

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求し、自律デーモンの数理モデルとの対応関係を探求している。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求中である。
- 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ため、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. FUJHASHI, 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。