

## 7-1 外国人運営顧問による点検評価

### 7-1-1 William H. Miller 外国人運営顧問

原文

To: Hiroki Nakamura, Director-General of IMS

From: William H. Miller, Kenneth S. Pitzer Distinguished Professor of Chemistry, University of California, Berkeley, and Foreign Councillor to IMS

Subject: Report of my review visit to IMS, February 9, 2009

My review visit began with a presentation by the Director-General of IMS giving an overview of the entire structure and mission of IMS. He emphasized the unique role of an “Inter-university Research Institute,” namely to carry out research at the very highest level and also to provide unique state-of-the-art facilities for use by researchers throughout Japan, facilities that would be impractical for any one institution to support. He also reviewed the “Basic Policies of IMS,” new initiatives that are underway, and also the potential problems he sees for the future. I then heard summary presentations from leaders in all four Departments of IMS, and had a brief tour of the major facilities that IMS provides and supports for extramural researchers.

Before commenting on specific programs, let me make a few observations that are relevant to IMS in general:

1. By all measures, IMS has been an enormous success. The faculty do indeed have world class research programs in a wide variety of areas of molecular science, and IMS provides and maintains some of the most outstanding facilities in existence (e.g., the 920 MHz NMR spectrometer) for use by researchers nationwide.

2. IMS has made excellent decisions in its hiring of young faculty, as is evidenced by the success these persons have had in obtaining senior faculty positions at other institutions after their time at IMS. By recruiting the most promising young faculty, who then move on, it allows IMS to always stay at the forefront on new developments in the field. This model is continuing to serve IMS, and Japanese science in general, very effectively.

3. Though I am more familiar with the theoretical programs at IMS, I was impressed by the high quality and originality of the experimental programs, especially given the fact that each principal investigator typically has only 2 or 3 co-workers in his group. Small research groups are typical (and usually no hindrance) for theoretical research programs, but modern sophisticated experimental research usually takes place in considerably larger research groups. As a consequence, it appears that the experimental faculty at IMS do not try to do “everything” but rather to concentrate on highly original and novel projects. This emphasis on “quality over quantity” may actually have more impact in the scientific community over time (and I note that the “quantity” of research, i.e., productivity, is certainly not lacking).

4. I sympathize with the problems that “privatization” has brought to IMS, but am afraid that such trends are a worldwide phenomenon and not going to diminish. Funding sources (i.e., governments) want to see scientific efforts focused on practical societal needs, such as developing new sources of energy that are clean and economically viable. Fortunately, molecular science is better positioned to

deal with these real world problems than most other areas of science, but it does make it more difficult to support work that cannot be clearly identified with these specific goals. Perhaps the best that any of us can do, in each of our countries, is to continue to make the case that developing improved fundamental methodologies, both experimental and theoretical, is crucial to making progress on all of these applied problems of interest.

In light of Professor Laubereau's very thorough discussion of IMS's experimental programs, I will confine my specific remarks to the presentations made regarding the theoretical programs. I reviewed the *Department of Theoretical and Computational Molecular Science* in detail last year, so there is not much to add in that regard.

The new addition to the faculty since my last report, Professor M. Ehara, gave a presentation of his research program: It involves the development of accurate new ways for calculating electronically excited states of molecules, and a variety of applications of these methods to complex molecular systems. Dynamics involving electronically excited states is central to many areas of chemistry, and accurate treatments of these states has been relatively neglected (because of the extra difficulty). This is thus an important direction for research and an excellent example of combining fundamental methodological research with very significant applications.

Professor F. Hirata then gave a presentation describing the "Next Generation Supercomputer Project." I am delighted to see that Japan is pursuing this program and hope it will inspire similar efforts in my country. Science worldwide now relies heavily on computer simulation to guide and interpret all types of experiments, so increased computational power will be welcomed by all. As noted, though, even a 10 petaflop computer will only increase present capabilities by a factor of ~100, so improved theoretical methodologies will still be extremely important for dealing with the complex molecular processes involved in nanomaterials, biomolecular processes, and new sources of clean energy.

