

倉持 光 (准教授) (2020年4月1日着任)

米田 勇祐 (助教)

伊藤 敦子 (事務支援員)

神谷 美穂 (事務支援員)

A-1) 専門領域：物理化学, 超高速分光, 非線形分光, 超短パルス発生

A-2) 研究課題：

- a) 先端的超高速分光による凝縮相複雑分子の機能・構造・ダイナミクスの研究
- b) 極限時間分解分光計測のための先端光源開発

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 室温・溶液中において分子はさまざまな時間スケールで起こる揺らぎの影響下にあり、分子の状態は時々刻々と変化する。こうした揺動する分子一つ一つの個性を反映した、一つの分子本来の反応性を明らかにし、その多様性の起源を解明することは複雑分子系の化学反応の機構を最も基礎的なレベルで理解するために必須である。われわれは単一分子検出感度を有する新しい超高速分光法を開発し、分子一つ一つの個性を反映した反応ダイナミクスとその変遷（揺らぎ）を直接観測することを目指している。特に本年は、新たに導入した高繰り返し高出力ファイバーレーザー増幅器に基づいて、その出力を波長変換し励起光として用いる自作の共焦点蛍光顕微鏡を構築した。蛍光光子相関解析を用いることで視野内に1分子以下の条件であることを確認し、蛍光検出に基づく単一分子検出感度での時間分解分光計測に成功した。平行して開発を進めている高繰り返しサブ10 fs パルス光源を用いることで、極限的な時間分解能により室温・溶液中における単一分子レベルの超高速分光計測を行う技術的基盤が整いつつある。
- b) 顕微時間分解分光は光機能性物質・材料の時空間ダイナミクスや、単一分子の反応ダイナミクスを調べる上で強力な手法である。これらの測定においては、高い信号雑音比を得るために高い繰り返し周波数を持つパルスレーザー光源を用いることが重要となるが、これまで高い繰り返し周波数で波長可変な極短パルス光を発生させることは困難であった。そこで、われわれは顕微鏡下で単一分子検出感度を有する超高速分光を実現するための、高繰り返し波長可変極短パルス光源の開発に取り組んだ。MHz周波数で発振するYbファイバーレーザー増幅器をベースとして、非線形光学過程を用いた波長変換を行い、さらに自作のパルス整形器を用い分散補償を行うことで、可視光領域全域で波長可変なサブ10 fs パルス光を得た。実際にこの広帯域パルス光を自作の顕微鏡に導入し、単一分子検出感度での顕微分光に成功した。本光源を用いることで、極限的な時間分解能による単一分子レベルでの超高速分光を今後展開する。

B-1) 学術論文

M. IWAMURA, R. URAYAMA, A. FUKUI, K. NOZAKI, L. LIU, H. KURAMOCHI, S. TAKEUCHI and T. TAHARA,
“Spectroscopic Mapping of the Gold Complex Oligomers (Dimer, Trimer, Tetramer, and Pentamer) by Excited-State Coherent Nuclear Wavepacket Motion in Aqueous Solutions,” *Phys. Chem. Chem. Phys.* **25**, 966–974 (2023). DOI: 10.1039/D2CP04823J

P. KUMAR, H. KURAMOCHI, S. TAKEUCHI and T. TAHARA, “Photoexcited Plasmon-Driven Ultrafast Dynamics of the Adsorbate Probed by Femtosecond Time-Resolved Surface-Enhanced Time-Domain Raman Spectroscopy,” *J. Phys. Chem. Lett.* **14**, 2845–2853 (2023). DOI: 10.1021/acs.jpcclett.2c03813

Y. YONEDA, E. A. ARSENAULT, S. JR YANG, K. ORCUTT, M. IWAI and G. R. FLEMING, “The Initial Charge Separation Step in Oxygenic Photosynthesis,” *Nat. Commun.* **13(1)**, 2275 (2022). DOI: 10.1038/s41467-022-29983-1

B-3) 総説, 著書

倉持 光, 田原太平, 「フェムト秒時間分解時間領域ラマン分光で観る光化学反応の超高速構造ダイナミクス」, *光化学*, **53(3)**, 132–137 (2022).

B-4) 招待講演

米田勇祐, 「先端的分光解析で解さほぐす光化学系IIの複雑な励起状態ダイナミクス」, 第29回「光合成セミナー2022」, オンライン開催, 2022年6月.

米田勇祐, **E. A. ARSENAULT, S. JR YANG, K. ORCUTT, M. IWAI and G. R. FLEMING**, 「励起子電荷分離混成が酸素発生型光合成を駆動する」, 第60回日本生物物理学会年会, 函館, 2022年9月.

H. KURAMOCHI, “Mapping Multi-Dimensional Excited-State Dynamics Using Nonlinear Electronic and Vibrational Spectroscopy,” JPCL summit, Tokyo (Japan), September 2022.

B-6) 受賞, 表彰

米田勇祐, 日本生物物理学会若手奨励賞 (2022).

B-7) 学会および社会的活動

学会の組織委員等

第8回アジア分光国際会議 (8th Asian Spectroscopy Conference, ASC2022) 運営委員 (2020–2023).

理科教育活動

「科学三昧 in あいち 2022」ポスター指導 (2022). (米田勇祐)

その他

分子科学若手の会夏の学校講師 (2022).

B-8) 大学等での講義, 客員

理化学研究所, 客員研究員, 2022年5月–2024年4月.

総合研究大学院大学物理科学研究科, 「構造物性科学」, 2022年11月–2022年12月.

B-10) 競争的資金

科研費挑戦的研究(開拓), 「揺らぐ単一光応答性タンパク質の超高速分光」, 倉持 光 (2021年度–2023年度).

科研費基盤研究(B), 「先端的コヒーレント振動分光による反応性ポテンシャルエネルギー曲面形状の実験的探究」, 倉持 光 (2021年度–2023年度).

科学技術振興機構創発的研究支援事業(受託研究),「室温・溶液中における単一分子の極限時間分解分光」, 倉持光 (2021年度-2023年度).

科研費若手研究,「蛍光検出振動分光によるタンパク質発色団構造揺らぎダイナミクスの解明」, 米田勇祐 (2022年度-2023年度).

科研費研究活動スタート支援,「過渡2次元赤外分光による光合成励起・電子移動経路マッピング」, 米田勇祐 (2021年度-2022年度).

C) 研究活動の課題と展望

われわれはバルク溶液・固体に対する(アンサンブル平均を観る)先端的な超高速分光と,新たに開発を進めている室温・溶液中における単一分子レベルでの超高速分光を相補的に用いることで,凝縮相複雑分子系の反応ダイナミクスの研究に新たな途を拓くことを目指している。バルク溶液・固体系の超高速分光に関しては,世界最高性能を有する分光装置と光源を構築・整備した。これら装置を用いることで,所内外の共同研究者と連携しながら,多様な機能性複雑分子の超高速電子・構造ダイナミクスの解明に現在取り組んでいる。単一分子レベルの超高速分光に関しても,顕微分光装置・光源開発が順調に進んでいる。今後光受容タンパク質の時間分解分光計測へと展開し,光-エネルギー変換を決定づける超高速過程と,マイクロ秒~ミリ秒スケールで起こる構造揺らぎの相関を紐解く。