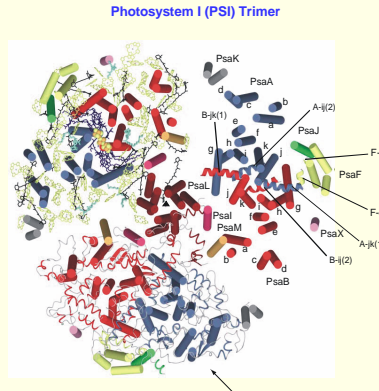
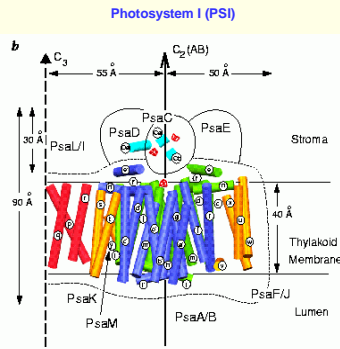


# UP4: Kohärente Exzitonendynamik im Kernantennenkomplex von Photosystem I

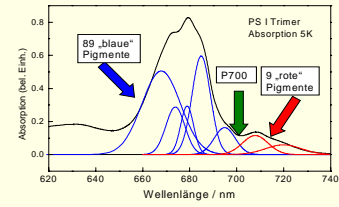
**Strukturelle Information aus Röntgenstruktur von PS I mit 2.5 Å Auflösung**  
(Jordan et al., 2001)

**Eigene Vorarbeiten (Byrdin et al.) :**

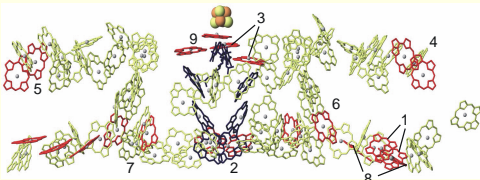
Dynamik der Anregungsenergie und strukturgestützte Modellierung



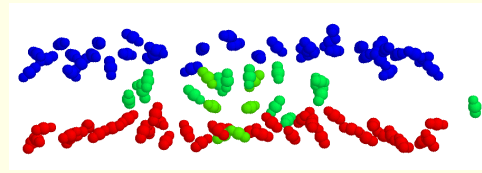
Spektrale Zusammensetzung des PS I Kernantenne-RZ-Komplexes aus der Zerlegung des 5 K Absorptionsspektrums



**Kernantennenkomplex von PS I**



**Kernantennenkomplex von PS I**  
Einteilung in stromale (blau), lumenale (rot) und innere (grün) Chlorophylle



## Die Struktur bei atomarer Auflösung läßt folgendes erkennen:

- zeigt Lage und Richtung der Übergangsdipole der 90 Antennen-Chlorophylle (plus 6 RZ-Chl.);
- läßt auf exzitonische Kopplung  $\bullet$  250 cm<sup>-1</sup> und für ca. die Hälfte der Chl auf  $\approx$  80 cm<sup>-1</sup> schließen;
- zeigt gewisse naheliegende Energietransferwege auf:
  - "Ringbahnen" in den stromalen (s) und lumenalen (l) Chlorophyllen, z. T. verkoppelt über verbindende Brücken der inneren (i) Chlorophylle.
  - Existenz von außen liegenden isolierten Clustern (und Einzel-Chlorophyllen) mit Eignung für zeitlich verlängerte Energiespeicherung.
- Möglichkeit für Energietransfer zum RZ ist damit auf allen Ebenen möglich: aus der (l)-"Ringbahn" auf Höhe von P700, über die "connecting"-Chlorophylle auf Höhe von A<sub>0</sub> und von der (s)-"Ringbahn" über die verbindenden Brücken.
- Diese Ergebnisse geben konkrete Vorstellungen für räumlich und spektral getrennte Antennenbereiche und damit für die Möglichkeit selektiver Anregungs- und Energieverteilungsprozesse.

## Vorhaben:

**Untersuchung der Dynamik der Anregungsenergie im PSI-Kernantennen-RZ-Komplex durch fs-zeitaufgelöste pump/probe-Spektroskopie durch Selektion der Pulsparameter.**

**Schrittweise experimentelle Charakterisierung und begleitend theoretische Modellierung (May/Zimmermann)**

Information zur Anregungsenergie-dynamik über den Einsatz extrem kurzer Pulse bei Variation bestimmter Pulsparameter:

- Variation von Anregungsintensität ("offene" vs. "geschlossene" RZ, Mehrfachanregung)
- Variation von Anregungswellenlänge (spezielle Rolle der "roten" Antennen, > 700 nm)
- Einsatz von zeitlich und spektral geformten Pulsen; dies erfordert die Implementierung geeigneter Pulsanalyse ("SPIDER") und Pulsformung (Schwentner/Dietrich)
- Möglichkeit zur Steuerung der Energietransferwege durch geformte Pulse

(A) quantitative Festlegung des (Multi) Exziton-Modells:

- räumliche Lage und Site-Energien der Chl sowie Orientierung ihrer Übergangsdipolmomente aus Strukturdaten
- Energetische Lage der 1- und 2-Exziton-Mannigfaltigkeit
- Charakterisierung der Exziton-Schwingungskopplung und Protein-Spektralrichtungen
- Einfluss von statischer Unordnung (Berücksichtigung von Konformationssubzuständen des Trägerproteins)

(B) korrekte Beschreibung der Dynamik auf einer 50 fs-Zeitskala

- exzitonische Wellenpakete
- Exziton-Relaxation (und Lokalisierung)
- Übergang vom kohärenten zum inkohärenten Exziton-Transfer
- Exziton-Annihilation

Konkrete theoretische Modellierung gemäß (A) und (B) soll zur Beschreibung von optischen Experimenten in der Zeit- und Frequenzdomäne eingesetzt werden.

Vom konkreten Modell ausgehend werden Vorschläge zur Laserpulssteuerung des Anregungsenergie-transfers erarbeitet.