Prof. M. Ehara gave an excellent overview of the program of the *Research Center for Computational Science*. It seems that there are two classes of users for which this center is crucial: One is the casual user, e.g., an experimental group that wishes to carry out some electronic structure calculations, using standard program packages, in order to interpret their data; it is not practical for them to have and maintain their own computational facilities for this, and they also often need some guidance in using the theoretical software. The other class of user is typically a theoretical group that wishes to carry out exploratory calculations of the most challenging nature that are only feasible on the most powerful computing facilities in existence, far beyond the facilities they may have available within their own group. Recognizing this, the Center chooses (by review committee) a small number of "S Class" projects for which massive amounts of time and storage are made available for these most challenging calculations. But the bulk of the resources are still made available to "casual" users. I believe this is a wise policy: Using this resource to carry out calculations that could not otherwise be done, while at the same time fulfilling the mission of providing state-of-the-art computational capabilities to the broader community.

Overall, the theoretical program at IMS remains strong, varied, and focused new directions in the field. My only recommendation is to "keep up the good work"!

To: 分子科学研究所 中村宏樹所長

From: William H. Miller (カリフォルニア大学バークレー校化学科 Kenneth S. Pitzer 抜群教授)

Subject: 分子研評価訪問の報告, 2009年2月9日

分子研の評価に当たって、中村所長から研究所の組織と役目の概略の説明がまずなされた。特に、全国共同利用機関としての役割、すなわち、非常に高いレベルの研究の実行と一つの大学等ではもてないあるいは維持ができない研究設備や施設の全国の研究者への提供が強調された。中村所長からは、分子研の基本的なポリシー、現在進行している新しい構想、これから直面する問題等の説明も受けた。これらの説明の後で、四つの研究領域のリーダーからそれぞれの領域の研究概要の紹介があり、主要な研究施設を視察した。

特定のプログラムにコメントする前に、分子研に関する一般的な所見を述べたい。

1. すべての評価を総合して、分子研は素晴らしい成功をおさめている。分子科学の種々さまざまな研究分野において世界一流の研究がなされて、すぐれた研究設備（たとえば、920MHz NMR）が全国の研究者に広く提供されている。
2. 分子研は若い人の採用に関して素晴らしい判断をしている。これは、採用した若い人が分子研での研究後、他の大学や研究所で高いポジションを獲得していることにも示されている。有望な若い人を募集して他の大学や研究所に送り出すことで、分子研が分子科学の新しい進展の最前線にあり続ける。これは、分子研および日本の分子科学に非常に効果的なものとなっている。
3. 私は理論分野により精通している。しかし、2 - 3人から構成される研究グループが分子研の典型とすると、実験分野の高い質の独創性ある研究には感銘した。理論分野では小さい研究グループは通常で、一般的にはあまり障害にならない。しかし、最近の洗練された実験は相当に大きな研究グループによって実行されている。結果として、分子研の実験研究者はすべてのことを試みるのではなく、高い独創性と新規な研究課題に的を絞っているように思われる。この“量より質”という研究姿勢の強調は、分子科学コミュニティーにむしろインパクトを与えているかも知れない（研究の質、すなわち生産力が欠けていないと認識している）。
4. 法人化が分子研にもたらした問題には同情する。この法人化は世界的な傾向で減少しないこと憂慮する。政府等からのこれからの研究費の確保には、社会的ニーズに合う実際的な研究（たとえば、クリーンで経済的に効率の良いエネルギー源を開発する研究）が求められことになる。幸いなことに、分子科学はこれらの問題を他の科学分野よりも上手く取り扱える位置にある。しかし、社会的ニーズに直接に合致するかどうかの見分けが難しい研究の支援がより困難になる。このためには、向上された基礎的な理論および実験の方法論の開発が、興味ある応用研究の進展には不可欠と思われる。

実験分野の綿密な評価は Laubereau 教授によってなされているので、理論分野の説明に関してのみ言及することに。昨年度、理論・計算分子科学研究領域を詳細に評価したばかりなので、あまり多くを加えることはない。

理論・計算分子科学研究領域の新しいメンバーとなった江原教授から、分子の電子励起状態の正確な計算法の新しい進展と複雑な分子系への様々な応用の研究概要の説明を受けた。電子励起状態を含む動力学研究は化学の多くの分野での中心的課題であるが、正確な取り扱いには様々な難しい問題があるので置き去りにされていた。江原教授はこ

