程とMnクラスター酸素発生メカニズムを解明

➡ 太陽エネルギー利用技術構築のための基礎的知見の取得

◇ エネルギー・環境研究会での異分野交流の促進

光合成研究者、材料・デバイス研究者、計算研究者の定期的な交流による、

新概念デバイス(緩やかな反応場)開発に向けた基本アイデアの検討

➡ 光合成の動作原理を模した人工光合成システムの研究

◇ 太陽エネルギー利用のための新動作原理の検討

材料・デバイス実験研究者の協力の下、材料シミュレーション技術を活用して、

新たに考案した材料・デバイス構造の信憑性を事前に評価

➡ 新概念デバイス(緩やかな反応場)開発に向けた基礎固め