

6. 研究活動の現状

分子科学研究所は、現在、理論・計算分子科学、光分子科学、物質分子科学、生命・錯体分子科学の四つの研究領域とそれらを繋ぐ協奏分子システム研究センターおよび、メゾスコピック計測研究センターで研究基盤を構築している。協奏分子システム研究センターでは、多重の階層を越えて機能する分子システムを構築することを目的とした研究を展開している。メゾスコピック計測研究センターでは、広い時空間領域で階層間のエネルギー・情報の変換を可視化する新しい計測手法の開発を目指している。このように、分子機能の開発、そして機能を計測する研究を組み合わせることで、分子科学研究所の特徴を活かしつつ、新しい分子科学研究領域の開拓を目指している。また、自然科学研究機構直属の組織「生命創成探究センター」は、岡崎3研究所（基礎生物学研究所、生理学研究所そして分子科学研究所）の研究力を統合した活動を展開している。さらに、極端紫外光研究施設（UVSOR）を始めとする研究施設を擁し、分子の構造と反応と機能についての先鋭的な基礎研究を進め分子の新たな可能性を探っている。

「特別研究部門」では、分子科学分野を世界的に牽引することが期待される卓越教授による研究、分子研の共同利用の施設や設備の高度な利用を進める研究者や、各研究領域の研究を発展的に展開する研究者のクロスアポイントメントによる招へいを開始した。「社会連携研究部門」では、産学官の連携研究の推進を目指している。ここでは、コンソーシアムを作り所外からのニーズを反映するオープンイノベーションの拠点として研究室を運営している。「小型集積レーザーコンソーシアム」は、平等拓範特任教授をリーダーとして、民間企業を中心に41機関の会員とともに研究を推進している。

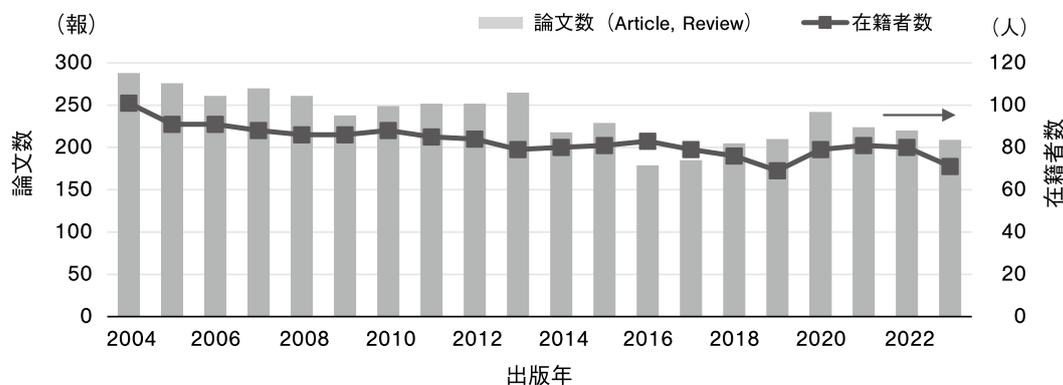
6-1 論文発表状況

分子研では毎年多くの学術論文を発表している。近年は民間の論文データベースが充実してきているため、これを用いたIRを研究力強化戦略室で行っている。ここでは出版論文数^{*1}の年次推移と在籍者数の推移を示すが、両者は概ね比例関係にあり、所属研究者の活動状況が維持されていることが確認できる。

出版年	Article	Review	在籍者数 ^{*2}
2004	285	3	101
2005	269	7	91
2006	254	7	91
2007	264	6	88
2008	252	9	86
2009	233	5	86
2010	242	7	88
2011	242	10	85
2012	243	9	84
2013	259	6	79
2014	204	14	80
2015	219	10	81
2016	172	7	83
2017	178	7	79
2018	190	15	76
2019	199	11	69
2020	226	16	79
2021	211	13	81
2022	201	19	80
2023	207	2	71

* 1 Scopus 調べ (2024 年 3 月 21 日現在)。

* 2 教授、准教授・助教授、主任研究員、助教・助手の総計。教授、准教授は、卓越・特任・クロスアポイントメント・客員教員を含む。



論文数と在籍者数の推移

6-2 メゾスコピック計測研究センター

メゾスコピック計測研究センター（以後「本センター」）は、旧分子制御レーザー開発研究センター（1997年4月設立）からの改組により、2017年4月に設立された。分子科学研究所の研究対象は、広い意味での分子物質であることは設立当初から変わらないが、当初は一つ一つの分子の挙動に重点をおいて注目されていたのが、最近では様々な分子やナノ構造体などがシステムを作って発現する機能・特性の解明と制御、及び新しい機能を持つシステムの構築に重点がシフトしてきている。それによって、分子の物質・エネルギー・情報変換能力を精緻に引き出すことが初めて可能になると考えられる。そのような新しい研究の方向性に対応する一つの方策として、分子科学研究所では2013年4月に協奏分子システム研究センターが設立されたところである。

分子計測の先端的手法では、時間、空間、波長、パワーなどにおいて極限に向かう方向が精力的に推し進められ、大きな成果を上げてきた。そうした手法では、理想化された極限条件下で系に大きなエネルギーの擾乱を与えて素過程の挙動を解析する方法が一般的であった。現在もその方式の重要性に変わりはないが、このような従来型計測法の可能性と限界も少しずつ明らかになってきている。本センターでは、従来の手法とは一線を画した、繊細・広帯域・多次元の計測解析手法で分子システムの挙動・機能のありのままの姿に迫り、また低摂動・超精密制御で新たな量子機能を創出する、革新的実験法の開発が必要という立場をとる。新たな分子能力の創発の現場を、マクロ階層の強靱でロバストな性質と、ミクロ階層の機能に富む特性が絡んだメゾスコピック領域に求め、分子の機能や反応の契機となる過程を明らかにするために、広い時空間領域で階層間のエネルギー・情報の変換を可視化する新発想の計測開発手法を開発する。（ここでいうマクロ、ミクロ、メゾスコピックは、相対的な階層であり、扱う系によって実際のスケールは異なる。また空間だけではなく、時間領域についてもメゾスコピック領域が考えられる。）これらを通じて、分子の素過程が系全体の大域的な機能を生む機構を解明する研究などに主眼を置いて推進する。この目的のために、旧分子制御レーザー開発研究センターの研究業績・資産を引き継ぎながらも、分子科学研究所の基盤となる四つの領域から関連する研究を遂行する研究者の参画を得て、それらをまたぐ領域横断的なセンターとして設置することとした。これにより、同様な組織構成を取った協奏分子システム研究センターとともに、分子物質のシステムとしての挙動・機能を研究する両輪として研究活動を展開することが可能となった。

このような新しい分子計測制御法を開発・利用していくためのセンターとして、2017年4月の発足時に以下の3部門と担当教員を置くこととした。

(1) 物質量子計測研究部門：大森賢治（教授，光分子科学研究領域からの併任），信定克幸（准教授，理論・計算分子科学研究領域からの併任）

(2) 繊細計測研究部門：岡本裕巳（教授・センター長，専任），平等拓範（准教授，専任）

(3) 広帯域相関計測解析研究部門：飯野亮太（教授，生命・錯体分子科学研究領域からの併任），藤 貴夫（准教授，専任）

専任研究グループに所属する助教等のスタッフも本センターの各研究部門に所属する。また、旧分子制御レーザー開発研究センターに所属した技術職員も、引き続き本センターに所属させる。今後分子科学研究所に採用される教授・准教授も、状況に応じて上記のいずれかの部門の専任または併任ポストを占めることが想定されている。それぞれの部門の任務は、(1) 蓄積のある光観測・制御法を先鋭化し、更に量子系の構造変形を操作することによって、新しい量子相を作り出して制御し、量子情報処理など新規な分子の能力を引き出す；(2) 時空間を分解した計測法，増強光場を利用した超高感度・並列計測等による低摂動で繊細な分子計測法等を開発し，分子のありのままの姿を非破壊的に観測する；(3) 多変数スペクトロスコピー・多次元解析手法，高分解能広帯域計測法とその解析法を開発して分子の能力とそれを司る物理過程を明らかにし，従来とは質の異なる情報を獲得する革新的手法を開拓する；等を目指している。なお，信定准教授は2018年1月に残念ながら逝去された。平等准教授は2018年10月に理化学研究所（放射光科学研究センター）に，また藤准教授は2019年

4月に豊田工業大学に、それぞれ転出した。これらの研究領域の扱いについては今後の検討となる。一方、2018年5月には杉本敏樹准教授（物質量子計測研究部門）が物質分子科学研究領域からの、また2019年11月には江原正博教授（繊細計測研究部門）と南谷英美准教授（物質量子計測研究部門）が理論・計算分子科学研究領域からの併任として就任した。南谷准教授は2022年9月に大阪大学に転出した。2021年4月からは、熊谷 崇准教授が広帯域相関計測解析研究部門に専任で就任した。

以上のような方針で分子システムの計測解析に関する研究を遂行すること、及びそれを通じて我が国の関連研究コミュニティにおける人材育成に寄与することが本センターの主なミッションであるが、同時にここで開発された新しいメゾスコピック計測手法を共同研究に供することも重要な機能の一つである。各研究グループの協力研究やその他のチャネルの共同研究を通じてそれを実施するほか、適宜醸成された計測手法・技術に関するセミナー等を開催する。また、さらに新たな革新的計測手法の開拓を念頭に置いた、萌芽的研究テーマとアイデアの発掘、可能性及び将来構想を議論する研究会等の開催も行っている。旧分子制御レーザー開発研究センターでは、分子科学研究所と理化学研究所の連携融合事業「エクストリーム・フォトンクス」を推進する母体となり、その主な研究活動終了後も、合同シンポジウム等の活動を自主的に継続してきたが、本センターはこの活動の継続のための推進母体ともなることが想定されている。なお、旧分子制御レーザー開発研究センターは、発足当初、種々の共用機器を保有して施設利用に供していたが、現在ではそれらの機器とその利用は全て機器センターに移っており、それを受けて本センターでは施設利用は想定していない。

織細計測研究部門

岡本 裕 巳 (教授) (2000年11月1日着任)

山西 絢介 (特任助教)

AHN, Hyo-Yong (特任助教 (新分野創成センター))

CHENG, An-Chieh (特任助教)

成島 哲也 (特別訪問研究員)

石川 晶子 (技術支援員)

伊藤 敦子 (事務支援員)

A-1) 専門領域：ナノ光物理化学

A-2) 研究課題：

- a) キラルナノ・マイクロ物質における局所的なキラル光学効果とその応用
- b) 光によるナノ物質の力学操作手法の開発

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 光学活性分光手法と顕微イメージングを組み合わせた新手法を開発し、それらを用いたナノ・マイクロ物質の局所光学活性に関する基礎研究、及び応用研究を推進している。ナノレベルの空間分解能での測定が可能な近接場光学顕微鏡による光学活性イメージングでは、主にキラルな構造を持つ金ナノ構造体を対象とし、局所的な円二色性信号が巨視的な円二色性信号に比べて極めて大きくなること、高い対称性を持つアキラルな金属ナノ構造においても局所的には強い光学活性を示すこと、局所的な誘起双極子が局所的な円偏光場の起源になること等、幾つかの基礎的に重要な結果を得た。その成果を基礎として、蛍光分子とキラルな金属ナノ構造の組み合わせにより、高い円偏光度を示す蛍光が得られ、その起源をプラズモンモードとの関連において明らかにした。通常の遠方場の顕微鏡においても光学活性によるイメージングは国際的にも未開拓であるが、我々は高い精度・確度で顕微光学活性イメージングを可能とする実験手法を開発し、微結晶試料、生体組織等への応用を、共同研究を通じて推進している。キラルな構造を持つ金属有機構造体 (MOF) 微結晶の掌性同定に成功しており、多数の微結晶の掌性同定に有効であることを示した。液晶分子集合体をテンプレートとした螺旋状金微粒子集合体では、螺旋の掌性による円二色性信号の差を検出することに成功した。所内の共同研究で、有機スピントロニクス物質のキラル結晶の掌性同定にも有効に活用された。この他に主として所外の研究者と共同で、様々なキラルナノ物質の観察・同定に用いる研究を推進し、また円二色性イメージングの医療応用を想定した基礎研究も、医科学分野の研究者と共同で開始している。更に感度や測定速度を向上させる試み、波長範囲を拡張する試み等を推進している。また、それらの基盤的情報に基づき、円偏光によるキラル構造物質の創出に関する研究展開も進めている。
- b) レーザー光を強く集光すると、その焦点に微粒子がトラップされる (光トラッピング)。非線形効果、共鳴効果、偏光を有効利用することで、このような光による力学的マニピュレーションの自由度が格段に広がることが予想される。この研究展開を図ることを、現在の研究活動の今一つの柱としている。キラルな物質においては、左右円偏光に対する力学的な作用が異なることが期待され、我々はキラル金ナノ微粒子の円偏光による光トラッピングを行いその挙動を調べた。その結果、光トラッピングに関する従来知られている機構では説明困難な部分が見いだされ、理論的

に解釈した。これにより、キラル物質の光マニピュレーションの基礎となる知見を得た。また現在、このような光の力学作用を利用した、原子間力顕微鏡の原理に基づく顕微イメージング法（光誘起力顕微鏡）でナノ構造上のキラルな光場を可視化する手法の開発も行っている。

B-1) 学術論文

K. ENDO, S. HASHIYADA, T. NARUSHIMA, Y. TOGAWA and H. OKAMOTO, “Circular Dichroism of Pseudo-Two-Dimensional Metal Nanostructures: Rotational Symmetry and Reciprocity,” *J. Chem. Phys.* **159(23)**, 234706 (2023). DOI: 10.1063/5.0178943

J. YAMANISHI, H.-Y. AHN and H. OKAMOTO, “Nanoscopic Observation of Chiro-Optical Force,” *Nano Lett.* **23(20)**, 9347–9352 (2023). DOI: 10.1021/acs.nanolett.3c02534

B-2) 国際会議のプロシーディングス

J. YAMANISHI, H.-Y. AHN and H. OKAMOTO, “Nanoscopic Visualization of Chiro-Optical Field in Photoinduced Force Microscopy,” *Proc. SPIE* **12606**, 126060P (2023). DOI: 10.1117/12.3008343

B-4) 招待講演

H.-Y. AHN, “Chiroplasmonic nanoparticle for strong chiral light emission,” 物質・デバイス領域共同研究セミナー, 札幌, 2023年11月.

岡本裕巳, 「キラルな光-物質相互作用によるイメージング計測, 物理的・化学的効果」, 第84回応用物理学会秋季学術講演会, 熊本, 2023年9月.

岡本裕巳, 「局所的なキラル光学効果を観測する顕微イメージング」, 第24回プラズモニク化学シンポジウム, 東京, 2023年6月.

H. OKAMOTO, “Chiro-Optical Effects of Nano-/Micro-Materials: Microscopic Imaging and Chiral Light-Matter Interaction,” 19th International Conference on Chiroptical Spectroscopy (CD2023), Hiroshima (Japan), September 2023.

H. OKAMOTO, S. HASHIYADA and T. NARUSHIMA, “Chiro-Optical Microscopic Imaging of Nano-/Micro-Materials,” International Conference on Materials Science, Engineering and Technology, Singapore 2023, Singapore (Singapore), September 2023.

H. OKAMOTO, “Chiro-optical effects of plasmonic materials: Microscopic imaging and chiral near-field interaction with molecules,” The 31st International Conference on Photochemistry (ICP2023), Sapporo (Japan), July 2023.

H. OKAMOTO, J. YAMANISHI and H.-Y. AHN, “Chiro-optical gradient forces in chiral nanomaterials,” 13th International Conference on Metamaterials, Photonic Crystals and Plasmonics (META2023), Paris (France), July 2023.

H. OKAMOTO, “Imaging with Local Chiro-Optical Effects and Chiral Light-Matter Interaction,” Department Seminar, Department of Materials Science and Engineering, Seoul National University, Seoul (Korea), July 2023.

J. YAMANISHI, T. TORIMOTO, H. ISHIHARA, H. OKAMOTO and Y. SUGAWARA, “Nanospectroscopy of Optical Force,” The 14th Asia-Pacific Conference on Near-Field Optics (APNFO14), Busan (Korea), June 2023.

H. OKAMOTO, “Imaging with Local Chiro-Optical Effects and Chiral Light-Matter Interaction,” Open Seminar, The University of Glasgow, Glasgow (U. K.), June 2023.

H. OKAMOTO, "Chiro-optical microscopic imaging of plasmonic materials and chiral near-field interaction with molecules,"
9th International Conference on Antennas and Electromagnetic Systems (AES2023), Torremolinos (Spain), June 2023.

B-5) 特許出願

特願 2022-120944, 「光誘起力測定装置, 光誘起力顕微鏡及び光誘起量測定方法」, 山西 絢介, 岡本 裕巳 (自然科学研究機構), 2022 年.

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

プラズモニク化学研究会副会長 (2020-).

学会の組織委員等

The 31st International Conference on Photochemistry (ICP2023), National scientific committee member (2022-).

14th International Conference on Metamaterials, Photonic Crystals and Plasmonics (META2024), Organizing Committee (2023-).

34th International Symposium on Chirality, Local Organizing Committee (2024-).

文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

日本学術会議会員 (2020-2026), 化学委員会幹事 (2020-2023), 化学委員会物理化学・生物物理化学分科会委員長 (2020-2023), 化学委員会分析化学分科会世話人 (2020-2023), 化学委員会委員長 (2023-2026).

東京大学アト秒レーザー科学研究機構 連携協議会委員 (2023-2024).

B-8) 大学等での講義, 客員

早稲田大学理工学術院, 客員教授, 「先端ナノ光物理化学特論」, 2023 年 9 月-2024 年 3 月.

早稲田大学理工学術院, オムニバス講義のコマ担当, 「理工文化論」, 2023 年 4 月-.

B-10) 競争的資金

科研費基盤研究(A), 「高精度円偏光二色性イメージングによるキラリティ時空間構造の可視化」, 岡本裕巳 (2021 年度-2024 年度).

科研費学術変革領域研究(A), 「超螺旋光とナノレベル物質のキララな動的相互作用」, 岡本裕巳 (2022 年度-2026 年度).

科研費基盤研究(B), 「シングル nm スケールでの物質の円偏光応答の解明」, 山西絢介 (2022 年度-2025 年度).

科研費学術変革領域研究(A) (総括班), 「光の螺旋性が拓くキララ物質科学の変革」 (代表: 尾松 孝茂), 岡本裕巳 (研究分担者) (2022 年度-2026 年度).

C) 研究活動の課題と展望

着任以来, ナノ構造物質の観察と, 特徴的な光学的性質, 励起状態の超高速ダイナミクス等を探るための, 近接場分光イメージング装置を開発し, 試料の測定を行ってきた。その中で近接場光学活性イメージング法を開発して金属ナノ構造の局所光学活性, キララな光場の空間構造の解析に用い, そこからグループの主要な研究内容をキララ物質の局所光学活性のイメージングにシフトした。金属ナノ構造の近接場光学活性イメージングによって, 独自の実

験的情報を得ることができ、プラズモン由来の強くねじれた局所光場の存在、また対称性の高いアキラルな構造でも局所的に強い光学活性を示すという、ユニークな成果も得られた。これらの研究から得られたプラズモンのキラリティに関する性質を基礎として、キラルプラズモンが分子の特性に及ぼす効果に関する研究にも展開し、高い円偏光度を示す発光物質系を見出しその起源を解明するなど、成果が得られるようになってきた。通常の(遠方場)顕微鏡で精度の高い円二色性イメージングを可能とする装置開発も行い、これは物質開発、生物科学、結晶学等の様々な分野の研究者から興味を持って頂いている。これらの近接場及び遠方場円二色性イメージングは、今後様々なナノ構造光学活性物質の機能解明のための有力な実験手法になることを期待しており、国内外との共同研究を数件行っている。円二色性顕微鏡を更に汎用性の高い装置とする開発を継続し、企業との協力も視野に入れている。また物質および光のキラリティは磁性との相関においても興味を持たれ、ナノ光学の観点からこの方向への研究展開について実際の共同研究も行っている。更に、円二色性イメージングの医療応用に関する共同研究も開始している。微粒子の光による力学的マニピュレーションについても、キラル微粒子の光トラッピングに関する新たな成果が得られ、その展開も進めたい。これらを総合した新たな方向への展開として、キラルな光-物質相互作用による、物質キラリティの創出の試みを進める科研費学術変革領域研究(A)が今般採択され、これに貢献していきたい。

広帯域相関計測解析研究部門

熊谷 崇 (准教授) (2021年4月1日着任)

西田 純 (助教)

WANG, Yu (特任研究員)

伊藤 敦子 (事務支援員)

A-1) 専門領域：物理化学，走査プローブ顕微鏡，近接場分光

A-2) 研究課題：探針増強顕微分光の先端計測を基軸としたナノ科学の研究

- a) 超高真空・低温探針増強顕微分光を応用したプラズモニクナノ接合における光と物質の相互作用についての研究
- b) 超短パルスレーザーを用いた探針増強顕微分光に基づく時空間極限における顕微分光の開発と超高速非平衡ダイナミクスについての研究
- c) 超高速・超広帯域探針増強顕微分光に基づく多次元・多変量ナノ顕微分光の開発と低次元ナノ物質への応用についての研究

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) プラズモニクナノ接合では，局在表面プラズモン共鳴の励起を介して強く局在化した光電場（プラズモン増強場）を発生させることができる。この強く局在化した光電場の性質と，それによって引き起こされる光物理・光化学現象について超高真空・低温探針増強顕微分光によって調べている。最近の重要な成果として，金属単結晶表面に吸着した単一原子のラマン散乱の計測を行い，原子スケールにまで閉じ込められた光電場の存在を証明し，原子スケールの光と物質の相互作用について新しい知見を与える研究を報告している [ACS Nano 17, 10172 (2023)]。
- b) 超高真空・低温走査トンネル顕微鏡のプラズモニクナノ接合に発生する強く局在化した光電場を操る技術と，超短パルスレーザーとを組み合わせるアプローチによって時空間極限におけるナノ顕微分光の開発を行っている。具体的には，科研費・帰国発展研究に採択された研究課題として，低次元物質におけるフォノンダイナミクスを原子スケールで直接観測する研究に取り組んでいる。最近の重要な成果として，金属単結晶表面上にエピタキシャル成長させた酸化亜鉛超薄膜においてコヒーレントフォノンをナノスケールで直接観測することに成功している [Science Advances 8, eabq5682 (2022)]。
- c) 原子間力顕微鏡に基づく非開口型近接場光顕微分光と，超高速・超広帯域パルスレーザーとを組み合わせた多次元・多変量ナノ顕微分光の開発を行っている。この新しい先端計測技術によって，次世代の機能性材料やデバイスの基盤となるナノ物質科学の分野へと展開していくことを目指している。これは分子科学研究所への着任に伴い新しく開始した研究課題であり，JST 創発的研究支援事業に採択されている内容である。最近の成果として，強相関物質である二酸化バナジウムのナノ粒子を計測し，その特徴的な絶縁体-金属相転移の微視的機構を解明した研究を報告している [J. Phys. Chem. C 127, 16485 (2023)]。

B-1) 学術論文

J. NISHIDA, A. OTOMO, T. KOITAYA, A. SHIOTARI, T. MINATO, R. IINO and T. KUMAGAI, “Sub-Tip-Radius Near-Field Interactions in Nano-FTIR Vibrational Spectroscopy on Single Proteins,” *Nano Lett.* **24(3)**, 836–843 (2024). DOI: 10.1021/acs.nanolett.3c03479

C. LIN, F. KRECINIC, H. YOSHINO, A. HAMMUD, A. PAN, M. WOLF, M. MÜLLER and T. KUMAGAI, “Continuous-Wave Multiphoton-Induced Electron Transfer in Tunnel Junctions Driven by Intense Plasmonic Fields,” *ACS Photonics* **10(10)**, 3637–3646 (2023). DOI: 10.1021/acsp Photonics.3c00714

K. NISHIKAWA, J. NISHIDA, M. YOSHIMURA, K. NAKAMOTO, T. KUMAGAI and Y. WATANABE, “Metastability in the Insulator–Metal Transition for Individual Vanadium Dioxide Nanoparticles,” *J. Phys. Chem. C* **127(33)**, 16485–16495 (2023). DOI: 10.1021/acs.jpcc.3c02151

S. LIU, F. P. BONAFE, H. APPEL, A. RUBIO, M. WOLF and T. KUMAGAI, “Inelastic Light Scattering in the Vicinity of a Single-Atom Quantum Point Contact in a Plasmonic Picocavity,” *ACS Nano* **17(11)**, 10172–10180 (2023). DOI: 10.1021/acsnano.3c00261

R. WILCKEN, J. NISHIDA, J. F. TRIANA, A. JOHN-HERPIN, H. ALTUG, S. SHARMA, F. HERRERA and M. B. RASCHKE, “Antenna-Coupled Infrared Nanospectroscopy of Intramolecular Vibrational Interaction,” *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* **120(20)**, e2220852120 (2023). DOI: 10.1073/pnas.2220852120

J. NISHIDA, P. T. S. CHANG, J. Y. YE, P. SHARMA, D. M. WHARTON, S. C. JOHNSON, S. E. SHAHEEN and M. B. RASCHKE, “Nanoscale Heterogeneity of Ultrafast Many-Body Carrier Dynamics in Triple Cation Perovskites,” *Nat. Commun.* **13**, 6582 (2022). DOI: 10.1038/s41467-022-33935-0

B-2) 国際会議のプロシーディングス

J. NISHIDA, A. OTOMO, R. IINO and T. KUMAGAI, “Sub-Tip-Radius Near-Field Interactions in Nano-FTIR Vibrational Spectroscopy on Single Protein Particles,” *Enhanced Spectroscopies and Nanoimaging 2023*, 1265403 (2023). DOI: 10.1117/12.2676631

B-4) 招待講演

西田 純, 「赤外ナノ分光で挑むバルク物性とナノ物性の境界線」, 日本物理学会 2024 春季大会, オンライン開催, 2024 年 3 月.

熊谷 崇, 「Atomic-Scale Spectroscopy in Plasmonic Tunneling Junction」, 一般社団法人レーザー学会学術講演会第 44 回年次大会, 東京, 2024 年 1 月.

熊谷 崇, 「Exploring Atomic and Molecular Scale Structures and Dynamics by Tip-Enhanced Raman Spectroscopy」, 表面界面スペクトロスコピー 2023 [ISSP ワークショップ], 東京, 2023 年 12 月.

西田 純, 「赤外近接場分光によるキャリア・励起子の局所ダイナミクスの解明」, 自然科学研究機構先端光科学研究分野プロジェクト研究会, 岡崎, 2023 年 11 月.

西田 純, 「赤外ナノ・超高速分光の現状と赤外放射光の可能性」, UVSOR-SPring-8 赤外ビームライン合同ユーザーズミーティング, 岡崎, 2023 年 9 月.

J. NISHIDA, “Probing local carrier and exciton dynamics in spatially confined nanomaterials with infrared nano-spectroscopy,” Annual Meeting of the Japan Society of Vacuum and Surface Science 2023 (JVSS 2023), Nagoya (Japan). November 2023.
T. KUMAGAI, “Atomic-Scale Optical Spectroscopy at Surfaces,” SPIE Nanoscience + Engineering, San Diego (USA), August 2023.

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

日本表面真空学会中部支部幹事 (2023-).

B-8) 大学等での講義, 客員

北海道大学, 客員准教授, 2020年4月-.

京都大学大学院理学研究科, 客員准教授, 2023年4月-2024年3月.

B-10) 競争的資金

科研費国際共同研究加速基金(帰国発展研究), 「時間分解探針増強ラマン分光による時空間極限における原子層物質のフォノン計測」, 熊谷 崇 (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), 「時空間極限における革新的光科学の創出」, 熊谷 崇 (2021年度-2027年度).

科研費若手研究, 「時空間極限分光測定による有機鉛ペロブスカイトの電子-格子相互作用の実時空間観測」, 西田 純 (2022年度-2023年度).

光科学技術研究振興財団研究助成, 「超高速赤外ナノイメージングによる励起子・キャリアの局所ダイナミクス」, 西田 純 (2023年度).

C) 研究活動の課題と展望

探針増強顕微分光の先端計測を研究室の柱として物理化学, 分子科学, 物質科学, そしてナノ科学にまたがる新しい学際領域の形成, 革新的な光科学・光技術の創出を目指した基礎研究を展開していきたいと考えている。超高真空・低温探針増強顕微分光の技術開発についてはほぼ完了し, 超高感度・超高分解能の顕微分光の原理についても理解が深まっている。今後はこの先端計測を応用し, 不均一触媒や光電デバイスなどの物質機能の根幹に関わる表面の局所的な構造や反応, またそれらの動態についての研究へと展開していく。現在は, これまで探針増強分光が応用されていなかった半導体・酸化物表面の計測を進めている。原子間力顕微鏡に基づく超高速・超広帯域探針増強分光については, 現在も技術開発要素が残されているが, ナノ物質の計測へと応用を進めることができおり, 現在はナノカーボン, 原子層物質, 有機-無機ハイブリッドペロブスカイト, 生体分子などの研究を進めている。今後は多次元・多変量ナノ顕微分光のコンセプトに基づき, ナノ物質の物性・機能について物理化学的な理解を得ることを目的とした研究を展開する。国際的な研究活動として, 2021年に研究協力協定を締結したフリッツ・ハーバー研究所(ベルリン, ドイツ)との共同研究や学術交流についても積極的に推進していきたいと考えている。

6-3 協奏分子システム研究センター

6-3-1 経緯と現状, 将来構想

協奏分子システム研究センターは2013年4月に発足し、分子科学研究所がこれまでに培ってきたナノサイエンスに関する研究資産を基盤に、新しい分子科学の開拓に取り組んでいる。センターのミッションは、「分子それぞれの性質が階層構造を持つ分子システムの卓越した機能発現にどう結びつくのか」という分野横断的な重要課題を解決することである。そのためには、システムの構成要素である分子自身について理解を深めるのに加え、それぞれの分子がどのようなネットワークや制御を介して混然一体となり、複雑かつ高度な機能の発現へと繋がっていくのかを理解しなければならない。

このような目的の達成に向けて、微細なナノスケールの分子科学からタンパク質や細胞のようなマクロで不均一な分子科学まで研究者を幅広く募り、「階層分子システム解析研究部門」、「機能分子システム創成研究部門」、「生体分子システム研究部門」の3部門体制で研究活動を展開している。現在、専任PIが3名（秋山教授、山本教授、倉持准教授）、兼任PIが5名（斉藤教授、青野教授、加藤教授、飯野教授、古賀准教授）の計8名となっている。未踏の領域に切り込む若手研究者から、分野をリードするシニア研究者まで、異なる学問領域の研究者が集う、幅広くも層の厚いメンバー構成となっている。

2023年度の特筆すべき研究成果として、CISS効果に基づいたエナンチオ選択性に関する共同研究（山本グループ）が科学雑誌「*Nature Communications*」誌に掲載された。その他、階層分子システム解析研究部門からは、タンパク質デザインに関する共同研究成果が「*Nature Chemistry*」誌に（古賀グループ）発表され、その学術的な新規性・重要性が高く評価されている。

専任PIはセンターが掲げる目標に向かって、これまでの研究とは違う新しい一歩を踏み出すことが求められる。既に一部のグループ間で共同研究が進行中であるが、より多くのセンター構成員で共有できる新しい研究プロジェクトを練り上げていく必要がある。専門から少し離れた分野でのプロジェクト立案には人的交流が何よりも重要であるため、研究グループの居室を南実験棟の3階の1フロアに集中させ、一部をオープンスペースとして運用しつつ、科学的な議論や交流を活発に進めている。

その他、CIMoSセミナー、ワークショップなどを企画・実施し、それらを通じてセンターの活動や成果を国内外のコミュニティに向けて発信している。

階層分子システム解析研究部門

秋山 修志 (教授) (2012年4月1日着任)

古池 美彦 (助教)
堀内 滉太 (助教)
尾上 靖宏 (特任研究員)
BOUDRIAH, Nihad (インターンシップ)
ABDULLA, Farida (インターンシップ)
鷺尾 みどり (技術支援員)
杉坂 かな恵 (技術支援員)
大原 さとみ (技術支援員)
山本 優里桂 (技術支援員)
谷浦 愛子 (技術支援員 (派遣))
蜂須賀 円 (技術支援員 (派遣))
鈴木 博子 (事務支援員)

A-1) 専門領域：生物物理学, 時間生物学

A-2) 研究課題：

- a) タンパク質時計が奏でる概日リズムの分子科学的解明
- b) X線溶液散乱による生体分子システムの動的構造解析

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) シアノバクテリアをモデル系とした概日時計研究に取り組み、独自性の高い数々の研究 (Furuike *et al.*, *Sci. Adv.* 2022; Furuike *et al.*, *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* 2022; Furuike *et al.*, *Commun. Phys.* 2022; ; Mukaiyama *et al.*, *Biochem. J.* 2022; Simon *et al.*, *Biophys. Physicobiol.* 2022; Ito-miwa *et al.*, *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* 2020; Mukaiyama *et al.*, *Sci. Rep.* 2018; Abe *et al.*, *Science* 2015) や国際基調講演 (SRBR 2022; 5th Asian Forum on Chronobiology 2021; ELSI Symposium 2020; V-WCC 2019) をとおして、「概日時計システムの周波数特性が、ごく限られた種類の構成因子にエンコードされている」という新概念を提示した (長瀬研究振興賞 2022; 日本学術振興会賞 2016; 文部科学大臣表彰若手科学者賞 2008; 日本生物物理学会若手奨励賞 2007; 2006 SAS Young Scientist Prize from IUCr)。その間、複数の研究プロジェクト (さきがけ研究 [2005 ~ 2008 年度], 若手研究 (A) [2010 ~ 2012 年度], 基盤研究 (B) [2013 ~ 2015 年度], 基盤研究 (S) [2017 ~ 2021 年度], 基盤研究 (S) [2022 ~ 2026 年度] 等) で代表者を務め、国内外の研究コミュニティの拡大に尽力するとともに (S. Akiyama, *Biophys. Physicobiol.* 2021; S. Akiyama, *Circadian Rhythms in Bacteria and Microbiomes* 2021; S. Akiyama, *Biophys. Rev.* 2020; Mukaiyama *et al.*, *Biol. Rhythms* 2019; Akiyama *et al.*, *Biol. Clocks* 2017; S. Akiyama, *Cell. Mol. Life. Sci.* 2012), 直近では以下に詳述する波及効果の高い成果 (5 件) を輩出してきた。一つ目は、KaiC に隠されたアロステリック制御の解明である (Furuike *et al.*, *Biophys. Physicobiol.* 2024; Furuike *et al.*, *Sci. Adv.* 2022; Furuike *et al.*, *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* 2022)。複雑多様なアロステリック制御は細胞機能に振動現象をもたらす非線形性の源であるため、時計タンパク質のアロステリック構造転移を解明するための努力が続けられてきた。しかし、これまでに報告されている KaiC の全構造は、リン酸化修飾の有無に依らず構造が同一であり、概

日リズムを駆動するアロステリーについては理解が進んでいなかった。我々は、S431とT432のリン酸化修飾サイクルを網羅する4つの異なる状態のKaiCを結晶化し、検出された複雑多様なアロステリーを詳細に分析することで、KaiCの振動性に必須となる最小単位のアロステリーを特定した。これらの成果を複数の総説 (Furuike *et al.*, *SPring-8/SACLA Research Frontiers* 2023; 古池美彦, *日本結晶学会誌* 2023; 古池美彦, *生物物理* 2023; 古池美彦, *SPring-8/SACLA 利用者情報* 2022) として取りまとめた。複数の学協会 (日本結晶学会, 日本生物物理, SPring-8 ユーザー協同体) から、研究グループ所属の助教 (古池美彦) に若手を対象とした賞が贈られている。

二つ目は、KaiCの構造変化を液中で実時間検出できる蛍光プローブの開発である (Mukaiyama *et al.*, *Biochem. J.* 2022)。時間分解 Trp 蛍光分光法を用いることにより、概日リズムの特定の位相で、KaiCのCIIリングの内径側に顕著な構造変化が起こることを解明した。X線結晶構造解析の結果、419番目のTrp側鎖がヘリックス-コイル転移を起こすリン酸化スイッチの方向に向いていることが明らかになった。開発されたTrp蛍光プローブは、周期決定に関わるKaiC準安定状態の捕捉に大きく貢献することが見込まれる。

三つ目は、KaiCの温度補償性に関する成果である (Furuike *et al.*, *Commun. Phys.* 2022)。時計タンパク質は、酵素活性を生理的な温度範囲で一定に保つ温度補償能を有する。他方、酵素を構成するアミノ酸は高温でより頻繁に揺らぎ、それに伴って酵素活性が上昇する傾向が一般的にみられる。よって、温度補償能を有する概日時計タンパク質のダイナミクスが特殊な制御を受けている可能性があるが、それを実験的に証明した例は皆無である。我々は、温度補償型ATPaseであるKaiCのダイナミクスに及ぼす温度の影響を中性子準弾性散乱法で精査した。その結果、KaiCが揺らぎを利用しつつ、高温下でC1-ATPase活性が上昇しないように自律制御していることが明らかとなった。酵素が自らの活性を高めるためだけでなく、恒常性を実現する自律的手段として揺らぎを積極的に利用していることを示す独自性の高い研究成果である。

四つ目は、超短周期(0.6 d = 15 h)から超長周期(6.6 d = 158 h)にわたる多様なリズムを表出せしめる同一サイト(Y402)点変異群の発見である (Ito-miwa *et al.*, *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* 2020)。温度補償された600%に及ぶ周期長変化を説明する発振モデルは皆無であり、本発見を機に、既存モデルの根本的な書き換えを迫られるであろう。本発見は、概日リズムの基本設計を原点に立ち返って議論しなおすきっかけを世界中の研究者に与え得るだけでなく、概月リズム (海洋生物の産卵, 人間の月経周期) や概年リズム (動物の冬眠/繁殖, 植物の花芽形成) の設計原理にも指針を与え得るもので、関連分野でも相当の関心を集めている。

五つ目は、概日時計の絶対的な遅さの起源解明である (Furuike *et al.*, *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* 2022; Simon *et al.*, *Biophys. Physicobiol.* 2022; Abe *et al.*, *Science* 2015)。概日時計は、ゆっくりとした秩序ある細胞ダイナミクスを生み出すのが、高速で動く生体高分子で構成されているため、全体としての遅さの原因は不明であった。我々は、周期を規定するC1-ATPaseの遅さが、加水分解に用いられる水分子の隔離や、高い活性化エネルギーを有するペプチド異性化に起因していることを解明した。本成果は国内外の化学誌 (*ChemistryWorld* June 2015, *現代化学* 2015)、専門家評価コメント (<http://smc-japan.org/?p=4072>)、国内の新聞記事 (毎日新聞, 日本経済新聞) 等で取り上げられ、学術的な新規性が世界的に高く評価されている。

- b) 生体分子システム (時計タンパク質, 抗酸化酵素, 受容体など) のX線溶液散乱を記録し、散乱データと結晶構造の比較や低分解能モデルの構築を通して、分子システムの動的構造解析を行った。

B-1) 学術論文

Y. FURUIKE, Y. ONOUE, S. SAITO, T. MORI and S. AKIYAMA, “The Priming Phosphorylation of KaiC Is Activated by the Release of Its Autokinase Autoinhibition,” *bioRxiv* 2024.03.21.584037 (2024). DOI: 10.1101/2024.03.21.584037

Y. FURUIKE, E. YAMASHITA and S. AKIYAMA, “Structure-Function Relationship of KaiC around Dawn,” *Biophys. Physicobiol.* **21**, e210001 (2023). DOI: 10.2142/biophysico.bppb-v21.0001

B-3) 総説, 著書

Y. FURUIKE, A. MUKAIYAMA and S. AKIYAMA, “Master Allosterity in Clock Protein KaiC Orchestrates Circadian Rhythm,” *SPring-8/SACLA Research Frontiers 2022*, 26–27 (2023).

古池美彦, 「生命は「アロステリー」でリズムを奏でる」, *生物物理*, **63(3)**, 173–174 (2023). DOI: 10.2142/biophys.63.173

古池美彦, 「時計タンパク質KaiCの構造にみる概日リズムの起源」, *日本結晶学会誌*, **65(2)**, 113–121 (2023). DOI: 10.5940/jcrsj.65.113

B-4) 招待講演

秋山修志, 「概日時計のこれまでとこれから」, 大学共同利用機関シンポジウム 2023 「現代の社会問題に挑む日本の科学」, 東京, 2023年10月.

古池美彦, 「概日時計タンパク質のアロステリックな律動を捉える構造生物化学」, 第94回SPring-8先端利用技術ワークショップ/大阪大学蛋白質研究所セミナー「SPring-8における蛋白質構造生物学研究の現状と将来について」, 大阪, 2023年9月.

古池美彦, 「時刻情報を生成/統合/伝達するシアノバクテリア時計タンパク質KaiCの分子構造」, 日本時間生物学会年会シンポジウム「ポスト転写イベントに潜む計時分子ダイナミクス」, 横浜, 2023年9月.

B-6) 受賞, 表彰

古池美彦, 化学情報協会JAICI賞 (2023).

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

日本生物物理学会理事 (2023–2025).

文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

日本学術会議連携会員 (2020–2024).

SPring-8長期利用分科会委員 (2019–).

日本学術振興会学術システム研究センター研究員 (2023–2026).

名古屋大学大学院理学研究科卓越大学院プログラム運営委員会・拡大実行委員会委員 (2024).

学会誌編集委員

Biophysics and Physicobiology, Editorial Board Members (2022–2025).

B-8) 大学等での講義, 客員

理化学研究所, 客員研究員, 2021年4月–2024年3月.

理化学研究所, 客員技師, 2021年4月–2024年3月. (古池美彦)

東京理科大学, 講義「一般教養科目」, 2023年. (古池美彦)

B-10) 競争的資金

科研費挑戦的研究(萌芽), 「月面閉鎖生態系の構築を目指した改変型シアノバクテリアの設計」, 秋山修志 (2022年度–2023年度).

科研費基盤研究(S), 「概日時計の複雑多様性の単純化」(代表: 秋山修志), 古池美彦(研究分担者) (2022年度–2026年度).

武田科学振興財団 2022年度生命科学研究助成, 「概日時計タンパク質 KaiC における構造多型の操作と解析」, 秋山修志 (2022年度–2026年度).

日本学術振興会学術動向等に関する調査研究(受託研究), 「生物物理学関連分野に関する学術研究動向」, 秋山修志 (2023年度).

(公財)豊秋奨学会 2023年度研究費助成, 「月面環境サイクルに適合した概月時計の設計」, 秋山修志 (2023年度–2025年度).

科研費若手研究, 「時計タンパク質の絡み合ったアロステリック運動を読み解く」, 古池美彦 (2022年度–2024年度).

科研費基盤研究(B), 「Kai システムの自律振動過程で生じる KaiC-KaiA/KaiB 結合モードの時間依存的変調」(代表者: 上久保裕生), 秋山修志(研究分担者) (2023年度–2025年度).

C) 研究活動の課題と展望

2017年度から取り組んできた基盤研究(S) [統合的多階層アプローチによるシアノバクテリア生物時計システムの新展開: 2017 ~ 2021年度]が終了し, Kai タンパク質時計の普遍性と多様性の解明, ATPase /リン酸化構造基盤の解明, 温度補償性と揺らぎの関係性の解明, いずれにおいても当初の目標を上回る新発見があった(最終年度検証結果: A)。2023年度は, 基盤研究(S) [概日時計の複雑多様性の単純化: 2022 ~ 2026年度], 挑戦的研究(萌芽) [月面閉鎖生態系の構築を目指した改変型シアノバクテリアの設計研究: 2022 ~ 2023年度], 武田科学振興財団生命科学研究助成 [概日時計タンパク質 KaiC における構造多型の操作と解析への助成: 2022年度~]を中心に, いずれの課題についても波及効果の大きい論文として公表できるよう, 今の質を堅持しつつも更にペースを上げて研究を進める。

古賀 信康 (教授 (兼任*)) (2022年10月1日～2023年9月30日)

小杉 貴洋 (助教)

鈴木 規子 (技術支援員)

鈴木 博子 (事務支援員)

*大阪大学蛋白質研究所

A-1) 専門領域：生物物理学, タンパク質分子デザイン

A-2) 研究課題：

a) 計算機および生化学的アプローチによるタンパク質分子デザイン

A-3) 研究活動の概略と主な成果

望みの機能を持ったタンパク質分子を自在にデザインすることが可能になれば、細胞の制御・設計や医療への貢献、加えて新規酵素やマテリアル開発による産業への応用が期待される。我々は、タンパク質分子を主鎖構造から完全にゼロからデザインすること、更には自然界のタンパク質分子を改造することで、望みのタンパク質分子を創製する理論と技術の開発を行う。

- a) 回転対称多量体タンパク質のデザイン；多くのタンパク質は3次構造を形成した後に4次構造を形成することで機能を発現する。これまでにデザインしたタンパク質をビルディングブロックとして組み合わせることで、多様な形状の新規回転対称多量体をデザインする技術を開発する。これまでに開発した技術を用いて、2量体および5量体の設計に成功し、6量体に関してもデザインしたタンパク質のひとつが、6量体を形成していることを示唆する結果を得ている。
- b) ヘム結合タンパク質のデザイン；これまでにデザインしたタンパク質をビルディングブロックとして組み合わせることで、望みの小分子に結合するタンパク質分子をデザインする手法の開発を行う。特に、ヘム結合タンパク質を例として研究を行っている。これまでにデザインしたタンパク質を、2量体のコイルドコイルを形成する α -ヘリックスのNC末端それぞれに連結させることで、連結したドメイン間に小分子結合サイトを構築し、ヘム結合タンパク質をデザインした。デザインしたタンパク質5つを発現、精製したところ、1つについて収量が多く、また2量体を形成しているものがあり、ヘム滴定を行ったところ、ヘム結合を示唆する結果が得られている。
- c) ATP結合タンパク質のゼロからのデザイン；自然界にはATPを加水分解して動的機能を発現するタンパク質が存在する。タンパク質がATPを加水分解するためのミニマムな装置を明らかにすることを目的とし、まずATPを結合するタンパク質のゼロからのデザインを行った。これまでに発見した3つのルールとヌクレオチド結合に重要とされるP-loopモチーフを用いることで、計算機上でATP結合タンパク質のデザインを行った。生化学実験により、デザインしたタンパク質は安定な構造を形成し、ATPに対して800 μ Mくらいの結合親和性を示した。さらに、結晶化して構造を解くことにより、設計通りの構造をしていることを確認した。今後は、より活性を向上させることを目指す。
- d) 動的機能を発現する自然界のタンパク質V-ATPaseの改造；自然界には、ATP加水分解のエネルギーを利用して構造変化することで機能を発現するタンパク質が存在する。このようなタンパク質がどのようにして動的機能を発現しているのか、回転モータータンパク質であるV-ATPaseを改造することで、そのメカニズムに迫った。V-ATPaseの非触

媒活性部位に、ヌクレオチド結合サイトを設計することで、V-ATPaseに新規アロステリック機構を付与し、V-ATPaseの回転を加速することに成功した。さらに、ここで設計したV-ATPaseと天然のV-ATPaseを比較することで、天然のV-ATPaseの複合体状態に関する知見も得られている。

- e) タンパク質構造の合理安定化法の開発：タンパク質の耐熱性を向上させることは、タンパク質を産業利用する上で重要である。タンパク質をゼロからデザインする技術を応用して、自然界のタンパク質を合理的に安定化する手法の開発を行った。開発した手法を用いて、PET製品のバイオリサイクルに重要なPET分解酵素の安定化に成功した。
- f) α ヘリカルタンパク質構造のゼロからのデザイン： α ヘリカル構造を自在にデザインするための手法の開発を行った。まず自然界のタンパク質構造を解析し、ヘリックス同士をつなぐ典型的なループパターン18種を明らかにしている。これらのループパターンを組み合わせることで、計算機上で疎水性コアパッキングを形成し、加えて表面形状が多様な α ヘリカル構造を構築する手法を開発した。さらに、これら α ヘリカル構造に対して、側鎖-側鎖もしくは主鎖-側鎖水素結合が形成されるよう側鎖設計の手法を開発した。また、これまでは5、6本の α ヘリックス構造しか設計することができなかったが、それ以上の本数の α ヘリックスからなる α ヘリカル構造を設計するための手法を開発した。

B-1) 学術論文

T. KOSUGI, T. IIDA, M. TANABE, R. IINO and N. KOGA, “Design of Allosteric Sites into Rotary Motor V_1 -ATPase by Restoring Lost Function of Pseudo-Active Sites,” *Nat. Chem.* **15**, 1591–1598 (2023). DOI: 10.1038/s41557-023-01256-4

S. MINAMI, N. KOBAYASHI, T. SUGIKI, T. NAGASHIMA, T. FUJIWARA, R. TATSUMI-KOGA, G. CHIKENJI and N. KOGA, “Exploration of Novel $\alpha\beta$ -Protein Folds through De Novo Design,” *Nat. Struct. Mol. Biol.* **30(8)**, 1132–1140 (2023). DOI: 10.1038/s41594-023-01029-0

K. SAKUMA, N. KOBAYASHI, T. SUGIKI, T. NAGASHIMA, T. FUJIWARA, K. SUZUKI, N. KOBAYASHI, T. MURATA, T. KOSUGI, R. TATSUMI-KOGA and N. KOGA, “Design of Complicated All- α Protein Structures,” *Nat. Struct. Mol. Biol.* **31**, 275–282 (2024). DOI: 10.1038/s41594-023-01147-9

Y. KAMADA, C. UMEDA, Y. MUKAI, H. OHTSUKA, Y. OTSUBO, A. YAMASHITA and T. KOSUGI, “Structure-Based Engineering of Tor Complexes Reveals that Two Types of Yeast TORC1 Produce Distinct Phenotypes,” *J. Cell Sci.* **137**, jcs261625 (2024). DOI: 10.1242/jcs.261625

B-3) 総説、著書

小杉貴洋, 「タンパク質設計技術で分子モーターを加速する」, *現代化学*, 2023年11月号 (**632**), 24–27 (2023).