の分野の重要な研究方向ばかりでなく、基礎研究と応用研究を結びつける素晴らしい見本を示している。

平田教授は“次世代スーパーコンピュータプロジェクト”の説明を行った。日本がこのプロジェクトを推進していることを喜んで見ている。この日本での推進が、米国でも類似のプロジェクトの開始を鼓舞することを期待する。様々なタイプの実験のガイドと解釈には、コンピュータシミュレーションに頼ることの重要性が増しているので、コンピュータの性能の進展は大歓迎である。しかし、10ペタフロップス級のスーパーコンピュータでも、現在の計算能力を100倍程度高めるに過ぎない。このために、ナノ物質、バイオ分子、クリーンなエネルギー源などに含まれる複雑な分子過程の取り扱いには、新しい理論の開発は依然としてきわめて重要である。

江原教授は計算科学研究センターの運用の説明を行った。計算センターの利用には大きくわけて二つのタイプのユーザがある。一つは、全国の多くの実験グループは研究室に高速なコンピュータをもっていないので、計算センターのライブラリにある標準的なプログラムを使用して電子状態計算を実行して、実験データを解釈することである。もう一つは、最も高速なコンピュータを用いることにより実現可能な挑戦的な計算を実行したい理論グループである。この後者を実現するために、長時間の計算と大容量の資源の使用が許される特別Sクラス課題を募集して、挑戦的な大規模計算を可能にしている。この特別Sクラス課題は、一般のユーザの使用を制限しないよう運用されている。一般課題と特別課題の設定は賢明な運用法である。これにより、他の所ではできない計算が実行できると同時に、分子科学分野の研究者に広く計算資源を提供するという使命が満足される。

全体として、分子研の理論分野は強力・多彩で新しい研究の方向に焦点を合わせている。私の唯一の推奨は、“良い研究を続ける”ことである。

## 7-1-2 Alfred Laubereau 外国人運営顧問

原文

Director-General Hiroki Nakamura

Institute for Molecular Science

Okazaki, Japan

### Report

of my visit of the Institute for Molecular Science (IMS), March 2–3, 2009

My visit of the Institute for Molecular Science was carried out on March 2–3 and started with an overview given by the Director-General Professor H. Nakamura and further oral contributions of four leading scientists of the Departments. In his presentation the Director-General provided highly interesting information on the National Institutes of Natural Sciences in Japan and the important role of the IMS as an Inter-University Research Institute supporting pioneering research issues, promoting academic research by a domestic joint study program and offering the joint use of large-scale facilities for leading researchers throughout Japan. A discussion of the structure of the IMS followed that consists of four departments and seven research facilities including a technical division. The recent reorganization obviously has improved the collaboration among internal groups of the institute. Prof. Nakamura pointed out the wide-spread research goals of the IMS with special research programs and summarized some highlights achieved by the institute.

The concept of the Inter-University Research Institute as demonstrated by the IMS is convincing and promotes first class research by intensified collaborations. It optimizes the efficient use of the limited resources by facilitating the access to expensive instrumentation like the 920-MHz NMR instrument. The IMS is also well integrated in international research programs. The improved link to universities has a potential to compensate for the relative smallness of the individual groups of the IMS. This point will require further inspection in the future.

Summaries of the research program were outlined in presentations for the following departments:

Photo-molecular Science, Prof. Hiromi Okamoto,

Materials Molecular Science, Prof. Toshihiko Yokoyama,

Life and Coordination-Complex Molecular Science, Prof. Tsuneo Urisu

and the UVSOR Facility, Prof. Masahiro Katoh.

The available time of my visit did not allow me to get into contact with all research groups. My report is focussed on the departments mentioned above and does not comprise the full range of research activities of the IMS. As an experimentalist the visit of the Department of Theoretical and Computational Molecular Science was kept short and does not allow me to give useful comments, although my general impression was extremely positive. In total I had meetings with 12 group leaders supplemented by a workshop with short presentations of four younger researchers of the Department of Photomolecular Science. The informal interviews with the group leaders and the workshop provided detailed insight into first-rank research results and present activities. The discussions also included possible limitations imposed by available space, funds and manpower. I could also see several labs and the UVSOR facility where substantial progress was achieved since my previous visit. An exceptional level of expertise was demonstrated in the discussions and by the quality of the acquired and self-built instrumentation.

#### Department of Photo-Molecular Science

The department is organized in four divisions, three of which I could visit.

In the Division of Photo-Molecular Science I directed by Prof. H. Okamoto novel optical properties and optical control of nano-structured materials are studied by scanning near-field spectroscopy with femtosecond laser pulses, providing spatial, spectroscopic and temporal resolution. The experimental techniques include conventional near-field microscopy, one- and two-photon induced luminescence, surface-enhanced Raman scattering and ultrafast transmission measurements providing state-of-the-art images of nanoplatelets, -rods and other structures with a spatial resolution of 50 nm and dynamical information on a 100-fs time scale. Inventive studies of the local, temporal and spectral properties were performed in collaboration with Prof. K. Imura for various metal nanoparticle systems and molecular assemblies, providing important information on the spatial coherence of surface excitations allowing to determine the wavefunctions of plasmon resonances of mesoscopic metals. Examples are chemically synthesized gold and silver nanorods and gold nanoplatelets. Near field transmission images were obtained of longitudinal plasmon resonances in excellent agreement with calculated local state densities. The time resolved pump-probe measurements revealed that the electron temperature of the gold nanorods was increased by the near-infrared excitation pulse inducing spectral shifts. The work has been also extended to molecular nanowires observing longitudinal propagation of the optical excitations. The results are excellent and provide a basis for the future development of quantum optical wires and integrated plasmonic systems in the field of quantum computing.

In the Division of Photo-Molecular Science I the group guided by Professor Y. Oshima has been developing methods for the quantum state manipulation of molecules by ultrashort laser. Current activities are focussed on nuclear motions, i.e. rotational and low-frequency vibrational wave packets. In this work non-adiabatic molecular alignment was achieved and the corresponding generation of the distribution of rotational states demonstrated for molecules in the supersonic expansion using resonantly enhanced multiphoton ionization. In collaboration with Prof. H. Hasegawa the method was very recently applied to benzene cooled adiabatically to 0.5 K. Using 150 fs laser pulses at 810 nm at an intensity level of  $2.2 \text{ TW/cm}^2$  nonresonant rotational excitation up to  $J = 10$  was achieved. Information on the phases of the rotational states of benzene was accomplished by an additional, delayed replica of the laser pulse and measuring the resulting modulation of the state populations. By comparison with numerical simulations the generated rotational wave packets could be reconstructed. An extension of the technique to nonadiabatic vibrational excitation is under the way. The novel investigations pave the way for fully state-resolved measurements of chemical reaction dynamics.

In the Division of Photomolecular Science II high-precision coherent control is investigated as a necessary prerequisite for novel quantum technologies, e.g. for governing the pathways of photochemical reactions. The group of Professor Kenji Ohmori has developed a novel wavepacket interferometry with remarkable results on phase-controlled interferences of vibrational wave-packets in small molecules studied in the supersonic expansion. Attosecond time resolution is achieved using highly reproducible femtosecond laser pulses in combination with a special, ultra-stable Michelson interferometer that generates the phase-controlled linear superposition of two excitation pulses. The well-defined phase relation of the pulse pair is transferred to the vibronic excitation of the molecules generating quantum interferences. An example is iodine, yielding both the amplitude and phase information of the wave function of the molecular ensemble. By the help of an additional probing pulse space-time images of the quantum interferences were achieved by a collaboration of Profs. K. Ohmori and H. Katsuki very recently. Picometer and femtosecond resolutions were demonstrated for the measured vibronic wavepacket motions of  $\text{I}_2$ . The interference patterns observed with this new technique were termed “quantum carpets.” By the help of simulations the potential curve of an excited electronic state of the molecule could be reconstructed. The work of the group is particularly significant, e.g. for potential applications in quantum computing and other quantum technologies.

In the Division of Photo-Molecular Science III molecular dynamics in intense laser fields is the headline for the research of Prof. A. Hishikawa, studying atoms and molecules with sub-10-fs laser pulses in the range of  $10^{15} \text{ W/cm}^2$ . Under such extreme conditions the external laser field is comparable with the internal Coulomb field of the molecules leading to new phenomena, e.g. Coulomb explosion. The highly charged ions formed in the excitation field separate into fragments, the momenta of which are analyzed so that the initial structure of the molecule can be traced back. The exciting work provides an improved understanding of light-molecule interactions. A novel method termed pump-probe Coulomb explosion imaging was developed in collaboration with Prof. M. Fushitani and demonstrated for the cation  $\text{C}_2\text{D}_2^{2+}$  of deuterated acetylene that was prepared by a first laser pulse. By the help of an intense second pulse (9 fs at 800 nm) the di-cation was converted to  $\text{C}_2\text{D}_2^{3+}$ . The resulting Coulomb explosion was monitored and the ultrafast migration of deuterium visualized. The method was also extended to triple-ion coincidence momentum imaging and applied to the acetylene-vinylidene isomerization in an intense laser field determining again hydrogen migration. Notably different momentum distributions of the fragments were measured when released from the initial species by a 9-fs pulse as compared to those of the product vinylidene obtained with a longer pulse of 35 fs. Hydrogen migration plays a role in various chemical process so that the deeper understanding may provide a clue for the control of the chemical reaction. The research group also applies soft X-ray pulses