小杉貴洋, 「失われた機能を復活させてアロステリック部位を設計する方法：回転型分子モーター V_1 -ATPase で実証」, *蛋白質科学会アーカイブ*, **16**, エッセイ 013 (2023).

B-4) 招待講演

小杉貴洋, 「蛋白質複合体が生み出す協奏的な機能の合理的な制御を目指して」, 第23回日本蛋白質科学会年会シンポジウム「加速するタンパク質デザイン」, 名古屋, 2023年7月.

古賀信康,「De novo design of proteins with novel folds: How many possible folds exist?」, 生体機能関連化学部会若手の会第 34 回サマースクール, 愛知, 東浦町, 2023 年 7 月.

古賀信康,「De novo design of proteins with topologies not found in nature」, 理研シンポジウム: Synthetic Biology—生物学の新たな潮流—, 理化学研究所, 和光, 2023 年 8 月.

小杉貴洋,「タンパク質設計技術による細胞内回転型分子モーターの制御を目指して」, 第 12 回分子モーター討論会, 仙台, 2023 年 9 月.

小杉貴洋,「計算機設計技術を用いたスーパー酵素の創出」, 第 96 回日本生化学会大会シンポジウム「情報計算科学にもとづく酵素の創成と応用～スーパー酵素が切り拓く生化学の新時代～」, 福岡, 2023 年 11 月.

小杉貴洋,「Toward understanding roles of yeast Tor complexes by structure-based engineering approach」, 第 61 回日本生物物理学会 シンポジウム「トア複合体による細胞応答の仕組みを理解する」, 名古屋, 2023 年 11 月.

小杉貴洋,「Toward developing a new field of biology based on protein design」, The 2157th NIG Biological Symposium, 三島, 2023 年 11 月.

古賀信康,「Basis for Protein Design」, 計算生命科学の基礎 10——融合する AI, データサイエンス, 生命科学, そして次の 10 年を見据えて——, オンライン開催, 2023 年 11 月.

小杉貴洋,「タンパク質設計技術による定量生物学を目指して」, 定量生物学の会第十一回年会, 東京, 2024 年 1 月.

小杉貴洋,「Allosteric control of rotary molecular motor by using protein design method」, OIST-JST Joint Meeting, 沖縄, 2024 年 1 月.

小杉貴洋,「構造解析が導くタンパク質の設計・改造とその理解」, 2023 年度量子ビームサイエンスフェスタ, 水戸, 2024 年 3 月.

小杉貴洋,「タンパク質設計技術は単細胞生物研究に役立つのか?」, 2023 年度国立遺伝学研究所研究会「微生物の細胞複製システムから紐解く生命のデザイン」, 三島, 2024 年 3 月.

古賀信康,「合理デザインによる新規タンパク質の創製」, 新潟大学コアステーション「ユビキタスグリーンケミカルエネルギー (UGCE) 連携教育研究センター」主催第 14 回研究シンポジウム, 新潟, 2024 年 3 月.

N. KOGA, “Design of protein structures from scratch: The number of possible topologies ?” The 20th ABC-INFO Lecture and Networking, Online, February 2024.

N. KOGA, “Exploration of novel protein folds through de novo design,” The molecular organization of living systems, Aarhus University, Aarhus (Denmark), September 2023.

T. KOSUGI, “Allosteric control of rotary molecular motor V₁-ATPase by redesigning pseudo-active sites,” The East Asia Single-Molecule Biology Symposium 2023, Wenzhou (China), September 2023.

N. KOGA, “Exploration of novel protein folds through de novo design: How many possible folds exist?” The 21st KIAS Conference on Protein Structure and Function, Seoul (Korea), October 2023.

N. KOGA, “Laboratory for Protein Design,” IPR Retreat 2023, 大阪大学銀杏会館, Osaka (Japan), November 2023.

T. KOSUGI, “Control of functions exerted by protein complexes using protein design methods,” 16th Eurasia Conference on Chemical Sciences 2023, Bangkok (Thailand), December 2023.

N. KOGA, “Exploration of novel protein topologies through de novo design,” The 27th SANKEN International Symposium: Science Chat in AI and Metaverse, The Awaji Yumebutai, Awaji (Japan), January 2024.

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

日本生物物理学会分野別専門委員：タンパク質設計・ドラッグデザイン (2015–2023).

学会の組織委員等

第 23 回日本蛋白質科学会年会ワークショップ「高次構造体のはたらきを観る！」オーガナイザー (2023). (小杉貴洋)

第 61 回日本生物物理学会年会実行委員 (2023). (小杉貴洋)

第 61 回日本生物物理学会年会シンポジウム「トア複合体による細胞応答の仕組みを理解する」オーガナイザー (2023). (小杉貴洋)

学会誌編集委員

生物物理学会誌編集委員 (2022–).

B-10) 競争的資金

科研費基盤研究(B), 「多様な形状の新規回転対称多量体タンパク質の合理デザイン」, 古賀信康 (2022 年度–2024 年度).
自然科学研究機構 OPEN MIX LAB (OML) 公募研究プログラム (研究共創型), 「新規タンパク質デザインによる糖鎖修飾ルールの解明」, 古賀信康 (2023 年度).

科学技術振興機構 さきがけ研究, 「タンパク質複合体を合理的に改造し, 細胞内機能を理解・制御する」, 小杉貴洋 (2020 年度–2023 年度).

自然科学研究機構 ExCELLS 若手奨励研究, 「人工設計タンパク質を多量体化することでヘム結合部位を創る」, 小杉貴洋 (2021 年度–2023 年度).

B-11) 産学連携

共同研究, キリンホールディングス (株), 「PET 分解酵素の開発」, 古賀信康 (2022 年–2023 年).

C) 研究活動の課題と展望

これまでの研究活動により様々な形状のタンパク質構造を設計する技術の開発に成功した。蛋白研では, これらの技術を用いて機能タンパク質を設計するとともに, 設計したタンパク質構造をビルディングブロックとして組み合わせ, より巨大かつ複雑な形状のタンパク質を設計する技術開発に取り組む。

倉 持 光 (准教授) (2020 年 4 月 1 日着任)

米田 勇祐 (助教)

BADARAU, Adrian (インターンシップ)

落合 奎介 (大学院生)

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) 新規超高速非線形分光法の開発と応用
- b) 単一分子レベルでの新規分光法の開発と応用
- c) 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

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 凝縮相多原子分子の化学反応は多次元的に表現される複雑なポテンシャルエネルギー曲面 (PES) 上で進行する。近年我々が初めて報告した励起状態の共鳴 2 次元ラマン分光は、振動モード間のカップリングの観測を通じて励起状態 PES の性質に迫ることができる強力な手法である。しかし、その実験は困難を極め、応用は限定されていた。そこで我々は、遅延時間の高速掃引に基づく新しい励起状態選択的共鳴 2 次元インパルス誘導ラマン分光装置を構築することで、計測時間を劇的に短縮し、これまでに無い高い信号雑音比での 2 次元ラマンスペクトル測定を実現した。開発した装置を用いることで、一重項励起子分裂を示す典型分子である TIPS-pentacene の励起状態 2 次元ラマンスペクトルを取得し、電子励起状態における振動モード間のカップリングを明瞭に可視化することに成功した。
- b) 室温・溶液中にある分子の励起エネルギー揺らぎの観測を目的として、単一分子検出感度を有する励起発光分光装置の開発を行った。この手法では、広帯域極短パルス対を励起光として用い、パルス間の遅延時間を掃引しながら分子が発する蛍光を検出する。この信号をフーリエ解析することにより、蛍光励起スペクトルを得る。典型色素に対して得られた励起スペクトルは、バルク溶液に対して得られた蛍光励起スペクトルや吸収スペクトルと良い一致を示しており、広帯域極短パルスを用いた蛍光検出に基づくフーリエ分光によって励起スペクトルが得られることを実証した。また、得られた光子列の相関解析から単一分子検出感度が達成できていることが確認された。より高度な光子相関解析による励起スペクトルの時間揺らぎの可視化に向けた基盤技術を確立した。
- c) 所内外の研究者と共同で、先端的な超高速分光法を用いた新規光機能性分子の励起状態ダイナミクスの研究を推進している。本年は、フェムト秒時間分解インパルス誘導ラマン分光法を用いることで、ペリレンビスイミドが表面に配位した半導体ナノ粒子において光励起直後に起こる超高速電荷移動を、構造学的知見を基に明らかにした。また、10 fs 時間分解吸収分光を用いることで、シクロオクタテトラエン (COT) で繋がれたペリレンビスイミドダイマーの励起状態において起こる超高速な symmetry-breaking charge separation (SBCS) を観測し、その機構を電荷分離状態のエネルギー準位の計算に基づき明らかにした。

B-1) 学術論文

H. KURAMOCHI, T. TSUTSUMI, K. SAITA, Z. WEI, M. OSAWA, P. KUMAR, L. LIU, S. TAKEUCHI, T. TAKETSUGU and T. TAHARA, “Ultrafast Raman Observation of the Perpendicular Intermediate Phantom State of Stilbene Photoisomerization,” *Nat. Chem.* **16(1)**, 22–27 (2024). DOI: 10.1038/s41557-023-01397-6

R. KIMURA, Y. YONEDA, H. KURAMOCHI and S. SAITO, “Environment-Sensitive Fluorescence of COT-Fused Perylene Bisimide Based on Symmetry-Breaking Charge Separation,” *Photochem. Photobiol. Sci.* **22**, 2541–2552 (2023). DOI: 10.1007/s43630-023-00468-4

D. YOSHIOKA, Y. YONEDA, I. Y. CHANG, H. KURAMOCHI, K. HYEON-DEUK and Y. KOBAYASHI, “Quasi-Reversible Photoinduced Displacement of Aromatic Ligands from Semiconductor Nanocrystals,” *ACS Nano* **17(12)**, 11309–11317 (2023). DOI: 10.1021/acsnano.2c12578

Y. YONEDA and H. KURAMOCHI, “Rapid-Scan Resonant Two-Dimensional Impulsive Stimulated Raman Spectroscopy of Excited States,” *J. Phys. Chem. A* **127(24)**, 5276–5286 (2023). DOI: 10.1021/acs.jpca.3c02489

B-3) 総説, 著書

米田勇祐, 「先端的非線形分光によって明らかにする光化学系IIの複雑なダイナミクス」, *生物物理*, **63(3)**, 171 (2023). DOI: 10.2142/biophys.63.171

B-4) 招待講演

倉持 光, 「数サイクルパルスを用いた複雑分子系の極限時間分解分光」, 自然科学研究機構先端光科学研究分野プロジェクト研究会「放射光の量子性・干渉性に基づく革新的計測手法の探索」, 岡崎, 2023年11月.

米田勇祐, 「先端的非線形分光を用いた電子-構造ダイナミクスの解明」, 第44回光化学若手の会, 淡路, 2023年6月.

H. KURAMOCHI, T. TSUTSUMI, K. SAITA, Z. WEI, M. OSAWA, P. KUMAR, L. LIU, S. TAKEUCHI, T. TAKETSUGU and T. TAHARA, “Catching the Phantom State of Photoisomerization,” Asian Spectroscopy Conference 2023, Niigata (Japan), September 2023.

Y. YONEDA, “Exploring complex reaction dynamics using multidimensional vibrational spectroscopy,” 38th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics, Fukuoka (Japan), June 2023.

B-6) 受賞, 表彰

米田勇祐, PCCP Prize (2024).

B-7) 学会および社会的活動

学会の組織委員等

第22回時間分解振動分光学国際会議 運営委員 (2022–2025).

第61回 (2023年) 日本生物物理学会年会実行委員 (2022–). (米田勇祐)

文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

文部科学省研究振興局学術調査官 (2023–2025).

理科教育活動

出前授業「超短パルスレーザー光で観る分子の世界」愛知県立岡崎北高等学校 (2023).

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.

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).

自然科学研究機構 OPEN MIX LAB (OML) 公募研究プログラム(若手支援型), 「先端的単一分子分光による光合成保護機能の進化戦略の解明」, 米田勇祐 (2023年度).

C) 研究活動の課題と展望

我々は先端的な超高速分光法を用いることで, 凝縮相分子の機能・構造・ダイナミクスの解明に取り組んでいる。特に, (アンサンブル平均を観る)バルク溶液・固体に対する先端的な超高速分光法と, 新たに開発を進めている室温・溶液中の単一分子レベルでの各種分光法を相補的に用いることで, 複雑分子系の反応ダイナミクス研究に新たな途を拓くことを目指している。最近, 我々は単一分子検出感度による励起発光分光を実現したが, 今後は本手法をさらに発展させることで, マイクロ~ミリ秒スケールで起こる励起スペクトル揺らぎの可視化を実現する。光合成系をはじめとする光応答性タンパク質に応用し, これらタンパク質の色素(発色団)分子の電子状態が, タンパク質特有の遅い自発的構造揺らぎといかに関係しているのかを紐解く。さらに, 単一分子レベルでの振動分光法, ポンプ-プローブ分光法の開発に取り組み, 電子状態・局所構造・超高速反応ダイナミクスの観点から, 揺らぎが光応答性タンパク質の光-エネルギー変換に果たす役割の本質的理解を目指す。

機能分子システム創成研究部門

山本浩史 (教授) (2012年4月1日着任)

AVARVARI, Narcis (外国人研究職員)

佐藤 拓朗 (助教)

WU, Dongfang (特任研究員)

加藤 雄介 (特別訪問研究員)

戸川 欣彦 (特別訪問研究員)

佐藤 琢哉 (特別訪問研究員)

岸根 順一郎 (特別訪問研究員)

楠瀬 博明 (特別訪問研究員)

DRESSOUNDIRAM, Elodie (インターンシップ)

相澤 洋紀 (大学院生)

URBAN, Adrian (大学院生)

MALATONG, Ruttapol (大学院生)

楠本 恵子 (大学院生)

村田 了介 (技術支援員)

石川 裕子 (事務支援員)

A-1) 専門領域：分子物性科学

A-2) 研究課題：

- a) キラル有機超伝導体を用いたスピントロニクス
- b) キラル分子によるスピン偏極の理論構築
- c) 有機半導体ラセン結晶の磁性基板によるキラル分割

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 有機キラル超伝導体である κ -(BEDT-TTF)₂Cu(NCS)₂ 塩の薄膜単結晶を用いたスピントロニクスデバイスを作製し、その電気的磁気的特性を測定した。その結果、超伝導転移点付近で交流による励起を行うと、磁性電極上に偏極スピンの蓄積が見出された。これは超伝導結晶のキラルな空間群に基づくスピン流生成が原因であると考えられるが、その大きさを見積もると、有機超伝導体有するスピン軌道相互作用エネルギーから得られるスピン偏極の1000倍以上に達する巨大なスピン蓄積が生じていることが明らかとなった。また、シグナルの磁場角度依存性から、スピン蓄積が結晶の上下で反転していることが明らかとなった。(BEDT-TTF = Bis(ethylenedithio)tetrathiafulvalene)
- b) CISS (Chirality-Induced Spin Selectivity) 効果はキラル分子に対してトンネル電流を流すと、分子を通過してきた電子のスピンが電流と平行あるいは反平行に偏極する現象であり、近年新たな有機スピントロニクス的手段として注目されつつある。我々は、CISS 効果の根本的なメカニズムを解明するために、キラル物質の量子論的理解に取り組んだ。その結果、電子の量子状態を多極子展開することにより、キラリティの秩序変数を表現することが可能となり、分子のキラリティを量子力学的に表現するためにはスピンが本質的な役割を果たすことを明らかにした。この事実は、キラル分子が巨大なスピン偏極を生み出す CISS 効果と、根本的なところでつながっている可能性がある。

- c) CISS 効果の適用範囲はスピン偏極電流を生み出すことに限定されず、キラルな構造を有する材料のキラル分割にも拡張可能であることが明らかとなりつつある。我々はコバルトフタロシアニン錯体が PVD (Physical Vapor Deposition) によってメゾスケールのらせん結晶を生成することに着目し、CISS 効果によるそのキラル分割を試みた。その結果、垂直磁化した磁性基板上で結晶成長を行い、磁化の向きによってらせんの右巻き・左巻きの比を逆転させることに成功した。この成果は、共有結合によらないキラリティであっても、CISS 効果による左右の区別が可能であることを示している。

B-1) 学術論文

Y. OSHIMA, T. TAKENOBU, J. PU, K. ISHIGURO, R. KATO, H. M. YAMAMOTO and T. KUSAMOTO, “A Memristive Oscillator,” *Adv. Phys. Res.* **3**, 2300117 (2023). DOI: 10.1002/apxr.202300117

H. AIZAWA, T. SATO, S. MAKI-YONEKURA, K. YONEKURA, K. TAKABA, T. HAMAGUCHI, T. MINATO and H. M. YAMAMOTO, “Enantioselectivity of Discretized Helical Supramolecule Consisting of Achiral Cobalt Phthalocyanines via Chiral-Induced Spin Selectivity Effect,” *Nat. Commun.* **14**(1), 4530 (2023). DOI: 10.1038/s41467-023-40133-z

A. J. URBAN and H. M. YAMAMOTO, “Strong and Tunable Near-Infrared Circular Dichroism in Helical Tetrapyrrole Complexes,” *Chem. –Eur. J.* **29**(43), e202300940 (2023). DOI: 10.1002/chem.202300940

R. MALATONG, T. SATO, J. KUMSAMPAO, T. MINATO, M. SUDA, V. PROMARAK and H. M. YAMAMOTO, “Highly Durable Spin Filter Switching Based on Self-Assembled Chiral Molecular Motor,” *Small* **19**(32), 2302714 (2023). DOI: 10.1002/sml.202302714

Y. KAWASUGI, H. SUZUKI, H. M. YAMAMOTO, R. KATO and N. TAJIMA, “Strain-Induced Massless Dirac Fermion State of the Molecular Conductor α -(BEDT-TTF)₂I₃,” *Appl. Phys. Lett.* **122**(12), 123102 (2023). DOI: 10.1063/5.0141023

R. YAMADA, J. FUJIOKA, M. KAWAMURA, S. SAKAI, M. HIRAYAMA, R. ARITA, T. OKAWA, D. HASHIZUME, T. SATO, F. KAGAWA, R. KURIHARA, M. TOKUNAGA and Y. TOKURA, “Field-Induced Multiple Metal–Insulator Crossovers of Correlated Dirac Electrons of Perovskite CaIrO_3 ,” *npj Quantum Mater.* **7**(1), 13 (2022). DOI: 10.1038/s41535-021-00418-2

T. SATO, W. KOSHIBAE, A. KIKKAWA, Y. TAGUCHI, N. NAGAOSA, Y. TOKURA and F. KAGAWA, “Nonthermal Current-Induced Transition from Skyrmion Lattice to Nontopological Magnetic Phase in Spatially Confined MnSi ,” *Phys. Rev. B* **106**(14), 144425 (2022). DOI: 10.1103/physrevb.106.144425

B-4) 招待講演

山本浩史, 「キラリティ誘起スピン選択制 (CISS) とスピントロニクス」, 応用物理学会シンポジウム「ハイブリッド材料・システムによる革新的光・スピン計測」, 第 71 回応用物理学会春季学術講演会, 東京, 2024 年 3 月.

山本浩史, 「分子性量子デバイスにおける時空間反転対称性の破れ」, 物理学会シンポジウム「物質科学が拓く新原理デバイス」, 日本物理学会 2024 年春季大会, オンライン開催, 2024 年 3 月.

山本浩史, 「有機強相関電子デバイスの現状と今後の展開」, 応用物理学会クロスオーバーシンポジウム「有機エレクトロニクスの開拓と未来展望」, 第 84 回応用物理学会秋季学術講演会, 熊本, 2023 年 9 月.

H. M. YAMAMOTO, “Engineering of crystals directed toward molecular science,” 分子性固体科学研究会, 松山, 愛媛(日本), March 2024.

H. M. YAMAMOTO, “Chirality and its relation to time-reversal symmetry breaking,” OML workshop “Chirality in its shape and motion at quantum levels,” Okazaki, Aichi (Japan), March 2024.

H. M. YAMAMOTO, “Chiral metals and superconductors for novel spintronics,” The 426th Zhong-Guan-Cun Forum on Condensed Matter Physics, Beijing (China), February 2024.

H. M. YAMAMOTO, “Chiral metals and superconductors for novel spintronics,” Molecular Science Frontier Lecture, Beijing (China), February 2024.

H. M. YAMAMOTO, “Chiral metals and superconductors for novel spintronics,” The Joint Symposium on Spin, Chirality, Superconductivity, and Related Phenomena, Tianjin (China), February 2024.

H. M. YAMAMOTO, “On the definition of chirality and enantioselective fields—from experimental point of view—,” MRM2023, Kyoto (Japan), December 2023.

H. M. YAMAMOTO, “Magnetic Enantioseparation and Chirality-Induced Spin Selectivity,” Nano Thailand 2023, Pattaya (Thailand), November 2023.

H. M. YAMAMOTO, “Supramolecular machines and chiral spintronics,” ChePhyMoSS: Symposium celebrating 75+ birthday of Patrick Batail, Angers (France), November 2023.

H. M. YAMAMOTO, “Chirality at the quantum scale,” hiral@The Nanoscale 2023, Angers (France), October 2023.

H. M. YAMAMOTO, “Truly chiral superconductors for novel spintronics,” Superconducting spintronics 2023, Online, September 2023.

H. M. YAMAMOTO, “Giant spin polarization and a pair of antiparallel spins in a chiral superconductor,” KUJI QMAT Online Journal Club, Online, July 2023.

H. M. YAMAMOTO, “T-even chirality and T-odd chirality,” Gordon Research Conference, Electron Spin Interactions with Chiral Molecules and Materials “Chiral Spin Filtering and its Manifestations From Molecules to Devices,” Manchester (USA), July 2023.

B-5) 特許出願

登録

1698360, “Chirality Detection Device, Chirality Detection Method, Separation Device, Separation Method, and Chiral Substance Device,” Y. TOGAWA, H. SHISHIDO and H. YAMAMOTO (University Public Corporation Osaka; National Institutes of Natural Sciences)(登録日2023年7月11日).

B-6) 受賞, 表彰

佐藤拓朗, 日本物理学会若手奨励賞 (2024).

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

分子科学会幹事 (2020–), 総務委員長 (2022–2024).

学会の組織委員等

分子科学会運営委員 (2018–).

MRM2023 セッションオーガナイザー (2023).

文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

日本学術振興 世界トップレベル研究拠点プログラム委員会拠点作業部会委員 (2023–2028).

日本学術会議事務局連携会員 (2023–2027).

その他

凝縮系科学賞審査委員 (2019-).

森野基金推薦委員 (2021-).

ELASTO-Q-MAT (Deutsche Forschungsgemeinschaft), Scientific Advisory Board (2022-).

Asian Young Scientist Fellowship (physical science), Selection Committee member (2022-).

B-8) 大学等での講義, 客員

理化学研究所, 客員主管研究員, 2023年4月-2026年3月.

理化学研究所, 客員研究員, 2022年10月-2025年3月. (佐藤拓朗)

B-9) 学位授与

友田美沙, 「Development of Pentanuclear Metal Complexes with Sterically Isolated Brønsted Acid/Base Sites and Their Functions」, 2023年3月, 博士(理学).

相澤洋紀, 「磁性基板による Co(II) フタロシアニン螺旋超分子のキラル分割について」, 2023年9月, 博士(理学).

MALATONG, Ruttapol, “Development of Switchable Spin Selectivity Based on Controllable Organic Chirality,” 2023年9月, 博士(理学).

URBAN, Adrian Joe, “Towards Benchmarking Chirality-Induced Spin Selectivity: The Case of Chiral Tetrapyrroles,” 2023年9月, 博士(理学).

B-10) 競争的資金

科研費基盤研究(A), 「キラル伝導体を用いた巨大スピン偏極デバイスの開発」, 山本浩史 (2023年度-2026年度).

科学技術振興機構さきがけ研究(受託研究), 「キラルな分子性物質を舞台にした強相関スピントロニクスの開拓」, 佐藤拓朗 (2023年度-2024年度).

科研費基盤研究(B), 「カイラリティが誘導するフォノン・スピン・フォトン交差結合の理論」(代表: 岸根順一郎), 山本浩史(研究分担者) (2021年度-2024年度).

科研費基盤研究(A), 「カイラル物質が誘導する非局所スピン偏極の解明と基礎学理の構築」(代表者: 戸川欣彦), 山本浩史(研究分担者) (2023年度-2026年度).

三菱財団自然科学研究助成, 「キラル超伝導体を用いたスピントランジスタの開発」, 山本浩史 (2023年度-2024年度).

C) 研究活動の課題と展望

キラリティによるスピン流生成は, 近年益々注目されるようになってきている。どちらかと言うと化学分野で注目されている CISS のみならず, 物性物理分野でも反転対称性を失った物質構造に基づく新たな物性発現が盛んになされており, 両者の共通点と相違点を検討しながら実験を進めていく必要があると考えられる。本年の成果により, キラル分子の量子状態が本質的にスピン構造を内包した電気トロイダルモノポールによって表現されることが明らかとなってきた。このようなキラル物質特有の性質と, CISS 効果との関係性解明を進めると同時に, 様々な外場によるスピン流の制御に取り組むなど, より広い視点での展開を実現していきたい。

6-4 理論・計算分子科学研究領域

理論分子科学第一研究部門

齊 藤 真 司 (教授) (2005 年 10 月 1 日着任)

甲田 信一 (助教)

TANG, Zhiye (助教)

ZHU, Zhe (大学院生)

千葉 史朱香 (事務支援員)

A-1) 専門領域：物理化学，理論化学

A-2) 研究課題：

- a) 生体機能ダイナミクスの理論研究：天然光合成系における効率的励起エネルギー移動
- b) 凝縮系ダイナミクスの理論研究：顕著な構造変化を伴わない過冷却液体の運動の遅延化
- c) 凝縮系ダイナミクスの理論研究：揺らぐ環境下での反応・拡散過程

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 生体機能ダイナミクスに関する研究として，高等植物の光化学系 II の光捕集アンテナ複合体 LHCII における励起エネルギー移動 (EET) の解析を進めている。LHCII 中の EET の解明には，クロロフィル (Chl) 分子の励起エネルギーやその揺らぎ (スペクトル密度) の知見が不可欠である。最近，我々は TDDFT 計算におけるパラメータの調整を行い，異なる誘電率をもつ複数の溶液中での Chl 分子の励起エネルギーを適切に記述することに成功した。さらに，これらの適切な電子状態計算の結果を再現する分子動力学 (MD) 計算における Chl 分子のパラメータの開発にも成功した。これらの成果をもとに，膜中に存在する LHCII の長時間の MD 計算を実施し，吸収スペクトルなどの実験結果を再現できることを確認した。さらに，LHCII 内の異なる環境下にある Chl 分子の励起エネルギーレベルや揺らぎの分子機構が明らかになってきた。
- b) 凝縮系ダイナミクスに関する研究として，温度低下による過冷却液体のダイナミクスの遅延化の分子起源の解明に取り組んでいる。過冷却液体状態は，構造的には通常の液体状態と類似しているが，ダイナミクスに関しては，液体状態のものに比べ遅くなっていくという特徴をもつ。液体から結晶への変化のような顕著な構造変化を伴わない過冷却液体の運動の遅延化の機構解明は，凝縮系物理学における長年の課題の一つである。我々は，反応速度論において提案された「動的乱れ」の概念に基づき，過冷却水における運動の遅延化における分子機構を明らかにした。
- c) 凝縮系ダイナミクスに関する研究として，我々は，反応・拡散過程に関する課題にも取り組んでいる。その研究の一つとして，揺らぎが引き起こす「異常」質量依存拡散現象について解析を進めている。軽水と重水はそれらの質量や化学的・熱力学的性質が類似しているため，同位体水を分離することは極めて困難である。しかし，最近，北川らにより開発された多孔質配位高分子 (PCP) を用いることにより，従来にない高効率で同位体水の分離が可能であることが実験的に明らかにされた。同位体水の分離機構として，PCP 内の配位子の構造揺らぎが考えられている。

しかし、その理論的な裏付けは未だ明らかにされていない。そこで我々は、実験系を単純化した理論モデルを構築し、
‘異常’質量依存の拡散現象の機構解明に取り組んでいる。

B-1) 学術論文

S.-I. KODA and S. SAITO, “Locating Transition States by a Variational Minimum Energy Path Search with an Energy-Derivative-Free Objective Function,” *J. Chem. Theory Comput.* **20(7)**, 2798–2811 (2024). DOI: 10.1021/acs.jctc.3c01246
J. ONO, Y. MATSUMURA, T. MORI and S. SAITO, “Conformational Dynamics in Proteins: Entangled Slow Fluctuations and Nonequilibrium Reaction Events,” *J. Phys. Chem. B* **128(1)**, 20–32 (2023). DOI: 10.1021/acs.jpcc.3c05307
T. INAGAKI, M. HATANAKA and S. SAITO, “Anisotropic and Finite Effects on Intermolecular Vibration and Relaxation Dynamics: Low-Frequency Raman Spectroscopy of Water Film and Droplet on Graphene by Molecular Dynamics Simulations,” *J. Phys. Chem. B* **127(26)**, 5869–5880 (2023). DOI: 10.1021/acs.jpcc.3c02109

B-4) 招待講演

S. SAITO, “Unraveling collective orientation relaxation in aqueous solution: Effects of ion and finite-size,” Asian Research Network for Terahertz Molecular Science, Kobe (Japan), March 2024.
S. SAITO, “Uncovering the secrets of water: Hidden structures and dynamics,” Theoretical Chemistry Symposium, Chennai (India), December 2023.
S. SAITO, “Structural change dynamics in molecular systems,” Structure and Dynamics of Chemical and Biomolecular Systems, Kanpur (India), October 2023.
S. SAITO, “Structural change dynamics in molecular systems,” Theory and Applications of Computational Chemistry (TACC) 2023, Sapporo (Japan), September 2023.
S. SAITO, “Conformational Dynamics of Biomolecules Revealed by Molecular Simulations,” 11th International Conference on Biological Physics (ICBP) 2023, Seoul (Korea), August 2023.

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

分子科学会運営委員 (2022–2024).

日中韓理論化学ワークショップ幹事 (2013–).

学会の組織委員等

Time-Resolved Vibrational Spectroscopy (TRCS2025) 組織委員 (2022–2025).

学会誌編集委員

日本化学会速報誌編集委員会委員 (2023–).

その他

森野基金 運営委員会委員 (2020–).

計算物質科学協議会 運営委員会委員 (2020–).

B-8) 大学等での講義, 客員

Indian Institute of Technology Kanpur, 客員教授, 2020年4月–2025年3月.

神戸大学, 非常勤講師, 2024年1月.

B-10) 競争的資金

科研費基盤研究(A), 「高等植物の光捕集アンテナタンパク質における効率的励起エネルギー移動の理論研究」, 齊藤真司 (2021年度–2025年度).

科研費挑戦的研究(開拓), 「凝縮系反応・構造力学における動的乱れの解明に向けた理論・計算手法の開拓」, 齊藤真司 (2023年度–2026年度).

科研費若手研究, 「シアノバクテリア時計タンパク質振動子の出力分子機構の理論的解明」, 甲田信一 (2022年度–2024年度).

C) 研究活動の課題と展望

我々は, 生体分子系の機能および凝縮系のダイナミクスに関する理論研究を進めている。これらの研究に関する展望は, 以下の通りである。

生体分子機能に関するダイナミクスに関しては, 高等植物のLHCIIにおける励起エネルギー移動の分子機構の解明をさらに進める。励起エネルギー移動の分子論的解明には, LHCII系の個々のChl分子の適切な電子状態とダイナミクスの記述が不可欠である。我々は, これらの物理量を適切に記述する方法論の開発に成功し, 膜中に存在するLHCIIにおける励起エネルギー移動ダイナミクスの解析を可能にした。今後, LHCII内の不均一な環境下でのChl分子の励起ダイナミクスを解析し, LHCIIにおける効率的なEETダイナミクスを分子レベルで解明することを目指す。これまでに我々は, 緑色硫黄細菌のFMOタンパク質における励起エネルギー移動を解析し, 各色素分子のエネルギー揺らぎがFMOタンパク質中の効率的な励起エネルギー移動に重要な役割を果たしていることを明らかにしてきた。そこで, LHCIIにおける励起エネルギー移動の解析を進め, LHCIIとFMOタンパク質の励起エネルギー移動を比較することにより, 天然光合成系における励起エネルギー移動の理解を深めていく。さらに, バクテリアと高等植物の異なる進化段階における励起エネルギー移動の普遍性や特異性を明らかにしたい。

凝縮系ダイナミクスに関する研究として, 凝縮系における構造変化や反応・拡散過程がどのように進行するかについて, さらに研究を進める。構造変化ダイナミクスに関しては, (過冷却)液体におけるガラス転移に向かう運動の遅延化の分子機構に関する研究を展開させる。系によりエネルギー地形が異なっており, エネルギー地形の違いは, fragility (すなわち, ダイナミクスの時間スケールの温度依存性)の違いに反映されることが知られている。そこで, 今後は, 異なるfragilityをもつ液体における運動の遅延化がどのように異なるのかについても明らかにしていきたい。また, 反応・拡散過程に関する課題としては, 多孔質配位高分子系により同位体水の高効率分離の分子機構の解明に向けた研究をさらに進める。構造変化ダイナミクスや拡散ダイナミクスの研究で明らかにしたように, 動的乱れ, すなわち, 揺らぎを露わに考慮しなければいけない環境下での反応・構造変化・拡散ダイナミクスは, 従来の結果には見られない複雑なダイナミクスの様相を示す。そこで, 新たな研究の方向性として, 揺らぐ環境下の酵素反応や核形成過程がどのように進行するかなどについても, これまでとは異なる新しい分子論的観点から明らかにしていきたい。

理論分子科学第二研究部門

石 崎 章 仁 (教授) (2016 年 4 月 1 日着任)

三輪 邦之 (助教)

布能 謙 (特任助教)

坂本 想一 (特任研究員)

増田 道子 (事務支援員)

A-1) 専門領域：理論物理化学

A-2) 研究課題：

- a) 光・量子科学技術に基づく複雑分子系の観測と制御の理論研究

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 着目する量子系が環境自由度によってゆらぎ・散逸・デコヒーレンスの影響を受ける状況を一般的に記述する、量子開放系の理論的枠組の構築に取り組んだ。特に、先行研究では環境の影響がガウスゆらぎで与えられる場合の解析が大部分であった。しかしながら、スピン環境、固体物性量子デバイスにおける二準位間ノイズ、電荷キャリアダイナミクスにおける格子振動の非調和性といった状況はガウスゆらぎで表すことができず、非ガウスゆらぎの理論構築が量子科学から材料科学といった幅広い分野から要請されている。そこで、本研究では非ガウスゆらぎの効果を説明すべく、確率過程の分野における Lévi-Itô の分解定理に着目した。この定理によると、すべての白色ノイズは白色ガウスノイズと白色ポアソンノイズの組み合わせで表すことができる。ノイズに時間相関がないような白色ノイズ領域における非ガウス環境の一般論の構築に向けて、その基礎となる、ポアソンノイズを発生させるような環境のモデル化を行い、マスター方程式の導出を行った。具体例として、複数の二準位系が環境と相互作用する状況を考え、基底状態へのエネルギー緩和レートの解析を行った。ガウス環境の場合は、緩和レートが二準位系の数に比例して大きくなるのに対し、ポアソン環境の場合は、緩和レートの上限がノイズの発生頻度によって与えられることを見出した。この結果は、環境の統計性の違いによって、散逸現象の性質が大きく異なることを強く示唆する。さらに、非ガウス環境を記述する量子開放系の一般理論の構築に向けて、古典確率過程で知られているノイズの数学的性質を量子ダイナミクスへ取り入れる手法の開発に取り組んでいる。また、環境自由度との相互作用によって着目する量子系にフィードバック制御が働くような状況を探索し、自律デーモンの数理モデルとの対応関係を探索している。より具体的には、自律デーモンを散逸量子ビット系でモデル化し、そのフィードバック動作の解析を行った。ガウス環境における、緩和によるエネルギー再配置過程との比較を行い、環境の非ガウス性が顕著に現れる状況を探索中である。
- b) 格子の柔軟性が電荷に及ぼす効果は、凝縮系物質の様々な物理的性質や機能の発現において重要な役割を果たす。このような観点から近年盛んに研究されている物質の例として、電荷キャリアの長寿命性や優れた欠陥耐性を有する高機能な太陽電池材料として注目されている、有機無機ハイブリッドペロブスカイト物質が挙げられる。最近では、これらの機能の発現に格子振動の 4 次の非調和性が重要な寄与をはたしている可能性が示唆され、ペロブスカイト物質の顕著な機能と格子の非調和性の関連について精力的な研究が行われている。しかし、非調和な格子振動に由来する非ガウス揺らぎに曝された電荷の量子ダイナミクスについては未だ十分な理解が得られていない。さらに、物

質における電荷の輸送過程では、電荷に対する揺動だけでなく、電荷輸送に伴う格子歪みのダイナミクスが重要であり、電荷に対する揺動と格子歪みダイナミクスの両者の記述が肝要となる。そこで本研究では、4次の非調和性を有する格子振動を粗視化・記述するために2つの安定状態を有する環境（双安定環境）を用い、双安定環境と結合する量子系のダイナミクスを記述する理論を構築した。理論解析および数値計算を用いた実証により、本理論は、双安定環境によってシステムにもたらされる揺動および散逸の影響を効果的に記述できることを確認した。また、これらの影響は、開放量子系の研究で広く用いられている Gauss 環境の場合とは異なる温度依存性を示し、特に散逸項の寄与は温度上昇とともに減少する振る舞いを示すことがわかった。この温度依存性の起源を環境のダイナミクス、すなわち再配置過程の観点から解析し、物理的意味を明らかにした。

- c) 昨年度までの研究により、CW レーザーを用いたパラメトリック下方変換によって生成される量子もつれ光子対の非古典相関を利用した時間分解分光理論を開発した。しかし、一対のもつれ光子を分子系に照射して誘起される非線形光学応答は非常に弱いので、それを検出することは困難であることが予想される。この課題を克服する解決策の一つはスクイズド光を利用することであると考えられる。この背景から、2023年度前半では、単一量子もつれ光子対の代わりに2モード真空スクイズド状態を光源として時間分解分光計測が可能であるかどうかを理論的に検討した。その結果、もつれ時間が分子系のダイナミクスの時間スケールに比べて十分短い場合であれば、2モード真空スクイズド状態を用いて時間分解スペクトルの情報を取得できることを理論的に示すことができた。2023年度後半では、もつれ光子対の二光子同時計数に基づく時間分解分光計測の可能性を検討した。時間分解分光法は、複雑分子系の動的過程を研究できる強力な実験手法の一つである。しかし、光合成光捕獲タンパク質のように多くの色素分子を含む分子系では、複数の非線形光学的寄与が存在するため、スペクトルが複雑となり、解釈が困難となることがある。この問題を解決するため、量子もつれ光子対の二光子同時計数に基づく時間分解分光法を理論的に提案した。解析の結果、もつれ光子対の二光子計数検出を利用することで特定の非線形光学的寄与を選択的に除去できることを理論的に明らかにした。この選択的除去は古典的なコヒーレント光では実現できず、光の非古典的相関がもたらす有用性を理論的に示した。提案する分光法は、光合成光捕獲タンパク質などの複雑分子系におけるスペクトルの解釈を単純化するのに役立つと考えられる。
- d) 2023年度は、光化学系II超複合体全体でのエネルギー移動ダイナミクスとクロロフィル分子の配置との関係性に着目し、エネルギー移動を記述するモデルを構築、解析を行った。年度の前半では、このモデルに対して量子力学とネットワーク解析を組み合わせたシミュレーションを実施した。先行研究では光合成タンパク内部でのエネルギー移動の解析が中心的に調べられてきた。一方光捕集機能や光防御機能といった光合成反応が高効率で起こる原理を理解するためには、複数のタンパクにまたがるエネルギー移動の解析が必要であり、その詳細なメカニズムは分かっていない。本研究では、近年クライオ電顕により解明された高精度の構造を用いた光化学系II超複合体のモデルを考え、上記の問題に取り組んだ。計算の結果、励起状態寿命と電荷分離収率に関して先行研究の実験で報告された値とシミュレーション結果が良く一致し、本研究で用いた手法と構築したモデルが妥当であることを示した。2023年度の後半では、上記の研究をさらに前進させ、光合成反応中心タンパクへとエネルギーが輸送される経路について詳細な解析を行った。シミュレーションによると、エネルギーがある特定のクロロフィル分子を通過し、それらは先行研究で過剰な光エネルギーを散逸させるサイトの可能性が指摘されているクロロフィルであることを見出した。本研究により、緑色植物は過剰な光エネルギーを受けて初めて光防御反応に切り替えるというよりもむしろ、前もって光防御反応に備えたエネルギー移動ネットワークを構築していることを示唆する結果を得た。

B-1) 学術論文

Y. FUJIHASHI, A. ISHIZAKI and R. SHIMIZU, “Pathway Selectivity in Time-Resolved Spectroscopy Using Two-Photon Coincidence Counting with Quantum Entangled Photons,” *J. Chem. Phys.* **160**, 104201 (2024). DOI: 10.1063/5.0189134

J. Y. DONG, Y. KITAHAMA, T. FUJITA, M. ADACHI, Y. SHIGETA, A. ISHIZAKI, S. TANAKA, T. H. XIAO and K. GODA, “Manipulation of Photosynthetic Energy Transfer by Vibrational Strong Coupling,” *J. Chem. Phys.* **160**, 045101 (2024). DOI: 10.1063/5.0183383

B-3) 総説, 著書

藤橋裕太, 石崎章仁, 「第3章第2節 量子もつれ光による時間分解分光手法の開発」, 量子生命科学ハンドブック, (株) エヌ・ティー・エス (2024).

B-4) 招待講演

石崎章仁, 「Quantum biophysical chemistry: Old roots, new shoots」, 特別講演会, 京都大学大学院工学研究科分子工学専攻, 京都府京都市, 2024年1月.

石崎章仁, 「光化学系II 超複合体の量子開放系+ネットワークモデリング」, Q-LEAP Flagship プログラム「量子生命技術の創製と医学・生命科学の革新」第7回領域会議, 東京都千代田区, 2024年1月.

石崎章仁, 「量子散逸系としての光捕集系ダイナミクス」, 「1000 テスラ超強磁場による化学的カタストロフィー：非摂動磁場による化学結合の科学」第2回領域会議, 東京都調布市, 2023年12月.

石崎章仁, 「Quantum biophysical chemistry: Old roots, new shoots」, 物理化学特別セミナー, 東京大学大学院理学系研究科化学専攻, 東京都文京区, 2023年11月.

石崎章仁, 「量子生物物理学における誤り訂正」, Q-LEAP 量子AI × 量子生命交流会, 大阪大学基礎工学国際棟, 大阪府豊中市, 2023年10月.

A. ISHIZAKI, “Probing exciton dynamics with spectral selectivity through the use of quantum entangled photons,” Les Houches School of Physics Workshop on Quantum Dynamics and Spectroscopy of Functional Molecular Materials and Biological Photosystems, Les Houches (France), September 2023.

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

量子生命科学会 学術委員会委員 (2019–2024).

学会の組織委員等

第61回生物物理学会年会実行委員 (2023).

文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

文部科学省科学技術・学術政策研究所科学技術動向研究センター専門調査員 (2015–).

東京大学物性研究所協議会委員 (2022–2024).

学会誌編集委員

日本物理学会会誌編集委員 (2023–2025).

B-8) 大学等での講義, 客員

京都大学大学院工学研究科, 非常勤講師, 2023年10月-2024年3月.

B-10) 競争的資金

科研費基盤研究(B), 「量子分子計測と動力学解析の理論基盤」, 石崎章仁 (2021年度-2024年度).

科研費若手研究, 「単一分子接合系における光・電子・スピンの超高速ダイナミクスに関する理論的研究」, 三輪邦之 (2021年度-2024年度).

科研費若手研究, 「非マルコフ領域における有限時間量子制御手法と量子熱力学への応用」, 布能 謙 (2023年度-2026年度).

文部科学省光・量子飛躍フラッグシッププログラム (Q-LEAP), 「Flagship プロジェクト: 量子生命技術の創製と医学・生命科学の革新」 (代表: 馬場嘉信), 「量子論的生命現象の解明・模倣」, 石崎章仁 (研究分担者) (2020年度-2024年度).

C) 研究活動の課題と展望

生体及び有機物質系における励起子及び電荷移動などの動力学過程は、周囲の溶媒、タンパク質、分子の核運動等の影響を受けることによって多様かつ頑健な機能を生み出しており、その全容を明晰に理解することは物理学の最も魅力的な問題の一つである。このような複雑な相互作用により生ずる非自明な機能を理解するためには、各動力学過程における様々な要素の適切な理論的取り扱いが必要である。我々は、量子散逸系のダイナミクス理論を用い、または新たに発展させ、複雑な分子系における物理現象の本質的かつ簡明な理解を得ることを目指している。また同時に、最新の量子科学技術を適用することで、従来技術と比較してより詳細な分子系の情報を得ることが可能な手法の開発に向けて研究を進めている。

計算分子科学研究部門

江 原 正 博 (教授) (2008 年 6 月 1 日着任)

白男川 貴史 (助教)

ZHAO, Pei (特任助教)

稲井 直人 (特任研究員)

杉本 縁 (事務支援員 (派遣))

A-1) 専門領域：量子化学，理論化学，触媒化学，光物性科学

A-2) 研究課題：

- アニオンテンプレート銀クラスターの構造，電子状態，電子スペクトルの解析
- 多元素金属イオンクラスター CAu_6Ag_n ($n = 2-4$) の発光量子収率の制御
- NHC 配位子制御による CAu^I_6 クラスターのパイポ・メカノルミノクロミズム
- 三重螺旋ニッケル三核メタロクリプタンドの P/M 異性体の変換ダイナミクスの制御
- 異なるねじれ構造をもつ環状パラジウム三核錯体の創成とねじれ反転速度の制御
- 通信波長の発光を示す修飾単層カーボンナノチューブの開発

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- 金属ナノクラスターは発光機能や触媒活性を示し，近接場の化学事象でも注目されている。近年，数種のアニオンをテンプレートとした金属クラスターが開発されているが，その構造や電子状態については十分研究されていない。硫黄および塩素アニオンを核とする新規なアニオンテンプレート銀クラスター (S@Ag_{17} , S@Ag_{18} , Cl@Ag_{18}) を創成し，その構造や電子スペクトルの理論解析を実施した。理論計算はこれらの金属クラスターの構造の対称性を再現し，中心アニオンと包接銀クラスターが静電相互作用で安定化することを解明した。電子状態はアニオンフリーの金属クラスターにみられる超原子構造ではなく配位子に非局在化した軌道が混在することを明らかにした。理論計算は電子スペクトルを良く再現し，詳細な帰属を与えた。 Cl@Ag_{18} の場合はイオン対との計算から broken-symmetry 解が安定であることが示され，開殻電子構造が安定であることを示した。
- 多核金クラスターは，金原子間の Aurophilicity に基づく構造特異的な光物性を示す。また，金属クラスターの表面設計は，金属アレイ特有の化学的特性を開発する重要な手法である。1-2 個のピコリル基を持つ *N*-ヘテロ環状カルベン (NHC) 配位子を用いて，特定数の銀 (I) 原子を持つ $\text{CAu}^I_6\text{Ag}^I_n$ ($n = 2-4$) 合金クラスターの開発に成功した。クラスターのリン光発光強度は銀のシェル構造に大きく依存し， $\text{CAu}^I_6\text{Ag}^I_2$ の発光量子収率は 0.86 であるが， $\text{CAu}^I_6\text{Ag}^I_3$ では 0.04 まで著しく低下する。さらに Ag^I イオンの数を増やす ($\text{CAu}^I_6\text{Ag}^I_4$) と量子収率は 0.40 に回復した。理論解析から， Ag^I イオンと NHC 配位子によってクラスターの構造と電子構造の制御がなされており，これらが要因となり発光の量子収率が制御されていることを明らかにした。本研究により，異種金属クラスターの原子レベルでの表面構造と光物性の関係が明らかになった。
- ルミノクロミック金クラスターは，その構造に起因するユニークな光学応答特性により，分析化学への応用が期待されている。しかし，可逆的な刺激応答特性を付与することは容易ではない。本研究では *N,N'*-ジベンジルペンズイミ

ダゾリリデン配位子 (BIBn) で保護された CAu_6^I クラスターが可逆的なマルチ刺激応答ルミノクロミズムを示すことを見出した。溶媒の添加と乾燥により、青色とターコイズ色の発光色を示す 2 種類の結晶が得られ、相互変換可能であることを示した。理論計算から、BIBn 配位子のコンフォメーションの違いが光物性に影響し、 CAu_6^I コアに結合した BIBn 配位子の柔軟性がルミノクロミズムの要因であることを明らかにした。さらにこれらの結晶を粉砕すると、結晶性が部分的に失われ、緑色発光することが分かった。バイボ・メカノルミノクロミズムの両方を示す顕著な例であり、金属クラスターの刺激応答性を支配する原理を理解するためのモデル化合物として期待される。

- d) キラル分子の左手型と右手型の変換を動的に制御することは近年の分子技術で注目されている。しかし、変換速度を制御することは容易ではない。本研究では、三重螺旋構造をもつニッケル三核メタロクリプタンドを合成し、アルカリイオンを導入することによって、左手型 (M 体) から右手型 (P 体) の変換速度を 1000 倍制御することに成功した。理論計算によって、アルカリイオンが存在しない場合は、左手型 (M 体) が安定であることを示し、円二色性スペクトルを 8 種類の構造異性体からシミュレートした。カリウムイオンが導入された場合は、P/M 変換速度が半減期 11 秒であるのに対して、セシウムイオンの場合は約 3 時間になる。アルカリイオンが包接されたときの酸素原子の配位構造の違いと P/M 変換の遷移状態の構造により、変換速度の違いを考察した。
- e) 分子機械は分子の運動を外部刺激によって制御できるが、最近では、より複雑な分子運動を制御する研究が注目されている。本研究では、錯体形成反応を駆使して、2 種類のねじれ異性体をもつ環状パラジウム三核錯体を選択的に合成し、ねじれの度合いの違いのみで運動速度を制御することに成功した。弱くねじれた異性体では、反転速度は 3.31 s^{-1} であるのに対して、強くねじれた異性体では、反転が観測されないほど遅くなること、強くねじれた異性体から弱くねじれた異性体に緩和することが見出された。理論計算では、2 種類の異性体の局所安定構造を確認し、安定構造では C-H と Pd の相互作用が重要であることを示した。また、DFT 計算の汎関数の依存性を確認した上で、2 種類の異性体の円二色性スペクトルを再現し、帰属することに成功した。
- f) 修飾 SWNT は、化学修飾により局所的バンドギャップを調整して近赤外発光を誘起することができる。しかし、発光波長を通信波長 (1300 nm 以上) に制御することは、依然として困難であった。本研究では、(6,5)-SWNT を環状フルオロアルキル化することで、最長発光波長 1320 nm の近赤外発光を選択的に発現させることに成功した。さらにこの手法は 5 つの異なるキラル角を持つ SWNT でも有効であることを示した。理論計算を用いて局所的なバンドギャップの変調機構を系統的に調査し、最長波長発光には環状置換体およびフルオロ化による局所構造変化と電子状態が関与していることが示された。これらの知見は、修飾 SWNT の構造と局所バンドギャップの制御法に関する理解を深めるものであり、発光・励起波長を拡張した近赤外発光材料の開発と応用に貢献することが期待される。

B-1) 学術論文

S. MURATSUGU, K. SAWAGUCHI, T. SHIRAOGAWA, S. CHIBA, Y. SAKATA, S. SHIRAI, H. BABA, M. EHARA, S. AKINE and M. TADA, “Induced Chirality at Surface: Fixation of a Dynamic *M/P* Invertible Helical Co_3 Complex on SiO_2 ,” *Chem. Commun.* **60(15)**, 2094–2097 (2024). DOI: 10.1039/D3CC05534E

B. BOEKFA, T. MAIHOM, M. EHARA and J. LIMTRAKUL, “Investigation of the Suzuki-Miyaura Cross-Coupling Reaction on Palladium H-Beta Zeolite with DFT Calculations,” *Sci. Rep.* **14(1)**, 611 (2024). DOI: 10.1038/s41598-023-51116-x

Y. SHUI, D. LIU, P. ZHAO, X. ZHAO, M. EHARA, X. LU, T. AKASAKA and T. YANG, “Element Effects in Endohedral Metal–Metal-Bonding Fullerenes $\text{M}_2@C_{82}$ ($\text{M} = \text{Sc}, \text{Y}, \text{La}, \text{Lu}$),” *J. Chem. Phys.* **159(24)**, 244302 (2023). DOI: 10.1063/5.0180309

T. NAKAJIMA, S. TASHIRO, M. EHARA and M. SHIONOYA, “Selective Synthesis of Tightly- and Loosely-Twisted Metallomacrocyclic Isomers Towards Precise Control of Helicity Inversion Motion,” *Nat. Commun.* **14(1)**, 7868 (2023). DOI: 10.1038/s41467-023-43658-5

S. A. IKBAL, P. ZHAO, M. EHARA and S. AKINE, “Acceleration and Deceleration of Chirality Inversion Speeds in a Dynamic Helical Metallochromophore by Alkali Metal Ion Binding,” *Sci. Adv.* **9(44)**, eadj5536 (2023). DOI: 10.1126/sciadv.adj5536

J. L. JIN, S. F. ZHANG, P. ZHAO, Y. L. SHEN, J. J. FANG, Z. LIU, M. EHARA, L. W. MI, Y. P. XIE and X. LU, “Ag₆Cu₈(C=CAr)₁₄(DPPB)₂: A Rigid Ligand Co-Protected Bimetallic Silver(I)-Copper(I) Cluster with Room-Temperature Luminescence,” *Chem. –Asian J.* **18(22)**, e202300844 (2023). DOI: 10.1002/asia.202300844

W. W. WANG, X. ZHAO and M. EHARA, “Mechanistic Studies of Regiocontrolled Bisaddition of Fullerenes Driven by Oriented External Electric Fields,” *J. Org. Chem.* **88(22)**, 15783–15789 (2023). DOI: 10.1021/acs.joc.3c01850

Y. HORITA, S. HOSSAIN, M. ISHIMI, P. ZHAO, M. SERA, T. KAWAWAKI, S. TAKANO, Y. NIIHORI, T. NAKAMURA, T. TSUKUDA, M. EHARA and Y. NEGISHI, “Clarifying the Electronic Structure of Anion-Templated Silver Nanoclusters by Optical Absorption Spectroscopy and Theoretical Calculation,” *J. Am. Chem. Soc.* **145(43)**, 23533–23540 (2023). DOI: 10.1021/jacs.3c07194

L. H. FOIANESI-TAKESHIGE, X.-L. PEI, P. ZHAO, H. UBE, Z. LEI, M. EHARA and M. SHIONOYA, “Reversible Luminescence of an *N*-Heterocyclic Carbene-Protected Carbon-Centered Hexagold(I) Cluster by Solvent and Mechanical Stimuli,” *Adv. Opt. Mater.* **11**, 2301650 (2023). DOI: 10.1002/adom.202301650

Y. MAEDA, R. MOROOKA, P. ZHAO, M. YAMADA and M. EHARA, “Control of Functionalized Single-Walled Carbon Nanotube Photoluminescence via Competition between Thermal Rearrangement and Elimination,” *Chem. Commun.* **59**, 11648–11651 (2023). DOI: 10.1039/d3cc02965d

Y. MAEDA, Y. SUZUKI, Y. KONNO, P. ZHAO, N. KIKUCHI, M. YAMADA, M. MITSUISHI, A. T. N. DAO, H. KASAI and M. EHARA, “Selective Emergence of Photoluminescence at Telecommunication Wavelengths from Cyclic Perfluoroalkylated Carbon Nanotubes,” *Commun. Chem.* **6(1)**, 159 (2023). DOI: 10.1038/s42004-023-00950-1

Z. LEI, P. ZHAO, X. L. PEI, H. UBE, M. EHARA and M. SHIONOYA, “Photoluminescence Control by Atomically Precise Surface Metallization of *C*-Centered Hexagold(I) Clusters Using *N*-Heterocyclic Carbenes,” *Chem. Sci.* **14(23)**, 6207–6215 (2023). DOI: 10.1039/d3sc01976d

T. SHIROGAWA and J. HASEGAWA, “Optimization of General Molecular Properties in the Equilibrium Geometry Using Quantum Alchemy: An Inverse Molecular Design Approach,” *J. Phys. Chem. A* **127(19)**, 4345–4353 (2023). DOI: 10.1021/acs.jpca.3c00205

Y. LIU, K. YUAN, M. LI and P. ZHAO, “Nanoscale Saturn Systems Based on C_{60/70} Bucky Ball and a Newly Designed [4] Cyclopara-1,2-diphenylethylene Hoop: A Strategy for Fullerene Encapsulation Release and Selective Recognition for C₇₀,” *Inorg. Chem.* **62(23)**, 8993–9004 (2023). DOI: 10.1021/acs.inorgchem.3c00665

B-3) 総説, 著書

Y. MAEDA, P. ZHAO and M. EHARA, “Recent Progress in Controlling the Photoluminescence Properties of Single-Walled Carbon Nanotubes by Oxidation and Alkylation,” *Chem. Commun.* **59(98)**, 14497–14508 (2023). DOI: 10.1039/D3CC05065C

前田 優, 江原正博, 「解説: 化学修飾でカーボンナノチューブの近赤外発光特性を制御——バイオイメージングや光量子デバイスの光源としての活用を目指して」, *化学*, **79**, 37–40 (2024).

秋山 葵, Sakiat Hossain, 新堀佳紀, 川脇徳久, 緒方大二, Pei Zhao, 湯浅順平, 江原正博, 根岸雄一, 「解説: スルフォネート保護銀ナノクラスターの合成と発光特性評価」, *ナノ学会誌*, **22**, 13–19 (2023).

B-4) 招待講演

M. EHARA, “Nanocluster and Heterogeneous Catalysis: Interplay between Theory and Experiment,” The 16th Eurasia Conference on Chemical Sciences 2023, Bangkok (Thailand), December 2023.

M. EHARA, “Aggregation Induced Photoluminescence of Metal Complexes and Nanoclusters,” Chimie ParisTech, Paris (France), November 2023.

M. EHARA, “Photofunctions of Complex Systems and Nanoclusters,” Chimie ParisTech, Paris (France), November 2023.

M. EHARA, “Photofunctions of Complex Systems and Nanoclusters Focusing on Inverse Design Approach,” IIIT Hyderabad, Hyderabad (India), October 2023.

M. EHARA, “Photofunctions of Complex Systems and Nanoclusters Focusing on Inverse Design Approach,” The 26th Quantum Systems in Chemistry, Physics, and Biology (QSCP-XXVI), Jaipur (India), October 2023.

M. EHARA, T. SHIRAOGAWA and P. ZHAO, “Photofunctions of Complex Systems and Nanoclusters Focusing on Inverse Design Approach,” Theory and Applications of Computational Chemistry (TACC2023), Sapporo (Japan), September 2023.

M. EHARA, “Nanocluster and Heterogeneous Catalysis: Interplay between Theory and Experiment,” Taiwan International Conference on Catalysis (TICC-2023), Tainan (Taiwan), June 2023.

江原正博, 「計算科学研究センターの施設紹介: 超階層生物学で有効利用いただくために」, *生命と情報の新たなる融和: 超階層生物学とAI・数理*, 岡崎, 2024年2月.

江原正博, 「量子逆設計理論による機能設計および分子研・計算センターのデータ科学への取組み」, データ連携部会第5回意見交換会, 物性研オンライン, オンライン開催, 2023年7月.

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

分子科学会運営委員 (2020–2024).

理論化学会副会長 (広報・会誌・懸賞担当)(2021–2023), 幹事 (2019–2023), 企画委員 (2019–2023), 幹事選出委員 (2023).

触媒学会界面分子変換研究会世話人会委員 (2015–), コンピュータの利用研究会世話人会委員 (2018–), 元素循環触媒研究会委員 (2022–2024).

量子化学研究協会理事 (2006–2024).

日本化学会東海支部常任幹事 (2022–2024), 会計幹事 (2023–2024).

計算物質科学協議会, 運営委員会委員 (2020–2024).

学会の組織委員等

The Vth Theory and Applications of Computational Chemistry (TACC) Conference, Sapporo, Japan, Organizing Committee (2019–2023).

The VIIIth Japan-Czech-Slovakia (JCS) Symposium on Theoretical Chemistry, Sapporo, Japan, Organization Committee (2019–2024).

文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

日本学術振興会学術システム研究センター専門研究員 (2020–2024).

東京大学物性研究所計算物質科学研究センター運営委員会委員 (2020–2024).

東北大学金属材料研究所共同利用委員会および採択専門委員会委員 (2021–2025).

東北大学金属材料研究所イノベーション創出人材育成委員会委員 (2015–2024).

東京大学物性研究所データ創出活用型マテリアル研究開発プロジェクトデータ連携部会委員 (2022–2024).

学会誌編集委員

Journal of Computational Chemistry, Editor-in-Chief (2012–).

Theoretical Chemistry Accounts, Editorial Board (2015–).

The Chemical Record, Editorial Board (2015–).

Wiley Periodicals, Editor (2022–).

理科教育活動

出前授業「Science English (サイエンス・イングリッシュ)」愛知県立岡崎北高等学校 (2023). (ZHAO, Pei)

その他

量子化学スクール世話人 (2011–).

計算物質科学スパコン共用事業運営委員会委員 (2019–).

計算物質科学連絡会議委員 (2019–).

B-8) 大学等での講義, 客員

大阪大学工学部, 非常勤講師, 「計算機化学」, 2023年4月–2024年3月.

総合研究大学院大学, 「基礎物理化学I」, 2023年7月.

B-10) 競争的資金

日本学術振興会学術動向等に関する調査研究 (受託研究), 「基礎物理化学関連分野に関する学術研究動向—複雑系の理論・計算科学の新たな潮流と展開—」, 江原正博 (2020年度–2023年度).

科研費学術変革領域研究 (A), 「超螺旋光に基づくキラル光物性の量子逆設計理論」, 江原正博 (2022年度–2026年度).

科研費特別研究員奨励費, 「電子状態理論に基づく理論触媒設計法の開発と高機能分子触媒設計・開発への応用」, 白男川貴史 (2021年度–2023年度).

科研費基盤研究 (S), 「光エネルギーの高度活用に向けた分子システム化技術の開発」 (代表: 君塚信夫), 江原正博 (研究分担者) (2020年度–2024年度).

科学技術振興機構CREST研究, 「多元素金属イオンクラスターの精密設計と自在配列が拓く新物質科学」 (代表: 塩谷光彦), 江原正博 (共同研究者) (2022年度–2027年度).

C) 研究活動の課題と展望

我々は、高精度電子状態理論を基盤として、光機能性分子の電子過程や金属微粒子・バルク触媒を主たる対象とした理論研究を実施し、新しい化学概念を構築することを目的として研究を進めている。近年、電子状態理論では大規模化が進展し、ナノ材料やバイオ系への応用が展開している。しかし、複雑な励起状態や固体表面などに対して信頼性のある情報を提供できる理論は未だ開発途上にあり、さらに開発を進める必要がある。高機能化と大規模化の観点から我々の方法を発展させるとともに、固体表面を高精度に記述できる理論開発を行う。光機能性分子の電子過程の研究では、励起状態における構造緩和や分子間相互作用について検討し、分子システムとしての機能設計へと展開する。分子系・分子集合系の非対称性に関わる励起子相互作用や非対称因子、錯体光化学反応に関する理論研究を実験と協力して進める。2022年度から、学術変革領域研究(A)「光の螺旋性が拓くキラル物質科学の変革」が発足した。量子逆設計理論を用いて、超螺旋光に基づくキラル光物性の理論解析・設計に関する研究を推進する。また、CREST「多元素金属イオンクラスターの精密設計と自在配列が拓く新物質科学」では、多元素金属イオンクラスターの光物性や触媒反応活性について理論解析・設計の研究を推進する。

奥村 久士 (准教授) (2009年5月1日着任)

伊藤 暁 (助教)

谷本 勝一 (学振特別研究員)

SULONG, Nor Akmalayati (インターンシップ)

大多和 克紀 (大学院生)

鈴木 日奈子 (特別共同利用研究員)

川口 律子 (事務支援員)

A-1) 専門領域：理論生物物理学, 理論化学物理学

A-2) 研究課題：

- a) アミロイド β ペプチドの凝集過程を解明する大規模分子動力学シミュレーション
- b) 粗視化モデルによるアミロイド線維形成のモンテカルロシミュレーション法の開発
- c) アルギニンによるポリグルタミンタンパク質の凝集阻害効果の解明
- d) 生体膜上の流れを再現する分子動力学シミュレーション手法の開発

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) アルツハイマー病はアミロイド β ($A\beta$) ペプチドの凝集体が原因で発症する。 $A\beta$ には 42 残基からなる $A\beta_{42}$ と 40 残基からなる $A\beta_{40}$ の 2 種類がある。我々は昨年度までに 2 本の $A\beta_{42}$ からなる系および 2 本の $A\beta_{40}$ からなる系の分子動力学シミュレーションを実行し、① $A\beta$ が β ヘアピン構造を形成している時に凝集しやすいこと、② $A\beta_{42}$ の方が $A\beta_{40}$ よりも β ヘアピン構造を形成しやすいため凝集しやすいこと、③ 5 番目のアミノ酸残基であるアルギニンが凝集のカギとなっていることを解明してきた。これらの成果によりタンパク質の凝集に関する理論研究で世界をリードしている。現在はより大規模な凝集過程を解明するために 32 本の $A\beta_{42}$ および $A\beta_{40}$ からなる系の分子動力学シミュレーションを実行している。これまでに 1.8 マイクロ秒のシミュレーションが完了し、12 量体などより大きなオリゴマーの形成を再現することに成功した。今後より詳細な凝集メカニズムを解明する。
- b) アミロイド線維が伸長する過程は全原子モデルによるシミュレーションの時間スケールよりはるかに長い。そこでアミロイド線維伸長過程をシミュレーションするための粗視化モデルを提唱した。このモデルではタンパク質 1 分子を 1 つの球で表し、格子点上を移動する。一次元方向にこの球が吸着することでアミロイド線維の伸長を表す。この手法を用いて、 $A\beta$ ペプチドのアミロイド線維が一方向にしか伸長しないこと、伸長する局面と一時停止する局面があること、などの実験結果を再現することができた。
- c) ポリグルタミンタンパク質はグルタミンの繰り返し異常に拡張したもので、ハンチントン病などのポリグルタミン病を引き起こす。これまでの実験研究から、アルギニンがポリグルタミンタンパク質の凝集を抑制することが明らかになっている。我々は、アルギニンだけが持つポリグルタミンタンパク質の凝集抑制機構を明らかにするために、アルギニンと 1 本のポリグルタミンからなる系およびリジンと 1 本のポリグルタミンからなる系のレプリカ置換分子動力学シミュレーションを行った。その結果、①アルギニンは同じく正電荷を持つリジンに比べてポリグルタミンタンパク質とよく水素結合を形成すること、②このためアルギニンが存在するとポリグルタミンは凝集の核となる β ヘアピン構造を形成しにくくなること、③この効果はリジンでは見られないことを明らかにした。このようにアルギニン

の有無がポリグルタミンの分子内構造に大きな違いを生じさせていることを明らかにした。これはポリグルタミンタンパク質の凝集抑制効果の解明につながる発見である。

- d) 我々は昨年度生体膜表面上で溶液の流れを発生させるための非平衡分子動力学シミュレーション法を開発した。この手法では生体膜の重心をラグランジュ未定乗数法で固定しながら、生体膜上の溶液には一定の加速度を加えることで生体膜上の流れを作り出している。この手法を用いると生体膜に挟まれた領域のポアズイユ流を作り出すことができる。生体膜上のポアズイユ流を再現できる計算手法はこれが初めて唯一である。今年度はこの手法を使った脂質二重膜上の流れのシミュレーションを数多く行うことで統計量を増やし、その流れの性質を詳細に解析した。その結果、膜から離れた領域では剛体平板上のポアズイユ流と同様に放物線状の流れが作られる一方、膜との境界近くでは放物線状にならないことを発見した。その理由は界面が揺らぎ凸凹していることに起因することも解明した。

B-1) 学術論文

S. TANIMOTO and H. OKUMURA, “Theoretical Analysis of the Aggregation-Inhibition Effect of Arginine on Polyglutamine Protein by the Generalized-Ensemble Method,” *J. Comput. Chem., Jpn.* **22(2)**, 18–20 (2023). DOI: 10.2477/jccj.2023-0020

D. FUKUHARA, S. G. ITOH and H. OKUMURA, “Inhibition of Amyloid- β (16–22) Aggregation by Polyphenols Using Replica Permutation with Solute Tempering Molecular Dynamics Simulation,” *Biophys. Physicobiol.* **20(4)**, e200045 (2023). DOI: 10.2142/biophysico.bppb-v20.0045

H. OKUMURA, S. G. ITOH, H. ZEN and K. NAKAMURA, “Dissociation Process of Polyalanine Aggregates by Free Electron Laser Irradiation,” *PLoS One* **18**, e0291093 (2023). DOI: 10.1371/journal.pone.0291093

M. YAGI-UTSUMI, S. G. ITOH, H. OKUMURA, K. YANAGISAWA, K. KATO and K. NISHIMURA, “The Double-Layered Structure of Amyloid- β Assemblage on GM1-Containing Membranes Catalytically Promotes Fibrillization,” *ACS Chem. Neurosci.* **14(15)**, 2648–2657 (2023). DOI: 10.1021/acscemneuro.3c00192

H. KOYAMA, H. OKUMURA, A. M. ITO, K. NAKAMURA, T. OTANI, K. KATO and T. FUJIMORI, “Effective Mechanical Potential of Cell–Cell Interaction Explains Three-Dimensional Morphologies during Early Embryogenesis,” *PLoS Comput. Biol.* **19(8)**, e1011306 (2023). DOI: 10.1371/journal.pcbi.1011306

B-3) 総説、著書

H. OKUMURA, “Perspective for Molecular Dynamics Simulation Studies of Amyloid- β Aggregates,” *J. Phys. Chem. B* **127(51)**, 10931–10940 (2023). DOI: 10.1021/acs.jpcc.3c06051

伊藤 暁, 奥村久士, 矢木真穂, 加藤晃一, 「アミロイドベータペプチドの凝集初期過程の分子シミュレーション」, 月刊「細胞」, **55(10)**, 784–788 (2023).

奥村久士, 「分子シミュレーションによるタンパク質のフォールディング／ミスフォールディング」, タンパク質の構造解析手法と In silico スクリーニングへの応用事例, 第4章(第5節), 254–262 (2023).

奥村久士, 「超音波と赤外線レーザーによるアミロイド線維の破壊を分子動力学シミュレーションで見る」, 高圧力の科学と技術, **33(2)**, 76–82 (2023).

B-4) 招待講演

奥村久士,「アミロイドβ凝集体の分子動力学シミュレーション」, 学術変革B「動的溶液環境」zoom セミナー, オンライン開催, 2024年2月.

奥村久士,「中赤外レーザーによるアミロイドβ凝集体の選択的破壊」, 多元技術融合光プロセス研究会, 東京, 2023年8月.

奥村久士,「コンピュータシミュレーションで見るアルツハイマー病原因物質の分子動画」, 第32回高速分子動画オンラインセミナー, オンライン開催, 2023年8月.

伊藤 暁,「分子シミュレーションを用いたアミロイド線維形成初期過程の解明」, 第23回日本蛋白質科学会年会, 名古屋, 2023年7月.

奥村久士,「各種統計アンサンブルの生成法」, 第17回分子シミュレーションスクール—基礎から応用まで—, 岡崎市, 2023年9月.

S. G. ITOH, “Molecular dynamics simulation of amyloid-β peptides in bulk water and at hydrophilic/hydrophobic interfaces,” Telluride Science Winter Workshop “The Role of Fluctuations and Dynamics in Biomolecular Function,” Telluride (USA), January 2024.

H. OKUMURA, “Molecular dynamics simulation for the causative substance of Alzheimer's disease,” 5th International Conference on Materials Research and Innovation, Bangkok (Thailand), December 2023.

S. G. ITOH, “Early process of oligomer formation of amyloid-β peptides using the Coulomb replica-permutation method,” The 16th Eurasia Conference on Chemical Sciences, Bangkok (Thailand), December 2023.

H. OKUMURA, “Amyloid-fibril dissociation observed by nonequilibrium molecular dynamics simulation,” The 16th Eurasia Conference on Chemical Sciences, Bangkok (Thailand), December 2023.

S. G. ITOH, “Generalized-ensemble algorithms for protein oligomerization processes,” ACS Global Innovation Imperatives —7th International Conference on Computation for Science and Technology, Kuala Lumpur (Malaysia), December 2023.

H. OKUMURA, “Disease-related proteins studied by molecular dynamics simulations,” ACS Global Innovation Imperatives —7th International Conference on Computation for Science and Technology, Kuala Lumpur (Malaysia), December 2023.

H. OKUMURA, “All-atom molecular dynamics simulations for the formation and dissociation of amyloid-β aggregates,” The 61st Annual Meeting of the Biophysical Society of Japan, Liquid-liquid phase separation and amyloid formation driven by dynamic solution environments, Nagoya (Japan), November 2023.

H. OKUMURA, “Key factors for aggregation and disaggregation of amyloid-β peptides revealed by molecular dynamics simulations,” 19th International Conference of Computational Methods in Sciences and Engineering, Heraklion (Greece), September 2023.

H. OKUMURA, “Aggregation and disaggregation of amyloid-β peptides observed by all-atom molecular dynamics simulations,” The 26th International Annual Symposium on Computational Science and Engineering, Pattaya (Thailand), July 2023.

H. OKUMURA, “Molecular dynamics simulations for disease-related proteins,” Theoretical Physics Seminar, Warsaw (Poland), June 2023.

H. OKUMURA, “Replica-permutation and nonequilibrium molecular dynamics simulations for protein aggregates,” Biomolecules and Nanostructures 8, Krakow (Poland), June 2023.

B-6) 受賞, 表彰

谷本勝一, 伊藤 暁, 奥村久士, 日本シミュレーション学会ベストオーサー賞 (2023).

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

日本物理学会名古屋支部役員 (2017-).

学会の組織委員等

XXXIV IUPAP Conference on Computational Physics (CCP2023), Steering Committee member (実行委員) (2021-).

日本生物物理学会第 61 回日本生物物理学会年会実行委員 (2023-2024).

日本蛋白質科学会第 23 回日本蛋白質科学会年会ワークショップオーガナイザー (2023-2024).

B-8) 大学等での講義, 客員

名古屋市立大学大学院薬学研究科, 客員准教授, 2019年 4月-.

名古屋市立大学大学院薬学研究科, 創薬生命科学特別講義「病気関連生体分子の分子動力学シミュレーション / Molecular dynamics simulation of disease-related biomolecules」, 2023年 5月.

総合研究大学院大学先端学術院, 集中講義「生体分子シミュレーション」, 2023年 12月.

中京大学, 非常勤講師, 2023年 09月-2024年 3月. (伊藤 暁)

B-10) 競争的資金

科研費基盤研究(C), 「レーザー照射によるアミロイド線維の破壊機構を分子動力学シミュレーションで解明する」, 奥村久士 (2021年度-2023年度).

科研費基盤研究(C), 「計算機シミュレーションによる脂質膜上でのアミロイドベータペプチドの凝集過程の解明」, 伊藤 暁 (2021年度-2023年度).

科研費若手研究, 「アルギニンによるポリグルタミンタンパク質の凝集阻害過程の理論研究」, 谷本勝一 (2021年度-2023年度).

C) 研究活動の課題と展望

- a) 我々は最近, アミロイド β ペプチドの凝集の鍵が5番目の残基・アルギニンの持つ正電荷にあることを明らかにした。この研究では二量体について調べたが, さらに大きな凝集体の形成メカニズムを明らかにするため, 現在 32本のA β 42およびA β 40からなる大規模系の分子動力学シミュレーションを実行している。この系の二次構造, 分子揺らぎ, 溶媒和などの解析を行い, 大きなオリゴマーの形成において何が重要な働きをするのかを明らかにし, 詳細な凝集メカニズムを解明する。
- b) Arg5近傍のN末端領域が変異した英国型変異体(H6R)や鳥取型変異体(D7N)は, 野生型よりも凝集速度が速く, 若年性アルツハイマー病を引き起こす傾向がある。これらの変異体ではN末端領域の正味の正電荷が野生型に比べて増加しているため, このことが凝集を促進している可能性を示唆している。今後, 分子動力学シミュレーションを行い, これらの変異体で凝集が促進される理由を明らかにする。
- c) アルギニンによるポリグルタミンタンパク質凝集抑制機構を解明するため, これまでアルギニンまたはリジンと1本の

ポリグルタミンからなる系の分子動力学シミュレーションを行ってきた。今後はアルギニンまたはリジンと2本のポリグルタミンからなる系の分子動力学シミュレーションを実行し、アルギニンがポリグルタミンタンパク質の凝集抑制効果を持ち、同じく正電荷を持つリジンではその効果がない理由を解明する。

- d) 生体内は血液や細胞間液、細胞内液などの液体で満たされ、これらの液体は常に流動している。この流れがタンパク質のアミロイド線維化を促進していることが最近明らかになった。しかし、流れ場がアミロイド線維化を促進する機構はまだ分かっていない。そこで、我々が最近開発した生体膜上の流れを再現する非平衡分子動力学シミュレーション手法を用いて、流れによりアミロイド線維化が促進される理由を解明する。

岡崎 圭一 (准教授) (2020年12月1日着任)

大貫 隼 (助教)

小林 稜平 (学振特別研究員)

MAHMOOD, Md Iqbal (特任研究員)

GUYOT, Constantin (インターンシップ)

関 健仁 (大学院生)

千葉 史朱香 (事務支援員)

A-1) 専門領域：理論生物物理学

A-2) 研究課題：

- a) 分子モーターの1方向性運動メカニズムの解明
- b) トランスポーターの輸送メカニズムの解明
- c) タンパク質が引き起こす細胞膜変形メカニズムの解明

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 分子モーターは、生体内でATP加水分解エネルギーなどの化学エネルギーを消費して、1方向性の運動をするタンパク質である。また、このような運動を阻害する因子が存在することが知られている。一例として、回転モーター F_1 -ATPaseの回転運動を阻害する IF_1 があるが、興味深いことに、阻害状態を解除するには合成方向に回転させる必要があり、ここで再び1方向性の運動が必要になる。この1方向性の阻害状態解除メカニズムを分子シミュレーションによって解明する。シミュレーション中に、回転子にトルクをかけて加水分解・合成方向のそれぞれに回転させて、阻害因子・回転子の相互作用、回転に伴う仕事等の観点から解析を行なっている。
- b) シュウ酸は多量に摂取すると、体内で尿管結石等の症状を引き起こす。このシュウ酸は腸内細菌により分解され制御されているが、その際にシュウ酸を細菌内に輸送するのがシュウ酸トランスポーターである。このシュウ酸トランスポーターの原子レベル構造が岡山大・山下敦子教授のグループで解かれた。我々は、山下教授のグループとの共同研究により、シュウ酸トランスポーターによる基質輸送の際の基質結合やトランスポーター構造ダイナミクスを量子化学・分子動力学計算を用いて取り組んだ。まず、基質結合サイトの量子化学計算により結合したシュウ酸がねじれた構造をしていることを明らかにした。次に、トランスポーターの全原子分子動力学シミュレーションにより、閉塞状態から外向き開状態へ構造遷移する際に基質結合に関わる特定のアミノ酸残基とゲートの役割をしているアミノ酸残基の動きが重要でスイッチになっていることを同定した。さらに、構造変化に重要な部位の相互作用を人工的に弱めたシミュレーションにより、これまで未知であった内向き開構造が解明され、構造予測AIであるAlphaFold2により内向き開構造を安定化する変異を予測した。
- c) 細胞膜は、多種多様なタンパク質と相互作用して、ダイナミックに変形する。例えば、エンドサイトーシスなどで見られるように一部切り離されて袋状構造(ベシクル)を作って細胞内外の物質輸送に使われる。このような細胞膜変形に関わるタンパク質が、膜を曲げるPacsin1や、GTP加水分解エネルギーを用いて膜を切断するダイナミンである。我々は、大規模で長時間のシミュレーションが可能な粗視化Gö-MARTINIモデルの開発を行って、Pacsin1に応

用することで、その構造揺らぎが正しく再現できることを示した。さらに、チューブ状膜とダイナミンの大規模多量体からなるシミュレーション系を構築して、ダイナミンによる膜切断の分子メカニズムに迫ろうとしている。

B-1) 学術論文

J. OHNUKI, T. JAUNET-LAHARY, A. YAMASHITA and K. OKAZAKI, “Accelerated Molecular Dynamics and AlphaFold Uncover a Missing Conformational State of Transporter Protein OxIT,” *J. Phys. Chem. Lett.* **15(3)**, 725–732 (2024). DOI: 10.1021/acs.jpcclett.3c03052

M. YAGI-UTSUMI, H. MIURA, C. GANSER, H. WATANABE, M. HIRANYAKORN, T. SATOH, T. UCHIHASHI, K. KATO, K. OKAZAKI and K. AOKI, “Molecular Design of FRET Probes Based on Domain Rearrangement of Protein Disulfide Isomerase for Monitoring Intracellular Redox Status,” *Int. J. Mol. Sci.* **24(16)**, 12865 (2023). DOI: 10.3390/ijms241612865

J. OHNUKI, Y. ARIMURA, T. KONO, K. KINO, H. KURUMIZAKA and M. TAKANO, “Electrostatic Ratchet for Successive Peptide Synthesis in Nonribosomal Molecular Machine RimK,” *J. Am. Chem. Soc.* **145(29)**, 15963–15970 (2023). DOI: 10.1021/jacs.3c03926

T. JAUNET-LAHARY, T. SHIMAMURA, M. HAYASHI, N. NOMURA, K. HIRASAWA, T. SHIMIZU, M. YAMASHITA, N. TSUTSUMI, Y. SUEHIRO, K. KOJIMA, Y. SUDO, T. TAMURA, H. IWANARI, T. HAMAKUBO, S. IWATA, K. OKAZAKI, T. HIRAI and A. YAMASHITA, “Structure and Mechanism of Oxalate Transporter OxIT in an Oxalate-Degrading Bacterium in the Gut Microbiota,” *Nat. Commun.* **14(1)**, 1730 (2023). DOI: 10.1038/s41467-023-36883-5

R. KOBAYASHI, H. UENO, K. OKAZAKI and H. NOJI, “Molecular Mechanism on Forcible Ejection of ATPase Inhibitory Factor 1 from Mitochondrial ATP Synthase,” *Nat. Commun.* **14(1)**, 1682 (2023). DOI: 10.1038/s41467-023-37182-9

B-4) 招待講演

岡崎圭一, 「Conformational dynamics of transporter proteins revealed by molecular simulation and AlphaFold2」, 第 61 回日本生物物理学会年会, 名古屋, 2023 年 11 月.

岡崎圭一, 「分子シミュレーションと反応速度論・マルコフモデル」, 第 17 回分子シミュレーションスクール—基礎から応用まで—, 岡崎, 2023 年 9 月.

K. OKAZAKI, “Molecular Simulation of functional motions in biomolecular machines,” The 6th International Conference on Molecular Simulation, Taipei (Taiwan), October 2023.

K. OKAZAKI, “Accelerated Molecular Dynamics and AlphaFold Discover a Conformational State of Transporter Protein OxIT,” 9th Annual CCPBioSim Conference: Biomolecular Simulations for a Better World, Leeds (U.K.), July 2023.

B-6) 受賞, 表彰

小林稜平, 日本生物物理学会若手奨励賞 (2023).

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

日本生物物理学会代議員 (2023–2025).

学会の組織委員等

分子シミュレーション学会幹事(分子シミュレーションスクール担当) (2021–2025).

分子シミュレーションスクール世話人 (2016–).

日本生物物理学会第 61 回年会実行委員 (2023).

日本生物物理学会第 61 回生物物理学会年会実行委員 (2022–). (大貫 隼)

分子シミュレーションスクール世話人 (2022–). (大貫 隼)

B-8) 大学等での講義, 客員

総合研究大学院大学先端学術院, 集中講義「生体分子シミュレーション」, 2023 年 12 月.

B-10) 競争的資金

科研費基盤研究(B), 「細胞膜変形分子マシンの動作メカニズム: 多量体形成と構造変化による膜変形の理論研究」, 岡崎圭一 (2022 年度–2025 年度).

科研費若手研究, 「蛋白質サイズの大規模構造遷移に適用可能な反応座標推定法の開発」, 大貫 隼 (2023 年度–2025 年度).

C) 研究活動の課題と展望

本グループでは, 生体分子マシンの機能ダイナミクスを理論的な手法で解明して, そのデザイン原理を探求する研究を進めている。回転モーター F_1 -ATPase の阻害因子 IF_1 については, シミュレーションによる解析が進んでおり, その阻害メカニズムに基づいた改変等により新規阻害因子の開発に繋げたい。シユウ酸トランスポーターについては, 今まで未知であった内向き開構造を明らかにしたので, その構造遷移における律速過程についての詳細な分子メカニズムを明らかにしていきたい。細胞膜変形については, 細胞膜切断に関わるダイナミン多量体とチューブ状膜からなるシミュレーション系が構築できたので, 膜切断の分子メカニズムの解明を目指す。

6-5 光分子科学研究領域

光分子科学第二研究部門

大 森 賢 治 (教授) (2003 年 9 月 1 日着任)

DE LÉSÉLEUC, Sylvain (特任准教授)

富田 隆文 (助教)

周 鳥居 諭来 (特任助教)

松原 卓也 (特任助教)

田村 光 (特任助教)

BHARTI, Vineet (特任研究員)

CHAUHAN, Vikas Singh (特任研究員)

JAUNET-LAHARY, Titouan (特任研究員)

岡田 満哉 (特別訪問研究員)

藤川 武敏 (特命専門員)

川本 美奈子 (特任専門員)

鈴木 光一 (特任専門員)

牧野 茜 (特任専門員)

松尾 友紀子 (特任専門員)

犬飼 和久 (特任専門員)

酒井 志帆 (特任専門員)

伊神 賢人 (特任専門員)

POITRINAL, Martin (インターンシップ)

TETTEKPOE, Jean-Samuel (インターンシップ)

MARTIN, Romain (インターンシップ)

VILLELA ESCALANTE, Rene Alejandro (インターンシップ)

DENECKER, Tom (インターンシップ)

榎岡 雅人 (インターンシップ)

PRAVONGVIENGKHAM, Methkam (インターンシップ)

北出 聡太 (インターンシップ)

渡部 元輝 (インターンシップ)

GUILLEMANT, Oscar (インターンシップ)

DUBON, Joaquin (インターンシップ)

GANESAN, Karthikeyan (インターンシップ)

MAITY, Arnab (インターンシップ)

CHAUHAN, Anjali (インターンシップ)

STAINER, Lea-Marina (インターンシップ)

WEDOWSKI, Roxana (インターンシップ)

KOCIK, Robin (インターンシップ)

KETAIAM, Kittisak (インターンシップ)

SIRIWORAKOONCHAI, Phatwarach (インターンシップ)

BRAUN, Eduard (インターンシップ)

TRAUTMANN, Arno (インターンシップ)

WEBER, Sebastian (インターンシップ)
ROUSSEL, Mathis (インターンシップ)
LERICHE, Axel-Ugo (インターンシップ)
TIRUMALASETTY PANDURANGA, Mahesh (大学院生)
田中 愛登 (大学院生)
中井 愛里 (技術支援員 (派遣))
片岡 賢輔 (技術支援員 (派遣))
西岡 稚子 (事務支援員)
越田 陽子 (事務支援員)
山岸 芽衣 (事務支援員)

A-1) 専門領域：量子物理学, 量子コンピュータ, 量子シミュレータ, 原子分子光物理学, 物理化学

A-2) 研究課題：

- a) アト秒精度のコヒーレント制御法の開発
- b) 量子論の検証実験
- c) コヒーレント分子メモリーの開発
- d) 分子ベースの量子情報科学
- e) 強レーザー場非線形過程の制御
- f) バルク固体の極限コヒーレント制御
- g) 超高速量子シミュレータの開発
- h) 超高速量子コンピュータの開発

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) コヒーレント制御は、物質の波動関数の位相を操作する技術である。その応用は、量子コンピューティングや結合選択的な化学反応制御といった新たなテクノロジーの開発に密接に結び付いている。コヒーレント制御を実現するための有望な戦略の一つとして、物質の波動関数に波としての光の位相を転写する方法が考えられる。例えば、二原子分子に核の振動周期よりも短い光パルスを照射すると、「振動波束」と呼ばれる局在波が結合軸上を行ったり来たりするような状態を造り出す事ができる。波束の発生に際して、数フェムト秒からアト秒のサイクルで振動する光電場の位相は波束を構成する各々の振動固有状態の量子位相として分子内に保存されるので、光学サイクルを凌駕する精度で光の位相を操作すれば波束の量子位相を操作することができる。我々はこの考えに基づき、独自に開発したアト秒位相変調器 (APM) を用いて、二つのフェムト秒レーザーパルス間の相対位相をアト秒精度で操作するとともに、このパルス対によって分子内に発生した二つの波束の相対位相を同様の精度で操作する事に成功した。さらに、これらの高度に制御された波束干渉の様子を、ピコメートルレベルの空間分解能とフェムト秒レベルの時間分解能で観測する事に成功した。
- b) APM を用いて、分子内の 2 個の波束の量子干渉を自在に制御する事に成功した。また、この高精度量子干渉をデコヒーレンス検出器として用いる事によって、熱的な分子集団や固体中の電子的なデコヒーレンスを実験的に検証した。さらに、固体パラ水素中の非局在化した量子状態 (vibron) の干渉を観測し制御する事に成功した。
- c) 光子場の振幅情報を分子の振動固有状態の量子振幅として転写する量子メモリーの開発を行なった。ここでは、フェムト秒光パルス対によって分子内に生成した 2 個の波束間の量子位相差をアト秒精度で操作し、これらの干渉の結果生成した第 3

- の波束を構成する各振動固有状態のポピュレーションを観測することによって、光子場の振幅情報が高精度で分子内に転写されていることを証明することができた。また、フェムト秒光パルス対の時間間隔をアト秒精度で変化させることによって波束内の固有状態のポピュレーションの比率を操作できることを実証した。さらに、固体パラ水素中の振動量子状態 (vibron) の位相情報の2次元分布を操作し可視化することによって、固体2次元位相メモリの可能性を実証することに成功した。
- d) 分子メモリを量子コンピュータに発展させるためには、c)で行ったポピュレーション測定だけでなく、位相の測定を行う必要がある。そこで我々は、c)の第3の波束の時間発展を別のフェムト秒パルスを用いて実時間観測した。これによって、ポピュレーション情報と位相情報の両方を分子に書き込んで保存し、読み出すことが可能であることを実証した。振動固有状態の組を量子ビットとして用いる量子コンピュータの可能性が示された。さらに、分子波束を用いた量子フーリエ変換を開発した。
- e) 分子の振動波束を構成する振動固有状態の振幅と位相を強レーザー場で制御することに成功した。
- f) バルク固体中の原子の超高速2次元運動をフェムト秒単位で制御し画像化する新しい光技術を開発した。
- g) ほぼ絶対零度 (~50 ナノケルビン) まで冷やした極低温のルビジウム原子をミクロンレベルで整列させた人工原子結晶にアト秒精度のコヒーレント制御法を適用することによって、3万個の粒子の量子多体問題を近似無しに1ナノ秒 (ナノ = 10^{-9}) 以内でシミュレートできる世界唯一・最速の「超高速量子シミュレータ」を開発することに成功した。それぞれ異なる研究分野で発展してきた「超高速化学」と「極低温物理」の手法を融合させた世界初の試みであり、材料科学・固体物理・溶液化学など広範囲の領域に波及効果を及ぼす新しい方法論として期待されている。
- h) 上記の人工原子結晶とアト秒精度のコヒーレント制御法を組み合わせた世界唯一・最速の「超高速量子コンピュータ」の開発を進めており、新規特許出願3件を行っている。

B-1) 学術論文

V. BHARTI, S. SUGAWA, M. MIZOGUCHI, M. KUNIMI, Y. ZHANG, S. DE LÉSÉLEUC, T. TOMITA, T. FRANZ, M. WEIDEMÜLLER and K. OHMORI, “Picosecond-Scale Ultrafast Many-Body Dynamics in an Ultracold Rydberg-Excited Atomic Mott Insulator,” *Phys. Rev. Lett.* **131**, 123201 (12 pages) (2023). DOI: 10.1103/PhysRevLett.131.123201

V. BHARTI, S. SUGAWA, M. KUNIMI, V. S. CHAUHAN, T. P. MAHESH, M. MIZOGUCHI, T. MATSUBARA, T. TOMITA, S. DE LÉSÉLEUC and K. OHMORI, “Strong Spin-Motion Coupling in the Ultrafast Quantum Many-Body Dynamics of Rydberg Atoms in a Mott-Insulator Lattice,” *arXiv* 2311.15575 (2023). DOI: 10.48550/arXiv.2311.15575

B-3) 総説, 著書

富田隆文, シルヴァンド レゼルック, 大森賢治, 「単一原子をレーザー制御する超高速量子コンピューター 特集 “2022年日本の光学研究”」, *光学*, **52(6)**, (2023).

富田隆文, 松原卓也, シルヴァンド レゼルック, 大森賢治, 「冷却リユードベリ原子列の超高速レーザー制御 超高速量子コンピュータへの展開」, *応用物理*, **93(2)**, 89–95 (2024).

B-4) 招待講演 (* 基調講演)

大森賢治, 「量子スピード限界で動作する冷却原子型・超高速量子コンピュータ」, 第3回量子コンピューティング EXPO (春), 東京ビッグサイト, 東京都江東区, 2023年5月.

大森賢治, 「量子スピード限界で動作する冷却原子型・超高速量子コンピュータ」, 第7回 SEMI 量子コンピューター協議会, SEMI Japan, 東京都千代田区, 2023年5月.

大森賢治,「Ultrafast quantum simulation and quantum computing with ultracold atom arrays at quantum speed limit」, 13th RIKEN QUANTUM COMPUTING (RQC) Colloquium, 理化学研究所, 埼玉県和光市, 2023年6月.

大森賢治,「量子スピード限界で動作する冷却原子型・超高速量子コンピュータ」, マイクロフotonics研究会 第10回レーザー学会「小型集積レーザー」専門委員会, 分子科学研究所, 愛知県岡崎市, 2023年9月.

大森賢治,「量子スピード限界で動作する冷却原子型・超高速量子コンピュータ」, あいちモノづくりエキスポ2023, Aichi Sky Expo, 愛知県常滑市, 2023年10月.

大森賢治,「量子力学に残された100年の謎に迫る」, 真和中学・高等学校文化記念講演会, 真和中学校・高等学校, 熊本県熊本市, 2023年10月.

大森賢治,「量子スピード限界で動作する冷却原子型・超高速量子コンピュータ」, VACUUM2023真空展併設真空フォーラム・シンポジウム, 東京ビッグサイト, 東京都江東区, 2023年12月.

大森賢治,「量子力学100年の謎と超高速量子コンピュータへの挑戦」, 第32回豊田理研懇話会, 豊田理化学研究所井口洋夫記念ホール, 愛知県長久手市, 2023年12月.

大森賢治,「アト秒ナノメートル領域の時空間光制御に基づく冷却原子量子シミュレータの開発と量子計算への応用」, 光・量子飛躍フラッグシッププログラム(Q-LEAP)第6回シンポジウム, 伊藤国際学術研究センター, 東京都文京区, 2024年2月.

大森賢治,「世界に羽ばたく大森量子コンピュータ・スタートアップいよいよ始動へ」, 三菱UFJ銀行, 麴町ガーデンタワー, 東京都千代田区, 2024年3月.

大森賢治,「アト秒ナノメートル領域の時空間光制御に基づく冷却原子量子シミュレータの開発と量子計算への応用」, ムーンショット目標6公開シンポジウム2024, ベルサール秋葉原, 東京都千代田区, 2024年3月.

K. OHMORI, “Ultrafast Quantum Computing with Ultracold Atom Arrays at Quantum Speed Limit,” 17th International Conference on Squeezed States and Uncertainty Relations (ICSSUR 2023), Taipei (Taiwan), June 2023. *(オープニングセレモニープレナリールーム講演)

K. OHMORI, “Ultrafast quantum simulation and quantum computing with ultracold atom arrays at quantum speed limit,” Colloquium Lecture, Institute of Atomic and Molecular Sciences (IAMS), Taipei (Taiwan), June 2023.

K. OHMORI, “Japan’s Policy on Quantum Technology and Innovation,” Online Training: Quantum Technology for Policymakers, EU Quantum Flagship, Online, July 2023.

K. OHMORI, “Large-scale and high-coherence fault-tolerant quantum computer with dynamical atom arrays,” Moonshot Goal 6 International Symposium 2023, Tokyo (Japan), July 2023.

K. OHMORI, “Ultrafast quantum simulation and quantum computing with ultracold atom arrays at quantum speed limit,” ICPEAC (International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions)2023, Ottawa (Canada), July 2023. *(オープニングセレモニープレナリールーム講演)

K. OHMORI, “Ultrafast quantum simulation and quantum computing with ultracold atom arrays at quantum speed limit,” The 15th Femtochemistry Conference—Dynamics of Complex Molecular Processes in Chemistry, Biology & Physics (FEMTO15), Berlin (Germany), August 2023.

K. OHMORI, “Ultrafast quantum simulation and quantum computing with ultracold atom arrays at quantum speed limit,” 11th Bonn Humboldt Award Winners’ Forum 2023 “Quantum Science: from Foundations to Instrumentation,” The Wolfgang Paul Lecture Hall, Kranz Parkhotel Siegburg, Bonn, Siegburg (Germany), October 2023.

K. OHMORI, “Ultrafast quantum simulation and quantum computing with ultracold atom arrays at quantum speed limit,” Friedrich-Alexander-Universität Physics Colloquium, Friedrich-Alexander-Universität, Erlangen (Germany), November 2023.

K. OHMORI, “Ultrafast quantum simulation and quantum computing with ultracold atom arrays at quantum speed limit,”
Extraordinary invited talk, Peter Grünberg Institut Forschungszentrum Jülich, Jülich (Germany), November 2023.

B-5) 特許出願

US2023/0281498A1, 「量子シミュレーターおよび量子シミュレーション方法 (Quantum Simulator and Quantum Simulation Method)」, 酒井寛人 (浜松ホトニクス), 大森賢治 (自然科学研究機構), 安藤太郎 (浜松ホトニクス), シルヴァンドレゼルク, 富田隆文, 素川靖司 (自然科学研究機構), 大竹良幸, 豊田晴義 (浜松ホトニクス), 2021年. (公開日 2023年9月7日)

US2023/0317309A1, 「量子シミュレーターおよび量子シミュレーション方法 (Quantum Simulator and Quantum Simulation Method)」, 酒井寛人 (浜松ホトニクス), 大森賢治 (自然科学研究機構), 安藤太郎 (浜松ホトニクス), シルヴァンドレゼルク, 富田隆文, 素川靖司 (自然科学研究機構), 大竹良幸, 豊田晴義 (浜松ホトニクス), 2021年. (公開日 2023年10月5日)

B-6) 受賞, 表彰

Sylvain de LÉSÉLEUC, 第12回自然科学研究機構若手研究者賞 (2023).

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

European Science Foundation (ESF), ESF College of Expert Reviewers (2018–).

European Commission, HORIZON 2020, EU Future and Emerging Technologies, Scientific and Industrial Advisory Board (SIAB) (2017–).

Center for Quantum Engineering, Research and Education (CQuERE), TCG, CREST (India), Scientific Advisory Board (2021–).

日本分光学会代議員 (2022–).

欧州研究会議 (European Research Council: ERC, EU) パネル評価者/外部評価者 (2007–).

学会の組織委員等

原子・分子・光科学 (AMO) 討論会プログラム委員 (2003–).

iSAP HAMAMATSU (International Symposium on Advanced Photonics) 組織委員 (2016–).

米国ゴードン研究会議 (Gordon Research Conference: GRC, USA) “Quantum Control of Light and Matter,” 2023 議長 (2019–2023) (2021 議長にて開催予定が Covid-19 パンデミックのため 2023 年に延期).

文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

文部科学省 科学技術・学術審議会 専門委員 (2015–).

文部科学省 科学技術・学術審議会 量子科学技術委員会 主査代理 (2015–2023), 主査 (2023–).

文部科学省 研究計画・評価分科会 臨時委員 (2023–).

科学技術振興機構・戦略的創造研究推進事業 (CREST) 研究領域「量子状態の高度な制御に基づく革新的量子技術基盤の創出」(研究総括: 荒川泰彦) 領域事後評価委員 (2023–2024).

日本学術振興会 特別研究員等審査会委員等 (2022–2023).

学会誌編集委員

Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics, IOP, UK, Section Editor for Quantum Technologies (2019–) and Executive Editorial Board (2021–).

競争的資金等の領域長等

内閣府「ムーンショット型研究開発制度」,「大規模・高コヒーレンスな動的原子アレー型・誤り耐性量子コンピュータ」,プロジェクト・マネージャー (PM) (2022-).

内閣府「ムーンショット型研究開発制度」,「大規模・高コヒーレンスな動的原子アレー型・誤り耐性量子コンピュータ」,「大規模冷却原子型量子コンピュータプラットフォームの開発および統合」,課題推進者 (PI) (2022-).

文部科学省「光・量子飛躍フラッグシッププログラム (Q-LEAP)」量子情報処理・大規模基礎基盤研究,「アト秒ナノメートル領域の時空間光制御に基づく冷却原子量子シミュレータの開発と量子計算への応用」,研究代表者 (2018-).

理科教育活動

講演講師「量子力学に残された 100 年の謎に迫る」真和中学・高等学校文化記念講演会 (2023).

その他

大森賢治個人で年額 (換算) およそ 17 億円にも上る極めて高額的外部資金を獲得 (上記の「競争的資金等の領域長等」および下記「B-10 競争的資金」の項を参照) することで, 分子研の財政に多大な貢献をもたらすとともに, 分子研の世界的なプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献.

分子研大森グループの量子コンピュータ開発の成果を用いた事業化のニュースが日本経済新聞・朝刊 (2024 年 2 月 27 日) 1 面トップ記事, および日本経済新聞・電子版 (2024 年 2 月 27 日) トップ記事としてハイライトされるとともに, 同日の日本経済新聞・電子版のアクセスランキング「総合」および「朝刊・夕刊から」の両方で首位にランクされた。その他にも読売新聞, 中日新聞, 産経新聞, FNN ニュースなど, 多くのメディアで大々的に報道された。また, 欧米中等, 海外の多くのメディアでも大々的に報道された。これによって分子研の世界的なプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献.

自然科学研究機構本部と分子科学研究所が中心となり, 分子研大森グループの量子コンピュータ開発の成果を用いた事業化のための協議体「事業化検討プラットフォーム」を立ち上げ, 日本政策投資銀行 (DBJ), 日立製作所, 富士通, NEC, 浜松ホトニクス, 豊田通商, 岡崎信用金庫をはじめとする 12 社の参画を得ている。これによって, 国内外の産業界における分子研のプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献.

4-6 新聞報道に記載されている通り, NHK, 読売新聞, 日本経済新聞などを始めとする全国区の主要なニュースメディアに度々露出している。特に最近, 研究成果だけでなく, 読売新聞, 日本経済新聞, NHK, 日経サイエンスなど主要メディアの「人もの記事」に次々に登場している。つい最近にも日本経済新聞の名物インタビュー記事「人間発見」において, 大森の半生を辿った 5 回連載記事が掲載され, 全国的に大きな反響を呼んだ。これらの極めて頻繁な全国区の報道によって, 一般社会に対する分子研のプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献. (web ニュース等については, <https://ohmori.ims.ac.jp/kenjihomori/> を参照)

文部科学省 科学技術・学術審議会 量子科学技術委員会の主査代理 専門委員 (2015-2023), 同委員会の主査 (2023-現在), ならびに文部科学省 研究計画・評価分科会 臨時委員 (2023-現在) として, 量子テクノロジー開発および分子研 UVSOR を含む量子ビーム (放射光施設・大型レーザー施設) 利用推進に関する政策検討に大きく貢献.

量子科学技術分野における世界最高レベルの学術会議である米国ゴードン研究会議 (Gordon Research Conference: GRC, USA) “Quantum Control of Light and Matter” の 2023 年会議 議長, 2021 年会議 議長 (Covid-19 パンデミックのため 2023 年に延期), 2019 年会議 副議長, および GRC の評議会メンバー (2019-2021) として 2017 年から 2023 年の長期に渡り, GRC の運営に貢献することによって, 量子科学技術分野における分子研の国際的なプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献. 冷却原子型・量子コンピュータ開発において従来技術を一気に 2 桁上回る超高速 2 量子ビットゲート (量子コンピュー

ティングの心臓部である計算素子)を達成し、*Nature Photonics* 2022年10月号の表紙を飾るとともに、日米欧中を中心に世界中の200件以上のニュース報道(2023年10月以降～現在も継続)でハイライトされが、この報道は2023年10月以降も継続している。これらの報道によって分子研の世界的なプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献。上記の超高速2量子ビットゲートの成果を受けて、日本の学術会議はもとより、米国を代表する量子技術開発コンソーシアムであるChicago Quantum Exchange (CQE)、シカゴ大学、マサチューセッツ工科大学(MIT)、ハーバード大学などの米国の量子技術開発の最重要拠点の数々や、ドイツのフンボルト財団、ユーリッヒ研究機構、原子物理分野で由緒ある大規模な国際会議ICPEAC(今年の開催地:オタワ)などから、次々にコロキウムや全体講演(Plenary Lecture)等に招待され、世界のアカデミアで大反響を呼んでおり、分子研の世界的なプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献。上記の超高速2量子ビットゲートの成果を受けて、応用物理学会機関誌「応用物理」や日本光学会誌「光学」に解説記事が掲載された他、「日本物理学会誌」、自動車技術会誌「自動車技術」などからも、次々に解説記事を依頼されるなど、物理学、光学、自動車技術など様々な研究分野に強烈なインパクトを与え、分子研の全国的なプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献。

分子研・大森グループと米国を代表する量子テクノロジー企業であるColdQuanta(現Infleqtion)社(<https://coldquanta.com>)との間で量子コンピュータ開発における協業を進めており(2022年2月18日-)、米国の産業界における分子研のプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献。

NHKより量子をテーマにした取材を継続的に受け、この過程で大森を主役としたNHKテレビ番組(大森グループの超高速量子コンピュータの開発秘話・特集:2023年6月26日おはよう東海「愛知発!量子コンピューター」/2023年6月20日まるっと「Google超え超高速コンピューター 岡崎発!量子コンピューター技術」)に出演するなど、一般社会に対する分子研のプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献。

東京ビッグサイトで開催された第3回量子コンピューティングEXPO(春)(2023年5月11日)において、大森グループの超高速量子コンピュータに関する特別講演を行うことによって、日本の産業界における分子研のプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献。

2023年5月17日にSEMI Japan(東京・千代田区)に招かれ、大森グループの超高速量子コンピュータに関する招待講演を行うことによって、日本の産業界における分子研のプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献。

経済産業省からの依頼で、量子コンピュータ開発の現状と展望に関するインタビュー(2023年5月29日)を受けることによって、経済産業省における分子研のプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献。

理研量子コンピュータセンター(RQC)コロキウム(2023年6月21日)に日本人として初めて招かれ、コロキウム講演を行うことによって、日本の学術界における分子研のプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献。

EU量子フラッグシッププログラムが主催する各国の政策立案者を対象にした研究会(2023年7月6日)において、米国ホワイトハウスOSTP代表者と共に、日本政府代表者として招かれ、日本の量子技術政策に関する招待講演とパネル討論を行うことによって、世界の量子技術関係者に対する分子研のプレゼンス向上に大きく貢献。

自然科学研究機構・研究基盤戦略会議メンバーに対して、大森グループの超高速量子シミュレータ・量子コンピュータラボの研究開発状況に関するレクチャーおよびラボツアー(2023年9月14日)を行うことによって、自然科学研究機構全体に対する分子研のプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献。

文部科学省・基礎基盤研究課に対して、大森グループの超高速量子シミュレータ・量子コンピュータラボの研究開発状況に関するレクチャーおよびラボツアー(2023年9月19日)を行うことによって、日本政府に対する分子研のプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献。

インドを代表する新しい研究機関TCG CREST, The Center for Quantum Engineering Research and Education (CQuERE)のScientific Advisory Board メンバー (2021-) (2024年より Artur Ekert 英オックスフォード大教授の後任として委員長に就任予定)として、分子研のプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献。

あいちモノづくりEXPO (2023年10月5日)で招待講演(特別講演)を行うことによって、東海地方の産業界における分子研のプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献。

熊本市の真和中学校・高等学校で「量子力学 100年の謎と超高速量子コンピュータへの挑戦」に関する招待講演を行うことによって、小中高生世代の啓蒙と分子研の知名度向上に貢献。

中部経済連合会と北海道経済連合会に対して大森グループの超高速量子シミュレータ・量子コンピュータラボの研究開発状況に関するレクチャーおよびラボツアー (2023年10月11日)を行うことによって、中部地方と北海道の産業界・財界における分子研のプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献。

名古屋市経済局に対して大森グループの超高速量子シミュレータ・量子コンピュータラボの研究開発状況に関するレクチャーおよびラボツアー (2023年11月29日)を行うことによって、名古屋市行政における分子研のプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献。

日本表面真空学会と日本真空工業会が主催するVACUUM2023真空展「真空フォーラム・シンポジウム」(東京ビッグサイト, 2023年12月1日)において招待講演を行うことによって、国内の真空関連業界における分子研のプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献。

豊田理研懇話会において招待講演(2023年12月12日)を行い、史上最多の354名の聴講者に対して「量子力学 100年の謎と超高速量子コンピュータへの挑戦」に関する招待講演を行うことによって、トヨタグループをはじめとする産業界における分子研の知名度向上に大きく貢献。

特許庁からの依頼で、量子コンピュータ開発の現状と展望に関するインタビュー (2024年1月2日)を受けることによって、分子研のプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献。

真空工業会技術フォーラムに対して、大森グループの超高速量子シミュレータ・量子コンピュータラボの研究開発状況に関するレクチャーおよびラボツアー (2024年2月15日)を行うことによって、分子研のプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献。

ムーンショット目標6の国際的な知名度向上、世界の研究者への広報活動強化のため、Natureにムーンショット目標6の特集記事が掲載された。その中で、ムーンショット事業の認知度向上に大きく貢献し、注目を浴びている大森プロジェクトは、独立して2ページにわたり取り上げられ(「Orchestrating a quantum leap using cold atoms」, Focal Point on Quantum Computing in Japan, *Nature*, Vol. 626, No. 8001, 雑誌及びオンライン掲載 2024年2月29日), ムーンショット目標6及び分子研のプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献。

三菱UFJ銀行に対して、大森グループの超高速量子シミュレータ・量子コンピュータラボの研究開発状況に関するレクチャー (2024年3月15日)を行うことによって、分子研のプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献。

B-8) 大学等での講義, 客員

Heidelberg University(ドイツ), 客員教授(フンボルト賞受賞者), 2012年-。

B-10) 競争的資金

内閣府「ムーンショット型研究開発制度」, 「大規模・高コヒーレンスな動的原子アレー型・誤り耐性量子コンピュータ」, 大森賢治 (2022年度-2030年度)。

内閣府「ムーンショット型研究開発制度」,「大規模冷却原子型量子コンピュータプラットフォームの開発および結合」, 大森賢治 (2022年度-2030年度).

内閣府「ムーンショット型研究開発制度」,「Novel techniques and tools for high-fidelity operation of a cold-atom based, fault-tolerant, quantum computer」, Sylvain de LÉSÉLEUC (2022年度-2030年度).

内閣府「ムーンショット型研究開発制度」,「高忠実度ゲート操作および誤り訂正のための光学的・量子制御技術の開発」, 富田隆文 (2022年度-2030年度).

文部科学省「光・量子飛躍フラッグシッププログラム (Q-LEAP)」量子情報処理・大規模基礎基盤研究,「アト秒ナノメートル領域の時空間光制御に基づく冷却原子量子シミュレータの開発と量子計算への応用」, 大森賢治 (2018年度-2028年度).

B-11) 産学連携

共同研究, 浜松ホトニクス (株),「高精度光技術を用いた量子シミュレータの研究」, 大森賢治 (2016年-).

(株) 日立製作所,「動的量子ビットを用いた量子コンピュータの研究」, 大森賢治 (2023年度-).

ColdQuanta, Inc. d.b.a. Infleqtion (米国),「超高速量子コンピュータの開発」, 大森賢治 (2023年度-).

C) 研究活動の課題と展望

今後我々の研究グループでは, APM を高感度のデコヒーレンス検出器として量子論の基礎的な検証に用いると共に, より自由度の高い量子位相操作技術への発展を試みる。そしてそれらを希薄な原子分子集団や凝縮相に適用することによって, 「アト秒量子エンジニアリング」と呼ばれる新しい領域の開拓を目指している。当面は以下の5テーマの実現に向けて研究を進めている。

- ① デコヒーレンスの検証と抑制: デコヒーレンスは, 物質の波としての性質が失われて行く過程である。量子論における観測問題と関連し得る基礎的に重要なテーマであるとともに, テクノロジーの観点からは, 反応制御や量子情報処理のエラーを引き起こす主要な要因である。その本質に迫り, 制御法を探索する。
- ② 量子散逸系でのコヒーレント制御の実現: ①で得られる知見をもとにデコヒーレンスの激しい凝縮系でのコヒーレント制御法を探索する。
- ③ 原子・分子ベースの量子情報科学の開拓: アト秒精度の超高速コヒーレント制御技術によって, 原子・分子内の電子・振動固有状態を用いるユニタリ変換とそれに基づく量子情報処理の確立を目指す。さらに, 単一原子・分子の操作・読み出し技術の開発を進める。
- ④ 超高速量子シミュレータの開発: ほぼ絶対零度 (~50 ナノケルビン) まで冷やした極低温のルビジウム原子をマイクロレベルで整列させた人工原子結晶とアト秒精度の超高速コヒーレント制御技術を組み合わせた世界唯一・最速の「超高速量子シミュレータ」のさらなる高機能化を目指す。
- ⑤ 超高速量子コンピュータの開発: 極低温のルビジウム原子をマイクロレベルで整列させた人工原子結晶とアト秒精度の超高速コヒーレント制御技術を組み合わせた世界唯一・最速の「超高速量子コンピュータ」の開発を進める。

これらの研究の途上で量子論を深く理解するための何らかのヒントが得られるかもしれない。その理解はテクノロジーの発展を促すだろう。我々が考えている「アト秒量子エンジニアリング」とは, 量子論の検証とそのテクノロジー応用の両方を含む概念である。

光分子科学第三研究部門

解 良 聡 (教授) (2014 年 4 月 1 日着任)

福谷 圭祐 (助教)

下ヶ橋 龍之介 (特任助教)

WONGKANYA, Ratchada (インターンシップ)

西野 史 (大学院生)

PALASSERY ITHIKKAL, Jaseela (大学院生)

神谷 美穂 (事務支援員)

A-1) 専門領域：表面物理学, 有機薄膜物性

A-2) 研究課題：

- a) シンクロトロン放射光・レーザー光励起による弱相互作用系の電子状態計測
- b) 配向分子薄膜の光電子放出強度の理論解析と分子軌道撮影法の開発
- c) 有機半導体薄膜の電荷輸送機構の研究
- d) 有機半導体薄膜の界面電子単位接合機構の研究
- e) 自己組織構造体の作製と分子機能の分光研究
- f) 機能性分子薄膜の振動状態と電子励起計測
- g) 低次元電子相関物質の物性機構解明

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 機能性分子薄膜の弱相互作用による電子状態変化を計測する技術開発を進めている。弱相互作用を定量的に評価するため、蒸気圧の低い大型分子対応の気相光電子分光実験装置を開発し、分子集合による電子状態の違いに関する議論を進めている。超短パルスレーザー光を励起源とする二光子光電子分光装置を構築し、ホール緩和や励起子拡散など、電荷ダイナミクス関連の研究を進めている。UVSOR では BL7U における低エネルギー励起光を用いた角度分解光電子分光 (ARPES) による分子界面電子状態の計測法開拓を推進しつつ、BL6U における光電子運動量顕微鏡 (PMM) の装置開発と分子系への最適化のためのパラメータ調整を進めている。
- b) 高配向分子薄膜からの光電子放出強度の角度依存性について、多重散乱理論による強度解析を行い、有機分子薄膜構造の定量的解析を行うための方法論を検討してきた。その後、高配向試料では広波数空間二次元分解測定が分子軌道の可視化に対応することが指摘され、新たな量子計測ツールになりうると期待されている。前述の放射光を利用した PMM 装置による高効率計測が強力である。特に単層膜界面の分子配向に依存した電子波のポテンシャル散乱と干渉問題を定量化し、局在電子系における一電子近似の限界を吟味しつつ、弱相互作用系の物理現象を議論するための新たな方法論の構築を目指している。
- c) 有機半導体のバンド分散関係：良質な配向有機結晶膜を作製し、価電子エネルギーバンド分散を測定する技術確立した。分子間相互作用の大きさ、ホール有効質量、バンド伝導移動度の定量的評価と、分子結晶特有の物理モデルの構築を進めている。多体効果による電子構造への影響を検出し、非自明な機能開拓へ向けた研究を進めている。有機半導体結晶における振電相互作用の運動量異方性の検出に成功した。

有機半導体の電荷振動結合：配向有機超薄膜の作製により、大型の分子薄膜系における光電子スペクトルの高エネルギー分解測定を実現する方法論を開拓して、分子薄膜における伝導ホールと分子振動の結合状態を初めて実測し、ホッピング移動度（そのポーラロン効果を含む）を分光学的に得る方法を開拓した。これらの物理量を実測することで、準粒子描像に基づいた輸送機構の解明を目指している。

- d) 本質的には絶縁物である有機分子が n 型 / p 型半導体として機能する起源を明らかにすべく研究を進めている。極めて高効率に光電子を捕捉し評価可能な高感度紫外光電子分光装置を開発し、バンドギャップに生じる 10ppm レベルの状態密度検出に成功した。価電子帯トップバンドの状態密度分布がガウス型から指数関数型に変化し、基板フェルミ準位まで到達している様子を捉えた。また低エネルギー逆光電子分光装置の導入により、伝導帯構造を合わせて評価することが可能となり、ドナー・アクセプター半導体分子間の弱い vdW 結合から、分子と金属原子の局所的な強い化学結合によるギャップ準位形成までを統括検討し、エネルギー準位接合機構の解明を目指している。
- e) 表面場で織り成すパイ共役分子系の超格子構造や、分子薄膜の自己組織化により発現する各種機能の解明を目指す。新規な共有結合性有機構造体の作製、自己組織化や原子・分子捕獲などによる有機無機複合構造体の作製に挑戦している。各種分子機能の起源について解明するため、電子状態の局在性の視点で構造との相関を各種先端分光法を駆使して研究を進めている。2022 年度より、キラル分子によるスピン選択性の定量的電子構造評価に向けた高配向キラル二次元膜の研究を開始した。分子薄膜や低次元物質の電子状態を議論する上で、試料調整方法の確立が鍵である。光電子放射顕微鏡 (PEEM), 走査プローブ顕微鏡 (STM), 高分解能スポット解析型低速電子線回折 (SPALEED), 準安定励起原子電子分光 (MAES), X線定在波法 (XSW), 軟 X線吸収分光 (NEXAFS) 等を用い、基板界面における単分子膜成長から結晶膜成長までの多様な集合状態について構造（分子配向）と成長を観察している。
- f) 低速電子エネルギー損失分光により、機能性分子薄膜の振動状態と電子励起状態を測定し、弱相互作用による振動構造への影響を調べている。国際共同による二次元検出器を利用したフォノン分散実験を進めている。
- g) 電子が物質中の様々な準粒子と相互作用することにより発現する特異物性はその複雑性・多様性から根本起源が未解明であるものが多い。二次元 ARPES や PMM 法などの電子と準粒子の直接観測を可能とする分光法を用いて、主に励起子絶縁体や電荷密度波物質の電子物性の解明・制御を目指した研究プロジェクトの立ち上げを行なっている。

B-1) 学術論文

T. YAMADA, S. KANAZAWA, K. FUKUTANI and S. KERA, “Growth of Transition-Metal Cobalt Nanoclusters on 2D Covalent Organic Frameworks,” *J. Phys. Chem. C* **128(3)**, 1477–1486 (2024). DOI: 10.1021/acs.jpcc.3c07435

S. KERA, F. MATSUI, K. TANAKA, Y. TAIRA, T. ARAKI, T. OHIGASHI, H. IWAYAMA, M. FUJIMOTO, H. MATSUDA, E. SALEHI and M. KATOH, “Prospects Required for Future Light-Source Facilities: A Case of UVSOR Synchrotron Facility,” *Electron. Struct.* **5(3)**, 034001 (2023). DOI: 10.1088/2516-1075/acdf32

F. MATSUI, K. HAGIWARA, E. NAKAMURA, T. YANO, H. MATSUDA, Y. OKANO, S. KERA, E. HASHIMOTO, S. KOH, K. UENO, T. KOBAYASHI, E. IWAMOTO, K. SAKAMOTO, S. TANAKA and S. SUGA, “Soft X-Ray Photoelectron Momentum Microscope for Multimodal Valence Band Stereography,” *Rev. Sci. Instrum.* **94(8)**, 083701 (2023). DOI: 10.1063/5.0154156

Z. G. MA, Y. SHEN, K. ZHANG, L. X. CAO, H. REN, W. S. CHEN, H. X. WEI, Y. Q. LI, S. KERA and J. X. TANG, “Regulated Crystallization with Minimized Degradation for Pure-Red Lead-Free Perovskite Light-Emitting Diodes,” *J. Mater. Chem. C* **11(29)**, 9916–9924 (2023). DOI: 10.1039/d3tc01743e

O. ENDO, F. MATSUI, S. KERA, W.-J. CHUN, M. NAKAMURA, K. AMEMIYA and H. OZAKI, “Hole Doping to Perylene on Au(110): Photoelectron Momentum Microscopy,” *e-J. Surf. Sci. Nanotechnol.* **21(3)**, 236–240 (2023). DOI: 10.1380/ejsnt.2023-024

B-3) 総説, 著書

解良 聡, 「有機半導体の電子構造における多体効果」, 有機半導体の開発と最新動向, 第 23 章 (2024).

B-4) 招待講演

S. KERA, “Many body effects define the material properties of molecular solids,” Nanospec FY2023, Okazaki (Japan), March 2024.

S. KERA, “Deep insight into organic semiconductors by itinerant characteristics of the electronic structure,” International conference on Materials science, engineering and technology, Singapore (Singapore), September 2023.

S. KERA, “Impact of vibronic coupling on the electronic structure of organic semiconductor crystals,” 41st International Conference on Vacuum Ultraviolet and X-ray Physics, Campinas (Brazil), July 2023.

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

VUVX (International Conference on Vacuum Ultraviolet and X-Ray Physics) 真空紫外光物理およびX線物理国際会議 国際諮問委員 (2014–).

SRI (International Conference on Synchrotron Radiation Instrumentation) シンクロトロン放射装置技術国際会議国際諮問委員 (2018–).

AOF (Asia Oceania Forum for Synchrotron Radiation Research) アジア・オセアニア放射光研究評議会庶務委員 (2021–).

学会の組織委員等

第 36 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム 組織委員会委員 (2023–2024).

文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

SPring-8 ユーザー協同体 (SPRUC) 機関代表者 (2019–).

KEK 加速器・共通基盤研究施設運営会議委員 (2021–2024).

KEK 物質構造科学研究所運営会議委員 (2021–2024).

東京大学物性研究所附属極限コヒーレント光科学研究センター軌道放射物性研究施設運営委員会委員 (2022–2024).

科学技術交流財団あいちシンクロトロン光センター運営委員会委員 (2023–2025).

量子科学技術研究開発機構 NanoTerasu 共用ビームライン整備検討委員会委員 (2023–).

学会誌編集委員

Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena, Editorial Board (2015–).

B-8) 大学等での講義, 客員

東北大学大学院理学研究科, 委嘱教授, 「強相関電子物理学特論」, 2020年4月-

千葉大学大学院融合科学研究科, 連携客員教授, 2014年9月-

千葉大学大学院融合科学研究科, 「ナノ創造物性工学特論II」, 2014年9月-

蘇州大学, 客員教授, 2014年4月-

B-10) 競争的資金

科研費基盤研究(S), 「階層的準粒子の先端計測による可知化と分子材料研究の変革」, 解良 聡 (2023年度-2027年度).

科研費基盤研究(C), 「基底状態観測と物質設計に基づく定常励起子の制御」, 福谷圭祐 (2022年度-2024年度).

C) 研究活動の課題と展望

機能性分子の高配向試料作製法と精密電子状態計測で蓄積したノウハウを集結し, 分子集合体における「電子の真の姿を見出すこと」でその機能・物性の根源を理解することを主眼とし, 様々な放射光利用先端分光法や独自に開発した分光装置群を駆使して多角的に研究を進めている。2021年度に福谷助教が着任し, 低次元物性と精密計測に関する研究力を強化した。分子結晶や界面の階層性に着目し, 電子物性の多体効果問題に挑戦する。一方, UVSOR 施設長として国内コミュニティの基盤強化を推進するための利用支援に注力している。2019年度から技術開発を進めているPMM装置について, スピン検出機能追加による第二期R&Dを開始した。松井教授らと共に多彩な計測機能をもつ複合システムの完成を目指す。ドイツの装置開発拠点であるユーリッヒ研究所との学術協定によって, 装置開発とその利用展開についての国際共同研究を推進するとともに, 国内では分子固体系のオールジャパン体制(実験班, 理論班)を構築し, 戦略的に上記装置を利用した新奇実験を牽引する。2023年度後期より下ヶ橋特任助教を採用し, 科研費基盤(S)課題による研究推進を強化した。40周年記念事業を遂行し, 施設長期計画として次世代研究施設UVSOR-IVの建設に向けた準備を多面的に進めている。国内外施設およびコミュニティの意見交換と情報収集に邁進している。

長 坂 将 成 (助教) (2007 年 4 月 1 日着任)

神谷 美穂 (事務支援員)

A-1) 専門領域：物理化学, 軟X線分光学

A-2) 研究課題：

- a) 軟X線吸収分光法による溶液の局所構造解析
- b) 軟X線吸収分光法の生物化学分野への展開
- c) 溶液の軟X線吸収分光法の低エネルギー領域への開拓
- d) 時間分解軟X線吸収分光法によるエネルギー・電子移動のオペランド計測

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 2 keV 以下の軟X線領域には炭素, 窒素, 酸素の K 吸収端や遷移金属の L 吸収端が存在するため, 軟X線吸収分光 (XAS) 法は溶液の局所構造を元素選択的に調べることができる有用な手法である。我々は液体層の精密厚さ制御法 (20 ~ 2000 nm) を独自に開発することで, 溶液の XAS 測定を実現した。更に, XAS スペクトルのエネルギーシフトの高精度測定と量子化学に基づく内殻励起計算から, 異なる元素ごとに溶液中の分子間相互作用を調べる手法を確立した。最近では, PNIPAM 高分子が純水や純メタノールでは溶解するのに対して, メタノールと水の混合溶液では溶解しなくなる, 共貧性溶媒効果のメカニズムを O-K 吸収端 XAS 測定から調べた。
- b) XAS 法を生物化学分野へ展開するには, 生体試料が機能を発現する状態で測定すると共に, 生体試料とその周りの溶媒分子を考慮した比較的大きな分子系での内殻励起計算が必要である。我々が開発した液体セルは実環境下で XAS 測定が行えるため, 生体試料の測定に適している。現在, ミオグロビン溶液の N-K 吸収端 XAS 測定を目指して, 溶液調製を行っている。また, 溶液中の生体分子の内殻励起計算を実現するために, 分子動力学計算により得た複数の分子配置を基にして, その内殻励起計算を行う方法論を開発した。これにより, 液体エタノールの C-K 吸収端 XAS スペクトルが, 実験で得られたスペクトル形状を良く再現することを確かめた。
- c) 200 eV 以下の低エネルギー領域には, Li, B の K 吸収端や Si, P, S, Cl の L 吸収端が存在するため, 化学研究において重要である。しかしながら, 低エネルギー領域では, 目的の一次回折光の透過率が極端に小さくて, 一次回折光の強度変化が高次回折光の寄与に埋もれてしまうため, XAS 測定は不可能であった。そこで, Si が含まれていない高分子ナノ膜を開発すると共に, 液体セルを満たすアルゴン光路長を 2.6 mm にできる超薄型液体セルを開発することで, 低エネルギー領域の溶液の XAS 測定の実現を目指している。最近では, 高分子ナノ膜の軟X線透過測定を行い, Si-L 吸収端においても十分な軟X線透過率を示すことを実証した。
- d) 超高速レーザーと放射光から発生する軟X線パルスを 70 ps の時間分解能で同期するシステムを構築して, 溶液光化学反応のオペランド XAS 測定を実現した。これにより, 鉄フェナントロリン水溶液の N-K 吸収端 XAS スペクトルにおいて, 光励起後の高スピン状態から低スピン状態に緩和する過程の経時変化を, 金属錯体の配位子の電子状態変化から観測することに成功した。現在, 異種金属錯体間での蛍光共鳴エネルギー移動や, 二元分子系における光電子移動の機構解明に, 時間分解 XAS 法を適用するための実験条件の検討を行っている。

B-1) 学術論文

Y. KUDO, F. KUMAKI, M. NAGASAKA, J. ADACHI, Y. NOGUCHI, N. KOGA, H. ITABASHI and M. HIYAMA, “Experimental and Theoretical Study for Core Excitation of Firefly Luciferin in Carbon K-Edge Spectra,” *J. Phys. Chem. A* **128(3)**, 611–617 (2024). DOI: 10.1021/acs.jpca.3c07504

B-3) 総説, 著書

長坂将成, 「軟X線吸収分光法による液体の分子間相互作用の解明」, *放射光*, **36(4)**, 176–184 (2023).

B-4) 招待講演

長坂将成, 「軟X線吸収分光法によるバイオ研究の現状と展望」, UVSOR シンポジウム 2023 特別企画講演「バイオ系における光科学の展開」, 岡崎, 2023年12月.

M. NAGASAKA, “Chemical Processes in Solutions Probed by Soft X-Ray Absorption Spectroscopy,” International Symposium on X-Ray Spectroscopies of Synchrotron Radiation, Toyama (Japan), March 2024.

M. NAGASAKA, “Operando Soft X-Ray Absorption Spectroscopy for Observing Chemical Processes in Solutions,” UVSOR-III + MAX IV International Workshop: Frontier of Soft X-Ray Spectroscopy for Chemical Processes in Solutions, Okazaki (Japan), October 2023.

M. NAGASAKA, “Time-Resolved Soft X-Ray Absorption Spectroscopy for Observing Photochemical Reactions in Solutions,” Conference on Laser and Synchrotron Radiation Combination Experiment 2023 (LSC 2023), OPTICS & PHOTONICS International Congress 2023, Yokohama (Japan), April 2023.

B-7) 学会および社会的活動

学会の組織委員等

日本放射光学会放射光 60周年記念シンポジウム現地実行委員 (2023).

UVSOR-III + MAX IV International Workshop: Frontier of Soft X-Ray Spectroscopy for Chemical Processes in Solutions, Chair (2023).

B-10) 競争的資金

科研費基盤研究(B), 「励起キャリア移動の指向性制御による高効率光触媒表面の構築」(代表: 吉田真明), 長坂将成(研究分担者) (2021年度–2023年度).

科研費基盤研究(A), 「人工光合成をめざす半導体光触媒: オペランド計測によるミリ秒反応化学の解明」(代表: 大西 洋), 長坂将成(研究分担者) (2022年度–2024年度).

科研費基盤研究(B), 「難分解性有機物資源化を可能にするグラファイト担持型超強力酸化触媒活性種の開発」(代表: 山田泰之), 長坂将成(研究分担者) (2022年度–2024年度).

光源加速器開発研究部門（極端紫外光研究施設）

加藤 政博（特任教授（クロスアポイントメント*））（2019年4月1日着任）

石原 麻由美（事務支援員）

加茂 恭子（事務支援員）

横田 光代（事務支援員）

*広島大学放射光科学センター

A-1) 専門領域：ビーム物理学，加速器科学，放射光科学

A-2) 研究課題：

- a) シンクロトロン光源の研究
- b) 自由電子レーザーの研究
- c) 相対論的電子ビームからの電磁放射の研究
- d) 量子ビームの発生と応用に関する研究

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) シンクロトロン光源 UVSOR の性能向上に向けた開発研究を継続している。電子ビーム光学系の最適化による電子ビーム輝度の大幅な向上，電子ビーム強度を一定に保つトップアップ入射の導入などに成功し，低エネルギー放射光源としては世界最高水準の光源性能を実現した。高輝度放射光発生のために真空封止アンジュレータ3台，可変偏光型アンジュレータ3台を設計・建設し，稼働させた。UVSOR の将来計画に関する設計研究に着手し，既存加速器の更なる高度化の可能性を検討した後，新しい光源加速器の設計を開始し，これまでに電子エネルギー 1 GeV，周長約 70 m の放射光源の基礎設計を完了した。高エネルギー加速器研究機構などと連携し，持続可能な加速器の実現を目指して加速器要素技術の開発に着手した。
- b) 自由電子レーザーや関連技術に関する研究を継続している。蓄積リング自由電子レーザーとして世界最高の出力を記録した。また，共振器型自由電子レーザーに関する基礎研究を進め，レーザー発振のダイナミクスやフィードバック制御に関する先駆的な成果を上げた。外部レーザーを用いて電子パルス上に微細な密度構造を形成することでコヒーレント放射光を極紫外領域やテラヘルツ領域において生成する研究を継続している。この手法により一様磁場中から準単色テラヘルツ放射光を発生することに世界に先駆けて成功した。電子パルス上に形成された密度構造の時間発展に関するビームダイナミクス研究により先駆的な成果を上げた。
- c) 高エネルギー電子ビームによる光渦の生成に成功し，その原理の解明に世界に先駆けて成功した。自然界での光渦の生成の可能性について，研究を進めると共に，深紫外・真空紫外領域での物質系と光渦の相互作用に関する基礎研究を進めている。
- d) 外部レーザーと高エネルギー電子線を用いた逆コンプトン散乱によるエネルギー可変，偏光可変の極短ガンマ線パルス発生に関する研究を進めた。パルス幅数ピコ秒以下の超短ガンマ線パルスの生成，エネルギー可変性の実証に成功した。光陰極を用いた電子源の開発を進めた。また，これら偏極量子ビームの応用研究の開拓を進めている。

- e) アンジュレータ放射光波束の時間構造に着目した研究に原子分子物理学研究者と共同で取り組み、2連のアンジュレータからの自然放射を用いた孤立原子の量子状態制御に世界で初めて成功した。放射光の時間構造や干渉性の実験的検証を進めた他、単一電子からの放射の観測など、全く新しい放射光利用法の開拓に向けた実験研究を進めている。

B-1) 学術論文

S. KERA, F. MATSUI, K. TANAKA, Y. TAIRA, T. ARAKI, T. OHIGASHI, H. IWAYAMA, M. FUJIMOTO, H. MATSUDA, E. SALEHI and M. KATOH, “Prospects Required for Future Light-Source Facilities: A Case of UVSOR Synchrotron Facility,” *Electron. Struct.* **5(3)**, 034001 (2023). DOI: 10.1088/2516-1075/acdf32

M. KATOH, H. OTA, J. YAMAZAKI, K. HAYASHI, Y. OKANO, E. SALEHI, Y. TAIRA, A. MANO, M. FUJIMOTO, Y. TAKASHIMA, M. HOSAKA, F. SAKAMOTO, T. KANEYASU and H. ZEN, “Light Source Developments at UVSOR BL1U,” *J. Phys.: Conf. Ser.* **2687**, 032005 (2024). DOI: 10.1088/1742-6596/2687/3/032005

E. SALEHI and M. KATOH, “Bayesian Optimization of the Dynamic Aperture in UVSOR-IV Design Study,” *J. Phys.: Conf. Ser.* **2687**, 032030 (2024). DOI: 10.1088/1742-6596/2687/3/032030

S. WADA, H. OHTA, A. MANO, Y. TAKASHIMA, M. FUJIMOTO and M. KATOH, “Young’s Double-Slit Experiment with Undulator Vortex Radiation in the Photon-Counting Regime,” *Sci. Rep.* **13**, 22962 (2023). DOI: 10.1038/s41598-023-49825-4

Y. HIKOSAKA, T. KANEYASU, S. WADA, H. KOHGUCHI, H. OTA, E. NAKAMURA, H. IWAYAMA, M. FUJIMOTO, M. HOSAKA and M. KATOH, “Frequency-Domain Interferometry for the Determination of Time Delay between Two Extreme-Ultraviolet Wave Packets Generated by a Tandem Undulator,” *Sci. Rep.* **13**, 10292 (2023). DOI: 10.1038/s41598-023-37449-7

E. SALEHI, M. HOSAKA and M. KATOH, “Time Structure of Undulator Radiation,” *J. Adv. Simulat. Sci. Eng.* **10(1)**, 164–171 (2023). DOI: 10.15748/jasse.10.164

T. KANEYASU, Y. HIKOSAKA, S. WADA, M. FUJIMOTO, H. OTA, H. IWAYAMA and M. KATOH, “Time Domain Double Slit Interference of Electron Produced by XUV Synchrotron Radiation,” *Sci. Rep.* **13**, 6142 (2023). DOI: 10.1038/s41598-023-33039-9

B-4) 招待講演

M. KATOH, “Spatiotemporally structured synchrotron radiation,” SPIE Nanoscience + Engineering 2023, UV and Higher Energy Photonics: From Materials to Applications 2023, San Diego (USA), August 2023.

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

日本加速器学会評議員 (2020–).

日本放射光学会評議員 (2022–).

文部科学省、学術振興会、大学共同利用機関等の委員等

高エネルギー加速器研究機構教育研究評議会評議員 (2021–2023).

高エネルギー加速器研究機構加速器研究施設運営委員 (2018–).

B-8) 大学等での講義, 客員

名古屋大学シンクロtron光研究センター, 客員教授, 2018年4月-

高エネルギー加速器研究機構加速器研究施設, 客員教授, 2018年4月-

核融合科学研究所, 客員教授, 2022年4月-

B-10) 競争的資金

科研費挑戦的研究(萌芽), 「広帯域インコヒーレント放射光の可干渉性を利用する革新的光技術の探索」, 加藤政博 (2022年度-2024年度).

C) 研究活動の課題と展望

UVSOR は 2000 年以降の継続的な高度化により, 低エネルギーのシンクロtron光源としては世界的にも最高レベルの性能に到達したが, 国内外では新しい光源の建設稼働が相次ぎ, 更なる競争力の向上が求められている。現在の加速器の更なる高度化の可能性を検討した結果, 現在の性能を大幅に上回る高度化改造は困難であると結論づけ, 新規に回折限界を目指す光源加速器の建設について検討を進めている。基礎設計は概ね完了し, 概念設計レポートの作成を行った。今後は詳細設計レポートの作成を進める。また, 高エネルギー加速器研究機構や名古屋大学シンクロtron光研究センター, 広島大学放射光科学研究所などと連携し, 持続可能な加速器施設を目指した省エネルギー化や運転の自動化などを念頭に, 次期光源に必要とされるハードウェア技術開発を進める。

高エネルギー自由電子を用いた光発生として, 自由電子レーザーやレーザーコンプトン散乱ガンマ線, コヒーレントシンクロtron放射の発生法の開発や高度化, それらの利用法の開拓に取り組んできた。最近では光子の時空間構造やその干渉性の実験的検証やその利用法の開拓に挑戦している。放射光による光渦の生成, さらに放射光光渦同士の商品によるベクトルビーム発生など, UVSOR の研究環境を活用して世界に先駆けた研究ができた。また, 二連アンジュレータから放射される光子の時間構造を利用した量子状態制御について先駆的な成果が出ている。相対論的自由電子からの電磁放射の時空間構造の制御とその応用というこれまで全く着目されていなかった領域を切り拓きつつあり, 引き続き基礎研究を進めるとともに幅広く応用展開の可能性を探っていきたい。

電子ビーム制御研究部門（極端紫外光研究施設）

平 義 隆（准教授）（2020年4月1日着任）

小澤 舜ノ介（特別共同利用研究員）
塩原 慧介（特別共同利用研究員）
脇田 幸哉（特別共同利用研究員）
石原 麻由美（事務支援員）
加茂 恭子（事務支援員）
横田 光代（事務支援員）

A-1) 専門領域：ガンマ線計測，陽電子計測，光渦計測

A-2) 研究課題：

- a) 超短パルスガンマ線の発生と利用研究
- b) 軸対称偏光レーザーを用いたガンマ線の発生と計測技術開発

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 世界の放射光施設でも UVSOR の独自技術である超短パルスガンマ線を用いた陽電子消滅分光法によるバルク材料の原子スケール欠陥分析に関する研究である。超短パルスガンマ線は、フェムト秒レーザーと 750MeV 電子ビームの 90 度衝突逆トムソン散乱によって発生し、そのパルス幅はサブピコ秒からピコ秒オーダーである。この超短パルス性とバックグラウンドの低さを活かしたガンマ線の利用研究として、陽電子消滅分光法による材料中の欠陥分析をユーザーに提供している。陽電子は、対生成と呼ばれる現象によって材料内部でガンマ線から発生し、材料中の欠陥に捕獲される。欠陥の大きさによって陽電子の寿命が変化するために、陽電子寿命を測定することで材料中の欠陥を非破壊で分析することができる。さらに、ガンマ線は物質に対する透過率が高いために厚さ数 cm のバルク材料の欠陥分析を行うことが可能である。陽電子寿命測定法のユーザー利用が現在行われており、放射性同位元素から発生する陽電子を直接試料に照射する従来の方法では実施困難な金属材料の応力負荷及び水素脆化時の欠陥形成のその場測定手法の開発を進めている。応力負荷時の測定については論文の執筆を開始している。また、逆トムソン散乱では、円偏光レーザーを使うことで円偏光ガンマ線が発生する。円偏光ガンマ線の円偏光度はガンマ線ビームの断面で一様ではなく、散乱角度によって変化する。原子力機構、量研機構、名古屋大学、及び京都大学の研究者らと共同で磁気コンプトン散乱を用いたガンマ線の偏光測定を行った。理論計算通り、ガンマ線の散乱角によって偏光が変化することを実測することができた。この結果を論文にまとめ *Phys. Rev. A* に発表した。一方で、パルスではない連続ガンマ線を用いたユーザー利用も行っており、ユーザー執筆の論文が発表された。
- b) 本研究課題では、特殊な偏光状態であるラジアル偏光やアジマス偏光の軸対称偏光レーザーを用いた逆トムソン散乱によって発生するガンマ線の偏光分布を明らかにする。直線偏光及び円偏光レーザーを用いると、直線偏光及び円偏光のガンマ線が発生する事は既に実験的に確かめられているが、軸対称偏光レーザーを使用した場合にどのような偏光状態のガンマ線が発生するのかは理論的にも実験的にも確認されていない。軸対称偏光レーザーは、Altechna 社の S-waveplate を用いて直線偏光のレーザーから変換する。最初の実験として、ガンマ線の空間分布を 2 次元検出器 (AdvaPIX TPX3) で測定した。軸対称偏光レーザーを用いると、直線偏光及び円偏光のガンマ線とは異

なる空間分布になることが確認された。今後、ガンマ線の偏光分布の測定手法の開発を進める。具体的には、直径 1 mm の鉛コリメータを用いて空間的に広がったガンマ線の一部を切り出し、鉄ターゲットに照射する。ガンマ線が直線偏光の場合、コンプトン散乱ガンマ線の断面積が方位角方向に変化し、偏光軸に対して 90 度方向に散乱されるガンマ線の割合が高い。そのため、ガンマ線検出器を方位角方向に複数配置し、散乱ガンマ線の方位角分布を測定する事でガンマ線偏光軸を測定できる。現在シミュレーションを進めており、検出器の固定治具を製作した後に実験を行う。

B-1) 学術論文

H. OHGAKI, K. ALI, T. KII, H. ZEN, T. HAYAKAWA, T. SHIZUMA, M. FUJIMOTO and Y. TAIRA, “Generation of Flat-Laser Compton Scattering Gamma-Ray Beam,” *Phys. Rev. Accel. Beams* **26**, 093402 (2023). DOI: 10.1103/physrevaccelbeams.26.093402

S. KERA, F. MATSUI, K. TANAKA, Y. TAIRA, T. ARAKI, T. OHIGASHI, H. IWAYAMA, M. FUJIMOTO, H. MATSUDA, E. SALEHI and M. KATOH, “Prospects Required for Future Light-Source Facilities: A Case of UVSOR Synchrotron Facility,” *Electron. Struct.* **5(3)**, 034001 (2023). DOI: 10.1088/2516-1075/acdf32

Y. TAIRA, S. ENDO, S. KAWAMURA, T. NAMBU, M. OKUIZUMI, T. SHIZUMA, M. OMER, H. ZEN, Y. OKANO and M. KITAGUCHI, “Measurement of the Spatial Polarization Distribution of Circularly Polarized Gamma Rays Produced by Inverse Compton Scattering,” *Phys. Rev. A* **107(6)**, 063503 (2023). DOI: 10.1103/PhysRevA.107.063503

平 義隆, 「UVSOR-III におけるガンマ線誘起陽電子消滅分光法の開発」, *陽電子科学*, **20**, 3–9 (2023).

B-4) 招待講演

Y. TAIRA, “Development of gamma-ray-induced positron annihilation spectroscopy at UVSOR-III,” 16th International Workshop on Slow Positron Beam Techniques & Applications (SloPos-16), Orleans (France), July 2023.

B-6) 受賞, 表彰

平 義隆, 日本陽電子科学会奨励賞 (2023).

B-7) 学会および社会的活動

学会の組織委員等

ビーム物理研究会 若手の会 幹事 (2020–).

日本加速器学会組織委員 (2022–2023).

B-8) 大学等での講義, 客員

理化学研究所, 客員研究員, 2018年9月–.

B-10) 競争的資金

科研費基盤研究(B) (一般), 「超短パルスガンマ線を用いた陽電子寿命運動量相関測定法の開発と利用研究の推進」,

平 義隆 (2021年度–2023年度).

C) 研究活動の課題と展望

陽電子消滅分光法に関しては、陽電子寿命測定法と寿命運動量相関測定法に加えて、同時計数ドップラー拡がり法やスピン偏極陽電子の発生と計測技術開発を行い、分析技術の拡充を図る。計算上はパルス幅数ピコ秒のガンマ線が発生していると考えられるが、超短パルスガンマ線のパルス幅計測手法の開発も行う。軸対称偏光レーザーを用いたガンマ線発生に関しては、ガンマ線の偏光分布の測定技術を開発する。

光物性測定器開発研究部門（極端紫外光研究施設）

松井文彦（主任研究員）（2018年4月1日～2021年11月15日）
（教授）（2021年11月16日昇任）

萩原健太（特任研究員（IMSフェロー））

松田博之（特任研究員）

大門寛（研究員）

佐々葉遼平（特別共同利用研究員）

石原麻由美（事務支援員）

加茂恭子（事務支援員）

横田光代（事務支援員）

A-1) 専門領域：表面物性物理学，電子分光計測技術，放射光科学

A-2) 研究課題：

- a) 電子分光装置・マルチモーダルスピン分析器の新規開発を突破口とした UVSOR の高度化
- b) 運動量分解光電子分光に関する新規現象を基盤とした測定手法確立
- c) 新奇表面電子物性・化学特性・スピン科学の応用展開
- d) 諸分光手法の融合による電子状態計測データベース構築と利用コミュニティーの開拓

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) ① UVSOR オリジナルの Momentum Microscope (MM) 拠点構築を主務とする。MM は空間・波数空間・エネルギーの幅広い範囲での高分解能測定を可能にするユニークな分析器である。電子物性研究に適した VUV/EUV 領域での高強度・可偏光などといった UVSOR の光源特性を活かした測定機能を実装する MM の導入を実現し、論文・プレスリリースを通じて成果発信を続けている。② 並行して全天球電子レンズ及び電子エネルギー・スピン分析器を考案し国際特許出願した。上記の MM は 3 \AA^{-1} までの波数空間の一括測定ができるため価電子帯研究で有効な運動エネルギー 36 eV 以下の領域では全天球をカバーすることができるが、原子配列を研究するのに有効な運動エネルギー 500 eV 以上の領域ではせいぜい 15° の領域でしかない。新規分析器は 2 keV でも全天球の放出光電子を取り込むことができ、後段のスピン偏向器でスピンの 3 次元ベクトル解析ができるようになる。①は high-end 型価電子帯光電子分光装置、②は内殻光電子ホログラフィー測定装置である。両者を融合させ、スピン 3 次元ベクトル解析を実・逆空間で自在にマッピングできる唯一無二の装置を構築する。
- b) 物性評価に適した光波長帯の連続的なエネルギー可変性が UVSOR の最大の特徴である。BL6U は軟 X 線領域 ($45\text{--}700 \text{ eV}$) をカバーする直線偏光ビームラインである。③分子科学で重要となる CNO 吸収端の光を用い、元素選択的な共鳴励起によって価電子帯の原子軌道構成を解明できる共鳴光電子分光の実験を成功させた。特に、吸収端にてグラファイトの π バンドが選択的に励起される様子を波数空間上で可視化したが、共鳴 Auger 電子スペクトルに価電子帯分散が重なる現象の発見は重要である。グラフェンから π 共役系分子への展開に歩を進め、お家芸としての共鳴光電子回折法を確立しつつある。本年は「運動量分解光電子顕微鏡法」を新たに確立しグラファイトの単原子層ステップの可視化に成功し、プレスリリースを行った。④光エネルギー可変性を活かした k_2 分散測定による全

Brillouin 域価電子帯分散マッピングや偏光特性を活かした原子軌道波動関数解析技術は BL6U での共同研究推進の基盤であるが、さらに精緻な測定を行い、表面特有の電子状態や現象の情報を引き出す研究展開を進めている。

- c) BL7U は真空紫外領域 (6–40 eV) をカバーする偏光可変ビームラインである。ブランチ化を行い、新たに PMM に直入射配置で導入することに成功した。軟 X 線の照射位置と同じ場所で真空紫外光による全立体角光電子分光を行うことができる。特にバンドを構成する原子軌道の対称性を直接的に解析することができる新しい手法の展開が始まった。二つのアンジュレータ光源を駆使する包括的な光電子分光ステーションの構築が実現した。この直入射配置を活用した PMM 展開について解説した論文が受理された (プレスリリース準備中)。高対称の光励起実験が可能となり、価電子帯を構成する原子軌道の情報が得られること、および解析で問題となる散乱現象の見分け方を早速実証実験で示すことに成功した (2024.01 放射光学会にて発表)。
- d) 光電子回折・分光を用いて典型的な高温超伝導体 Bi2212 や代表的層状物質 TaSe₂, TiSe₂ の相転移前後の電子状態をとらえた。graphite 表面の単原子ステップの顕微鏡の撮影に成功した (*Phys. Rev. B* 2022) は大きな前進である。新たに確立した顕微鏡 ARPES/ARPES 顕微鏡法の論文 (*J. Phys. Soc. Jpn.* 2022) および (*Rev. Sci. Instrum.* 2023) は両方とも Editor's Choice に選定された。劈開試料表面の局所部分の精密分析の成功は今後の共同研究を呼び込む重要な成果である。共同研究先から Ir 単結晶薄膜の電子状態評価の依頼を受け、バンド分散の測定に成功した。この薄膜は新しいスピン 2 次元フィルターとして有望な材料であり、上記で述べたスピン 3 次元ベクトル解析への応用展開につながるものである。

B-1) 学術論文

T. UCHIYAMA, H. GOTO, E. UESUGI, A. TAKAI, L. ZHI, A. MIURA, S. HAMAOKA, R. EGUCHI, H. OTA, K. SUGIMOTO, A. FUJIWARA, F. MATSUI, K. KIMURA, K. HAYASHI, T. UENO, K. KOBAYASHI, J. AKIMITSU and Y. KUBOZONO, “Semiconductor–Metal Transition in Bi₂Se₃ Caused by Impurity Doping,” *Sci. Rep.* **13**(1), 537 (2023). DOI: 10.1038/s41598-023-27701-5

S. KERA, F. MATSUI, K. TANAKA, Y. TAIRA, T. ARAKI, T. OHIGASHI, H. IWAYAMA, M. FUJIMOTO, H. MATSUDA, E. SALEHI and M. KATOH, “Prospects Required for Future Light-Source Facilities: A Case of UVSOR Synchrotron Facility,” *Electron. Struct.* **5**(3), 034001 (2023). DOI: 10.1088/2516-1075/acdf32

F. MATSUI, K. HAGIWARA, E. NAKAMURA, T. YANO, H. MATSUDA, Y. OKANO, S. KERA, E. HASHIMOTO, S. KOH, K. UENO, T. KOBAYASHI, E. IWAMOTO, K. SAKAMOTO, S. TANAKA and S. SUGA, “Soft X-Ray Photoelectron Momentum Microscope for Multimodal Valence Band Stereography,” *Rev. Sci. Instrum.* **94**(8), 083701 (2023). DOI: 10.1063/5.0154156

O. ENDO, F. MATSUI, S. KERA, W.-J. CHUN, M. NAKAMURA, K. AMEMIYA and H. OZAKI, “Hole Doping to Perylene on Au(110): Photoelectron Momentum Microscopy,” *e-J. Surf. Sci. Nanotechnol.* **21**(3), 236–240 (2023). DOI: 10.1380/ejssnt.2023-024

B-4) 招待講演

松井文彦, 「光電子運動量顕微鏡による電子状態研究: 『観察・ミル』から『解明・ワカル』へ」, 2023年度物質科学研究討論会, 土岐, 2024年3月.

松井文彦, 「放射光研究の最近の動向 光電子分光法を中心に」, R026先端計測技術の将来設計委員会第12回研究会, 東京, 2023年6月.

B-5) 特許出願

US2024-0047190, “Electrostatic Deflection Convergence-Type Energy Analyzer, Imaging-Type Electron Spectroscopic Device, Reflecting Imaging-Type Electron Spectroscopic Device, And Spin Vector Distribution Imaging Device,” H. MATSUDA and F. MATSUI (National Institutes of Natural Sciences), 2021 年.

4170694, “Electrostatic Deflection Convergence-Type Energy Analyzer, Imaging-Type Electron Spectroscopic Device, Reflecting Imaging-Type Electron Spectroscopic Device, And Spin Vector Distribution Imaging Device,” H. MATSUDA and F. MATSUI (National Institutes of Natural Sciences), 2021 年.

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

日本表面真空学会理事 (2021.5–2023), 協議員 (2023–2025).

日本放射光学会庶務幹事 (2021.9–2023).

学会の組織委員等

表面構造に関する国際学会 ICSOS 国際アドバイザー委員 (2017–).

文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

日本学術振興会 R026 先端計測技術の将来設計委員会運営委員 (2019–).

学会誌編集委員

日本表面真空学会出版委員 (2013–).

B-10) 競争的資金

科研費基盤研究(C), 「全角取り込み光電子分光法の開発」, 松田博之 (2021 年度–2025 年度).

科研費挑戦的研究(開拓), 「ドーパントの価数ごとの立体原子配列を観測する小型測定装置の研究」(代表: 松下智裕), 松井文彦 (研究分担者) (2021 年度–2025 年度).

科研費基盤研究(B), 「グラフェン / h-BN 構造を用いたグラフェン透明アンテナの特性向上に関する研究」(代表者: 黄 晋二), 松井文彦 (研究分担者) (2023 年度–2025 年度).

B-11) 産学連携

共同研究, SPECS Surface Nano Analysis GmbH, 「Development of 2D-projection analyzers」, 松井文彦 (2022 年度–2024 年度).

共同研究, 三菱ケミカル(株), 松井文彦 (2020 年度–).

C) 研究活動の課題と展望

UVSOR 型 Momentum Microscope (MM) 利用研究を推進する。顕微角度分解光電子分光, 共鳴光電子分光, 3D 波数空間分解光電子分光法を協力研究に供するとともに自身の表面物性科学研究を進める。軟 X 線ビームラインと VUV ビームライン両方を同時に MM に導く two-beam MM 実験ステーションの構築に成功した。2023 年度は両方での運用が始まった。現在 2D スピンフィルタの最適化を進め, 両ビームラインを利用したスピンを含めた電子状態解析環境の構築を進めている。基礎研究として磁性薄膜・キラル分子膜の電子状態・原子構造研究を進める。

MM 開発の先駆者がいる Forschungszentrum Jülich (FZJ) の電子物性部門 (PGI-6) と学術協定を結び、表面電子物性の共同研究を進めてきたおかげで、UVSOR でも MM が順調に立ち上がった。時間分解型の MM 開発を進めるドイツ・DESY の M. Hoesch らとも共同研究を密にし、こちらからスピン研究に関して相手から時間分解測定法に関して経験技術交流を進めている。本装置を活かした実験を積極的に進めるユーザーコミュニティ構築のための第 1 回 (2019) ・第 2 回 (2020.10) 国際ワークショップ・第 3 回 (2022.10) 国際会議特別セッション共催、第 4 回 (2023.7) 分子研研究会と継続的に開催し、東アジア圏での MM 開発グループの萌芽のネットワークが密になった。今年は DESY にて招待講演を行った。UVSOR の国内外からのビジビリティを高めるとともに、他のビームラインにも先端拠点を目指す機運と風土の定着を活動指針として進めている。

各種分光研究で取得されるデータを有効活用するためのデータフォーマット策定や公開のためのインフラづくりの重要性が近年認識されてきている。多量のデータを協力研究の研究者と共同で解析するために、データ解析ソフトや手法の整備を進めている。学会 (放射光学会)、産学連携委員会 (R026 先端計測)、計測コミュニティー (XAFS) などデータフォーマット整備の活動に加わっている。UVSOR 放射光利用を産業界を含めた広い潜在的ユーザーに拡大する機会ととらえている。

田 中 清 尚 (准教授) (2014 年 4 月 1 日着任)

ZHU, Yupeng (特別訪問研究員)
小山 正太郎 (特別共同利用研究員)
三田 愛也 (特別共同利用研究員)
河野 健人 (特別共同利用研究員)
増田 圭亮 (特別共同利用研究員)
石原 麻由美 (事務支援員)
加茂 恭子 (事務支援員)
横田 光代 (事務支援員)

A-1) 専門領域：物性物理学, 放射光科学

A-2) 研究課題：

- a) 新規スピン分解角度分解光電子分光装置の開発
- b) 高温超伝導体の電子状態の解明
- c) UVSOR ビームラインの高精度化

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) UVSOR BL5U では高効率スピン分解角度分解光電子分光測定の開発を進めている。これまで試料の面内 1 軸方向ではあるが Au(111) 表面バンドのラッシュバ分裂をスピン分解してイメージスペクトルを取得することに成功し、運動量空間分解能や検出効率なども既存システムを大きく上回ることも確認できている。ただし、測定時には頻繁にスピントラゲットの磁化操作をする必要があり、このままではユーザー利用を開始することは困難であることが判明した。スピントラゲットの磁化操作を不要とするために、スピンの向きをあらゆる方向に変更できるスピンマニピュレータを導入したが、スピンマニピュレータのパラメータ整備が必要となっている。2023 年度にこれまで整備された 1 軸方向に加えて、特定の励起光エネルギーのみではあるがもう 1 軸の整備をした。その結果、試料面内方向の完全なスピン情報を得ることができるようになり、Au(111) のフェルミ面において、直行する 2 軸方向のスピン成分が連続的に変化する様子の観測に成功した。
- b) UVSOR BL7U において、銅酸化物高温超伝導体 Bi2213 の角度分解光電子分光測定を行った。超伝導転移温度の上下でのスペクトルを比較することで、超伝導によるスペクトラルウェイト変化の運動量空間依存性とホール濃度依存を導出することに成功した。これまで長い間有効とされてきたフェルミアーク描像を否定する結果が得られており、高温超伝導が超伝導ギャップよりも超流動密度に強く影響を受けていることを示唆している。
- c) 放射光のビームラインでは使用する励起光エネルギーを設定したときに、毎回エネルギーとビームスポット位置が再現されることが、高精度な実験、あるいは測定の自動化を実現する上で欠かせない。BL5U では励起光スキャン、空間スキャンプログラムなど早くから測定の自動化に取り組んできたが、エネルギーの再現性があまりよくないことが問題となっていた。そこでレイトレースシミュレーションも駆使しながら、再現性を悪化させる原因を調査する実験を行ったところ、回折格子の角度制御において、機械的な動作の問題があることが判明した。そこでこの問題を回避するための特別なモーター制御を開発・導入し、再現性を確保することに成功した。今後は同様の整備を他の光電子ビームライン (BL7U) でも予定している。

B-1) 学術論文

- P. RAN, B. LIN, C. HONG, B. WANG, X. XIE, C. JIANG, K. TANAKA and R. H. HE**, “Observation of Novel In-Gap States on Alkali Metal Dosed Ti_2O_3 Film,” *J. Appl. Phys.* **135(9)**, 095303 (2024). DOI: 10.1063/5.0191245
- R. NAKAZAWA, A. MATSUZAKI, K. SHIMIZU, I. NAKAMURA, E. KAWASHIMA, S. MAKITA, K. TANAKA, S. YASUNO, H. SATO, H. YOSHIDA, M. ABDI-JALEBI, S. D. STRANKS, S. TADANO, P. KRÜGER, Y. TANAKA, H. TOKAIRIN and H. ISHII**, “Reliable Measurement of the Density of States Including Occupied In-Gap States of an Amorphous In-Ga-Zn-O Thin Film via Photoemission Spectroscopies: Direct Observation of Light-Induced In-Gap States,” *J. Appl. Phys.* **135(8)**, 085301 (2024). DOI: 10.1063/5.0185405
- Y. P. ZHU, X. CHEN, X. R. LIU, Y. LIU, P. LIU, H. ZHA, G. QU, C. HONG, J. LI, Z. JIANG, X. M. MA, Y. J. HAO, M. Y. ZHU, W. LIU, M. ZENG, S. JAYARAM, M. LENGGER, J. DING, S. MO, K. TANAKA, M. ARITA, Z. LIU, M. YE, D. SHEN, J. WRACHTRUP, Y. HUANG, R. H. HE, S. QIAO, Q. LIU and C. LIU**, “Observation of Plaid-Like Spin Splitting in a Noncoplanar Antiferromagnet,” *Nature* **626(7999)**, 523–528 (2024). DOI: 10.1038/s41586-024-07023-w
- T. ITO, T. OUISSE, M. MITA, K. TANAKA, L. JOUFFRET, H. PAZNIK and S. QUESSADA**, “Electronic Structure of the Surface States of the Zr_3SnC_2 MAX Phase,” *Phys. Rev. B* **108(23)**, 235145 (2023). DOI: 10.1103/PhysRevB.108.235145
- T. NAKAMURA, H. SUGIHARA, Y. CHEN, R. YUKAWA, Y. OHTSUBO, K. TANAKA, M. KITAMURA, H. KUMIGASHIRA and S. KIMURA**, “Two-Dimensional Heavy Fermion in a Monoatomic-Layer Kondo Lattice YbCu_2 ,” *Nat. Commun.* **14(1)**, 7850 (2023). DOI: 10.1038/s41467-023-43662-9
- A. HONMA, D. TAKANE, S. SOUMA, K. YAMAUCHI, Y. WANG, K. NAKAYAMA, K. SUGAWARA, M. KITAMURA, K. HORIBA, H. KUMIGASHIRA, K. TANAKA, T. K. KIM, C. CACHO, T. OGUCHI, T. TAKAHASHI, Y. ANDO and T. SATO**, “Antiferromagnetic Topological Insulator with Selectively Gapped Dirac Cones,” *Nat. Commun.* **14(1)**, 7396 (2023). DOI: 10.1038/s41467-023-42782-6
- K. YANAGIZAWA, K. SUGAWARA, T. KAWAKAMI, R. ANDO, K. YAEGASHI, K. NAKAYAMA, S. SOUMA, K. TANAKA, M. KITAMURA, K. HORIBA, H. KUMIGASHIRA, T. TAKAHASHI and T. SATO**, “Switching of Charge-Density Wave by Carrier Tuning In Monolayer TiTe_2 ,” *Phys. Rev. Mater.* **7(10)**, 104002 (2023). DOI: 10.1103/PhysRevMaterials.7.104002
- S. KERA, F. MATSUI, K. TANAKA, Y. TAIRA, T. ARAKI, T. OHIGASHI, H. IWAYAMA, M. FUJIMOTO, H. MATSUDA, E. SALEHI and M. KATOH**, “Prospects Required for Future Light-Source Facilities: A Case of UVSOR Synchrotron Facility,” *Electron. Struct.* **5(3)**, 034001 (2023). DOI: 10.1088/2516-1075/acdf32
- M. HORIO, X. PEIAO, M. MIYAMOTO, T. WADA, K. ISOMURA, J. OSIECKI, B. THIAGARAJAN, C. M. POLLEY, K. TANAKA, M. KITAMURA, K. HORIBA, K. OZAWA, T. TANIGUCHI, M. FUJITA and I. MATSUDA**, “Influence of Oxygen Coordination Number on the Electronic Structure of Single-Layer La-Based Cuprates,” *Phys. Rev. B* **108(3)**, 035105 (2023). DOI: 10.1103/PhysRevB.108.035105
- H. TANAKA, A. V. TELEGIN, Y. P. SUKHORUKOV, V. A. GOLYASHOV, O. E. TERESHCHENKO, A. N. LAVROV, T. MATSUDA, R. MATSUNAGA, R. AKASHI, M. LIPPMAA, Y. ARAI, S. IDETA, K. TANAKA, T. KONDO and K. KURODA**, “Semiconducting Electronic Structure of the Ferromagnetic Spinel HgCr_2Se_4 Revealed by Soft-X-Ray Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy,” *Phys. Rev. Lett.* **130(18)**, 186402 (2023). DOI: 10.1103/PhysRevLett.130.186402

C. HONG, W. ZOU, P. RAN, K. TANAKA, M. MATZELLE, W.-C. CHIU, R. S. MARKIEWICZ, B. BARBIELLINI, C. ZHENG, S. LI, A. BANSIL and R.-H. HE, “Anomalous Intense Coherent Secondary Photoemission from a Perovskite Oxide,” *Nature* **617**, 493–498 (2023). DOI: 10.1038/s41586-023-05900-4

B-4) 招待講演

K. TANAKA, “Angle-resolved photoemission study in UVSOR synchrotron radiation,” International Workshop on Advanced Spectroscopy in Materials Science, Jinhua (China), November 2023.

K. TANAKA, “Development of spin-resolved ARPES at UVSOR,” MBS Workshop 2023, Norrtälje (Sweden), June 2023.

C) 研究活動の課題と展望

開発中のスピン分解ARPESシステムは、目標としていたイメージでのスピン分解スペクトルの取得に成功し、運動量空間分解能や検出効率なども既存システムを大きく上回ることも確認できている。ユーザー利用を目指して、スピンの向きをあらゆる方向に変更できるスピンマニピュレータを導入したが、電子レンズ系のパラメータ整備に時間がかかっている。xyz軸のうち2軸まで整備が完了しつつあるが、できるだけ早期にパラメータの整備を完了してユーザー利用開始を目指す予定である。

光化学測定器開発研究部門（極端紫外光研究施設）

荒木 暢（主任研究員）（2023年1月1日着任）

石原 麻由美（事務支援員）

加茂 恭子（事務支援員）

横田 光代（事務支援員）

A-1) 専門領域：放射光科学

A-2) 研究課題：

- a) 軟X線吸収分光を基礎とした生命科学へのアプローチ
- b) 液中観察のためのX線分光顕微鏡と試料環境開発
- c) 夾雑環境生体試料の定量化学状態マッピング

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 軟X線吸収分光を基礎とした生命科学へのアプローチ：UVSORの次期計画を念頭に、既存の軟X線ビームラインを利用したトライアルとして、以下の2つの試料システムについて Scanning Transmission X-ray Microscopy (STXM) による実験を行った。

光合成タンパク質の超複合体の測定を行い、鉄のL吸収端X線吸収スペクトル(XAS)において十分なレベルの信号を検出でき、スペクトルを正しく測定できることを確認したが、マンガンについては限られたビームタイム内では検出できなかった。更に実験を行い、鉄およびマンガンの共鳴X線散乱の実験に繋がりたいと考えている。

極限環境下で乾眠することが知られているクマムシについて、その微視的解剖学の観点から、樹脂に包埋した超薄切片試料についてSTXM観察を行った。炭素、窒素、酸素のK吸収端ではエネルギーを変化させる（特定の吸収構造に合わせる）ことでオルガネラに対応すると思われる微細構造が観察され、Scanning Electron Microscopy (SEM) で観察された構造にほぼ対応していることを確認した。今後、相補的な観点で用いるSEMとの対比などを共同研究者と議論し、①STXMでしか見えない構造があるのか？ ②SEMで観察されている構造の特定にSTXMが寄与できるか？ といったことを明らかにし、研究を進めたい。

X線のコヒーレンスを生かしたイメージングについて現在のUVSORおよび次期リングでの実現を検討するために、先行する海外施設での装置見学および実験を年度末に行い、計画を立案する。

- b) 液中観察のためのX線分光顕微鏡と試料環境開発：Diamond Light Sourceにおいて硬X線顕微分光によって液中セルを使ったバクテリアに金ナノ粒子が担持されたポリマー粒子を添加した試料の観察を行った。金の酸化状態をXASスペクトル測定から決定した。今後、軟X線領域でのSTXMでも同様の試料の観察を計画している。Transmission Electron Microscopy (TEM) 用に開発されたセルを利用した実験であり、今後のSTXM実験の参考になるものであった。TEM用の液体セルの活用または、独自セルの開発の2つの観点で計画を進める。試料自体を走査するSTXMの場合、液中セル自体を揺さぶることになるため、今後、集光X線の走査または結像型による試料を固定した状態での測定を模索する。また、液体エタンなどを冷媒に用いた急速凍結による試料準備のオプションも併せて検討する。

- c) 夾雑環境生体試料の定量化学状態マッピング；実際の細胞中の測定について、軟X線を使って行うことの実現性と他の手法と比べた利点を検討するため、様々な試料システムについて岡崎3機関や外部の共同研究者と議論を行ってきた。来年度からはバイオプロジェクトしてUVSORのビームタイムを確保し、フィージビリティ研究をSTXMや共鳴散乱法を使って行う計画である。細胞中の「夾雑環境」で、これまで高分子研究や皮膚への薬剤の浸透などで発揮された化学状態弁別性とメソスケールの空間分解能を生かした定量分析をどう実現するかを検討する。軟X線と組み合わせる手法の選択が重要となる。

B-1) 学術論文

C. VOLLMER, D. KEPAPTSOGLU, J. LEITNER, A. B. MOSBERG, K. EL HAJRAOUI, A. J. KING, C. L. BAYS, P. F. SCHOFIELD, T. ARAKI and Q. M. RAMASSE, “High-Spatial Resolution Functional Chemistry of Nitrogen Compounds in the Observed UK Meteorite Fall Winchcombe,” *Nat. Commun.* **15(1)**, 778 (2024). DOI: 10.1038/s41467-024-45064-x

E. HARDING, T. ARAKI, J. ASKEY, M. HUNT, A. VAN DEN BERG, D. RAFTREY, L. ABALLE, B. KAULICH, E. MACDONALD, P. FISCHER and S. LADAK, “Imaging the Magnetic Nanowire Cross Section and Magnetic Ordering within a Suspended 3D Artificial Spin-Ice,” *APL Mater.* **12(2)**, 021116 (2024). DOI: 10.1063/5.0176907

K. EUSTERHUES, J. THIEME, S. NARVEKAR, T. ARAKI, M. KAZEMIAN, B. KAULICH, T. REGIER, J. WANG, J. LUGMEIER, C. HÖSCHEN, T. MANSFELDT and K. UWE TOTSCHKE, “Importance of Inner-Sphere P-O-Fe Bonds in Natural and Synthetic Mineral-Organic Associations,” *Sci. Total Environ.* **905**, 167232 (2023). DOI: 10.1016/j.scitotenv.2023.167232

S. KERA, F. MATSUI, K. TANAKA, Y. TAIRA, T. ARAKI, T. OHIGASHI, H. IWAYAMA, M. FUJIMOTO, H. MATSUDA, E. SALEHI and M. KATOH, “Prospects Required for Future Light-Source Facilities: A Case of UVSOR Synchrotron Facility,” *Electron. Struct.* **5(3)**, 034001 (2023). DOI: 10.1088/2516-1075/acdf32

B-4) 招待講演

T. ARAKI, “UVSOR BL4U STXM Beamline: Status and Future Outlook,” UVSOR-III + MAX IV International Workshop Frontier of Soft X-Ray Spectroscopy for Chemical Processes in Solutions, Okazaki, 2023年10月.

荒木 暢, 「Soft X-Ray Spectromicroscopy: Current Status and Future Perspectives」, 第15回日本放射光学会若手研究会「放射光と顕微鏡技術・機械学習との交差点」, 吹田市, 2023年9月.

B-8) 大学等での講義, 客員

Diamond Light Source, Visiting Scientist, 2023年-.

岩 山 洋 士 (助教) (2010 年 4 月 1 日着任)

石原 麻由美 (事務支援員)

加茂 恭子 (事務支援員)

横田 光代 (事務支援員)

A-1) 専門領域：軟 X 線構造解析，軟 X 線顕微鏡法，ソフトマター，X 線非線形光学

A-2) 研究課題：

- a) 軟 X 線共鳴散乱法によるソフトマターのメゾスコピック構造解析
- b) 密着型軟 X 線顕微鏡法による生体試料の XAFS イメージング
- c) X 線自由電子レーザーを用いた溶液表面における二次高調波発生による化学状態分析

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 高分子，液晶，コロイドなどのソフトマターは，メゾスコピック領域に特徴的な構造を持ち，多くの物性はその構造に由来する。偏光顕微鏡などで観察できない数 nm から数 100nm 程度のメゾスコピック領域の構造をしらべる手法として，X 線小角散乱法が用いられ，多くの成果が挙げられている。しかしながら，X 線小角散乱は試料の電子密度の変調に対して敏感であるが，電子密度の近い多成分系における特定の成分の構造や，ねじれ構造などの観測は難しい。X 線共鳴過程を用いることで元素・分子種・分子配向に選択性を有する散乱光をえることができる。しかしソフトマターの主成分である軽元素（炭素，窒素，酸素など）の X 線共鳴エネルギーは，0.1 eV ~ 1 keV の軟 X 線領域であり，X 線小角散乱法で使用する 10 keV 程度の X 線とは一致しない。そのため，我々は軟 X 線領域の共鳴散乱光を観測できるための手法（共鳴軟 X 線散乱法）を行っている。我々は UVSOR のビームライン BL3U において，共鳴軟 X 線散乱装置の開発し，高分子や液晶の構造解析を行っている。本年度は，炭素，窒素，酸素の K 殻吸収端の内殻共鳴に相当する軟 X 線を用いて，エポキシ樹脂の架橋構造の解析や，多成分系の有機薄膜の成分ごとの解析，キラル液晶のモルフォロジーの解析を行った。また，放射光施設 Photon Factory との共同研究開発事業にも参画し，より高機能な共鳴軟 X 線散乱装置の開発を進め，真空槽の組み上げおよび検出器の動作試験を行った。
- b) 2023 年度より，軟 X 線による生体試料の可視化を実現すべく密着型軟 X 線顕微鏡の開発を始めた。本研究では，口腔上皮細胞の炭素 K 殻吸収端領域の密着型 X 線顕微鏡による XAFS イメージングを行った。露光時間 10 秒で，光エネルギー 280 eV ~ 320 eV まで 0.1 eV 刻みで 400 枚撮像した。画像のエネルギー依存性を調べることで，画素 1 pixel ごとの XAFS スペクトルを得ることに成功した。機械学習法を用いて，スペクトルを 7 つに分類し，細胞外，細胞膜，細胞核，小胞体由来の構造などが無染色で観測できた。このように XAFS イメージングおよび機械学習によるスペクトル分類により，染色することなく生体試料を観測することができることを示した。
- c) X 線自由電子レーザー SACLA BL1 を利用した液体試料を対象とした実験装置の開発を進めている。本年度は，Nevada 大の Craig Schwartz さんと液体表面からの二次高調波発生の実験を行った。液体表面などの界面においては，空間対称性の破れより，二次高調波が発生する。そのため，二次高調波を観測することで表面敏感な実験を行うことができる。特に液体表面は気液界面であるため，反応場として重要であり，その化学状態を測定する手法は重要である。また軟 X 線の共鳴過程を利用することで，表面の特定の元素の化学状態を選択的に観測できる長所がある。

そのため、SACLA BL1 を利用して、高強度の軟X線パルスを鉄硝酸水溶液の超薄膜フラットジェットに照射しその反射光を、斜入射分光器で分光観測した。現在解析中である。

B-1) 学術論文

H. ONO, Y. UMEDA, K. YOSHIDA, K. TSUTSUI, K. YAMAMOTO, O. ISHIYAMA, H. IWAYAMA, E. NAKAMURA, T. YOKOYAMA, M. MIZUGUCHI and T. MIYAMACHI, “Intermolecular Interaction Induced Magnetic Decoupling at an Organic-Inorganic Interface,” *J. Phys. Chem. C* **127(49)**, 23935–23940 (2023). DOI: 10.1021/acs.jpcc.3c05966

Y. HIKOSAKA, T. KANEYASU, S. WADA, H. KOHGUCHI, H. OTA, E. NAKAMURA, H. IWAYAMA, M. FUJIMOTO, M. HOSAKA and M. KATOH, “Frequency-Domain Interferometry for the Determination of Time Delay between Two Extreme-Ultraviolet Wave Packets Generated by a Tandem Undulator,” *Sci. Rep.* **13(1)**, 10292 (2023). DOI: 10.1038/s41598-023-37449-7

T. KANEYASU, Y. HIKOSAKA, S. WADA, M. FUJIMOTO, H. OTA, H. IWAYAMA and M. KATOH, “Time Domain Double Slit Interference of Electron Produced by XUV Synchrotron Radiation,” *Sci. Rep.* **13(1)**, 6142 (2023). DOI: 10.1038/s41598-023-33039-9

F. ALLUM, Y. KUMAGAI, K. NAGAYA, J. HARRIES, H. IWAYAMA, M. BRITTON, P. H. BUCKSBAUM, M. BURT, M. BROUARD, B. DOWNES-WARD, T. DRIVER, D. HEATHCOTE, P. HOCKETT, A. J. HOWARD, J. W. L. LEE, Y. LIU, E. KUKK, J. W. MCMANUS, D. MILSESEVIC, A. NIOZU, J. NISKANEN, A. J. ORR-EWING, S. OWADA, P. A. ROBERTSON, A. RUDENKO, K. UEDA, J. UNWIN, C. VALLANCE, T. WALMSLEY, R. S. MINNS, D. ROLLES, M. N. R. ASHFOLD and R. FORBES, “Direct Momentum Imaging of Charge Transfer Following Site-Selective Ionization,” *Phys. Rev. A* **108(4)**, 043113 (2023). DOI: 10.1103/PhysRevA.108.043113

S. KERA, F. MATSUI, K. TANAKA, Y. TAIRA, T. ARAKI, T. OHIGASHI, H. IWAYAMA, M. FUJIMOTO, H. MATSUDA, E. SALEHI and M. KATOH, “Prospects Required for Future Light-Source Facilities: A Case of UVSOR Synchrotron Facility,” *Electron. Struct.* **5(3)**, 034001 (2023). DOI: 10.1088/2516-1075/acdf32

B-7) 学会および社会的活動

学会誌編集委員

原子衝突学会学会誌編集員 (2020–).

B-11) 産学連携

共同研究, 三菱ケミカル(株), 岩山 洋 (2023年度).

6-6 物質分子科学研究領域

電子構造研究部門

横山 利彦 (教授) (2002年1月1日着任)

倉橋 直也 (特任助教)

前島 尚行 (特任助教)

泉 善貴 (大学院生)

栗田 佳子 (事務支援員)

A-1) 専門領域：表面磁性, X線分光学

A-2) 研究課題：

- a) 雰囲気制御型硬X線光電子分光法の開発と不均一触媒その場観察への応用
- b) X線磁気円二色性などを用いた磁性薄膜の磁気構造解析
- c) X線吸収分光を用いた機能合金の局所構造と熱的性質
- d) X線発光分光による固体高分子形燃料電池の電解質に関する研究
- e) 遷移金属リン化合物単結晶・薄膜の触媒活性・磁性に関する研究

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) SPring-8 BL36XUで我々が開発した雰囲気制御型硬X線光電子分光装置により不均一触媒の反応進行中のオペランド観測を行っている。本設備はNEDO燃料電池プロジェクトにより導入され、固体高分子形燃料電池(PEFC)電極触媒のin situ測定を行っていたが、NEDO終了後は、より一般的な不均一触媒等について対象を拡げて研究を遂行しているものである。
- b) 分子研シンクロトン放射光施設UVSOR-III BL4Bを用いた高磁場極低温X線磁気円二色性法(XMCD)を共同利用公開し、様々な磁性薄膜の磁気特性検討について国内外との共同研究を広く実施している。また、磁性薄膜の原子層毎の磁性を解析するべく軟X線共鳴反射測定技術開発を行っているところである。
- c) X線吸収分光を用いて、強磁性などの機能を発現する合金の局所構造と熱的性質を理論計算を含めて検討している。
- d) X線発光分光による固体高分子形燃料電池の電解質に関する研究を始めた。
- e) 遷移金属リン化合物単結晶・薄膜の触媒活性・磁性に関する研究を始めた。

B-1) 学術論文

H. ONO, Y. UMEDA, K. YOSHIDA, K. TSUTSUI, K. YAMAMOTO, O. ISHIYAMA, H. IWAYAMA, E. NAKAMURA, T. YOKOYAMA, M. MIZUGUCHI and T. MIYAMACHI, "Intermolecular Interaction Induced Magnetic Decoupling at an Organic-Inorganic Interface," *J. Phys. Chem. C* **127**(49), 23935–23940 (2023). DOI: 10.1021/acs.jpcc.3c05966

T. KOITAYA, K. YAMAMOTO, T. URUGA and T. YOKOYAMA, “Operando Characterization of Copper-Zinc-Alumina Catalyst for Methanol Synthesis from Carbon Dioxide and Hydrogen by Ambient-Pressure Hard X-Ray Photoelectron Spectroscopy,” *J. Phys. Chem. C* **127**(27), 13044–13054 (2023). DOI: 10.1021/acs.jpcc.3c02785

T. KAWAWAKI, Y. MITOMI, N. NISHI, R. KUROSAKI, K. OIWA, T. TANAKA, H. HIRASE, S. MIYAJIMA, Y. NIIHORI, D. J. OSBORN, T. KOITAYA, G. F. METHA, T. YOKOYAMA, K. IIDA and Y. NEGISHI, “Pt₁₇ Nanocluster Electrocatalysts: Preparation and Origin of High Oxygen Reduction Reaction Activity,” *Nanoscale* **15**, 7272–7279 (2023). DOI: 10.1039/d3nr01152f

B-3) 総説, 著書

高木康多, 横山利彦, 「大気圧硬X線線光電子分光によるオペランド計測の現状と展望」, 表面と真空 特集「準大気圧, 大気圧光電子分光法の最近の進展」, **67**(3), 123–128 (2024). DOI: 10.1380/vss.67.123

小坂谷貴典, 山本 達, 松田 巖, 吉信 淳, 横山利彦, 「準大気圧光電子分光法による二酸化炭素水素化のオペランド観測」, 表面と真空 特集「準大気圧, 大気圧光電子分光法の最近の進展」, **67**(3), 117–122 (2024). DOI: 10.1380/vss.67.117

横山利彦, 「大気圧光電子分光の世界初観測と燃料電池の硫黄被毒過程追跡」, *SPring-8 詳細パンフレット 2023*, 18 (2023).

T. YOKOYAMA, “World’s First Photoelectron Spectroscopy under Atmospheric Pressure and Tracking of Sulfur Poisoning Process of Fuel Cells,” *SPring-8 Detailed Brochure*, 18 (2023).

B-4) 招待講演

横山利彦, 「物質科学のための放射光X線分光」, 第26回XAFS討論会, 滋賀県草津市, 2023年9月.

T. YOKOYAMA, “Operando ambient pressure hard x-ray photoelectron spectroscopic studies of working fuel cells and CO₂ reduction catalyst,” 16th Eurasia Conference on Chemical Sciences 2023, Frontiers in Chemical Sciences for Sustainability, Bangkok (Thailand), December 2023.

T. YOKOYAMA, “Thermal vibration and expansion from the view point of local structure,” 4th International Symposium on Negative Thermal Expansion, Padova (Italy), July 2023.

倉橋直也, 「様々な光で解析する高分子電解質膜と水の関係」, 水素・燃料電池材料研究会, 上智大学, 東京, 2024年1月.

倉橋直也, 「広範な波長をフレキシブルに活用した分光分析」, Menicon Future Device Laboratory 講演会, 名古屋工業大学, 名古屋, 2023年9月.

倉橋直也, 「放射光ことはじめ～使ってみるから結果の解釈まで～」, 第3回溶液化学夏期講演会, オンライン開催, 2023年8月.

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

日本放射光学会会長 (2021.10–2023.9).

文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

広島大学 放射光科学研究センター協議会委員 (2020-).

未来工学研究所「宇宙・海洋・地球・科学基盤分科会」委員 (2023-2024).

名古屋工業大学人事部会外部委員 (2023).

その他

文部科学省マテリアル先端リサーチインフラ・スポーク機関「マテリアルの高度循環のための技術」業務主任者 (2021-2031).

文部科学省マテリアル先端リサーチインフラ・運営機構業務「横断技術領域(物質・材料合成プロセス)」業務主任者 (2022-2031).

B-10) 競争的資金

科研費基盤研究(A), 「液体を反応場とした動的オペランド硬X線光電子分光システムの開発」, 横山利彦 (2021年度-2023年度).

C) 研究活動の課題と展望

2002年1月着任以降, 磁性薄膜の表面分子科学的制御と新しい磁気光学分光法の開発を主テーマとして, 高磁場極低温X線磁気円二色性(UVSOR)や紫外磁気円二色性光電子顕微鏡の発明, 広域X線吸収微細構造(EXAFS)法と経路積分法によるインバー等磁性合金の熱膨張等などで成果を上げてきた。2011年度から, SPring-8の超高輝度硬X線を利用した燃料電池のin situ 雰囲気制御型硬X線光電子分光の開発を行い, 2017年度には完全大気圧での光電子分光観測に世界で初めて成功した。光電子分光は, 燃料電池中の各構成成分の電位を電極なしに観測可能な有効手法であることを示し, 今後もこれを中心課題に据えた研究を推進する。さらに, 2013年度からは放射光やX線自由電子レーザーを用いた(超)高速時間分解X線吸収法の開発的研究を行ってきた。2022年度は, SPring-8を用いた雰囲気制御光電子分光等を用いた表面化学反応研究, UVSORを利用した共鳴X線磁気散乱による磁性薄膜解析, KEK-PFを用いた合金のEXAFS局所構造解析等を行った。2022年8月に小坂谷助教が転出, 2023年4月に山本助教が転出, 2022年12月に倉橋特任助教が着任, 公募中であったもう1名の特任助教として2023年8月16日に前島尚行特任助教が着任した。退職まで2年半であるが, X線発光分光による固体高分子形燃料電池の電解質に関する研究, 遷移金属リン化合物単結晶・薄膜の触媒活性・磁性に関する研究を新たに展開し始めた。

杉本 敏 樹 (准教授) (2018年5月1日着任)

櫻井 敦教 (助教)
金井 恒人 (特任講師)
市井 智章 (特任助教)
斎藤 晃 (学振特別研究員)
高橋 翔太 (学振特別研究員)
佐藤 宏祐 (学振特別研究員)
小山田 伸明 (特任研究員)
林 仲秋 (大学院生)
望月 達人 (大学院生)
金 成翔 (大学院生)
吉澤 龍 (大学院生)
常川 響 (大学院生)
松本 宜樹 (特別共同利用研究員)
手塚 玄惟 (特別共同利用研究員)
榊原 隆之 (技術支援員)
志村 真希 (事務支援員)

A-1) 専門領域：物理化学，分光学，機能物性化学，表面界面科学

A-2) 研究課題：

- a) メタン活性化光触媒反応系における新奇な水・金属助触媒効果の発見
- b) 高感度ラマン分光計測法の開発と電子非共鳴・表面プラズモン共鳴から脱却した表面分子吸着系の汎用的ラマン観測の実現
- c) 高次非線形分光法の開発と埋没界面フォノン・分子観測への応用
- d) 二次非線形極微分光法の開発と金属ナノギャップにおける局所・非局所非線形光学応答現象の発見

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 天然ガス中に豊富に含まれる資源であるメタンを光により活性化させ、化学的により付加価値が高い分子に変換させる光触媒技術は持続可能な社会の実現に向けて重要な化学技術である。我々は、水蒸気圧力を制御して水分子の吸着量を第一層吸着から多層吸着（10層程度）まで系統的に変化させながら光触媒によるメタン転換反応を調べたところ、水分子吸着層の厚さが二分子層程度の時にメタンの非酸化カップリング ($2\text{CH}_4 \rightarrow \text{C}_2\text{H}_6 + \text{H}_2$) によるエタン生成効率が顕著に増大することを見出した [Amano *et al.*, *Catalysis Today* **426**, 114375 (2023)]。このメタンカップリングの反応式には水分子が露わには関与しないため、この現象の分子起源を探るべく、水分子同位体 (D_2O) を用いたメタン転換光触媒過程のオペランド赤外分光測定を行った。その結果、吸着水分子は光触媒反応中に水酸基ラジカルとなり、それがメタンから水素をバリアレスに引き抜きメチルラジカルを効率的に生成させ ($\text{CH}_4 + \text{OD} \rightarrow \text{CH}_3 + \text{HDO}$)、そのメチルラジカル同士のカップリングによりエタン生成反応が誘起されている ($2\text{CH}_3 \rightarrow \text{C}_2\text{H}_6$) 事を突き止めた [Sato *et al.*, *Communications Chemistry* **6**, 8 (2023)]。また、我々は、Pt や Pd などの種々の金属助触媒を用いてメタン活性化光触媒反応を系統的に調べ、更に表面反応場のオペランド赤外分光計測を行うことにより、担持する金属種に依存し

てメタンと水の混合系における完全酸化種・部分酸化種の生成（反応選択性）が大きく変調され、さらに金属助触媒が正孔を補足し酸化されることを明らかにした。一般に、光触媒分野において金属助触媒は光誘起電子を補足し還元反応を促進することが想定されている。したがって、我々は、還元反応場としての従来の定説を超えて金属助触媒が酸化反応場としても機能していることを世界初で見出した [Sato *et al.*, *Angew. Chem., Int. Ed.* **62**, e2023060 (2023)]。

- b) 二つの光の差周波の喰りによって分子振動を共鳴励起（強制振動）させる非線形ラマン分光法に着目し、MHz 高繰り返しフェムト秒レーザーをベースとして時間的に非対称なパルス波形の成形とパルス遅延の精密制御を導入することで、電子共鳴あるいはプラズモン共鳴を用いて信号増大させることができない表面吸着分子系についても汎用的かつ高感度にラマン活性モードの観測を可能とする新しい界面非線形分子分光法を開発した。この新規方法論により、三次非線形ラマン分光法を表面界面系に適用する際に問題となるバルク由来の非共鳴バックグラウンド信号を数桁以上低減させることが可能となった。これにより、我々は代表的な金属・絶縁体の表面分子系として Pt(111)・Au(111)・SiO₂(0001) 基板表面に吸着した水分子の超薄膜やサブナノメートル薄さの自己組織化単分子膜の計測に成功した [論文 2 報準備・投稿中, Haruyama *et al.*, *Vac. Surf. Sci.* **65**, 355 (2022)]。とりわけ、水分子超薄膜系においては、協同的な水素結合揺らぎに起因するラマン活性モードの観測・解析から 100 K ~ 150 K の温度領域においてアモルファスの水素結合ネットワークが結晶化する挙動を捉えることに成功し [Tsuruoka *et al.*, 論文準備中, Noguchi *et al.*, 論文準備中], 自己組織化単分子膜においても集合構造の違いに起因した低振動数・高振動数ラマン活性モードを捉えることにも成功した [Ichii *et al.*, 論文投稿中]。
- c) 和周波発生振動分光法に代表される二次非線形分光法は空間反転対称性が破れたドメインに選択的な計測手法であり、表面界面観測に広く用いられている。しかし、振動励起に赤外光を用いるため、赤外光が透過しない“物質に埋没した界面”の観測には適用できない。これを克服するため、物質中を透過する二つの光の差周波の喰りで分子振動を共鳴励起（強制振動）させ、それを第二高調波でコヒーレントにアップコンバージョンさせる四次非線形光学過程に基づく振動分光法を展開し始めている。特に、この手法を用いて、空間反転対称性が無い水晶 (SiO₂) 薄膜の観測に透過配置と反射配置でそれぞれ成功し、その強度比から、その信号光が二次と三次のカスケード過程に由来するものではなく、四次非線形光学過程に由来するものであることの確証を得た。また、バルク水晶に埋没した界面振動モードの観測に成功した [Yoshizawa *et al.*, 論文準備中]。
- d) 走査トンネル顕微鏡 (STM) と和周波発生振動分光法を組み合わせ、水分子吸着系の水素結合ネットワークにおいて機能発現のカギを握る重要な構造情報である“水分子の配向 (水素の H-up・H-down 配置)”を高い空間分解能で観測する二次非線形極微分光法 (探針増強和周波発生振動分光法) の開発に世界に先駆けて取り組んでいる。その要素技術として、①先端形状を制御したプラズモニック Au ナノ探針の作成 [Mochizuki *et al.*, 論文準備中], 及び②光の回折限界以下のナノ探針先端領域からの第二高調波発生 (SHG) 信号の検知、に成功してきた。特に我々は、数 10MHz オーダーの高繰り返しレーザー光源を用いた赤外波長可変 OPO システムを新たに光学系に組み込むことで、可視域から中赤外領域にわたる幅広い波長領域において Au ナノ探針 - Au(111) 基板間のナノギャップにおける SHG 二次非線形光学応答の計測に成功するに至った。これにより、プラズモン共鳴に有利な可視域よりもむしろ赤外領域の光入射においてナノギャップから強く第二高調波が発生するという特異な近接場非線形光学応答を見出した [Takahashi *et al.*, *J. Phys. Chem. Lett.* **14**, 6919 (2023)]。この特異な近接場非線形光学応答を把握し制御・高度活用することにより、現在、Au ナノ探針 - Au(111) 基板間ナノギャップに配置した種々のモデル分子の探針増強和周波発生 (振動共鳴) 信号の検出にも成功した [Sakurai *et al.*, 論文投稿中]。現在は、STM の電場変調でナノギャップからの近接場和周波発生を飛躍的に増大させる新技術の構築 [Takahashi *et al.*, 論文準備中], ならびに Pt や Ni などの非プラズモニックな基板表面の分子系に対する探針増強和周波発生振動分光にも成功してきている [Mochizuki *et al.*, 論文準備中]。

B-1) 学術論文

J. HARUYAMA, T. SUGIMOTO and O. SUGINO, “First-Principles Study of Water Adsorption Monolayer on Pt(111): Adsorption Energy and Second-Order Nonlinear Susceptibility,” *Phys. Rev. Mater.* **7**, 115803 (2023). DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevMaterials.7.115803>

F. AMANO, A. ISHIKAWA, H. SATO, C. AKAMOTO, S. P. SINGH, S. YAMAZOE and T. SUGIMOTO, “Facilitating Methane Conversion and Hydrogen Evolution on Platinized Gallium Oxide Photocatalyst through Liquid-Like Water Nanofilm Formation,” *Catal. Today* **426**, 114375 (2023). DOI: [10.1016/j.cattod.2023.114375](https://doi.org/10.1016/j.cattod.2023.114375)

S. TAKAHASHI, A. SAKURAI, T. MOCHIZUKI and T. SUGIMOTO, “Broadband Tip-Enhanced Nonlinear Optical Response in a Plasmonic Nanocavity,” *J. Phys. Chem. Lett.* **14(30)**, 6919 (2023). DOI: [10.1021/acs.jpcclett.3c01343](https://doi.org/10.1021/acs.jpcclett.3c01343)

H. SAITO, H. SATO, T. HIGASHI and T. SUGIMOTO, “Beyond Reduction Cocatalysts: Critical Role of Metal Cocatalysts in Photocatalytic Oxidation of Methane,” *Angew. Chem., Int. Ed.* **62(33)**, e2023060 (2023). DOI: [10.1002/anie.202306058](https://doi.org/10.1002/anie.202306058)

B-3) 総説, 著書

T. SUGIMOTO, “Pioneering Interfacial Molecular Science for Realistic Catalyst under Reaction Condition : Molecular-Level Insights into the Critical Impacts of Interfacial Water on C–H Activation in Photocatalytic Methane Conversion,” *Vac. Surf. Sci.* **66(10)**, 580 (2023). DOI: <https://doi.org/10.1380/vss.66.580>

B-4) 招待講演

杉本敏樹, 「非線形振動分光の限界突破への挑戦～表面界面系の次世代分子科学の開拓を目指して～」, 東北大学物理化学コロキウム特別セミナー, 仙台, 2024年2月.

杉本敏樹, 「固体表面界面低次元系における新規物性開拓&非線形分光計測の限界突破」, 京都大学光物性セミナー, 京都, 2024年1月.

杉本敏樹, 「非線形振動分光で迫る物質表面界面における水分子の集団的挙動」, レーザー学会学術講演会第44回年次大会, 東京, 2024年1月.

杉本敏樹, 「固体表面界面低次元系における新規物性開拓&非線形分光計測の限界突破」, 2023年日本分光学会年次講演会, 神戸市, 2023年10月.

T. SUGIMOTO, “Sum-frequency generation vibrational spectroscopy for pioneering many-body physicochemical properties of interfacial molecular systems,” EAWCD 2024 The 24th East Asia Workshop on Chemical, Taipei (Taiwan), March 2024.

T. SUGIMOTO, “Pioneering near-field tip-enhanced SFG nanoscopy of interfacial molecular systems beyond the diffraction limit of light,” 9th SFG workshop, Tokyo (Japan), November 2023.

T. SUGIMOTO, “Tip-enhanced second-order nonlinear nanoscopy of interfacial molecular systems beyond the diffraction limit of light,” 8th Asian Spectroscopy Conference (ASC) 2023, Atama Kogen, Tokamachi, Niigata (Japan), September 2023.

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

日本表面真空学会若手部会幹事 (2018–).

分子科学会運営委員 (2020–).

学会の組織委員等

8th Asian Spectroscopy Conference (ASC2023), Organizing committee (2019–2024).

International Workshop on Nonlinear Optics at Interfaces 2023, Conference vice Chair (2019–2024).

文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

文部科学省学術調査官 (2021–2023).

理科教育活動

職場体験学習「非線形光学効果を用いた物質・分子の観測研究を体験してみよう！」豊田市立高橋中学校 (2023).

その他

分子科学若手の会夏の学校分子科学研究所対応者 (2018–).

B-8) 大学等での講義, 客員

理化学研究所, 客員研究員, 2021年4月–2024年3月.

理化学研究所, 客員研究員, 2021年4月–2024年3月. (櫻井敦教)

総合研究大学院大学先端学術院, 講義「基礎光科学」, 2023年4月–2024年3月.

B-10) 競争的資金

科研費基盤研究(A), 「新原理高次非線形分光法で拓く未踏の電気化学固液ナノ界面水研究」, 杉本敏樹 (2022年度–2024年度).

科研費基盤研究(B), 「探針増強を用いた振動和周波発生分光法の実現と表面分子科学の開拓」, 櫻井 敦教 (2023年度–2026年度).

科学技術振興機構CREST 研究(受託研究), 「in-situ 高次非線形分光によるアップサイクリング反応場観測」(代表: 斎藤 進), 杉本敏樹(共同研究者) (2022年度–2027年度).

早稲田大学環境省委託事業「地域資源循環を通じた脱炭素化に向けた革新的触媒技術の開発・実証事業」(受託研究), 「革新的多元素ナノ合金触媒・反応場活用による省エネ地域資源循環を実現する技術開発(非在来型触媒反応による次世代プロセス開発と学理構築)」(代表: 関根 泰), 杉本敏樹(共同実施者) (2022年度–2029年度).

科学技術振興機構創発的研究支援事業(受託研究), 「次世代アクアナノ界面機能化学を拓く高次非線形分子分光」杉本敏樹 (2023年度–2025年度).

C) 研究活動の課題と展望

表面界面系の分子計測法の限界突破を目指し, 従来の手法では困難であった「①プラズモン共鳴・電子共鳴が利用できない表面界面少数分子系に対しても汎用的に振動分光計測を可能とする新しい非線形分光計測法の開発」, 並びに「②光の回折限界以下のナノスケールで表面界面分子系の観測を可能とする新たな極微非線形分光法の開発」に従事してきた。また, こうした地道かつ先進的な手法開発・挑戦と同時平行的に, 「③光触媒微粒子をはじめとする複雑な実材料系の表面界面分子科学現象の開拓」にも取り組んできた。2018年5月に当研究室が発足してからの5年間において, これら3つの基軸で挑戦してきた分野先導的な試みは芽を出し大きく開花しつつあり, 現在, それぞれの取り組みにおいて相当規模の競争的資金の獲得と共に成果発信, 共同研究もすすんできている。

今後は, これまで独立に挑戦してきたこれら3つの取り組みをさらに高度に融合させていくことにも注力し, 従来の

実験手法で開拓・解明が困難であった未踏の表面界面系領域や実材料系・複雑系界面の分子科学を力強く開拓する。また、それと同時並行的に、このような先端的な計測研究を産学官緊密連携の下で大きく発展・応用させることにより、『表面界面エンジニアリング』・『界面分子戦略』に基づく革新的な材料創製・新技術創出に向けた大きな原動力・研究潮流を作り出し、環境・エネルギー分野をはじめとし人類が直面する重要な社会課題の解決に貢献する。

分子機能研究部門

西村 勝之 (准教授) (2006年4月1日着任)

横田 光代 (事務支援員)

A-1) 専門領域：固体核磁気共鳴，構造生命科学

A-2) 研究課題：

- a) 安定同位体非標識脂質分子の ^{13}C 信号帰属に資する新規固体 NMR 測定法の開発
- b) 新規 ^1H 同種核間磁気双極子相互作用デカップリング法の開発
- c) 固体 NMR による有機分子材料の解析
- d) 独自固体 NMR プロープのための要素技術の開発

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 生体膜中の脂質分子など高い分子運動性を示す安定同位体非標識分子の ^{13}C 信号帰属に資する新規固体 NMR 測定法の開発を試みた。炭素核に化学結合した水素核数に応じて高度に ^{13}C 核を区別する新規スペクトル編集固体 NMR 測定法を2種類に関して理論的検討を完了した。
- b) 高分解能 ^1H スペクトルを得るための新規 ^1H 同種核間磁気双極子相互作用デカップリング法の開発を行った。考案した複数種の内、1種について国際共同研究先の施設を用いてテスト測定まで行った。
- c) 分子科学研究所の瀬川泰知准教授のグループで独自に合成された有機分子の状態解析を固体 NMR を用いて行っている。 ^1H 核が少ないことから天然存在比同位体観測による構造同定は有効な手法が限られていたが、残留不純物の同定、および ^{13}C 核の暫定的信号帰属を達成した。現状の解析結果から目的化合物の合成が達成されていることを強く示唆する十分な情報を得た。
- d) 現在使用している Bruker 社製分光器、および周辺機器と完全互換性を有する独自の固体 NMR プロープの開発を行ってきた。この目的の為、4mm 試料管を対象とした自作のスピニングモジュールを開発してきた。第4世代の同モジュールは、メーカー純正の最高回転周波数を大幅に超越する回転周波数を達成した。しかし、そのような回転周波数ではメーカー製ジルコニア試料管では強度不足であることが判明した。このため、市販品と互換であるが独自構造の試料管を窒化ケイ素を用いて製作することに成功した。現在、Bruker 社製プロープに設置可能な互換型モジュールと性能を優先した設計でエアラインが異なる高性能型の2種類の第5世代モジュールを開発している。さらに、これらモジュールに最適化した独自の 600MHz 固体 NMR プロープを開発している。

B-1) 学術論文

M. YAGI-UTSUMI, S. G. ITOH, H. OKUMURA, K. YANAGISAWA, K. KATO and K. NISHIMURA, “The Double-Layered Structure of Amyloid- β Assemblage on GM1-Containing Membranes Catalytically Promotes Fibrillization,” *ACS Chem. Neurosci.* **14**(15), 2648–2657 (2023). DOI: 10.1021/acchemneuro.3c00192

B-4) 招待講演

K. NISHIMURA, “Characterizations of Biomolecules and Molecular Materials Based on Solid-State NMR,” ICCT seminar International Chemistry Theory Center, University of Science and Technology of China, Hefei (China), February 2024.

C) 研究活動の課題と展望

独自開発プローブのための要素開発として、最難関のスピンングモジュールの開発を行ってきたが、4mm 試料管用モジュールで市販品を超えた最高回転周波数を独自条件で達成できた。現状の設計で、同一試料管外径で世界最高速を達成している。同研究分野ではより高速回転可能な1 mm以下の外径の試料管用モジュール開発が最もホットな領域である。これまでの4mm 試料管用モジュールの開発で得られた知見を用いて、これら小外径試料管に関して市販の装置を大きく超越した回転能力を有する回転モジュールの開発が可能であると考えている。4mm 試料管用モジュール開発は第5世代を最終版として、今後、より小外径の試料管のモジュール開発にシフトしたいと考えている。一方、固体NMR測定では、これまで分光器のエア配管の鋭利な刃物による連日の切断などのセキュリティ問題があったため、監視カメラを設置しており、物理的な被害はその後確認されていない。しかし、測定法開発テスト時にプログラムのバグでは説明の付かない誤作動として、デバッガーで一切のエラーが表示されないにも関わらず、まったく異なる位相、強度でパルス照射される分光器の誤作動が問題となっている。これは制御ワークステーションへのサイバー攻撃が強く示唆される状況にあるため、測定を停止していた。これらの問題に対処するため、中国のUniversity of Science and Technology of Chinaの研究者と国際共同研究を開始した。これにより最新の設備を用いた測定の継続可能な研究体制を確保できた。今後、基本的に全ての固体NMR測定は共同研究先で行い、日本ではハードウェア開発に専念する予定である。

6-7 生命・錯体分子科学研究領域

生体分子機能研究部門

青野重利（教授）（2002年5月1日着任）

NAM, Dayeon（特任研究員（IMS フェロー））

東田 怜（学振特別研究員）

中根 香織（事務支援員）

野村 潤子（事務支援員）

川口 律子（事務支援員）

A-1) 専門領域：生物無機化学

A-2) 研究課題：

- a) バクテリアの走化性制御系における酸素センサーシステムの構造機能相関解明
- b) 鉄イオンセンサータンパク質の構造機能相関解明

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) HemAT は細菌の酸素に対する走化性制御系を担っている酸素センサータンパク質である。細菌の走化性制御系は、外部シグナルである誘引/忌避物質のセンサーとして機能するシグナルトランスデューサータンパク質（methyl-accepting chemotaxis protein (MCP)）と、シグナル伝達・制御に関与する Che タンパク質（CheA, CheW, CheY 等）から構成されている。本研究では、HemAT による酸素センシングおよび、酸素に応答したシグナル伝達反応の分子機構解明を目的として研究を行なった。これまでの研究で、HemAT, CheA, CheW が安定な三者複合体（HemAT/CheA/CheW 複合体）を形成することを明らかにした。生成した HemAT/CheA/CheW 複合体を用い、クライオ電子顕微鏡単粒子解析による複合体の構造解析を行なった。その結果、7.6 Å 分解能で HemAT/CheA/CheW 複合体の構造解析に成功した。現在、より高分解能での構造決定に向けて、各種実験条件の検討を行っている。また、HemAT 単独でのクライオ電子顕微鏡単粒子解析も合わせて実施するとともに、HemAT センサードメインの結晶構造解析を行った。HemAT センサードメインについては、酸化型、還元型、酸素結合型の結晶構造解析に成功した。現在、それらの構造を詳細に比較検討することにより、酸素センシングに伴うヘム周辺の構造変化とシグナル伝達経路の解析を進めている。
- b) 鉄は、全ての生物に必須の微量元素である。しかし、過剰な鉄は細胞毒性を示すため、細胞内の鉄の濃度は厳密に調節する必要がある。生物が最適な鉄濃度を感知するためには、外部環境および細胞内の鉄濃度をセンシングするためのシステムが必要である。本研究では、細胞内鉄濃度の制御に関与する新規な二成分制御系（VgrR-VgrS）を研究対象として、その構造機能相関解明を目的として研究を行なった。本系でレスポンスレギュレータとして機能する VgrR は、VgrS によるリン酸化のみならず、細胞内の鉄イオンによっても機能制御されると推定されている。本研究では、鉄イオンによる VgrR- 標的 DNA 複合体形成への影響を確認した。DNA 結合能を有する、リン酸化 VgrR を DNA に結合した後、鉄を加え相互作用解析を行った。鉄の濃度が上昇するにつれ、VgrR-DNA 複合体形成が阻

害されることが確認できた。また、ICP測定の結果、鉄センサーとして機能するVgrSには、Fe(III)が2当量結合することが分かった。現在、VgrS、VgrRの結晶構造解析のため、結晶化条件の検討を行っている。また、前年度までの研究に引き続き、イネの細胞内鉄イオンセンサーとして機能すると考えられているユビキチンリガーゼHRZによる鉄イオンセンシング機構、および鉄イオンによるHRZの機能制御機構の解明を目的とした研究も進めている。

B-1) 学術論文

H. MATSUURA, N. SAKAI, S. TOMA-FUKAI, N. MURAKI, K. HAYAMA, H. KAMIKUBO, S. AONO, Y. KAWANO, M. YAMAMOTO and K. HIRATA, “Elucidating Polymorphs of Crystal Structures with Intensity-Based Hierarchical Clustering Analysis on Multiple Diffraction Datasets,” *Acta Crystallogr., Sect. D: Biol. Crystallogr.* **79**, 909–924 (2023). DOI: 10.1107/S2059798323007039

B-4) 招待講演

S. AONO, “Structural basis for CO biosynthesis to assemble the active site in NiFe-hydrogenase,” 20th International Conference on Biological Inorganic Chemistry, Adelaide (Australia), July 2023.

B-7) 学会および社会的活動

文部科学省、学術振興会、大学共同利用機関等の委員等

科学技術振興機構創発的研究支援事業事前評価外部専門家 (2023–2025).

その他

豊田理化学研究所審査委員会委員 (2019–2024).

B-10) 競争的資金

科研費新学術領域研究(研究領域提案型)「生命金属科学」(計画研究),「生命金属動態を鍵反応とするセンサー分子システムの構築と生理機能制御」,青野重利(2019年度–2023年度).

科研費新学術領域研究「生命金属科学」(研究領域提案型)(総括班),「生命金属科学」分野の創成による生体金属動態の統合的研究」(代表:津本浩平),青野重利(研究分担者)(2019年度–2023年度).

C) 研究活動の課題と展望

生物は、様々な外部環境変化にさらされながら生育するため、外部環境変化に応答して細胞内の恒常性を維持する精緻なシステムを有している。このような外部環境変化に応答した恒常性維持システムには、外部環境の変化を感知するためのセンサータンパク質が必要不可欠である。我々の研究グループでは、遷移金属が関与するセンサータンパク質の構造機能相関解明、および遷移金属の細胞内恒常性維持機構の解明を目指して研究を進めている。今後は、構造生物学的、ならびに生化学・分子生物学的な実験手法を活用し、遷移金属含有型センサータンパク質の構造機能相関解明のみならず、これら新規金属タンパク質の生合成反応機構解明に関する研究も進めていきたいと考えている。

加藤 晃一（教授）（2008年4月1日着任）

神田 智哉（助教）
立尾 清吾（特任研究員）
斉藤 泰輝（特任研究員）
岩崎 美雪（研究員（派遣））
矢木 真穂（特別訪問研究員）
谷中 冴子（特別訪問研究員）
ARCHAPRADITKUL, Chanya（インターンシップ）
関 健仁（大学院生）
保科 明（特別共同利用研究員）
中野 理音（特別共同利用研究員）
磯野 裕貴子（特任専門員）
西尾 美穂（技術支援員）
笠原 裕子（事務支援員）
福富 幸恵（事務支援員）

A-1) 専門領域：構造生物学，タンパク質科学，糖鎖生物学，NMR 分光学

A-2) 研究課題：

- a) 生命分子ネットワークが創発する高次機能のメカニズム探査と設計と制御
- b) 生命体を構成する多様な分子素子がダイナミックに秩序形成する仕組みの探究

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 多ドメインタンパク質は、それを構成するドメインの空間的な再配置によって、協調的な分子間相互作用とアロステリックな活性調節を達成し、複雑な機能を発現している。本年度は、タンパク質ジスルフィドイソメラーゼ（PDI）のドメイン配置の変化を利用して細胞内の酸化還元環境を反映する FRET バイオセンサーを設計・創成した（ExCELLS・青木一洋博士，計算科学研究センター・岡崎圭一博士との共同研究）。また，高速原子間力顕微鏡を用いて抗体医薬と Fc γ レセプターの相互作用を定量評価する方法を確立した（ExCELLS・内橋貴之博士との共同研究）。さらに，以下の国際共同研究を展開し，成果発信を行った。ヒト由来のヒストンシャペロンの動的構造解析を通じたサブユニット間のコミュニケーション機構の解明（韓国科学技術院・Ji-Joon Song 博士，ExCELLS・内橋貴之博士との共同成果），高密度に糖鎖修飾を受けた受容体型タンパク質チロシンホスファターゼ α の構造ダイナミクスの解明（中央研究院，糖鎖構造機能解析グループ，ExCELLS・内橋貴之博士との共同成果），抗菌ペプチドの膜破壊作用の直接可視化による抗菌メカニズムの解明（中央研究院・Rita P.-Y. Chen 博士，ExCELLS・内橋貴之博士との共同成果），HIV-1 逆転写酵素との阻害剤の複合体の高次構造の評価（カセサート大学・Kiattawee Choowongkomon 博士との共同成果）。
- b) 糖鎖修飾の舞台としてのゴルジ体に着目し，その微細構造の時空間ダイナミクスと糖タンパク質の輸送経路を探究するための研究を行っている。本年度はこの目的に向けて，ExCELLS 糖鎖構造機能解析グループとの連携のもとで，以下の技術基盤を構築した。走査電子顕微鏡技術によるゴルジ体の微細形態の観察と糖転移酵素のマッピング（旭

川医科大学・甲賀大輔博士との共同研究), 超解像顕微鏡による糖転移酵素のゴルジ体内の局在解析 (理化学研究所・戸島拓郎博士との共同研究)。さらに, ヒトの糖鎖修飾に関する網羅的・体系的な情報取得を目指す「ヒューマンングライコムプロジェクト」に参画して, 糖鎖の精密構造解析と生合成アトラスの構築に着手した。

B-1) 学術論文

S. YANAKA, H. WATANABE, R. YOGO, M. KONGSEMA, S. KONDO, H. YAGI, T. UCHIHASHI and K. KATO, “Quantitative Analysis of Therapeutic Antibody Interactions with Fcγ Receptors Using High-Speed Atomic Force Microscopy,” *Biol. Pharm. Bull.* **47**, 334–338 (2024). DOI: 10.1248/bpb.b23-00751

C. CHO, C. GANSER, T. UCHIHASHI, K. KATO and J.-J. SONG, “Structure of the Human ATAD2 AAA+ Histone Chaperone Reveals Mechanism of Regulation and Inter-Subunit Communication,” *Commun. Biol.* **6**, 993 (2023). DOI: 10.1038/s42003-023-05373-1

S. SEETAHA, N. KAMONSUTTHIPAIJIT, M. YAGI-UTSUMI, Y. SEAKO, T. YAMAGUCHI, S. HANNONGBUA, K. KATO and K. CHOOWONGKOMON, “Biophysical Characterization of p51 and p66 Monomers of HIV-1 Reverse Transcriptase with Their Inhibitors,” *Protein J.* **42**(6), 1–12 (2023). DOI: 10.1007/s10930-023-10156-y

E. H.-L. CHEN, C.-H. WANG, Y.-T. LIAO, F.-Y. CHAN, Y. KANAOKA, T. UCHIHASHI, K. KATO, L. LAI, Y.-W. CHANG, M.-C. HO and R. P.-Y. CHEN, “Visualizing the Membrane Disruption Action of Antimicrobial Peptides by Cryo-Electron Tomography,” *Nat. Commun.* **14**, 5464 (2023). DOI: 10.1038/s41467-023-41156-2

M. YAGI-UTSUMI, S. G. ITOH, H. OKUMURA, K. YANAGISAWA, K. KATO and K. NISHIMURA, “The Double-Layered Structure of Amyloid-β Assemblage on GM1-Containing Membranes Catalytically Promotes Fibrillization,” *ACS Chem. Neurosci.* **14**(15), 2648–2657 (2023). DOI: 10.1021/acchemneuro.3c00192

M. YAGI-UTSUMI, H. MIURA, C. GANSER, H. WATANABE, M. HIRANYAKORN, T. SATOH, T. UCHIHASHI, K. KATO, K. OKAZAKI and K. AOKI, “Molecular Design of FRET Probes Based on Domain Rearrangement of Protein Disulfide Isomerase for Monitoring Intracellular Redox Status,” *Int. J. Mol. Sci.* **24**(16), 12865 (2023). DOI: 10.3390/ijms241612865

Y.-C. CHIEN, Y.-S. WANG, D. SRIDHARAN, C.-W. KUO, C.-T. CHIEN, T. UCHIHASHI, K. KATO, T. ANGATA, T.-C. MENG, S.-T. DANNY HSU and K.-H. KHOO, “High Density of N- and O-Glycosylation Shields and Defines the Structural Dynamics of the Intrinsically Disordered Ectodomain of Receptor-Type Protein Tyrosine Phosphatase Alpha,” *JACS Au* **3**(7), 1864–1875 (2023). DOI: 10.1021/jacsau.3c00124

T. NAKAMA, A. ROSSEN, R. EBHARA, M. YAGI-UTSUMI, D. FUJITA, K. KATO, S. SATO and M. FUJITA, “Hysteresis Behavior in the Unfolding/Refolding Processes of a Protein Trapped in Metallo-Cages,” *Chem. Sci.* **14**(11), 2910–2914 (2023). DOI: 10.1039/D2SC05879K

B-3) 総説, 著書

伊藤 暁, 奥村久士, 矢木真穂, 加藤晃一, 「アミロイドベータペプチドの凝集初期過程の分子シミュレーション」, 月刊「細胞」, **55**(10), 784–788 (2023).

谷中冴子, 加藤晃一, 「抗体医薬の作動メカニズムの分子基盤」, 生物工学会誌, **101**, 347–349 (2023). DOI: 10.34565/seibutsukogaku.101.7_347

B-4) 招待講演

加藤晃一, 「糖鎖の生命分子科学とバイオ創薬科学」, 神戸薬科大学特別研究セミナー, 神戸, 2024年3月.

K. KATO, “NMR Characterization of Antibodies as Biopharmaceutical Glycoproteins,” The 7th bilateral Taiwan-Japan Symposium (TJNMR2024), Hiroshima (Japan), March 2024.

K. KATO, “NMR characterization of conformational dynamics of oligosaccharides and glycoproteins for evaluating and improving their functionality,” GlycoNMR Summit, online, December 2023.

矢木真穂, 「アミロイドβタンパク質の構造変化と分子集合」, 第96回日本生化学会大会, 福岡, 2023年11月.

谷中冴子, 加藤晃一, 「構造ダイナミクスの観点からの抗体の機能解読と改変」, 第96回日本生化学会大会, 福岡, 2023年11月.

矢木真穂, 加藤晃一, 「Unraveling the Mechanisms of Desiccation Tolerance: Insights from Anhydrobiotic Tardigrade CAHS1 Fibrous Condensates」, 第61回日本生物物理学会年会, 名古屋, 2023年11月.

加藤晃一, 「生命科学の未来探究」, 九州大学2023年度第2回薬学部局FD講演会「機関間連携」, 福岡, 2023年11月.

加藤晃一, 「糖タンパク質のNMR ~抗体への応用~」, 第40回Bruker NMR ユーザーズミーティング, 大阪, 東京, 2023年10月.

K. KATO, “Exploring Dynamic Biomolecular Assembly in Physiological, Pathological, and Extremotolerant Contexts,” International collaboration symposium iNANO/IMS ExCELL “The molecular organization of living systems,” Aarhus (Denmark), September 2023.

K. KATO and S. YANAKA, “NMR Characterization of Immunoglobulin G Glycoproteins for Evaluation and Development of Therapeutic Antibodies,” Asia-Pacific Nuclear Magnetic Resonance Symposium (APNMR2023), Taipei (Taiwan), September 2023.

矢木真穂, 「アミロイドβ線維の形成促進および形成阻害の分子機構の解明」, 第23回日本蛋白質科学会年会, 名古屋, 2023年7月.

谷中冴子, 加藤晃一, 「構造ダイナミクスに着目した抗体の隠された機能の探査」, 第23回日本蛋白質科学会年会, 名古屋, 2023年7月.

加藤晃一, 「バイオ医薬品の高機能化に向けた糖鎖の生命分子構造学」, 2023年度分子研異分野技術交流セミナー (第2回) ~創薬リード探索の先端と計測技術~, 岡崎, 2023年6月.

K. KATO and S. YANAKA, “Dynamic Structures and Interactions of Immunoglobulin G Glycoproteins as Therapeutic Antibodies,” 14th AFMC International Medicinal Chemistry Symposium (AIMECS2023), Seoul (Korea), June 2023.

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

日本バイオイメージング学会評議員 (1995-), 理事 (2012-), 副会長 (2021-).

日本生化学会評議員 (2002-).

日本糖質学会評議員 (2003-), 理事 (2013-).

日本核磁気共鳴学会幹事 (2020-), 評議員 (2022-).

日本蛋白質科学会執行役員 (2023–).

日本糖鎖科学コンソーシアム常任幹事 (2016–).

学会の組織委員等

The International Glycoconjugate Organisation, National Representative (2017–).

Universal Scientific Education and Research Network (USERN), Advisory board member (2021–).

文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

日本学術会議連携会員 (2017–).

日本学術振興会先端科学 (FoS) シンポジウム事業委員会委員 (2018–).

科学技術振興機構創発的研究支援事業事前評価外部専門家 (2023–).

大阪大学蛋白質研究所「共同利用・共同研究」委員会超高磁場NMR 共同利用・共同研究専門部会委員 (2012–).

学会誌編集委員

Glycoconjugate Journal, Editorial board member (2009–).

Glycobiology, Editorial board member (2011–).

Scientific Reports, Editorial board member (2015–).

International Journal of Molecular Sciences, Editorial board member (2017–).

理科教育活動

日本科学振興協会 (JAAS) 年次大会 2023 「会いに行ける科学者フェス」展示ブース (2023).

B-8) 大学等での講義, 客員

名古屋市立大学薬学部, 大学院薬学研究科, 特任教授, 2008年4月–.

名古屋市立大学薬学部, 講義「構造生物学」「薬学物理化学II」「生命薬科学研究入門」「一般教養科目 創薬と生命」「創薬科学・知的財産活用論」「物理系実習II」, 2015年–.

名古屋市立大学大学院薬学研究科, 講義「創薬生命科学基礎II」「生命分子構造学特論」, 2015年–.

京都大学複合原子力科学研究所, ユニット研究員, 2022年4月–2025年3月.

大阪大学蛋白質研究所, 客員フェロー, 2023年4月–2024年3月.

B-10) 競争的資金

科学技術振興機構CREST研究, 「ゴルジ体の動態解明に基づく糖鎖修飾の制御」, 加藤晃一 (2021年度–2025年度).

日本学術振興会学術国際交流事業二国間交流事業, 「ヌクレオソームダイナミクスに関わるATPaseの動的構造解析」, 加藤晃一 (2021年度–2023年度).

科研費基盤研究(C), 「スピン脱塩カラムと二次元NMRによる変性蛋白質残存構造の解析」(代表: 桑島邦博), 加藤晃一 (研究分担者) (2020年度–2023年度).

AMED次世代治療・診断実現のための創薬基盤技術開発事業, 「国際競争力のある次世代抗体医薬品製造技術開発／革新的な次世代抗体医薬品製造基盤技術の開発(分子中に秘められた新規相互作用部位の探索と変化を通じた次世代抗体創成の基盤構築)」(代表: 谷中冴子), 加藤晃一 (研究分担者) (2021年度–2025年度).

AMED 次世代治療・診断実現のための創薬基盤技術開発事業,「国際競争力のある次世代抗体医薬品製造技術開発／次世代抗体医薬品の実用化に向けた物性・品質評価及び管理手法に関する技術的研究(次世代抗体医薬品の実用化に向けた品質評価及び管理手法に関する技術的研究)」(代表:石井明子),加藤晃一(研究分担者)(2021年度-2025年度).

C) 研究活動の課題と展望

これまでの成果をさらに発展させて,複雑な生命分子システムを舞台とする分子科学を開拓する。すなわち,生命分子システムの中における各構成要素のダイナミックな振る舞いを「みる」アプローチ法を発展させるとともに,得られたデータを情報科学的に「よむ」ためのアプローチ法を開拓する。さらに,階層横断的な機能解析を実施し,外部環境の変動の中で秩序創発していくロバストな生命の本質を統合的に理解することを目指す。生命体を構成する多様な分子素子がダイナミックに秩序創発する仕組みを理解するためには,生命分子を取り巻く不均一かつ複雑な環境因子の影響を考慮することが必要である。微小重力環境下において形成したアミロイド線維の構造解析を継続するとともに,極限環境において生命活動を司る分子集団の構造・動態・機能の解析を通じて生命の環境適応の機構を理解することを目指した研究を展開する。さらに,第3の生命鎖とよばれる糖鎖の構造・機能・形成に関する統合的な研究を推進する。

飯野 亮太 (教授) (2014年6月1日着任)

大友 章裕 (助教)
原島 崇徳 (助教)
GRAHAM, Rosie (特任研究員)
ZHU, Lucy (インターンシップ)
大國 泰子 (技術支援員)
山本 真由子 (技術支援員)
中根 香織 (事務支援員)
川口 律子 (事務支援員)
野村 潤子 (事務支援員)

A-1) 専門領域：生物物理学, 分子モーター, 分子機械, 1分子計測, タンパク質工学

A-2) 研究課題：

- 回転分子モーター V-ATPase のエネルギー変換機構の解明, 機能創成, 特性解析
- 人工 DNA ナノ粒子モーターの運動機構解明, 高性能化, 運動制御能の付与
- リニア分子モーターキネシンとレールの改変・ハイブリッド化による運動制御と特性解析

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- V-ATPase (V_0V_1) は, ATP の化学エネルギーを利用して細胞膜を介するイオンの能動輸送を行う回転型イオンポンプであり, ATP 加水分解反応を触媒する V_1 とイオン輸送を担う V_0 の2つの回転分子モーターの複合体である。我々が研究対象としている腸球菌由来 V_0V_1 (EhV_0V_1) はナトリウムイオン (Na^+) を輸送する。我々は, EhV_0V_1 が脂質二重膜を介する Na^+ の電気化学ポテンシャルにより, 高い熱力学的効率で ATP を合成することを明らかにし, エネルギー変換の可逆性を実証した。さらに, EhV_0V_1 のイオン結合部位を改変することで, イオン選択性を Na^+ から水素イオン (H^+) に変えることに成功し, クライオ電顕単粒子解析でその構造的基盤を解明した。
- タンパク質分子モーターに触発されて開発された DNA 人工分子モーターの運動速度は数 nm/s 程度であり, 10–1000 nm/s で動くタンパク質分子モーターに比べて大きく劣る。我々は, DNA 修飾金ナノ粒子, RNA 修飾足場, DNA 依存的 RNA 分解酵素で構成される DNA ナノ粒子モーターの運動機構と律速過程を高速高精度 1 粒子追跡と速度論シミュレーションで特定し, タンパク質分子モーターに匹敵する 100 nm/s の運動速度を達成した。しかしながら, 運動速度と運動距離の間にトレードオフが存在し, 運動速度の上昇とともに運動距離が低下することも明らかになった。そこで, シミュレーションによる予測に基づき DNA 塩基配列を改良し, 高速運動と長距離運動を両立することに成功した。
- 2 本足で歩く分子モーターキネシン - 1 は, 後足が前足を常に追い越すいわゆるハンドオーバーハンド機構で, レールである微小管上を直進運動する。我々は, 人工分子 PEG でキネシンの二つの足を繋いだ生体–人工ハイブリッドキネシンが天然型と同様のハンドオーバーハンド機構で正確に直進運動することを明らかにした。また, 剛直で長いタンパク質リンカーで2つの足を繋ぐと, 微小管上を短いピッチでらせん運動することを明らかにした。さらに, 3 本もしくは 6 本の足を持つ多脚型キネシンを創成し, 野生型と異なり多脚型は微小管上の欠陥 (穴) を迂回して運動し続けることが可能なことを明らかにした。

B-1) 学術論文

J. NISHIDA, A. OTOMO, T. KOITAYA, A. SHIOTARI, T. MINATO, R. IINO and T. KUMAGAI, “Sub-Tip-Radius Near-Field Interactions in Nano-FTIR Vibrational Spectroscopy on Single Proteins,” *Nano Lett.* **24(3)**, 836–843 (2024). DOI: 10.1021/acs.nanolett.3c03479

Y. MATSUMOTO, S. YAMASAKI, K. HAYAMA, R. IINO, H. NOJI, A. YAMAGUCHI and K. NISHINO, “Changes in the Expression of *mexB*, *mexY*, and *oprD* in Clinical *Pseudomonas aeruginosa* Isolates,” *Proc. Jpn. Acad. Ser. B* **100(1)**, 57–67 (2024). DOI: 10.2183/pjab.100.006

R. N. BURTON-SMITH, C. SONG, H. UENO, T. MURATA, R. IINO and K. MURATA, “Six States of *Enterococcus hirae* V-Type ATPase Reveals Non-Uniform Rotor Rotation during Turnover,” *Commun. Biol.* **6(1)**, 755 (2023). DOI: 10.1038/s42003-023-05110-8

T. KOSUGI, T. IIDA, M. TANABE, R. IINO and N. KOGA, “Design of Allosteric Sites into Rotary Motor V₁-ATPase by Restoring Lost Function of Pseudo-Active Sites,” *Nat. Chem.* **15**, 1591–1598 (2023). DOI: 10.1038/s41557-023-01256-4

B-2) 国際会議のプロシーディングス

J. NISHIDA, A. OTOMO, R. IINO and T. KUMAGAI, “Sub-tip-radius near-field interactions in nano-FTIR vibrational spectroscopy on single protein particles,” *Proc. SPIE 12654, Enhanced Spectroscopies and Nanoimaging 2023*, 1265403 (2023). DOI: 10.1117/12.2676631

B-3) 総説, 著書

David A. Leigh, 飯野亮太, 金原 数, 「インタビュー：分子マシン研究をリードする David A. Leigh 博士」, *現代化学*, 10月号, 28–32 (2023).

B-4) 招待講演

R. IINO, “Single-molecule imaging and engineering of biological and synthetic molecular motors,” CU-MU-IMS Faculty Exchange Meeting 2024, Okazaki, 2024年3月.

飯野亮太, 「生体発動分子の展望と課題」, シンポジウム～発動分子科学の展望と課題～, 横浜, 2023年12月.

R. IINO, “Autonomous unidirectional motions of biomolecular motors: The roles of structures and chemical fuels,” Okazaki Workshop on Molecular Machines 2023, Okazaki, 2023年12月.

大友章裕, 「1分子散乱イメージングによる回転分子モーター V-ATPase の回転機構の解明」, 第9回バイオダイナミクス研究会, 2023年12月.

R. IINO, “Single-molecule imaging and engineering of molecular motors,” Symposium “Biophysicochemical methods and techniques drive the observation and manipulation of the biological phenomena,” 61th Annual Meeting of the Biophysical Society, Nagoya, 2023年11月.

原島崇徳, 「生体分子モーターに匹敵する人工DNA分子モーターの設計を目指して」, 第12回分子モーター討論会, 仙台, 2023年9月.

T. HARASHIMA, A. OTOMO and R. IINO, “Acceleration of artificial DNA-nanoparticle motor toward 100 nm/s,” 16th Eurasia Conference on Chemical Sciences, Bangkok (Thailand), December 2023.

R. IINO, “Single-molecule detection, imaging, and analysis of proteins,” 16th Eurasia Conference on Chemical Sciences, Bangkok (Thailand), December 2023.

R. IINO, “Single-molecule imaging and engineering of biological and synthetic molecular motors,” Seminar at Fritz Haber Institute of the Max Planck Society, Berlin (Germany), November 2023.

R. IINO, “Single-molecule imaging and engineering of biological and synthetic molecular motors,” Seminar at Wuhan University, Wuhan (China), October 2023.

R. IINO, “Single-molecule imaging and engineering of biological and synthetic molecular motors,” Seminar at School of Pharmacy, Tongji Medical College, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan (China), October 2023.

R. IINO, “Single-molecule imaging and engineering of molecular motors,” The symposium “The molecular organization of living systems,” iNANO, Aarhus University, Aarhus (Denmark), September 2023.

R. IINO, “Direct observation of elementary processes enables acceleration of DNA-nanoparticle motor up to 100 nm/s,” Seminar at Department of Physics, Simon Fraser University, Vancouver (Canada), July 2023.

R. IINO, “Single-molecule analysis and engineering of molecular motor proteins,” The TSRC Workshop on Protein Dynamics, Telluride (USA), July 2023.

R. IINO, “Single-molecule analysis and engineering of molecular motor proteins,” Seminar at Department of Chemistry, Indiana University, Bloomington (USA), July 2023.

B-5) 特許出願

特願 2021-168388, 「タンパク質, ポリヌクレオチド, 組換えベクター, 形質転換体, ポリエチレンテレフタレート分解用組成物, 及びリサイクル品の製造方法」, 中村彰彦, 飯野亮太 (静岡大学, 自然科学研究機構), 2021 年.

B-6) 受賞, 表彰

原島崇徳, 第 7 回分子ロボティクス年次大会若手研究奨励賞 (2024).

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

日本生物物理学会理事, 代議員 (2019.6–2023.6).

学会の組織委員等

日本生物物理学会第 61 回年会実行委員 (2022–2023).

日本生物物理学会第 61 回年会実行委員 (2022–2023). (大友章裕)

日本生物物理学会第 61 回年会実行委員 (2022–2023). (原島崇徳)

文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

日本学術振興会国際事業委員会書面評価員 (2023).

学会誌編集委員

米国生物物理学会誌 *Biophysical Journal*, Editorial Board Member (2020–2025).

日本生物物理学会誌 *Biophysics and Physicobiology*, Editorial Board Member (2024–2025).

理科教育活動

職場体験学習, 豊田市立豊南中学校 (2023).

岡崎市小中学校理科作品展「未来の科学者賞」選考委員 (2023). (大友章裕)

B-8) 大学等での講義, 客員

総合研究大学院大学先端学術院, 「機能生体分子科学」, 2022年4月-.

B-10) 競争的資金

科研費基盤研究(B), 「バクテリアべん毛モーター固定子複合体の「回転モデル」を1分子計測で実証する」, 飯野亮太 (2021年度-2023年度).

科研費学術変革領域研究(A), 「生体分子モーターに匹敵する速さで動き制御可能な人工分子モーターをつくる」, 飯野亮太 (2023年度-2024年度).

科研費若手研究, 「一分子計測法で明らかにする V-ATPase の機能と構造の相関」, 大友章裕 (2021年度-2023年度).

自然科学研究機構 OPEN MIX LAB (OML) 公募研究プログラム (若手支援型), 「新しい分子モータータンパク質の創生を目指したボトムアップアプローチ」, 大友章裕 (2023年度-2025年度).

科研費若手研究, 「生体分子モーターに匹敵する速度で駆動する二輪駆動型 DNA モーターカーの開発」, 原島崇徳 (2023年度-2025年度).

B-11) 産学連携

共同研究, キリンホールディングス (株), 「PET 分解酵素の開発」, 飯野亮太 (2021年度-2024年度).

共同研究, ポリプラスチック (株), 静岡大学, 「ポリブチレンテレフタレート (PBT) 分解酵素の創出」, 飯野亮太 (2023年度-2024年度).

C) 研究活動の課題と展望

生体分子モーター等のナノサイズの生体分子機械は, 人間が作ったマクロなサイズの機械と比べてはるかに小さく, ブラウン運動の活用等, 全く異なる作動原理で働く。今後も引き続き, 天然の分子モーターを1分子計測して機構を調べるだけでなく, 天然に存在しない分子モーターを積極的につくることで, その作動原理と設計原理をさらに深く理解し, 機能向上や制御に繋げる。例えば, 1回転で2倍のイオンを輸送する V_0V_1 をつくることで, ATP加水分解モーター V_1 とイオン輸送モーター V_0 のエネルギー変換の共役機構の理解を深めるだけでなく, イオン輸送速度や電気化学ポテンシャル形成能を制御する。また, ヘテロな塩基配列を有する DNA ナノ粒子モーターを二量体化して外部からの DNA 添加で運動方向の制御を可能にし, センサー機能とアクチュエーター機能を兼ね備えた高速高制御人工分子モーターを創成する。さらに, 非天然型キネシンだけでなく非天然型のレール (微小管) を創成して組み合わせ, 選別輸送, 速度変調輸送, 大規模一方向輸送等を実現する。

錯体触媒研究部門

魚 住 泰 広 (教授) (2000年4月1日着任)

奥村 慎太郎 (助教)
田澤 文 (研究員 (派遣))
FAN, Lisa (インターンシップ)
ZHANG, Kaili (大学院生)
高橋 輝気 (大学院生)
服部 修佑 (大学院生)
谷分 麻由子 (事務支援員)

A-1) 専門領域：有機合成化学, 有機金属化学

A-2) 研究課題：

- 不均一反応メディア中での触媒反応システムの構築
- 光触媒を利用した分子変換反応の開発
- 新しい遷移金属錯体触媒・ナノ構造触媒の創製

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- パラジウム, ロジウム, 銅錯体触媒などを両親媒性高分子に固定化するとともに機能修飾することで, これら遷移金属錯体触媒有機変換工程の多くを完全水系メディア中で実施することに成功した。水中不均一での高立体選択的触媒反応の開発を世界にさきがけて成功した。
- 新しいピンサー錯体の合成方法論を確立し, それらピンサー錯体分子が自発的に集積することで形成する分子集合体の三次元高次構造に立脚した新しい触媒機能システムの開拓に注力しつつある。
- 水中での反応加速, 連続フローシステムに依る効率化, ピンサー錯体触媒化学における新しい反応形式などに立脚して各種反応の ppm-ppb 触媒化を進めつつある。
- 超高触媒活性を示す単原子触媒種の発生・発現を見出し, その構造評価および有機分子変換触媒としての適用一般性を確立しつつある。
- 遷移金属錯体を用いた光触媒反応による新しいカルボニル化合物の活性化と, それに立脚した分子変換反応の開発を遂行しつつある。特に光触媒によるカルボニル基の極性転換に成果を上げつつある。

B-1) 学術論文

S. OKUMURA, T. TAKAHASHI, K. TORII and Y. UOZUMI, "Photocatalytic 1,4-Addition of Aromatic Aldehydes or Ketones via Umpoled Carbinol Anions," *Synlett* **35**, 303–306 (2024). DOI: 10.1055/a-2122-8631

S. OKUMURA, T. TAKAHASHI, K. TORII and Y. UOZUMI, "Photocatalytic Cross-Pinacol Coupling Promoted by Carbon Dioxide**," *Chem. –Eur. J.* **29(44)**, e202300840 (2023). DOI: 10.1002/chem.202300840

M. KAWASE, R. SUZUKI, K. KOBAYASHI, T. SHINAGAWA, A. TAZAWA, Y. UOZUMI, Y. MATSUMURA, O. SHIMOMURA and A. OHTAKA, "Oxidation of Primary Amines to Nitriles Catalyzed by Polystyrene-Stabilized Ru Nanoparticles in Water," *Chem. Lett.* **52**(7), 553–555 (2023). DOI: 10.1246/cl.230186

S. OKUMURA, K. TORII and Y. UOZUMI, "Electrophilic 1,4-Addition of Carbon Dioxide and Aldehydes to Enones," *Org. Lett.* **25**(28), 5226–5230 (2023). DOI: 10.1021/acs.orglett.3c01675

T. SAKAGUCHI, T. SHIBATA, Y. FUKUDA, A. TAZAWA, Y. UOZUMI, Y. MATSUMURA, O. SHIMOMURA and A. OHTAKA, "An Effective Additive for Copper-Catalyzed Hydroxylation of Aryl Iodides," *Appl. Organomet. Chem.* **37**(7), e7111 (2023). DOI: 10.1002/aoc.7111

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

有機合成化学協会支部幹事 (1998–).

日本化学会理事 (2022–2023).

学会の組織委員等

名古屋メダル実行委員 (2000–).

有機金属討論会組織委員 (2012–).

文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

科学技術振興機構 CREST 研究「革新的触媒」領域アドバイザー (2015–).

京都大学ゼロエミッション研究拠点運営委員 (2022–).

京都大学エネルギー理工学研究所共同利用運営委員会委員 (2023–2025).

学会誌編集委員

SYNLETT 誌アジア地区編集主幹 (2002–).

SYNFACTS 誌編集委員 (2005–).

SYNFACTS 誌編集委員 (2020–). (奥村慎太郎)

理科教育活動

出前授業「理数探究自然科学研究機構による授業「研究職への進路と有機光反応」」愛知県立岡崎北高等学校 (2023).

(奥村慎太郎)

B-9) 学位授与

高橋輝気, 「Development of Electrophilic Addition Reactions to Carbonyl Compounds through the Photocatalytic Carbinol Cation/Anion Umpolung」, 2024年3月, 博士(理学).

B-10) 競争的資金

科研費挑戦的研究(萌芽), 「カルボニル化合物を求核剤とした分子変換反応の開拓」, 魚住泰広 (2021年度–2023年度).

科研費若手研究, 「カルボニル化合物の二電子還元による極性転換とカルボニルへの付加反応の開発」, 奥村慎太郎 (2021年度–2023年度).

有機合成化学協会第34回富士フィルム研究企画賞研究助成,「二酸化炭素による活性化を利用したカルボニル化合物の光触媒的極性転換」,奥村慎太郎(2022年度-2023年度).

科学技術振興機構ACT-X研究(受託研究),「プラスチックを還元分解する革新的光触媒の創製」,奥村慎太郎(2023年度-2024年度).

C) 研究活動の課題と展望

2000年にゼロからのスタートを切った精密有機分子変換反応のaqueous-switching, heterogeneous-switchingの試みも十分な成果と蓄積を得てきた。理想の有機分子変換を標榜した当研究室の歩みの中で多くの水中機能性固定化錯体触媒,水中機能性固定化ナノ金属触媒を開発し,その幾つかは汎用性ある触媒として市販されるに至っている。これらの研究は科学研究費補助金(基盤研究,新学術研究など)にくわえ,多くの競争的外部研究費を得て推進してきた。即ちこれまでに水中機能性固定化触媒に関する「グリーンナノ触媒」CREST研究(2002年10月-2008年3月),続いてその成果を実践的に発展させるMETI-NEDOプロジェクト(2008年9月-2012年2月),稀少元素の元素循環・元素減量・元素代替に焦点を当てた「元素戦略」CREST研究(2011年10月-2017年3月)を展開してきた。さらに2014年12月からACCEL研究(2014年-2020年)に採択され「超活性固定化触媒開発に立脚した基幹化学プロセスの徹底効率化」研究を進めつつある。また自己集積錯体触媒研究は2007年以降,理化学研究所フロンティア研究に指名され,現在同研究所・環境資源科学研究センターにて展開した(2007年-2019年)。現在,魚住の本拠地である分子科学研究所に於いては,次の研究の萌芽を見いだし育てる研究にも大いに注力しており,幾つかの新機軸候補課題の中から大きな発展に繋がる新課題を見いだしつつある。なかでも最近は未開拓元素群の触媒反応性(とくにCu, Fe, Ag)の探索と確立,さらには分子の自己集積化に立脚した触媒機能の自発的獲得など目指した研究開発を推進しつつある。また分子研内外の研究者とチームで取り組み遷移金属触媒カップリング反応の極端紫外分光を利用したオペランド観察による反応機構解析,企業との産学連携による基幹的有機化合物の工業生産プロセスへの展開研究などの共同研究に取り組みつつある。さらに,基礎研究として,これまでの高活性触媒の設計概念と駆動原理を駆使し,従来パーセント量の利用が常識であった化学変換触媒をppm-ppb量のレベルへと転換すべく研究に取り組んでいる。これは触媒活性の 10^4 - 10^7 向上を意味し「改善」を凌駕する「飛躍」が要求される圧倒的な高活性化であり,学術的にも大きなチャレンジである。また特にグループ内での奥村博士との協働による遷移金属錯体光触媒の開発を推進し,従来にないカルピノール基の極性転換反応を開発・展開しつつある。本課題は今後の魚住グループの大きな潮流となる。

榎山 儀 恵 (准教授) (2014年6月1日着任)

大塚 尚哉 (助教)
LEE, Jia Yen (インターンシップ)
大石 峻也 (大学院生)
加藤 雅之 (大学院生)
西岡 雪奈 (技術支援員 (派遣))
原田 晋子 (技術支援員 (派遣))
丸山 莉央 (技術支援員 (派遣))
牛田 妃菜乃 (事務支援員 (派遣))

A-1) 専門領域：有機合成化学

A-2) 研究課題：

- a) ペルフルオロハロゲン化ベンゼンを基盤とする触媒機能の体系化
- b) ハロゲン結合を活用する高分子触媒反応場の開発
- c) 三中心四電子ハロゲン結合を活用するハロニウム錯体触媒の開発
- d) 全フッ素ハロゲン化リレン化合物の精密合成と多機能性材料への応用
- e) 化学反応性空間の構築と有機合成反応開発への応用

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 種々のペルフルオロヨードベンゼンが、ピリジンとアリルシラトランとのアリル化反応、クロチル化反応、プレニル化反応の触媒として機能することを見出した。江原グループとの共同研究、岡山大自然生命科学研究支援センターでの HOESY 測定により、本反応の触媒作用機構を明らかにした。触媒母骨格の立体的影響ならびに電子的影響を詳細に調査し、鈴木敏泰チームリーダーとの共同研究により、反応の駆動力と推測される分子間の静電相互作用を計算化学的に示すことに成功した。現在、ペルフルオロハロゲン化ベンゼンを基盤とする触媒機能の体系化を試みている。本年度内の掲載決定に向け、追加実験をもとに論文の改訂と実験項の作成を進めている。
- b) ハロゲン結合供与部位を有する高分子と DMAP から調製した高分子触媒が、水中でのアシル基転移反応に有効であることを見出した。産総研触媒化学融合研究センター中島チーム長および田中主任研究員と共同研究を実施し、固体 DNP-NMR 測定により高分子触媒中の DMAP とそのハロゲン結合供与能を検証した。分光学的に触媒活性中心となる DMAP を同定することに初めて成功した。機能性モノマーの合成について、反応実験の詳細と実験結果の相関分析を学術誌に報告した。共同研究の成果について、現在、論文を執筆中である。さらに、ハロゲン結合供与部位を有する高分子を溶媒の代替として用いることで、本触媒反応システムを ppm レベルの触媒反応へと展開することに成功した。岐阜医療科学大学の萬代准教授と共同研究において ppm レベルでの不斉触媒化に挑戦し、開発した不斉高分子触媒がエナンチオ選択性の発現に有効であることを明らかにした。本年度中の論文発表を目指し、現在、追加実験を実施中である。
- c) エチルビスピリジンを配位子とするヨードニウム錯体やジアリールヨードニウムトリヨードの合成と構造解析に成功した。合成した錯体が、向山型反応や細見-櫻井反応において、極めて高い触媒活性を示すことを見出した。NMR や CSI-MS 測定により本錯体触媒の反応駆動力を実験化学的に検証した。開発したハロニウム錯体触媒反応で

は、触媒の一価ヨウ素と反応基質の電子豊富な化学種との三中心四電子ハロゲン結合の形成が反応駆動力となっていることを見出した。向山型反応については、追加実験および追加計算、論文改訂作業を完了して、2報の学術論文として掲載に至った。細見-櫻井反応については、データ整理を行い、論文を執筆中である。

- d) 全フッ素ハロゲン化ベンゼンでは達成できない新規機能の探究を目的として、全フッ素ハロゲン化多環芳香族の精密合成を実施した。構成素子となる部分フッ素化ナフタレンの位置選択的フッ素化法を確立した。メタ位をヨウ素、臭素、塩素で置換した全フッ素ハロゲン化ペリレンの合成に成功した。全フッ素ハロゲン化ペリレンおよびその誘導体が、市販の全フッ素ハロゲン化ベンゼンとは異なる分子配列を形成し、ハロゲン元素の違いに伴う発光特性を有することを見出した。ナフタレンに関して合成と構造に関する論文の執筆を完了し、学術誌に投稿間近である。ペリレンについては、論文投稿に向けて、現在、物性データの収集中である。
- e) 化学反応の開発は、新規有機分子の精密合成を実現するうえで重要な鍵となる。合成研究から機能創成研究への迅速展開を目的として、これまで取り組んできた新規有機分子の合成と機能開拓に、情報科学手法を活用する反応開発システムの構築を進めている。静岡大武田准教授、山手機器センター鈴木敏泰チームリーダーと共同研究を実施し、機械学習と量子化学計算の融合による反応開発を行った。その結果、定量的な解析にもとづく反応条件の最適化が可能になり、反応収率の飛躍的な向上に成功した。本共同研究の成果について、学術誌に論文投稿中である。また、有機低分子の反応性の理解と定量化を実現する機械学習モデルの開発に成功した。アプリケーションとしての実装に向けて、マテリアルインフォマティクス企業と共同研究を実施し、アプリ開発を行った。さらに、市販試薬約40,000個の反応性パラメータを推算し、得られた推算値をもとに低分子医薬品の類縁体の合成に成功した。

B-1) 学術論文

N. OHTSUKA, H. OTA, S. SUGIURA, S. KAKINUMA, H. SUGIYAMA, T. SUZUKI and N. MOMIYAMA, “Perfluorohalogenated Naphthalenes: Synthesis, Crystal Structure, and Intermolecular Interaction,” *CrystEngComm* **26**, 764–772 (2024). DOI: 10.1039/D3CE01124K

T. HORI, S. KAKINUMA, N. OHTSUKA, T. FUJINAMI, T. SUZUKI and N. MOMIYAMA, “Synthesis of Halogen-Bond-Donor-Site-Introduced Functional Monomers through Wittig Reaction of Perfluorohalogenated Benzaldehydes: Toward Digitalization as Reliable Strategy in Small-Molecule Synthesis,” *Synlett* **34(20)**, 2455–2460 (2023). DOI: 10.1055/a-2118-6813

M. HIRANYAKORN, M. YAGI-UTSUMI, S. YANAKA, N. OHTSUKA, N. MOMIYAMA, T. SATOH and K. KATO, “Mutational and Environmental Effects on the Dynamic Conformational Distributions of Lys48-Linked Ubiquitin Chains,” *Int. J. Mol. Sci.* **24(7)**, 6075 (2023). DOI: 10.3390/ijms24076075

S. OISHI, T. FUJINAMI, Y. MASUI, T. SUZUKI, M. KATO, N. OHTSUKA and N. MOMIYAMA, “Protocol for Efficient Dearomatization of *N*-Heteroaromatics with Halogen(I) Complex Catalyst,” *STAR Protoc.* **4(1)**, 102140 (2023). DOI: 10.1016/j.xpro.2023.102140

B-4) 招待講演

榎山儀恵, 「バッチ型自動反応実験装置の活用と化学反応空間の構築」, 日本化学会第104春季年会(2024)化学における情報・AIの活用, 船橋市, 2024年3月.

榎山儀恵, 「ハレニウム錯体触媒の創成: デジタル有機合成による反応開発への挑戦」, 第9回千葉大学キラリティーネットワーク研究会(WCCU)シンポジウム, 千葉市, 2024年2月.

榎山儀恵,「有機合成のデジタル化に基づく分子性ハロゲンの科学——有機合成DXへの挑戦——」, セミナー“化学千一夜”「あすの科学への夢を語ろう」, 徳島市, 2023年6月.

B-7) 学会および社会的活動

学会の組織委員等

日本プロセス化学会東海地区フォーラム幹事 (2021-).

東海コンファレンス 2023 in 岡崎 (2024年1月10日(水)13:30~18:00日本化学会東海支部主催)開催担当 (2023-2024), 文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

日本学術振興会科学研究費委員会専門委員 (2023).

理科教育活動

職場体験学習, 岡崎市立岩津中学校, 豊田市立益富中学校 (2023).

その他

2023年度分子研異分野交流技術セミナー (第6回)~有機合成DXへの期待~ (2023年11月2日(木)13:00~17:00) 講師 (2023).

豊田理化学研究所審査委員会委員 (2019-2024).

B-9) 学位授与

堀 達暁,「ヨウ化テトラフルオロポリスチレン誘導体の合成と不均一系求核触媒反応への応用: 4-アミノピリジンペンダント型高分子触媒の開発」, 2023年12月, 博士(理学).

大石峻也,「三中心四電子ハロゲン結合を基盤とする非金属錯体触媒の設計と Mannich 型反応への応用」, 2024年3月, 博士(理学).

B-10) 競争的資金

科研費学術変革領域研究(A) (計画研究),「精密合成を迅速に実現する全データ駆動型反応開発システムの構築」(代表: 榎山儀恵), 大塚尚哉 (研究分担者) (2021年度-2025年度).

科研費学術変革領域研究(A),「デジタル化による高度精密有機合成の新展開」総括班(代表: 大嶋孝志), 榎山儀恵 (研究支援) (2021年度-2025年度).

科研費基盤研究(C),「フッ素化ペリレン化合物の合成とデバイスへの応用」(代表: 鈴木敏泰), 榎山儀恵 (研究分担者) (2023年度-2025年度).

C) 研究活動の課題と展望

当グループでは, 精密合成化学を基盤として, 有機機能性分子の設計・合成・機能化を進めている。これまでに, 種々の新規ハロゲン分子の精密合成に取り組み, これらの分子が, 触媒分子として機能することを見出してきた。特に, 所内外の研究グループと共同研究を実施することで, ハロゲン原子を起点とする様々な分子間相互作用を詳細に考察し, これらの分子間相互作用が開発した触媒の機能発現に重要な役割を果たしていることを実証している。2022年度前期から2023年度前期にかけて, 投稿論文の審査コメントをもとに追加実験を実施し, 論文3報が学術誌に掲載された。また, 2022年度後期は, 所内外研究者との共同研究成果がまとまり, 学術誌2報に掲載された。その内

1報は、プレスリリースを行った。尚、現在、3報の論文を *ChemRxiv* で公開中である。引き続き、修正および追加実験を依頼されている論文の改訂作業を行い、2023年度中の論文掲載を目指す。また、執筆途中の論文が6報あり、2024年度はこれらの論文投稿に注力する。従来法による反応および触媒の開発に加え、インフォマティクスを活用した次世代精密有機合成システムの構築に尽力し、有機ハロゲン分子の精密合成から機能創成への研究展開を加速する。

今後は、有機合成のデジタル化を推進しながら、新たな分子性触媒・分子変換反応を開発する。さらに、機能性有機分子材料の開発へと研究を展開することで、ハロゲン元素の触媒科学から精密合成情報科学の学理構築を目指す。近い将来、本研究の成果が、新機能性物質創成の有力な手段として汎用されることを目標に、引き続き研究を遂行する。

錯体物性研究部門

草 本 哲 郎 (教授 (兼任*)) (2023 年 4 月 1 日～9 月 30 日)

松岡 亮太 (助教)
水野 麻人 (学振特別研究員)
壬生 託人 (特任専門員)
竹脇 由佳 (総研大生)
久保田重紀子 (技術支援員)
中貝 梢 (技術支援員 (派遣))
川口 律子 (事務支援員)

*大阪大学大学院基礎工学研究科

A-1) 専門領域：分子物性化学, 錯体化学

A-2) 研究課題：

- a) ラジカルの多重項に基づくスピン-発光関連機能の創出とメカニズム解明
- b) 三回対称構造を有するラジカルに基づく物質開拓

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 光安定ラジカル PyBTM を 10wt% ドープした分子結晶は、極低温において磁場に応答する発光挙動 (magnetoluminescence) を示す。これまでの研究により、MagLum 発現にはラジカルの集積化により新たに生まれるスピン自由度が本質的な役割を果たしている可能性があることを見出している。本研究では、MagLum のメカニズムの理解にむけて、いくつかのラジカル (あるいは $S = 1/2$ スピン) が集まれば MagLum を実現することができるのか、という点を解明することを目的として、分子骨格内に二つの $S = 1/2$ スピンをもつ分子=ジラジカルを合成した。このジラジカルを単分散させたジラジカルドープポリマーに対し、発光スペクトルならびに発光寿命の磁場および温度依存性を詳細に調べたところ、このポリマーが MagLum を示すことを見出した。これは孤立したジラジカルが示す特性であり、単分子 MagLum の初実現である。この結果は、MagLum を実現するために必要な $S = 1/2$ のスピンの数 (ラジカルユニット数) は 2 であることを世界で初めて示したという点で画期的である。
- b) 二次元系物質は、構造の低次元性や幾何対称性に基づき特徴的なバンド分散や機能を示す。我々はなかでも二次元ハニカムおよびカゴメ-ハニカムハイブリッド格子構造を有する開殻錯体配位高分子に着目し、新規物質開発及び機能創出を進めている。本研究では、三回対称構造を有するラジカルと金属イオンとの配位結合形成により二次元カゴメ-ハニカム格子構造を有する結晶性配位高分子を創製し、その構造や物性を調べた。特に磁気モーメントを有する銅イオンを用いた場合、銅イオンとラジカルの不对電子間に働く非対称な強磁性的相互作用により、スピンプラストラクションが生じている可能性があること、加えてこれが物質の長距離磁気秩序化を抑制している可能性を見出した。一般にスピンプラストラクションはスピン間の反強磁性相互作用を基とするが、本物質では強磁性的相互作用を基としており、スピンプラストラクションの実現にあたり新たな戦略を与える可能性がある。

B-1) 学術論文

R. MATSUOKA, S. KIMURA, T. MIURA, T. IKOMA and T. KUSAMOTO, “Single-Molecule Magnetoluminescence from a Spatially Confined Persistent Diradical Emitter,” *J. Am. Chem. Soc.* **145(25)**, 13615–13622 (2023). DOI: 10.1021/jacs.3c01076

B-3) 総説, 著書

草本哲郎, 「大気安定な発光性ポリクロトリアリアルメチルラジカルの開発と機能創出」, *有機合成化学協会誌*, **81(5)**, 501–509 (2023). DOI: 10.5059/yukigoseikyokaisi.81.501

B-4) 招待講演

T. KUSAMOTO, “Magnetoluminescence from Assembled Organic Radicals,” Magnetoluminescence from Assembled Organic Radicals (SPIN-2023), Mita (Japan), September 2023.

T. KUSAMOTO, “Spin-correlated luminescence of radicals,” The 73rd JSCC Conference, Mito (Japan), September 2023.

T. KUSAMOTO, “Interplay Between Spin and Luminescence in Assembled Organic Radicals,” CEMS Topical Meeting, Wako (Japan), July 2023.

T. KUSAMOTO, “Spin-correlated photoluminescence of assembled open-shell molecules,” 10th Pacific Symposium on Radical Chemistry (PSRC-10), Uji (Japan), June 2023.

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

錯体化学会副事務局長 (2019–), ホームページ委員長 (2019–), 理事 (2022–).

錯体化学若手の会中部・東海支部世話人 (2019–2023). (松岡亮太)

学会誌編集委員

Journal of Materials Chemistry C, Royal Society of Chemistry, Advisory Board (2022–).

Materials Advances, Royal Society of Chemistry, Advisory Board (2022–).

B-10) 競争的資金

科学技術振興機構さきがけ研究, 「三回対称ラジカルを基とするカゴメーハニカムハイブリッド格子の構築と機能開拓」, 草本哲郎 (2020年度–2023年度).

科研費基盤研究(B), 「発光開殻分子集合体によるスピントニクス機能の創出と理解」, 草本哲郎 (2023年度–2025年度).

科研費挑戦的研究(萌芽), 「カゴメーハニカム格子構造を有する分子性超薄膜結晶の創製と物性探究」, 草本哲郎 (2023年度–2024年度).

科研費基盤研究(C), 「発光性マルチラジカルのスピン多重度依存的励起状態ダイナミクスの解明」, 松岡亮太 (2023年度–2025年度).

科研費若手研究, 「ドナー・アクセプター型発光性ラジカルにおけるマグネトルミネッセンス発現機構の解明」, 水野麻人 (2023年度–2024年度).

科研費学術変革領域研究(A) (計画研究), 「1000 T 化学反応の探索と解明」 (代表者: 木村尚次郎), 草本哲郎 (研究分担者) (2023年度-2027年度).

C) 研究活動の課題と展望

有機ラジカルや磁性金属錯体に代表される開殻電子系分子は, 不対電子に基づき, 通常の開殻分子とも無機物質とも異なる物性を発現する。我々の研究グループでは, 開殻電子系分子を用いてユニークな光・電気・磁気相関物性を創製・解明することで, 物性科学に新概念と革新をもたらすことを目指して研究を進めている。今年度は, (a) 単分子 MagLum を示す物質系の創製, (b) 二次元カゴメーハニカムハイブリッド格子構造を有する開殻配位高分子の合成と磁気特性の調査, の研究を推進し, それぞれにおいて重要な成果を得ることができた。今後は, (a) では, 化学構造の異なる複数のジラジカルの MagLum 特性を調べ比較することで, 発光開殻分子の MagLum における普遍性と非普遍性, ならびに分子特有のパラメータを明らかにし, メカニズムの全容解明に繋げる。(b) については, 有機化合物の高い分子設計性や金属錯体の特長である金属イオン及び幾何構造の多様性を基に, 新しい配位高分子を開発し, 光・磁気相関機能あるいは励起状態特性の創出を目指す。

瀬川 泰知 (准教授) (2020年4月1日着任)

塚本 兼司 (学振特別研究員)
杉山 晴紀 (特別訪問研究員)
長瀬 真依 (大学院生)
廣田 宗土 (大学院生)
渡邊 幸佑 (大学院生)
吉田 瑠 (大学院生)
中野 さち子 (技術支援員 (派遣))
平田 直 (技術支援員 (派遣))
谷分 麻由子 (事務支援員)

A-1) 専門領域：有機合成化学, 構造有機化学

A-2) 研究課題：

- 3次元幾何構造をもつ機能性有機構造体の合成と機能
- トポロジカル π 共役分子の創製
- 電子回折結晶構造解析の有機機能性材料開発への活用

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- 湾曲構造をもつ π 共役有機分子の合成と構造解析を行った。大環状に π 共役が繋がった分子「シクロ-3,4-チエニレン」について、初の環状5量体および6量体の合成に成功した。合成の鍵はチオフェンの3,4-位のホウ素化反応、および環状構造に起因するひずみを乗り越える環化反応の開発である。得られた環状5量体および6量体は非平面構造を取ることをX線結晶構造解析によって確認し、溶液中の熱力学的挙動は環状5量体および6量体で大きく異なることを実験的・計算化学的に明らかにした。
- 松永教授、吉野准教授 (北海道大学・京都大学) らとの共同研究により、電子不足イリジウム錯体の開発を行った。X線結晶構造解析より、電子求引基をもつシクロペンタジエニルが配位したイリジウム2核錯体の構造を決定し、本錯体が芳香環のC-Hアミド化の触媒として効率的に作用することを明らかにした。
- ひずみをもつ幾何学構造である正方形分子の合成過程において、予期しない4員環結合形成反応を発見した。[8]サーキュレン誘導体合成の際にカルボニル化剤として炭酸ジメチルを用いると4員環が形成された新たな π 共役分子が生成した。X線結晶構造解析によって構造を同定し、分光学的・電気化学的測定と量子化学計算を用いた解析によって、4員環と8員環の両方に反芳香族性をもつ分子であることを明らかにした。
- 3回対称分子トリフェニレンのベイ領域全てにフッ素を導入する手法を開発した。合成したペンタフルオロペンタエトキシトリフェニレンの構造・性質を調査したところ、フルオロ基による立体反発によって非平面構造となり、さらにフルオロ基の高い電子求引性によって電子受容性が向上していることを明らかにした。

B-1) 学術論文

K. OTA, K. NAGAO, D. HATA, H. SUGIYAMA, Y. SEGAWA, R. TOKUNOH, T. SEKI, N. MIYAMOTO, Y. SASAKI and H. OHMIYA, “Synthesis of Tertiary Alkylphosphonate Oligonucleotides through Light-Driven Radical-Polar Crossover Reactions,” *Nat. Commun.* **14(1)**, 6856 (2023). DOI: 10.1038/s41467-023-42639-y

S. HIROTA, S. NAKANO, H. SUGIYAMA and Y. SEGAWA, “Synthesis of Polycyclic Arenes Composed of Four-, Five-, Six-, and Eight-Membered Rings via an Unexpected Four-Membered Ring Formation Reaction,” *Org. Lett.* **25(45)**, 8062–8066 (2023). DOI: 10.1021/acs.orglett.3c03039

H. SHUDO, M. KUWAYAMA, Y. SEGAWA, A. YAGI and K. ITAMI, “Half-Substituted Fluorocycloparaphenylenes with High Symmetry: Synthesis, Properties and Derivatization to Densely Substituted Carbon Nanorings,” *Chem. Commun.* **59(90)**, 13494–13497 (2023). DOI: 10.1039/d3cc04887j

M. NAGASE, S. NAKANO and Y. SEGAWA, “Synthesis of penta- and hexa(3,4-thienylene): Size-Dependent Structural Properties of Cyclic Oligothiophenes,” *Chem. Commun.* **59(74)**, 11129–11132 (2023). DOI: 10.1039/d3cc03508e

E. TOMITA, M. KOJIMA, Y. NAGASHIMA, K. TANAKA, H. SUGIYAMA, Y. SEGAWA, A. FURUKAWA, K. MAENAKA, S. MAEDA, T. YOSHINO and S. MATSUNAGA, “An Electron-Deficient CpE Iridium(III) Catalyst: Synthesis, Characterization, and Application to Ether-Directed C–H Amidation,” *Angew. Chem., Int. Ed.* **62(21)**, e202301259 (2023). DOI: 10.1002/anie.202301259

B-4) 招待講演

瀬川泰知, 「パズルのように分子を作る～曲がった炭素分子の有機合成～」, 第 137 回分子科学フォーラム, オンライン開催, 2023 年 10 月.

瀬川泰知, 「湾曲構造とトポロジーを芳香族炭化水素に付与する有機合成戦略」, 第 54 回構造有機化学若手の会夏の学校, 北海道札幌市, 2023 年 8 月.

瀬川泰知, 「Synthesis of Highly Strained and Topologically Unique Aromatic Hydrocarbons」, 錯体化学会第 73 回討論会, 茨城県水戸市, 2023 年 9 月.

Y. SEGAWA, “Strategies for strain-induced synthesis of topologically unique aromatic hydrocarbons,” CEMS Topical Meeting on Chemistry of π -Conjugated Materials, Wako, July 2023.

B-7) 学会および社会的活動

理科教育活動

三重県立伊勢高等学校見学対応 (2023).

B-8) 大学等での講義, 客員

名城大学理工学部, 非常勤講師, 2023 年 9 月–2024 年 3 月.

B-9) 学位授与

長瀬真依, 「Study on the Nonplanar π -Conjugated Molecules Fused by Multiple Thiophene Rings」, 2024 年 3 月, 博士 (理学).

B-10) 競争的資金

科研費基盤研究(B),「トポロジカル π 共役構造体の創製」瀬川泰知(2022年度-2024年度).

科学技術振興機構創発的研究支援事業(受託研究),「革新的有機半導体を指向した周期的3次元 π 共役構造体の創製」,瀬川泰知(2022年度-2024年度).

科研費挑戦的研究(萌芽),「有機半導体の配向配列問題を解決する3次元 π スタック分子の創製」,瀬川泰知(2022年度-2023年度).

C) 研究活動の課題と展望

本年度は3次元的な分子設計による特異なトポロジーをもった有機構造体の創製に向けて研究を行った。チオフェン環状多量体は単純な構造でありながらこれまでに合成例がなかったものであり、ポリル化反応、環化反応といった各反応段階において高活性なチオフェン a 位を保持しながら進行させる工夫が必要であった。本成果は*Chem. Commun.* 誌に掲載され、高い注目度を得ている。予期しない4員環形成反応の発見と当該化合物の反芳香族性の調査については*Organic Lettes* 誌に掲載された。トリフェニレンのフッ素化によるヘキサフルオロトリフェニレンの合成については*Chemistry Letters* 誌に掲載された。また、松永教授、吉野准教授らとの共同研究により、芳香環のC-Hアミド化の触媒となる電子不足イリジウム錯体の開発を行い論文として発表した。

今後は複雑なトポロジーをもつ有機分子や3次元ネットワーク高分子の合成および機能開拓を行い、既存の有機合成の限界を突破した物質創製研究を遂行していく。3次元敷き詰め可能な対称性をもつユニットの設計と合成は順調に進んでおり、目的とする3次元フレームワークの構造解析・結晶性の向上・各種物性測定を行う。また、当グループがもつ構造解析の技術・知見を活かして、今後も大学共同利用機関としての役割を果たしていく。

6-8 特別研究部門

藤田 誠 (卓越教授 (クロスアポイントメント*)) (2018年4月1日着任)

三橋 隆章 (特任助教)

増田 道子 (事務支援員)

*東京大学国際高等研究所 (2023年4月1日～)

A-1) 専門領域：錯体化学, 有機化学, 超分子化学

A-2) 研究課題：

a) 結晶スポンジ法の二次代謝酵素の機能解析への応用

A-3) 研究活動の概略と主な成果

a) 結晶スポンジ法は、信頼性の高い構造決定手法として知られるX線結晶構造解析を、解析対象物自体の単結晶化を行うことなく達成する技術である。近年、我々は結晶スポンジ法を用い、二次代謝酵素の機能解析を行なっている。二次代謝酵素の機能解析においては、酵素が作り出す酵素産物の構造決定の困難さが研究を進める上でボトルネックとなっており、この問題の解決に結晶スポンジ法の利用が有効であると考えた。特に今期は、巨大ウイルスと呼ばれるウイルスが持つ二次代謝酵素の機能解析を達成した。また、本研究を遂行する中で、酵素産物やその分解物の構造解析に結晶スポンジ法が威力を発揮した。

B-1) 学術論文

H. TAKEZAWA, K. IIZUKA and M. FUJITA, “Selective Synthesis and Functionalization of an Acyclic Methylene-Bridged-Arene Trimer in a Cage,” *Angew. Chem., Int. Ed.* **63(6)**, e202319140 (2023). DOI: 10.1002/anie.202319140

B. ZHOU, S. UTJAPIMUK, K. K. YAN, R. DUBEY, T. KIKUCHI, T. MITSUHASHI and M. FUJITA, “Rapid Analysis of Trace Amounts of Amino Acid Derivatives by a Formyl Group-Installed Crystalline Sponge,” *Chem. –Asian J.* **19(3)**, e202300969 (2023). DOI: 10.1002/asia.202300969

Y. JUNG, T. MITSUHASHI, S. SATO, M. SENDA, T. SENDA and M. FUJITA, “Function and Structure of a Terpene Synthase Encoded in a Giant Virus Genome,” *J. Am. Chem. Soc.* **145(48)**, 25966–25970 (2023). DOI: 10.1021/jacs.3c10603

K. IIZUKA, H. TAKEZAWA and M. FUJITA, “Chemical Site-Differentiation of Calix[4]arenes through Enforced Conformations by Confinement in a Cage,” *J. Am. Chem. Soc.* **145(48)**, 25971–25975 (2023). DOI: 10.1021/jacs.3c10720

G. R. GENOV, H. TAKEZAWA, H. HAYAKAWA and M. FUJITA, “Tetrahydro-Diels-Alder Reactions of Flexible Arylalkynes via Folding Inside a Molecular Cage,” *J. Am. Chem. Soc.* **145(31)**, 17013–17017 (2023). DOI: 10.1021/jacs.3c06301

E. TSUNEKAWA, Y. OTSUBO, Y. YAMADA, A. IKEDA, N. ADACHI, M. KAWASAKI, A. TAKASU, S. ARAMAKI, T. SENDA, S. SATO, S. YOSHIDA, M. FUJITA and T. SAWADA, “X-Ray and Electron Diffraction Observations of Steric Zipper Interactions in Metal-Induced Peptide Cross- β Nanostructures,” *J. Am. Chem. Soc.* **145(29)**, 16160–16165 (2023). DOI: 10.1021/jacs.3c04710

G. TAY, T. WAYAMA, H. TAKEZAWA, S. YOSHIDA, S. SATO, M. FUJITA and H. OGURI, “Synthetic Modulation of an Unstable Dehydrosecodine-Type Intermediate and Its Encapsulation into a Confined Cavity Enable Its X-Ray Crystallographic Observation,” *Angew. Chem., Int. Ed.* **62(32)**, e202305122 (2023). DOI: 10.1002/anie.202305122

Y. DOMOTO, M. ABE, G. R. GENOV, Z. YU and M. FUJITA, “Interconversion of Highly Entangled Polyhedra into Concave Polyhedra by Nitrate-Induced Ternary Coordination,” *Angew. Chem., Int. Ed.* **62(33)**, e202303714 (2023). DOI: 10.1002/anie.202303714

T. NAKAMA, A. ROSSEN, R. EBIHARA, M. YAGI-UTSUMI, D. FUJITA, K. KATO, S. SATO and M. FUJITA, “Hysteresis Behavior in the Unfolding/Refolding Processes of a Protein Trapped in Metallo-Cages,” *Chem. Sci.* **14(11)**, 2910–2914 (2023). DOI: 10.1039/D2SC05879K

B-4) 招待講演

M. FUJITA, “Coordination Self-Assembly: From Origins to the Latest Advances,” Barré Lecturer, Université de Montréal, Montréal (Canada), April 2023.

M. FUJITA, “Polymerisation-Induced Self-Assembly (PISA): A Platform Technology for Bespoke Polymer Particles,” The 19th Asian Chemical Congress, Istanbul (Turkey), July 2023.

M. FUJITA, “Coordination Self-Assembly: From Origins to the Latest Advances,” IOCB Invited Lecture, Prague (Czech), September 2023.

M. FUJITA, “Molecular Confinement Effects in Self-assembled Cages,” 9th Asian Conference on Coordination Chemistry (ACCC9), Bangkok (Thailand), February 2024.

B-6) 受賞, 表彰

藤田 誠, 2022 Natta Award (2023).

B-7) 学会および社会的活動

学会誌編集委員

Chemical Science 誌, Editorial Board (2018–).

Acc. Chem. Soc. 誌, Editorial Board (2018–).

B-10) 競争的資金

科研費特別推進研究, 「空間捕捉によるタンパク質の構造・機能制御および高効率構造解析」, 藤田 誠 (2019年度–2023年度).

C) 研究活動の課題と展望

今期, 我々は巨大ウイルスの二次代謝酵素の機能解析を世界に先駆けて行った。この研究結果は, 巨大ウイルスが二次代謝産物の生産者であることを示唆しているが, 何故巨大ウイルスが二次代謝産物を生産しているのかについては未だ明らかでは無く, 今後明らかにする必要がある。また, これまでのところ一つの巨大ウイルス由来二次代謝酵素について機能解析を達成したに過ぎず, さらに多くの酵素について機能解析を進める必要がある。今後はこれらの課題に取り組んでいきたい。

木村 真一（教授（クロスアポイントメント*））（2020年4月1日着任）

栗田 佳子（事務支援員）

*大阪大学大学院生命機能研究科

A-1) 専門領域：物性物理学，量子ビーム科学

A-2) 研究課題：

- a) 機能性固体・薄膜の電子状態の分光研究
- b) 物質科学に向けた新しい放射光分光法の開発
- c) 新しい量子ビームを使った分析技術の開発

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 機能性固体・薄膜の電子状態の分光研究：磁性と伝導が複雑に絡み合うことにより新しい機能が現れる固体・薄膜について，低温・高圧・高磁場下の赤外・テラヘルツ分光と高分解能三次元角度分解光電子分光および時間分解分光により，機能性の起源である電子状態を詳細に決定している。また，それらの実験条件に合わせた第一原理電子状態計算を組み合わせることで，機能性固体・薄膜の電子状態の総合的な情報を得ている。
- b) 物質科学に向けた新しい放射光分光法の開発：UVSOR や次世代放射光で用いることを想定した新たな分光法を開発する。特に，電子構造のダイナミクスを可視化することを目標に，新たな光電子分光法と赤外分光法の開発を進めており，物質科学への応用を図る。
- c) 新しい量子ビームを使った分析技術の開発：スピン偏極高輝度電子源を用いた高エネルギー分解能スピン・角度分解共鳴電子エネルギー損失分光法の開発を進めている。

B-1) 学術論文

S. KIMURA, H. WATANABE, S. TATSUKAWA, T. NAKAMURA, K. IMURA, H. SUZUKI and N. K. SATO, “Current-Induced Metallization and Valence Transition in Black SmS,” *J. Phys. Soc. Jpn.* **93(1)**, 013701 (2024). DOI: 10.7566/jpsj.93.013701

T. NAKAMURA, H. SUGIHARA, Y. CHEN, R. YUKAWA, Y. OHTSUBO, K. TANAKA, M. KITAMURA, H. KUMIGASHIRA and S. KIMURA, “Two-Dimensional Heavy Fermion in a Monoatomic-Layer Kondo Lattice YbCu₂,” *Nat. Commun.* **14(1)**, 7850 (2023). DOI: 10.1038/s41467-023-43662-9

S. KIMURA, H. WATANABE, S. TATSUKAWA and H. TANIDA, “Observation of Electronic Structure Modification in the Hidden Order Phase of CeCoSi,” *J. Phys. Soc. Jpn.* **92(4)**, 043704 (2023). DOI: 10.7566/JPSJ.92.043704

H. J. IM, M. IWATAKI, M. TSUNEKAWA, T. WATANABE, H. SATO, M. NAKATAKE and S. KIMURA, “Variation of Strong Correlation Effects in A-Site Ordered Perovskites CaCu₃Ti_{4-x}RuxO₁₂: Photoemission and Inverse Photoemission Studies,” *J. Phys. Soc. Jpn.* **92(4)**, 044701 (2023). DOI: 10.7566/JPSJ.92.044701

B-4) 招待講演

木村真一,「アインシュタインの光量子仮説を使った最先端物性研究」, 来日 100周年記念アインシュタインの日本講演旅行展@ 阪大豊中記念講演会, 豊中市, 2023年 10月.

S. KIMURA, “Two-dimensional heavy fermion in a monoatomic-layer Kondo lattice YbCu₂,” HiSOR seminar, Higashi-Hiroshima (Japan), November 2023.

S. KIMURA, “Two-dimensional heavy fermion in a monoatomic-layer Kondo lattice YbCu₂,” The 10th International Workshop on the Dual Nature of f-Electrons, Himeji (Japan), June 2023.

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

日本放射光学会評議員 (2021.9–2023.9).

日本物理学会第 79–80 期受賞候補等推薦委員会委員 (2023–2025).

学会の組織委員等

国際ワークショップ「The 10th International Workshop on the Dual Nature of f-Electrons」組織委員 (2023).

国際ワークショップ「12th International Workshop on Infrared Microscopy and Spectroscopy with Accelerator Based Sources」国際諮問委員 (2024).

文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

広島大学放射光科学研究センター協議会委員 (2018.4–2024.3).

SPring-8/SACLA 成果審査委員会「査読者」(2016.4–2024.3).

東京大学放射光アウトステーション実験課題審査委員会委員 (2023–2025).

佐賀大学シンクロトン光応用研究センター評価専門委員 (2022–2024).

B-8) 大学等での講義, 客員

大阪大学大学院生命機能研究科, 教授, 2013年 7月–.

大阪大学理学部, 講義「光物理学」, 2023年 4月–9月.

大阪大学理学研究科, 講義「光物性物理学」, 2023年 4月–9月.

大阪大学大学院生命機能研究科, 講義「基礎物理学I」, 2023年 4月–5月.

大阪大学生命機能研究科, 講義「生体ダイナミクス概論III」, 2023年 10月–2024年 3月.

大阪大学全学教育推進機構, 講義「力学詳論II」, 2023年 10月–2024年 3月.

大阪大学大学院生命機能研究科, 実習「基礎物理学実習I」, 2023年 6月–7月.

広島大学先進理工系科学研究科, 客員教授, 「物理学特別講義D「放射光を用いた広帯域分光研究: 分光法から利用研究まで」」, 2023年 10月–2024年 3月.

大阪大学理学部, 講義「生命理学基礎演習 1」, 2023年 4月–9月.

大阪大学理学部, 講義「先端物理学・宇宙地球科学輪講」, 2023年 10月–2024年 3月.

B-10) 競争的資金

研費基盤研究(A), 「時間・スピン分解共鳴電子散乱法の確立と光励起電子・格子・スピン相関の直接観測」, 木村真一 (2023年度-2025年度).

C) 研究活動の課題と展望

物質機能の起源である電子構造を明確にすることは、物性の理解を深め、新しい機能性を創りだすのに重要である。そのため、準粒子を観測するための手段として、これまで放射光を使った角度分解光電子分光と赤外・テラヘルツ分光を推進してきた。現在は、準粒子とともに重要な素励起である集団励起の観測を行うために、内殻共鳴電子エネルギー損失分光法 (rEELS) の開発を進めている。クロスアポイントメントの5年間で、rEELSをスピン分解、角度分解、時間分解に拡張するとともに、スピン・角度分解共鳴逆光電子分光法の開発も行っていく。

大 西 洋（教授（クロスアポイントメント*））（2021年11月1日着任）

栗田 佳子（事務支援員）

*神戸大学大学院理学研究科

A-1) 専門領域：界面分子科学，触媒科学

A-2) 研究課題：

- a) 有限厚さをもつ固液界面のオペランド計測：創／省エネルギーを支えるサイエンスの構築

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 創エネルギーと省エネルギーという社会ニーズに応えるために，高収率の半導体光触媒と低摩擦の潤滑油が最近20年のあいだに次々と開発されてきた。これら新材料をオペランド計測する手法に工夫をこらして有限の厚さ（1 μm –1 nm）をもつ液体–固体界面が機能を発現するしくみを理解する。分子論的な界面（液体分子と固体分子が接触する場所）でおきる現象と，分子論的な界面へ物質とエネルギーを入出力する場所でおきる現象を同時に計測し一体として理解することの重要性を光触媒（物質変換）と潤滑油（力学的エネルギー散逸）というケーススタディをとおして世界へ発信することを目的とする。①電子励起状態にある光触媒の軟エックス線分光と全反射光学分光の手法開発②潤滑油界面のナノ力学計測と単一分子蛍光追跡の手法開発が本年度の成果である。

B-1) 学術論文

M. BUSSLER, S. MARUYAMA, M. ZELENKA, H. ONISHI and E. H. G. BACKUS, “Unravelling the Interfacial Water Structure at the Photocatalyst Strontium Titanate by Sum Frequency Generation Spectroscopy,” *Phys. Chem. Chem. Phys.* **25(45)**, 31471–31480 (2023). DOI: 10.1039/D3CP03829G

Z. FU and H. ONISHI, “Photocatalytic Reaction in Aqueous Suspension: FTIR Spectroscopy with Attenuated Total Reflection in Diamonds,” *ACS Omega* **8**, 33825 (2023). DOI: 10.1021/acsomega.3c04330

B-4) 招待講演

H. ONISHI, “Artificial Photosynthesis Driven by Polarons Photoexcited in Semiconductor Photocatalysts,” Surface Science Colloquium in Chinese Academy of Science, Beijing (China), January 2024.

H. ONISHI, “Atomic force microscopy in organic solvents,” Seminar in Peking University, Beijing (China), January 2024.

H. ONISHI, “Soft x-ray spectroscopy for semiconductor photocatalysts,” UVSOR-III + MAX IV International Workshop: Frontier of Soft X-Ray Spectroscopy for Chemical Processes in Solutions, Okazaki (Japan), October 2023.

H. ONISHI, “Transient Amperometry of O₂ Evolution Reaction on Metal-Oxide Photocatalysts under Water,” IUVESTA-ZCAM Workshop: Metal-Oxide Ultrathin Films and Nanostructures: Experiment Meets Theory, Zaragoza (Spain), July 2023.

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

(社)応用物理学会薄膜・表面物理分科会幹事(2006-).

日本表面真空学会理事(2022-).

文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

触媒科学計測共同研究拠点課題等審査専門委員会委員長(2022-).

科学技術振興機構創発的研究支援事業アドバイザー(創発AD)(2023-).

北海道大学触媒科学研究所教員候補者選考委員会委員(2023).

学会誌編集委員

日本表面真空科学会電子ジャーナル委員(2002-).

B-10) 競争的資金

科研費基盤研究(A),「人工光合成をめざす半導体光触媒:オペランド計測によるミリ秒反応化学の解明」,大西 洋(2022年度-2024年度).

科研費挑戦的研究(萌芽),「固体に挟まれた潤滑油分子の並進運動計測:単一蛍光分子追跡」,大西 洋(2021年度-2023年度).

C) 研究活動の課題と展望

【光触媒】水-光触媒界面ですすむ物質変換に焦点を絞った研究を展開していく。従来の光触媒ダイナミクス研究はフェムト秒からマイクロ秒で進む電子のうごき(電子励起と電荷分離)に注目してきた。有限厚の水-光触媒界面で物質輸送を含むミリ秒の反応化学の解明をめざす。

【潤滑油】潤滑油-固体界面におけるエネルギー散逸の鍵となる分子運動性を定量評価するために原子間力顕微鏡を駆使したナノ力学計測と,生体膜研究に常用される単一蛍光分子追跡を潤滑油界面計測に転用する研究を進めていく。

中 村 彰 彦 (准教授 (クロスアポイントメント*)) (2022 年 8 月 1 日着任)

川口 律子 (事務支援員)

野村 潤子 (事務支援員)

* 静岡大学農学部

A-1) 専門領域：生化学, 生物物理学

A-2) 研究課題：

- a) ポリエチレンテレフタレート加水分解酵素の改良
- b) ポリエチレンテレフタレート吸着酵素の開発

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 昨年度作成した PET 分解酵素活性スクリーニング系で取得した, 活性中心面を正電荷にした変異体及び活性中心と反対の面を負電荷にした変異体の酵素を生産精製し, PET フィルム分解活性を比較した。その結果, 負電荷導入酵素ではフィルム分解活性の向上はみられなかったが正電荷を導入した変異体では鑄型とした変異体と比較して 1.2 倍の分解活性の向上が確認された。さらに微粉末 PET を用いて酵素の吸着性能を比較したところ, 変異体酵素は鑄型酵素よりも 1.7 倍高い PET への吸着親和性を示した。よって PET 分解活性の向上は表面に導入した正電荷により吸着親和性が向上したことに起因すると考えられた。
- b) 作成した PET 吸着ドメインの吸着特性を調べるため, 半結晶微粉末 PET を用いて吸着試験を行ったところ, 鑄型の吸着ドメインと比較して吸着親和性に変化はなかったが, 最大吸着量が 1.8 倍に増加していた。対して鑄型の天然基質であるキチンへの吸着親和性は 1/25 に減少しており, PET 吸着ドメインに進化していることが確認できた。さらに PET への親和性を向上させキチンへの親和性を低下させるため, キチン吸着に重要とされているアミノ酸残基に変異を導入したが, 得られた変異体は大量生産時に凝集してしまうことが多いことがわかった。そこでファージディスプレイでのライブラリ濃縮後に小スケールでの可溶化酵素スクリーニングを組み合わせた系の構築を始めた。

B-1) 学術論文

T. MORI, S. SUGIMOTO, S. ISHII, J. WU, A. NAKAMURA, H. DOHRA, K. NAGAI, H. KAWAGISHI and H. HIRAI, “Biotransformation and Detoxification of Tetrabromobisphenol A by White-Rot Fungus *Phanerochaete sordida* YK-624,” *J. Hazard. Mater.* **465**, 133469 (2024). DOI: 10.1016/j.jhazmat.2024.133469

Y. TANAKA, T. UCHIHASHI and A. NAKAMURA, “Product Inhibition Slow Down the Moving Velocity of Processive Chitinase and Sliding-Intermediate State Blocks Re-Binding of Product,” *Arch. Biochem. Biophys.* **752**, 109854 (2024). DOI: 10.1016/j.abb.2023.109854

B-4) 招待講演

A. NAKAMURA, “Development and single-molecule binding-analysis of plastic hydrolase enzyme for recycling,” MRM2023/IUMRS ICA2023 Symposium E-1 Precise Material Science for Degradation and Stability, Kyoto, December 2023.

A. NAKAMURA, “Improvement of activity and thermostability of a PET hydrolase,” 16th Eurasia Conference on Chemical Sciences 2023 Frontiers in Chemical Sciences for Sustainability, Bangkok (Thailand), December 2023.

A. NAKAMURA, “Development and Characterization of Highly Heat Tolerant and Active Plastic Degrading Enzymes,” International Conference for Green Science and Technology, Kuala Lumpur (Malaysia), December 2023.

B-10) 競争的資金

科学技術振興機構創発的研究支援事業, 「プラスチックを探して壊すバイオマイクロドロンの創出」, 中村彰彦 (2022年度-2025年度).

科研費基盤研究(B), 「自然界に学ぶ「バイオマス分解機構」の解明」 (代表: 金子 哲), 中村彰彦 (研究分担者) (2021年度-2023年度).

科研費挑戦的研究(萌芽), 「高活性リグニン分解菌を用いた新規リグニンリファイナリー技術の構築」 (代表者: 平井 浩文), 中村 彰彦 (研究分担者) (2023年度-2024年度).

B-11) 産学連携

共同研究, キリンホールディングス(株), 「PET 分解酵素の開発」, 中村彰彦 (2022年度-2023年度).

共同研究, キリンホールディングス(株), 「結晶性PET 分解活性の高い酵素の開発」, 中村彰彦 (2023年度-2024年度).

C) 研究活動の課題と展望

PET 分解酵素変異体では親和性向上に由来する活性の上昇が確認できた。そこで蛍光標識した変異体を用いて1分子計測を行うことで吸着速度定数の向上か脱着速度定数の減少のどちらが親和性向上に寄与しているのか明らかにする。また吸着ドメインの開発では、可溶化スクリーニングにより鑄型とした変異体と同等の溶解性を持つ変異体が7種取得できた。そこでこれらの酵素が本当に大量生産後に安定して可溶化するか確認する。また鑄型酵素と比較してPET 吸着能及びキチンへの親和性の低下が達成できているか検証を進める。これによりさらに進化したPET 吸着ドメインの開発を行い、プラスチック特異的に染色できる酵素の開発を進める。

6-9 社会連携研究部門

平等拓範（特任教授（クロスアポイントメント*））（2019年4月1日着任）

佐野 雄二（特命専門員）
竹家 啓（特任研究員）
YAHIA, Vincent（特任研究員）
LIM, Hwanhong（特任研究員）
鈴木 昌世（特任研究員）
角谷 利恵（特任専門員）
殖栗 敦（特任専門員）
CASSOURET, Florent（特任研究員）
BRUNETEAU, Baptiste（特任研究員）
花村 諭志（共同研究員）
川瀬 晃道（特別訪問教授）
吉田 光宏（特別訪問准教授）
石月 秀貴（特別訪問研究員）
佐藤 庸一（特別訪問研究員）
瀧上 浩幸（特別訪問研究員）
KAUSAS, Arvydas（特別訪問研究員）
田村 彰良（特別訪問研究員）
FLAMENT, Ali nor（インターンシップ）
松田 美帆（技術支援員（派遣））
小林 純（技術支援員（派遣））
水嶋 一彦（技術支援員（派遣））
伊吹 剛（技術支援員（派遣））
小野 陽子（事務支援員）
山崎 美鈴（事務支援員（派遣））
奥原 紀恵（事務支援員（派遣（理研）））

*理化学研究所放射光科学研究センター

A-1) 専門領域：量子エレクトロニクス，光エレクトロニクス，レーザー物理，非線形光学

A-2) 研究課題：

- a) マイクロドメイン構造制御に関する研究
- b) マイクロドメイン光制御に関する研究
- c) マイクロ固体フォトリニクスの展開

A-3) 研究活動の概略と主な成果

分子科学に関連して重要な波長域にレーザーの高輝度光を展開する為の固体レーザー，非線形波長変換法につき包括的な研究を進めている。特には近年のマイクロ固体フォトリニクス [マイクロチップ Nd:YVO₄ レーザー（1990年），

Yb:YAG レーザー (1993 年), セラミックレーザー (1997 年), バルク擬似位相整合 (QPM) 素子: 大口径周期分極反転 MgO:LiNbO₃ (PPMgLN) (3mm 厚 2003 年, 5mm 厚 2005 年, 10mm 厚 2012 年)] を先導すると共に, 共同研究を通し赤外域分子分光などにその展開を図っている。国際誌の雑誌編集, 特集号企画から国際シンポジウム・会議の企画提案, 開催に積極的に参加する事でその成果を内外に発信している。

- a) マイクロドメイン構造, 界面 (粒界面, 結晶界面, さらには自発分極界面) を微細に制御する固相反応制御法の研究として, レーザーセラミックス, レーザー素子, 分極反転素子の作製プロセスの高度化を図っている。特に, 固体レーザーの発光中心である希土類イオンの軌道角運動量を利用したマイクロドメインの配向制御は, これまで不可能だった異方性セラミックスによるレーザー発振を成功させただけでなく原理的にはイオンレベルでの複合構造を可能とする。さらに最近, 表面活性接合による異種材料接合に成功し, Distributed Face Cooling (DFC) 構造による Tiny Integrated Laser (TILA) なる次世代の高性能な高集積小型レーザーに関するコンセプトが検証された。これより, 新たなフォトニクスを創出できるものと期待している。
- b) 光の発生, 増幅, 変換の高度制御を可能とする為の研究として, 希土類イオンの発光・緩和機構の解明, 固体中の光, エネルギー伝搬, さらにはマイクロドメイン構造と光子及び音子の相互作用機構解明, 非線形光学過程の解明, モデル化を進めている。Yb レーザーの機構解明, Nd レーザーの直接励起可能性, 希土類レーザーの励起光飽和特性, YVO₄ の高熱伝導率特性の発見, 実証に繋がったばかりでなく, マイクロ共振器の高輝度効果, レーザー利得と非線形光学過程の量子相関などの興味深い展開も見せている。特にレーザー科学発展の中で生じたパルスギャップ領域であるサブナノ秒からピコ秒の便利な光源開拓に関する貢献, パルスギャップレーザーによる新現象の解明などが期待できる。
- c) 開発した光素子を用いた新規レーザー, 波長変換システムの開発と展開を図っている。これまでもエッジ励起セラミック Yb:YAG マイクロチップレーザーによる高平均出力動作, 手のひらサイズジャイアントパルスマイクロチップレーザーからの高輝度温度光発生, マイクロチップレーザーからの UV 光 (波長:266 nm) からテラヘルツ波 (波長: 100 ~ 300 μm), さらには高効率・高出力のナノ秒光パラメトリック発生 (出力エネルギー約 1 J, 効率約 80%), 波長 5~12 μm に至る広帯域波長可変中赤外光発生, 1.5 サイクル中赤外光からのコヒーレント軟 X 線 (波長: ~5 nm) ・アト秒 (200 ~ 300 as) 発生などをマイクロ固体フォトニクスで実証した。アト秒発生に重要な中赤外 OPCPA では, LA-PPMgLN を用い波長 2.1 μm にてパルス幅 15 fs を平均出力 10 W と, この領域で世界最大出力を達成した。特にマイクロチップレーザーでは, パルスギャップであるサブナノ秒での高輝度光発生が望め, 光イオン化過程に有利なため極めて低いエネルギーで効率的なエンジン点火が可能となる。すでに世界ではじめての自動車エンジン搭載, 走行実験にも成功している。また, この高輝度光は光パラメトリック過程によるテラヘルツ (THz) 波発生にも有利である。また, LA-PPMgLN を用いてピコ秒領域で mJ に至る狭線幅 THz 波発生も可能となった。マンレー・ローによる量子限界を超える効率である。今後, 分子の振動状態についてのより詳細な分光学的情報を得ることから, THz 波による電子加速までと幅広い展開が期待される。

B-1) 学術論文

B. BRUNETEAU, B. FAURE, J. DEBRAY, G. SOUHAITÉ, P. SEGONDS, H. ISHIZUKI, T. TAIRA and B. BOULANGER, “Widely Tunable Near-Infrared Optical Parametric Oscillator Based on a 5%MgO:PPLN Partial Cylinder Pumped at 1064 nm by a 1-kHz Sub-Nanosecond Microchip Laser,” *Opt. Lett.* **48(14)**, 3669–3672 (2023). DOI: 10.1364/OL.492778

R. MIYAGAWA, T. OHGAI, S. YOSHIKAWA, H. H. LIM, SA. REZVANI, T. TAIRA and O. ERYU, “Effects of Laser Pulse Duration on the Formation Dynamics of Laser-Induced Periodic Nanostructures,” *Opt. Express* **32(7)**, 11863–11872 (2024). DOI: 10.1364/OE.520565

B-2) 国際会議のプロシーディングス

F. CASSOURET and T. TAIRA, “Cr:LiSAF DFC Chip for High Power and Broadband Tiny Integrated Laser,” *Proc. of SPIE, vol. 12864, Solid State Lasers XXXIII: Technology and Devices* (2024). DOI: 10.1117/12. 3003293

B-3) 総説, 著書

平等拓範, 「常温直接接合による小型集積ハイパワーレーザー」, 特集ヘテロジニアス集積技術と光デバイス応用, *OPTRONICS*, **42(503)**, 128–132 (2023). ISSN0286-9659

平等拓範, 「マイクロチップレーザー開発の最前線: 小型集積パワーチップレーザー」, マイクロチップレーザーの開発とその応用, *スマートプロセス学会誌*, **13(2)**, 38–45 (2024). ISSN2186-702X

大場弘則, 若井田育夫, 平等拓範, 「原子炉廃炉措置に向けたマイクロチップレーザーによる遠隔分析技術の開発」, マイクロチップレーザーの開発とその応用, *スマートプロセス学会誌*, **13(2)**, 51–58 (2024). ISSN2186-702X

B-4) 招待講演

A. KAUSAS and T. TAIRA, “Advancing Laser Systems through Optimal Direct Bonding: Insights into Laser-Induced Damage Threshold Variability,” *Advanced Solid-State Lasers (ASSL), Optica Laser Congress & Exhibition 2023, Greater Tacoma Convention Center Tacoma, WA, Tacoma (USA), October 2023.*

平等拓範, 「中赤外レーザー Cr:ZnSe の常温接合」, Q-LEAP 第 30 回 ATTO 懇談会, 東京, 2023 年 9 月.

平等拓範, 「新寄光源とその応用——加工, 計測から医療まで——」, 第 2 回光材料・応用技術研究会, 東京 (ハイブリッド開催), 2023 年 9 月.

T. TAIRA, “Tiny Integrated Laser for Big Science,” *Siegman International School on Lasers, Dublin (Ireland), June 2023.*

T. TAIRA, “Micro Solid-state Photonics for Ubiquitous Power Laser,” *Siegman International School on Lasers, Dublin (Ireland), June 2023.*

T. TAIRA, “Tiny Integrated Lasers toward Ubiquitous Power Lasers,” *The 9th International Symposium on Organic and Inorganic Electronic Materials and Related Nanotechnologies (EM-NANO2023), Ishikawa, June 2023.*

平等拓範, 「小型集積高強度な極限固体レーザー」, OPIC セミナー, OPTICS & PHOTONICS International Congress 2023, 横浜, April 2023.

T. TAIRA, “Tiny Integrated Lasers towards Giant Micro-photonics,” *Tiny Integrated Laser and Laser Ignition Conference (LIC 2023), OPIC 2023, Yokohama, April 2023.*

B-5) 特許出願

特願 2021-181857, 「光学素子, 光学装置および光学素子の製造方法」, 平等拓範 (自然科学研究機構), 2021 年.

WO2023080242, 「光学素子, 光学装置および光学素子の製造方法」, 平等拓範 (自然科学研究機構), 2022 年.

WO2023080205, 「光学素子, レーザ装置および光学素子の製造方法」, 平等拓範, KAUSAS, Arvydas, 吉田光宏(自然科学研究機構), 2022年.

20230137277, “Optical Oscillator, Method for Designing Optical Oscillator, and Laser Device,” T. TAIRA and H. H. LIM, 2021年.

B-6) 受賞, 表彰

K. TAMURA, M. SAEKI, T. TAGUCHI, H. H. LIM, T. TAIRA and I. WAKAIDA, 第56回(2023年度)日本原子力学会賞(論文賞)(2024).

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

レーザー学会研究会委員(1999-), 「小型集積レーザー」技術専門委員会主査(2021-2025).

光産業技術振興協会光材料・応用技術研究会幹事(2004-), 多元技術融合光プロセス研究会幹事(2009-).

日本光学会レーザーディスプレイ技術研究グループ実行委員(2015-), 光エレクトロニクス産学連携専門委員会学会委員及び主査(2020.4-), 生体ひかりイメージング産学連携専門委員会委員及び幹事(2022-2026).

米国光学会 The Optical Society (OSA) フェロー(2010-).

国際光工学会 The International Society for Optical Engineering (SPIE) (米国) フェロー(2012-).

米国電気電子学会 The Institute of Electrical and Electronics Engineers (IEEE) フェロー(2014-).

The International Academy of Photonics and Laser Engineering (IAPLE) フェロー(2018-).

OPTICA(Formerly OSA), OPTICA Fellow Members Committee 委員(2021-2023), 委員長(2022), 副委員長(2023), 会議評議員(Meetings Council)(2023-).

SPIE Maiman Laser Award Subcommittee 委員(2020-2023).

科学技術交流財団「ジャイアント・マイクロフォトニクス」研究会座長(2021-2023).

(公財)天田財団理事(2023-).

学会の組織委員等

SPIE Photonics West, LASE, 国際会議委員会共同議長(米国, サンフランシスコ)(2019-2024).

Mid-Infrared Coherent Sources (MICS) 2022, テクニカル・プログラム委員会委員(2021-2023).

OPTICS & PHOTONICS International Congress 2022 (OPIC2022), 国際会議組織委員会委員(2021-2023).

CLEO/Europe 2023, Solid-State Lasers, 国際会議プログラム委員会委員(ドイツ, ミュンヘン)(2022-2023).

9th International Symposium on Optical Materials (IS-OM'9), 国際会議諮問委員(スペイン, タラゴナ)(2023-).

文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)事前書面審査(2013-2024.3).

科学技術振興機構戦略的創造研究推進事業ACT-X 研究領域「リアル空間を強靱にするハードウェアの未来」領域アドバイザー(2021-).

学会誌編集委員

Applied Sciences (<https://www.mdpi.com/journal/applsci>, ISSN 2076-3417), MDPI, 編集委員会委員(2021-2024).

理科教育活動

OPTICA, Siegman International Summer School on Lasers 講師 (June 18–25, Dublin City University, Dublin, Ireland).
(Hosted by Optica Foundation and Dublin City University)

その他

ハイティラ株式会社 CTO (2023–).

B-8) 大学等での講義, 客員

三重大学, 非常勤講師, 2022年–2023年.

核融合科学研究所, 客員教授, 2023年–.

B-10) 競争的資金

科学技術振興機構未来社会創造事業(大規模プロジェクト型)「レーザー駆動による量子ビーム加速器の開発と実証」
(代表: 公益財団法人高輝度光科学研究センター熊谷教孝(2017年度–2020年度), 自然科学研究機構佐野雄二(2021年度–2026年度)), 平等拓範(再委託)(2017年度–2026年度).

安全保障技術研究推進制度, 「ジャイアント・マイクロフォトンクスによる高出力極限固体レーザー」, 平等拓範(2020年度–2024年度).

文部科学省平成30年度科学技術試験研究委託事業(Q-LEAP)「先端レーザーイノベーション拠点「次世代アト秒レーザー光源と先端計測技術の開発」部門」, 「次世代アト秒レーザー光源と先端計測技術の開発」(②a.10KHz 赤外 OPCPA 光源の開発), 再委託(東京大学), 平等拓範(2018年度–2027年度).

安全保障技術研究推進制度, 「超小型ロバストテラヘルツ波イメージング装置の研究開発」(代表: 南出泰丞), 平等拓範(研究分担者)(2020年度–2024年度).

科学技術振興機構ムーンショット型研究開発事業, 「2050年までに, 経済・産業・安全保障を飛躍的に発展させる誤り耐性型汎用量子コンピュータを実現」(代表: 大森賢治), 「高安定・高強度小型集積レーザーシステムの研究開発」, 平等拓範(研究分担者)(2023年度–2025年度).

日本原子力研究開発機構廃炉・汚染水対策事業費補助金, 「燃料デブリの性状把握のための分析・推定技術の開発」(代表: 若井田育夫), 「DFC型高出力マイクロチップレーザーの開発に関する研究」, 平等拓範(研究分担者)(2023年度–2024年度).

B-11) 産学連携

受託研究, (株)コンボン研究所, 「物質, 生命, コンピューター科学の融合領域における光科学視点の調査研究」, 平等拓範(2023年度).

共同研究, 東芝エネルギーシステムズ(株), 「マイクロチップレーザーを用いた非接触超音波検査」, 平等拓範(2023年度).

共同研究, 東海光学(株), 「透明樹脂内部へのレーザー加工にかかる研究開発」, 平等拓範(2023年).

共同研究, 東海光学(株), 「高出力密度レーザー材料に適した表面処理法の開発」, 平等拓範(2023年).

共同研究, トヨタ自動車(株), 「量子LiDARや量子イメージング向けに, 高輝度レーザーとPPLN等の多機能非線形光学材料を用いた量子光源の研究を行う」, 平等拓範(2022年度–2023年度).

共同研究, 三菱電機(株), 「小型集積化に向けた高強度レーザー光源研究開発」, 平等拓範(2022年度–2023年度).

共同研究, (株)ハナムラオプティクス,「ジャイアントパルス・マイクロチップレーザーによる波長変換」, 平等拓範 (2023年度-2024年度).

共同研究, ハイティラ (株),「小型集積レーザーの研究」, 平等拓範 (2023年度-2024年度).

C) 研究活動の課題と展望

先端的レーザー光源の中で、特にビーム高品質化(空間特性制御)ならびに短パルス化(時間特性制御)などの高輝度化、そしてスペクトルの高純度化を広い波長領域(スペクトル特性制御)でコンパクト化と同時に実現することは、極めて重要な課題である。一方、極限的な粒子加速が期待されるレーザー加速では、物質の性質を原子・分子レベルで解明し、さらに化学反応などの超高速の動きを捉えることができ、広範な分野の最先端研究に利用される加速器、特にX線自由電子レーザー SACLA をトレーラーサイズにまで小型化できると期待される。しかし、その加速のための高強度レーザーが非常に大型であることが深刻な問題となり、マイクロ固体フォトニクスへの期待が高まっている。今後、レーザー加速による小型加速器の構築を目指すと共に、レーザー加速に資する先端レーザー科学を、別途、社会連携研究、小型集積レーザー (TILA, Tiny Integrated Laser) コンソーシアムにて製造、医療、量子コンピュータ、環境・エネルギー問題などに展開し、基礎研究の推進が社会貢献に繋がることを検証して行きたい。

6-10 研究施設等

機器センター

湊 文 俊（主任研究員）（2020年6月1日着任）

兵藤 由美子（事務支援員）

A-1) 専門領域：表面界面科学，エネルギー変換，物理化学

A-2) 研究課題：

- a) 走査プローブ顕微鏡の高度化と物性・反応機構の解明
- b) 表面界面におけるエネルギー変換の機構解明
- c) ナノレベルでの分子物性解明

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 電気化学反応中の電極電解液界面の物性や機構を解析することが出来る電気化学走査プローブ顕微鏡システムをこれまで構築してきた。このシステムを，二酸化炭素の還元反応などの反応ガスを電解液に飽和させる反応に適用する場合，探針や電極への反応ガスの気泡の吸着により，解析が不可能になる問題があった。この問題を克服するために，ガスの流路にメッシュ状の電極を設置する事によって気泡を分散させ，探針や電極への気泡の吸着を軽減するセルを開発した。このセルにより，二酸化炭素を飽和させた電解液中での還元反応中の電極の変化を解析することに成功した。また，走査プローブ顕微鏡で得られた画像を解析し，特徴を抽出する事で，物理的な意味を明らかにする新しい方法を開発した。
- b) 現在，リチウムイオン電池は最も優れた蓄電池として，小型電子デバイスなどに広く使用されている。今後，持続可能な社会を進展させていくために，これまでの蓄電池の性能を越える新しい原理に基づく蓄電池の開発が期待されている。本研究では，アニオンの移動により起電力を得る新しい蓄電池の開発と反応機構解明を行っている。本年度は，新しい特徴を備えた電解質と電極を発見し，種々の手法を用いて，反応機構を調べた。
- c) 日本原子力研究開発機構英知事業の国際協力型廃炉研究プログラム（日英）の中で信州大学，東北大学，Diamond Light Source（英国），The University of Sheffield（英国）との共同研究を進め，放射性汚染水を浄化する反応の機構を明らかにした。また，山本浩史教授（分子研），佐藤拓朗助教（分子研）らとの共同研究において，分子構造にはキラリティーを持たない分子がキラリティーを有する結晶構造を形成した時に電子スピン選択制が出現するという事実を明らかとし，熊谷崇准教授（分子研），西田 純助教（分子研），飯野亮太教授（分子研），大友章裕助教（分子研）らとの共同研究において，単一たんぱく質の物性計測を達成した。

B-1) 学術論文

J. NISHIDA, A. OTOMO, T. KOITAYA, A. SHIOTARI, T. MINATO, R. IINO and T. KUMAGAI, “Sub-Tip-Radius Near-Field Interactions in Nano-FTIR Vibrational Spectroscopy on Single Proteins,” *Nano Lett.* **24(3)**, 836 (2024). DOI: 10.1021/acs.nanolett.3c03479

M. ANDO, M. KOYAKKAT, T. UEDA, T. MINATO and H. SHIROTA, “Wettability and Surface Tension of Imidazolium, Ammonium, and Phosphonium Bis(fluorosulfonyl)amide Ionic Liquids: Comparison between Pentyl, Ethoxyethyl, and Ethylthioethyl Groups,” *Langmuir* **39**, 12090–12098 (2023). DOI: 10.1021/acs.langmuir.3c01375

H. AIZAWA, T. SATO, S. MAKI-YONEKURA, K. YONEKURA, K. TAKABA, T. HAMAGUCHI, T. MINATO and H. M. YAMAMOTO, “Enantioselectivity of Discretized Helical Supramolecule Consisting of Achiral Cobalt Phthalocyanines via Chiral-Induced Spin Selectivity Effect,” *Nat. Commun.* **14**(1), 4530 (2023). DOI: 10.1038/s41467-023-40133-z

R. MALATONG, T. SATO, J. KUMSAMPAO, T. MINATO, M. SUDA, V. PROMARAK and H. M. YAMAMOTO, “Highly Durable Spin Filter Switching Based on Self-Assembled Chiral Molecular Motor,” *Small* **19**(32), 2302714 (2023). DOI: 10.1002/sml.202302714

B-4) 招待講演

湊 丈俊, 「エネルギー移動界面の物性と反応機構」, 第 84 回応用物理学会秋季学術講演会シンポジウム: 薄膜・表面物理における研究手法技術の最新動向, 熊本市, 2023 年 9 月.

湊 丈俊, 「格子欠陥と表面界面科学」, 第 32 回格子欠陥フォーラム, 仙台市, 2023 年 9 月.

湊 丈俊, 「表面界面科学的手法を用いた固液界面におけるエネルギー移動の反応機構解析」, 2023 年度分子研異分野技術交流セミナー (第 4 回) ~ 固液界面における分子反応の解明と最先端解析技術~, 岡崎市, 2023 年 8 月.

T. MINATO, “Energy conversions at solid/liquid interfaces clarified by scanning probe microscopy,” Seminar at Institute of Experimental and Applied Physics, Kiel University, Kiel (Germany), December 2023.

T. MINATO, “Surface and Interface Sciences of Energy Conversion Systems Studied by SPM,” Joint Workshop Fritz Haber Institute (FHI) and Institute for Molecular Science (IMS), Emerging Techniques of Nanospectroscopy Based on Scanning Probe Microscopy, Berlin (Germany), December 2023.

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

日本物理学会 代議員 (2023–2025).

日本表面真空学会 国際連携委員会委員 (2023–).

Applied Surface Science Division, International Union for Vacuum Science, Technique and Applications (IUVSTA)-Japan, Vice Chair (2023–).

学会の組織委員等

International Colloquium on Scanning Probe Microscopy 国際会議プログラム委員 (2021–2025).

日本表面真空学会 ISSS-10 プログラム委員会委員 (2022–2025).

ALC' 24 国際会議 組織委員会, プログラム委員 (2023–2025).

その他

青森県三戸町ふるさと応援大使 (2021–2023).

B-10) 競争的資金

自然科学研究機構Open Mix Lab (OML) 公募研究プログラム(テーマ設定型), 「アニオン移動型革新型蓄電池反応の研究」, 湊 丈俊 (2023年度-2024年度).

自然科学研究機構産学連携支援事業, 「極高エネルギー材料の開発」, 湊 丈俊 (2023年度).

科研費基盤研究(C), 「ガラス上のナノ水滴の構造観察による微視的ぬれの解明」(代表者: 荒木優希), 湊 丈俊(研究分担者) (2023年度-2025年度).

中村敏和 (チームリーダー)
(研究力強化戦略室特任部長 (研究戦略担当))

B-1) 学術論文

- S. NAKAGAWA, A. YOKOYA, M. OHARA, N. USAMI, M. ASADA, M. FUJIWARA, T. NAKAMURA and K. ISHIKAWA**, “High Linear Energy Transfer (LET) Nature of Alanine Radical Yield by Soft X-Ray Irradiations Studied by Electron Spin Resonance (ESR) Applications,” *Radiat. Phys. Chem.* **214**, 111304 (2024). DOI: 10.1016/j.radphyschem.2023.111304
- K. ORIHASHI, A. YAMAUCHI, S. FUJIWARA, M. ASADA, T. NAKAMURA, J. K.-H. HUI, N. KIMIZUKA, K. TATEISHI, T. UESAKA and N. YANAI**, “Spin-Polarized Radicals with Extremely Long Spin-Lattice Relaxation Time at Room Temperature in a Metal-Organic Framework,” *J. Am. Chem. Soc.* **145(50)**, 27650–27656 (2023). DOI: 10.1021/jacs.3c09563
- K. ORIHASHI, A. YAMAUCHI, M. INOUE, B. PARMAR, S. FUJIWARA, N. KIMIZUKA, M. ASADA, T. NAKAMURA and N. YANAI**, “Radical Qubits Photo-Generated in Acene-Based Metal-Organic Frameworks,” *Dalton Trans.* **53(3)**, 872–876 (2023). DOI: 10.1039/d3dt03959e
- Y. HORITA, S. HOSSAIN, M. ISHIMI, P. ZHAO, M. SERA, T. KAWAWAKI, S. TAKANO, Y. NIIHORI, T. NAKAMURA, T. TSUKUDA, M. EHARA and Y. NEGISHI**, “Clarifying the Electronic Structure of Anion-Templated Silver Nanoclusters by Optical Absorption Spectroscopy and Theoretical Calculation,” *J. Am. Chem. Soc.* **145(43)**, 23533–23540 (2023). DOI: 10.1021/jacs.3c07194
- K. ONOZUKA, T. FUJINO, R. KAMEYAMA, S. DEKURA, K. YOSHIMI, T. NAKAMURA, T. MIYAMOTO, T. YAMAKAWA, H. OKAMOTO, H. SATO, T. OZAKI and H. MORI**, “Metallic State of a Mixed-Sequence Oligomer Salt That Models Doped PEDOT Family,” *J. Am. Chem. Soc.* **145(28)**, 15152–15161 (2023). DOI: 10.1021/jacs.3c01522

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

電子スピンサイエンス学会代議員 (2018–2024).

文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

神戸大学分子フォトサイエンス研究センター共同利用・共同研究運営協議会委員 (2018–).

科学技術振興機構大学発新産業創出基金事業及び研究成果展開事業外部専門家 (2023–2025).

科学技術振興機構創発的研究支援事業事前評価, 外部専門家 (2023–2025).

(公財) 未来工学研究所 (文部科学省委託) 「大学及び大学共同利用機関の研究力強化に必要な課題及び対策に関する調査業務」ワーキンググループ委員 (2024).

鈴木敏泰 (チームリーダー)

B-1) 学術論文

T. HORI, S. KAKINUMA, N. OHTSUKA, T. FUJINAMI, T. SUZUKI and N. MOMIYAMA, “Synthesis of Halogen-Bond-Donor-Site-Introduced Functional Monomers through Wittig Reaction of Perfluorohalogenated Benzaldehydes: Toward Digitalization as Reliable Strategy in Small-Molecule Synthesis,” *Synlett* **34(20)**, 2455–2460 (2023). DOI: 10.1055/a-2118-6813

S. OISHI, T. FUJINAMI, Y. MASUI, T. SUZUKI, M. KATO, N. OHTSUKA and N. MOMIYAMA, “Protocol for Efficient Dearomatization of *N*-Heteroaromatics with Halogen(I) Complex Catalyst,” *STAR Protoc.* **4(1)**, 102140 (2023). DOI: 10.1016/j.xpro.2023.102140

B-7) 学会および社会的活動

理科教育活動

出前授業「おもしろい形の分子を作る」岡崎市立矢作南小学校 (2023).

B-10) 競争的資金

科研費基盤研究(C), 「フッ素化ペリレン化合物の合成とデバイスへの応用」, 鈴木敏泰 (2023年度–2025年度).

科研費学術変革領域研究(A), 「デジタル化による高度精密有機合成の新展開」 (代表: 大嶋孝志), 鈴木敏泰 (研究分担者) (2021年度–2025年度).

計算科学研究センター（ネットワーク担当）

大野 人 侍（准教授）（1996年4月1日着任，2019年10月1日昇任）

A-1) 専門領域：情報科学，ネットワーク運用技術及びサイバーセキュリティ

A-2) 研究課題：

- a) ソフトウェアを用いたネットワークの自動制御
- b) ログ解析等によるネットワーク／サイバーセキュリティの自動最適化及び認証

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) ORION2022（Okazaki Research Institutes Organization Network）において，Google Workspace 等のパブリッククラウドサービスの利用を前提としたゼロトラスト・アーキテクチャを取り入れたシステム構築を行い，従来の ORION 主認証システムを拡張し，ゼロトラストを実現する認証基盤とした。ORION2022 主認証システムは，ORION へのネットワーク接続時の定期的な端末及びユーザ認証，VPN 接続時ユーザ認証や管理システムなどのシステム及びパブリック SaaS（Google Workspace 及び Microsoft Office365）のユーザ認証に利用され MFA 及びシングルサインオン機能を提供している。現在，ORION2022 運用期間中の安全なシステム利用継続のための近代化改修を行っている。更に，自然科学研究機構における統合認証基盤構築を行う機構ワーキンググループの一員としてシステム化のための調査研究を行っている。
- b) ORION2022 で導入した器機及びサービスでは API の提供を原則求めており，提供された API によりログやイベントなどの自動取得や処理の自動化，器機／サービス間連携を行えるようになっている。また，標準で提供されていない機能についても API とローカルプログラムを組み合わせて柔軟に提供している。現在，その適用範囲を広げるシステム開発を行っている。

B-7) 学会および社会的活動

その他

「自然科学研究機構岡崎 3 機関等の LAN における MFA 及び認証連携について」，令和 5 年度国立大学法人等情報化発表会 (2023).

「ORION2022 の現状について」，SWS2023 in RCNP (2023).

C) 研究活動の課題と展望

ORION におけるユーザや端末の認証と認可の統一化を引き続き推進していく。ORION2022 は，クラウド等 ORION 外部のサービスを含んだ統合型ユーザ／端末管理・認証基盤，現在のログ解析基盤を拡張発展させクラウド・ログを取り込み ORION とクラウドの一貫した取扱と分析を可能とする情報セキュリティ・インシデント対応基盤やそれらを統合し自動制御するシステムとして設計，仕様化し調達を行い運用している。更に，API によるシステム間連携が行えるようになっているため，API を用いた各システム間の連携や独自機能の開発と運用開始と機能拡張をおこなっている。現在，この環境を機構全体に広げるために自然科学研究機構統合認証基盤構築へ向け各機関担当者と共に調査研究を行っている。

技術推進部及び安全衛生管理室

B-1) 学術論文

T. NAKANO, S. KONTANI, M. HIRAISHI, K. MITA, M. MIYAJIMA and T. KAMBE, “Antiferromagnetic Structure with Strongly Reduced Ordered Moment of p-Electron in CsO₂”, *J. Phys.: Condens. Matter* **35**, 435801 (6 pages) (2023). DOI: 10.1088/1361-648X/acea14

F. MATSUI, K. HAGIWARA, E. NAKAMURA, T. YANO, H. MATSUDA, Y. OKANO, S. KERA, E. HASHIMOTO, S. KOH, K. UENO, T. KOBAYASHI, E. IWAMOTO, K. SAKAMOTO, S. TANAKA and S. SUGA, “Soft X-Ray Photoelectron Momentum Microscope for Multimodal Valence Band Stereography,” *Rev. Sci. Instrum.* **94(8)**, 083701 (10 pages) (2023). DOI: 10.1063/5.0154156

Y. TAIRA, S. ENDO, S. KAWAMURA, T. NAMBU, M. OKUIZUMI, T. SHIZUMA, M. OMER, H. ZEN, Y. OKANO and M. KITAGUCHI, “Measurement of the Spatial Polarization Distribution of Circularly Polarized Gamma Rays Produced by Inverse Compton Scattering,” *Phys. Rev. A* **107(6)**, 063503 (10 pages) (2023). DOI: 10.1103/PhysRevA.107.063503

M. KATOH, H. OTA, J. YAMAZAKI, K. HAYASHI, Y. OKANO, E. SALEHI, Y. TAIRA, A. MANO, M. FUJIMOTO, Y. TAKASHIMA, M. HOSAKA, F. SAKAMOTO, T. KANEYASU and H. ZEN, “Light Source Developments at UVSOR BL1U,” *J. Phys.: Conf. Ser.* **2687**, 032005 (6 pages) (2024). DOI: 10.1088/1742-6596/2687/3/032005

W. ZHANG, E. HOSONO, D. ASAKURA, H. YUZAWA, T. OHIGASHI, M. KOBAYASHI, H. KIUCHI and Y. HARADA, “Chemical-State Distributions in Charged LiCoO₂ Cathode Particles Visualized by Soft X-Ray Spectromicroscopy,” *Sci. Rep.* **13**, 4639 (8 pages) (2023). DOI: 10.1038/s41598-023-30673-1

C. O. M. MARIANO, J. S. D. RODRIGUEZ, R. H. CLEMENTE, T. OHIGASHI, H. YUZAWA, W.-H. HSU, J. SHIUE and C.-H. CHUANG, “Scanning Transmission X-Ray Microscopy of Hydrogen Evolution Electrocatalysts on Reduction Graphene Oxide Membranes,” *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **265**, 147332 (7 pages) (2023). DOI: 10.1016/j.elspec.2023.147332

W. ZHANG, E. HOSONO, D. ASAKURA, H. YUZAWA, T. OHIGASHI, M. KOBAYASHI, H. KIUCHI and Y. HARADA, “Visualization of Air-Induced Oxidation in Single Crystalline LiFe_{0.6}Mn_{0.4}PO₄ Nanowires with Carbon Sheath Using Soft X-Ray Spectromicroscopy,” *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **266**, 1473338 (6 pages) (2023). DOI: 10.1016/j.elspec.2023.147338

G. GERMER, T. OHIGASHI, H. YUZAWA, N. KOSUGI, R. FLESCH, F. RANCAN, A. VOGT and E. RÜHL, “Soft X-Ray Scanning Transmission Microscopy as a Selective Probe of Topical Dermal Drug Delivery: The Role of Petrolatum and Occlusion,” *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **266**, 147343 (7 pages) (2023). DOI: 10.1016/j.elspec.2023.147343

B-5) 特許出願

登録

特許第 7341426 号, 「通知システム, 通知システムにおける制御装置, 及び通知システムにおける制御方法」, 千葉寿, 豊田朋範, 古館守通, 藤崎聡美(自然科学研究機構, 岩手大学) (登録日 2023 年 9 月 1 日).

B-6) 受賞, 表彰

長尾春代, マテリアル先端リサーチインフラ令和5年度技術支援貢献賞 (2024).

B-7) 学会および社会的活動

理科教育活動

出前授業「振り子の仕組みと活用例」岡崎市立小豆坂小学校 (2023). (豊田朋範)

B-8) 大学等での講義, 客員

岡野泰彬, 中部大学非常勤講師, 「基礎力学」および「力学」, 2023年度春学期, 「基礎電磁気学」, 2023年度秋学期.

客員研究部門及び退職・転出後等の成果論文
(所属に分子科学研究所を含む)

T. HONDA, D. OGATA, M. TSURUI, S. YOSHIDA, S. SATO, T. MURAOKA, Y. KITAGAWA, Y. HASEGAWA, J. YUASA and H. OGURI, “Rapid Synthesis of Chiral Figure-Eight Macrocycles Using a Preorganized Natural Product-Based Scaffold,” *Angew. Chem., Int. Ed.* **63(9)**, e202318548 (2024). DOI: 10.1002/anie.202318548

K. YAMANOMOTO, K. YAMAMOTO, S. YOSHIDA, S. SATO and T. AKIYAMA, “Enantioselective Synthesis of 3-(*N*-indolyl) Quinolines Containing Axial and Central Chiralities,” *Chem. Commun.* **60(5)**, 582–585 (2024). DOI: 10.1039/d3cc05142k

C. ONO-OGASAWARA, S. YAMAMOTO, Y. OGURA, H. OKAMURA, K. TAKABA, S. YOSHIDA, S. SATO, K. YONEKURA and H. TAKIKAWA, “Synthesis of (\pm)-Zeapyranolactone, a Noncanonical Strigolactone Isolated from Maize, and Determination of Its Overall Relative Configuration,” *Tetrahedron Lett.* **127**, 154695 (2023). DOI: 10.1016/j.tetlet.2023.154695

Y. KAMIYA, S. LAO, J. ARIYOSHI, F. SATO and H. ASANUMA, “Unexpectedly Stable Homopurine Parallel Triplex of SNA:RNA*SNA and L-*a*TNA:RNA*L-*a*TNA,” *Chem. Commun.* **60(10)**, 1257–1260 (2024). DOI: 10.1039/d3cc05555h

H. NARITA, J. ISHIZUKA, D. KAN, Y. SHIMAKAWA, Y. YANASE and T. ONO, “Magnetization Control of Zero-Field Intrinsic Superconducting Diode Effect,” *Adv. Mater.* **35(40)**, 2304083 (2023). DOI: 10.1002/adma.202304083

I. NODA, M. ASADA and H. NAGAO, “Elucidation of the Mechanism of Greenhouse Gas Generation by Abiotic Transformation of Nutrient Ions Flowing into Closed Water Areas with Little Phytoplankton,” *ACS ES&T Water* **4(2)**, 436–443 (2024). DOI: 10.1021/acsestwater.3c00455

K. SAITO, S. NISHIO, M. ASADA, H. MINO and H. ISHIKITA, “Insights into the Protonation State and Spin Structure for the $g = 2$ Multiline Electron Paramagnetic Resonance Signal of the Oxygen-Evolving Complex,” *PNAS Nexus* **2(8)**, pgad244 (2023). DOI: 10.1093/pnasnexus/pgad244

H. ABE, S. KOBAYASHI, K. OGAWA, K. IMAI, K. KOSHIJI, M. HOSHINO, T. HIRANO, Y. HATA, H. KISHIMURA and M. URUICHI, “Asymmetric Anion Effects of Anions in Ionic Liquids: Crystal Polymorphs and Magnetic Properties,” *Chem. Phys.* **570**, 111872 (2023). DOI: 10.1016/j.chemphys.2023.111872

H. ABE, H. KISHIMURA, M. URUICHI and H. SAGAYAMA, “Crystal Polymorphs and Molecular Conformations of Fluorinated Ionic Liquid: 1-Ethyl-3-methylimidazolium Perfluorobutanesulfonate,” *Chem. Phys.* **575**, 112063 (2023). DOI: 10.1016/j.chemphys.2023.112063

K. KUROI, T. TSUKAMOTO, N. HONDA, Y. SUDO and Y. FURUTANI, “Concerted Primary Proton Transfer Reactions in a Thermophilic Rhodopsin Studied by Time-Resolved Infrared Spectroscopy at High Temperature,” *Biochim. Biophys. Acta, Bioenerg.* **1864(3)**, 148980 (2023). DOI: 10.1016/j.bbabi.2023.148980

N. I. P. AYU, F. TAKEIRI, T. OGAWA, A. KUWABARA, M. HAGIHALA, T. SAITO, T. KAMIYAMA and G. KOBAYASHI, “A New Family of Anti-Perovskite Oxyhydrides with Tetrahedral GaO₄ Polyanions,” *Dalton Trans.* **52(42)**, 15420–15425 (2023). DOI: 10.1039/d3dt01555f

Y. SASAHARA, T. HIROSE, M. YOSHIMOTO, N. MATSUI, S. KOBAYASHI, H. UBUKATA, F. TAKEIRI, K. SUZUKI, M. HIRAYAMA, K. NISHIO, R. SHIMIZU, R. KANNO, G. KOBAYASHI and T. HITOSUGI, “High H⁻ Conductivities along the *ab*-Planes of La₂LiHO₃ Epitaxial Thin Films,” *Cryst. Growth Des.* **23(10)**, 7103–7108 (2023). DOI: 10.1021/acs.cgd.3c00376

Y. IZUMI, F. TAKEIRI, K. OKAMOTO, T. SAITO, T. KAMIYAMA, A. KUWABARA and G. KOBAYASHI, “Electropositive Metal Doping into Lanthanum Hydride for H⁻ Conducting Solid Electrolyte Use at Room Temperature,” *Adv. Energy Mater.* **13(43)**, 2301993 (2023). DOI: 10.1002/aenm.202301993

Y. HATTORI, R. KITAJIMA, A. BABA, K. YAMAMOTO, R. MATSUOKA, T. KUSAMOTO and K. UCHIDA, “Effects of Hydrocarbon Substituents on Highly Fluorescent Bis(4-phenylphenyl)pyridylmethyl Radical Derivatives,” *Mater. Adv.* **4(21)**, 5149–5159 (2023). DOI: 10.1039/d3ma00469d

A. MIZUNO, R. MATSUOKA, T. MIBU and T. KUSAMOTO, “Luminescent Radicals,” *Chem. Rev.* **124(3)**, 1034–1121 (2023). DOI: 10.1021/acs.chemrev.3c00613

E. MINAMITANI, I. OBAYASHI, K. SHIMIZU and S. WATANABE, “Persistent Homology-Based Descriptor for Machine-Learning Potential of Amorphous Structures,” *J. Chem. Phys.* **159(8)**, 84101 (2023). DOI: 10.1063/5.0159349

H. TAKEKUMA, R. SATO, K. IIDA, T. KAWAWAKI, M. HARUTA, H. KURATA, K. NOBUSADA and T. TERANISHI, “Intrinsic Visible Plasmonic Properties of Colloidal PtIn₂ Intermetallic Nanoparticles,” *Adv. Sci.* **11(10)**, 2307055 (2024). DOI: 10.1002/advs.202307055

A. KATO and J. KISHINE, “Note on Angular Momentum of Phonons in Chiral Crystals,” *J. Phys. Soc. Jpn.* **92(7)**, 75002 (2023). DOI: 10.7566/jpsj.92.075002

A. D. LYAKHOV, A. S. OVCHINNIKOV, I. G. BOSTREM and J. KISHINE, “Rotational Symmetry Breaking of Nuclear Motion in the Jahn-Teller X₃ Molecule due to Casimir-Polder Interaction,” *Phys. Rev. B* **108(11)**, 115429 (2023). DOI: 10.1103/PhysRevB.108.115429

H. SHISHIDO, Y. HOSAKA, K. MONDEN, A. INUI, T. SAYO, Y. KOUSAKA and Y. TOGAWA, “Spin Polarization Gate Device Based on the Chirality-Induced Spin Selectivity and Robust Nonlocal Spin Polarization,” *J. Chem. Phys.* **159(6)**, 64502 (2023). DOI: 10.1063/5.0156505

C. ZHANG, T. SHISHIDOU, R. AMANO, K. MIYAMOTO, T. SAYO, C. SHIMADA, Y. KOUSAKA, M. WEINERT, Y. TOGAWA and T. OKUDA, “Spiral Band Structure Hidden in the Bulk Chiral Crystal NbSi₂,” *Phys. Rev. B* **108(23)**, 235164 (2023). DOI: 10.1103/PhysRevB.108.235164

K. OHE, H. SHISHIDO, M. KATO, S. UTSUMI, H. MATSUURA and Y. TOGAWA, “Chirality-Induced Selectivity of Phonon Angular Momenta in Chiral Quartz Crystals,” *Phys. Rev. Lett.* **132(5)**, 56302 (2024). DOI: 10.1103/PhysRevLett.132.056302

T. HIRAOKA, R. KAINUMA, K. MATSUMOTO, K. T. YAMADA and T. SATOH, “Sublattice-Selective Inverse Faraday Effect in Ferrimagnetic Rare-Earth Iron Garnet,” *J. Phys. Soc. Jpn.* **93(2)**, 23702 (2024). DOI: 10.7566/JPSJ.93.023702

M. SUZUKI, T. NOMOTO, E. V. MOROOKA, Y. YANAGI and H. KUSUNOSE, “High-Performance Descriptor for Magnetic Materials: Accurate Discrimination of Magnetic Structure,” *Phys. Rev. B* **108(1)**, 14403 (2023). DOI: 10.1103/PhysRevB.108.014403

S. HAYAMI, R. OIWA and H. KUSUNOSE, “Unconventional Hall Effect and Magnetoresistance Induced by Metallic Ferroaxial Ordering,” *Phys. Rev. B* **108(8)**, 85124 (2023). DOI: 10.1103/PhysRevB.108.085124

S. HAYAMI and H. KUSUNOSE, “Time-Reversal Switching Responses in Antiferromagnets,” *Phys. Rev. B* **108(14)**, L140409 (2023). DOI: 10.1103/PhysRevB.108.L140409

S. HAYAMI and H. KUSUNOSE, “Chiral Charge as Hidden Order Parameter in URu₂Si₂,” *J. Phys. Soc. Jpn.* **92(11)**, 113704 (2023). DOI: 10.7566/JPSJ.92.113704

T. MURAOKA, K. FUJIWARA, H. FURUKAWA, M. IKEDA, K. KOBAYASHI, T. KUDO, K. UENO, Y. SUNADA, H. TAKAYA, Y. IKEMOTO and T. MORIWAKI, “Ten-Membered Cyclodecatetraene Derivatives Including Two Gallium Atoms: Experimental and Theoretical Studies on Synthesis, Structures, and Their Transformations to Nine- and Five-Membered Gallacycles,” *Organometallics* **42**(10), 982–994 (2023). DOI: 10.1021/acs.organomet.3c00145

M. NAITO, N. TANIGUCHI, S. MIYAGAWA, H. TAKAYA and Y. TOKUNAGA, “Solvent-Dependent Isomerization of a Chromogenic Trefoil-Shaped Salicylaldehyde Azine Derivative,” *Results Chem.* **6**, 101164 (2023). DOI: 10.1016/j.rechem.2023.101164

H. FUJIHARA, M. NAITO, T. YASHIMA, Y. OKADA, N. KOBAYASHI, S. MIYAGAWA, H. TAKAYA and Y. TOKUNAGA, “Synthesis of Cross-Chain Bridging Cryptands and Induction of Molecular Chirality,” *Org. Lett.* **25**(50), 8959–8964 (2023). DOI: 10.1021/acs.orglett.3c03007

I.-Y. HSIAO, Y. TERANISHI and H. NAKAMURA, “Classically Forbidden Nonadiabatic Transitions in Multidimensional Chemical Dynamics,” *Phys. Chem. Chem. Phys.* **26**(5), 3795–3799 (2024). DOI: 10.1039/d3cp04794f

Y. MAEDA, S. AKITA, M. SUZUKI, M. YAMADA, T. AKASAKA, K. KOBAYASHI and S. NAGASE, “Controlling the Reactivity of La@C₈₂ by Reduction: Reaction of the La@C₈₂ Anion with Alkyl Halide with High Regioselectivity,” *Beilstein J. Org. Chem.* **19**, 1858–1866 (2023). DOI: 10.3762/bjoc.19.138

F. HIRATA, “A Theory of Chemical Reactions in Biomolecules in Solution: Generalized Langevin Mode Analysis (GLMA),” *J. Chem. Phys.* **158**(14), 144108 (2023). DOI: 10.1063/5.0143849

F. HIRATA, “Generalized Langevin Mode Analysis (GLMA) for Local Density Fluctuation of Water in an Inhomogeneous Field of a Biomolecule,” *J. Mol. Liq.* **381**, 121752 (2023). DOI: 10.1016/j.molliq.2023.121752

F. HIRATA, “Structural Fluctuation, Relaxation, and Folding of Protein: An Approach Based on the Combined Generalized Langevin and RISM/3D-RISM Theories,” *Molecules* **28**(21), 7351 (2023). DOI: 10.3390/molecules28217351

F. HIRATA, “Structural Transition Induced by a Local Chemical/Mechanical Perturbation in Biomolecules,” *Condens. Matter Phys.* **26**(4), 43803 (2023). DOI: 10.5488/CMP.26.43803

Y. UEHASHI, S. IZAWA, Y. YAMADA, Y. MIWA, T. INUZUKA, Y. KUBOTA, M. HIRAMOTO and K. FUNABIKI, “Synthesis of Highly Photostable Benzoindolenine-Based Squaraine Dyes Using Aromatic Fluorine Atoms,” *ChemistrySelect* **8**, e202300309 (2023). DOI: 10.1002/slct.202300309

J. PALASSERY ITHIKKAL, S. IZAWA and M. HIRAMOTO, “Doped Lateral Organic Photovoltaic Cells,” *Phys. Status Solidi A* **220**(24), 2300108 (2023). DOI: 10.1002/pssa.202300108

H. KOBAYASHI, S. IZAWA, C. KITAMURA, M. HIRAMOTO and K. ONO, “Dioxaborin Compounds with Terminal Carbazole Groups: Enhancing Electron Acceptor in Organic Photovoltaics,” *Asian J. Org. Chem.* **12**(10), e202300377 (2023). DOI: 10.1002/ajoc.202300377

M. NAKAMURA, H. KOJIMA, R. ABE, Y. CHO, S. HAYASHI and M. HIRAMOTO, “Giant Seebeck Effect over 0.1 V K⁻¹ — Is This an Intrinsic Phenomenon in Organic Semiconductors?” *Faraday Discuss.* **250**, 361–376 (2024). DOI: 10.1039/d3fd00127j

S. IZAWA, M. MORIMOTO, K. FUJIMOTO, K. BANNO, Y. MAJIMA, M. TAKAHASHI, S. NAKA and M. HIRAMOTO, “Blue Organic Light-Emitting Diode with a Turn-On Voltage at 1.47 V,” *Nat. Commun.* **14**(1), 5494 (2023). DOI: 10.1038/s41467-023-41208-7

Y. NAKAYAMA, K. ITO, R. TAKEUCHI, R. TSURUTA, K. YAMAUCHI, S. IZAWA, M. HIRAMOTO, R. KUMARA and T. KOGANEZAWA, “Well-Ordered Molecular Heterojunction of Epitaxial C₆₀ on Single-Crystal Dinaphtho[2,3-*b*:2',3'-*f*]thieno[3,2-*b*]thiophene (DNNT),” *Appl. Phys. Express* **16**(10), 101001 (2023). DOI: 10.35848/1882-0786/ad0021

K. FUJIMOTO, S. IZAWA, K. YAMADA, S. YAGI, T. INUZUKA, K. SANADA, M. SAKAMOTO, M. HIRAMOTO and M. TAKAHASHI, “Wavily Curved Perylene Diimides: Synthesis, Characterization, and Photovoltaic Properties,” *ChemPlusChem* e202300748 (2024). DOI: 10.1002/cplu.202300748

T. OKAMOTO, S. IZAWA, M. HIRAMOTO and Y. KOBORI, “Efficient Spin Interconversion by Molecular Conformation Dynamics of a Triplet Pair for Photon Up-Conversion in an Amorphous Solid,” *J. Phys. Chem. Lett.* **15**(11), 2966–2975 (2024). DOI: 10.1021/acs.jpcclett.3c03602

N. KUMAGAI, T. SHIMIZU, H. MINODA, M. KATAYAMA, S. NAKAO and T. KAJI, “Visualization of Tens of Nanometers Spaced Donor: Acceptor Bulk Heterojunctions across Submicrometer-Square Cross Sections of Organic Photovoltaic Cells,” *ACS Appl. Energy Mater.* **6**(18), 9363–9370 (2023). DOI: 10.1021/acsaem.3c01262

Y. C. HUANG, Y. LI, K. T. ARUL, T. OHIGASHI, T. T. THUY NGA, Y. R. LU, C. L. CHEN, J. L. CHEN, S. SHEN, W. F. PONG, C. L. DONG and W. C. CHOU, “Atomic Nickel on Graphitic Carbon Nitride as a Visible Light-Driven Hydrogen Production Photocatalyst Studied by X-Ray Spectromicroscopy,” *ACS Sustainable Chem. Eng.* **11**(14), 5390–5399 (2023). DOI: 10.1021/acssuschemeng.2c06497

Y. C. HUANG, J. CHEN, Y. R. LU, K. T. ARUL, T. OHIGASHI, J. L. CHEN, C. L. CHEN, S. SHEN, W. C. CHOU, W. F. PONG and C. L. DONG, “Single-Atom Cobalt-Incorporating Carbon Nitride for Photocatalytic Solar Hydrogen Conversion: An X-Ray Spectromicroscopy Study,” *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **264**, 147319 (2023). DOI: 10.1016/j.elspec.2023.147319

N. TOMIOKA, A. YAMAGUCHI, M. ITO, M. UESUGI, N. IMAE, N. SHIRAI, T. OHIGASHI, M. KIMURA, M. C. LIU, R. C. GREENWOOD, K. UESUGI, A. NAKATO, K. YOGATA, H. YUZAWA, Y. KODAMA, K. HIRAHARA, I. SAKURAI, I. OKADA, Y. KAROUJI, K. OKAZAKI, K. KUROSAWA, T. NOGUCHI, A. MIYAKE, M. MIYAHARA, Y. SETO, T. MATSUMOTO, Y. IGAMI, S. NAKAZAWA, T. OKADA, T. SAIKI, S. TANAKA, F. TERUI, M. YOSHIKAWA, A. MIYAZAKI, M. NISHIMURA, T. YADA, M. ABE, T. USUI, S. WATANABE and Y. TSUDA, “A History of Mild Shocks Experienced by the Regolith Particles on Hydrated Asteroid Ryugu,” *Nat. Astron.* **7**(6), 669–677 (2023). DOI: 10.1038/s41550-023-01947-5

T. OHIGASHI and N. KOSUGI, “Developments in Sample Environment for a Scanning Transmission X-Ray Microscope at UVSOR-III Synchrotron,” *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **266**, 147356 (2023). DOI: 10.1016/j.elspec.2023.147356

T. MANSIKKALA, T. OHIGASHI, M. H. SALO, A. E. HILTUNEN, R. VUOLTEENAHO, P. SIPILÄ, S. KUURE, M. HUTTULA, J. UUSIMAA, R. HINTTALA, I. MIINALAINEN, S. KANGAS and M. PATANEN, “Scanning Transmission Soft X-Ray Spectromicroscopy of Mouse Kidney and Liver,” *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **266**, 147368 (2023). DOI: 10.1016/j.elspec.2023.147368

L. BONAL, E. QUIRICO, G. MONTAGNAC, M. KOMATSU, Y. KEBUKAWA, H. YABUTA, K. AMANO, J. BAROSCH, L. BEJACH, G. D. CODY, E. DARTOIS, A. DAZZI, B. DE GREGORIO, A. DENISET-BESSEAU, J. DUPRAT, C. ENGRAND, M. HASHIGUCHI, K. KAMIDE, D. KILCOYNE, Z. MARTINS, J. MATHURIN, S. MOSTEFAOUI, L. NITTLER, T. OHIGASHI, T. OKUMURA, L. REMUSAT, S. SANDFORD, M. SHIGENAKA, R. STROUD, H. SUGA, Y. TAKAHASHI, Y. TAKEICHI, Y. TAMENORI, M. VERDIER-PAOLETTI, S. YAMASHITA, T. NAKAMURA, H. NARAOKA, T. NOGUCHI, R. OKAZAKI, H. YURIMOTO, S. TACHIBANA, M. ABE, A. MIYAZAKI, A. NAKATO, S. NAKAZAWA, M. NISHIMURA, T. OKADA, T. SAIKI, K. SAKAMOTO, S. TANAKA, F. TERUI, Y. TSUDA, T. USUI, S. WATANABE, T. YADA, K. YOGATA and M. YOSHIKAWA, “The Thermal History of Ryugu Based on Raman Characterization of Hayabusa2 Samples,” *Icarus* **408**, 115826 (2024). DOI: 10.1016/j.icarus.2023.115826

H. TSUKAMOTO and Y. KUBO, “A Self-Inactivating Invertebrate Opsin Optically Drives Biased Signaling toward G $\beta\gamma$ -Dependent Ion Channel Modulation,” *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* **120**(21), e2301269120 (2023). DOI: 10.1073/pnas.2301269120

L. D. ANH, M. KOBAYASHI, T. TAKEDA, K. ARAKI, R. OKANO, T. SUMI, M. HORIO, K. YAMAMOTO, Y. KUBOTA, S. OWADA, M. YABASHI, I. MATSUDA and M. TANAKA, “Ultrafast Subpicosecond Magnetization of a 2D Ferromagnet,” *Adv. Mater.* **35**(40), 2301347 (2023). DOI: 10.1002/adma.202301347