to studies of chemical processes, e.g. probing the dissociation of bromine at 41 eV. The generation of attosecond pulses via high-harmonic generation in neon is in progress implementing even higher temporal resolution in these investigations.

Other groups in Photomolecular Science III perform highly sophisticated inner-shell spectroscopy of molecular solids and DNA, using synchrotron radiation. The studies of photo-ionization and -dissociation dynamics in fullerenes by the group of Prof. K. Mitsuke are some of the highlights in the field. Significant progress has been achieved by pump-probe or double resonance experiments combining synchrotron and laser radiation.

#### Department of Materials Molecular Science

The department directed by Prof. N. Nishi has obtained outstanding results in the field of new molecular systems and higher-order molecular assemblies. Facile generation methods were developed and the molecular systems characterized by their electrical, optical and magnetic properties including catalytic activities and chemical performance. Examples are novel metal-carbon nanosystems with potential applications as gas sensors. Along these lines  $\text{Cu}_2\text{C}_2$  nanocables were developed for sensing  $\text{O}_2$  at room temperature by changes of electric conductivity. The developed expertise for the self-assembly of thin nanowires and nanocables is noteworthy. Further achievements include the fabrication of diameter-controlled nanoparticle arrays, silver-carbon nanosponge structures with high potential of catalytic activity and hollow graphitic polyhedrons with promising applications for gas storage. Most successfully the department also studies the synthesis, structures and magnetic properties of carbon encapsulated nanoparticles. With respect to the large potential for commercial applications it is proposed to give more emphasis to the work and improve the resources of the department.

In the group of Prof. T. Yokoyama magnetic thin films are studied. To this end metal films are modified by chemical treatment of the surfaces e.g. adsorption-induced spin transitions or morphological changes and the magnetic properties determined by various spectroscopic methods including novel techniques. A notably improved measuring system for X-ray magnetic circular dichroism (MCD) was installed in the beamline of the UVSOR-II source equipped with a superconducting magnet for high fields up to 7 T and a liquid helium cryostat. The group recently discovered a surprising enhancement of the photoemission MCD of nickel films when the photon energy is close to the work function threshold. This allows the use of femtosecond laser pulses that provide a superior time resolution as compared to synchrotron radiation. First results of the novel UV MCD photoelectron emission microscopy (PEEM) were obtained with a time resolution of 200 fs for epitaxially grown Ni layers on Cu(001). The method has been also extended to 2-photon induced MCD. Significant enhancement of the orbital magnetic moments of Co on Cu(001) was demonstrated by the pioneering work of the group. The magnetic properties of self-assembled Co nanorods were investigated using the same setup. The low-dimensional magnets possess an interesting potential for future applications as storage media.

Other important research of the department is carried out on organic electronic devices. In the Research Center for Molecular Scale Nanoscience the group of Prof. M. Hiramoto investigates purification, nanostructure design and long-term durability of organic semiconductors. The world-wide most efficient organic solar cells was accomplished for a p-i-n-structure with a 1- $\mu\text{m}$  i-layer of co-deposited fullerene and phthalocyanine. Further highlights among the series of research projects of the IMS with significant application potential to be quoted here are molecular n-type semiconductors with high electron mobility based on perfluorinated oligofluorenes and the modelling of photosynthesis by artificial molecules.

## Department of Life and Coordination-Complex Molecular Science

The role of metalloproteins is crucial for the understanding of regulatory mechanisms in biological systems. In the Division of Biomolecular Functions Prof. S. Aono and coworkers investigate novel proteins with new functions that are important for molecular metabolism and signal transduction. Of particular interest are sensor proteins for diatomic gases like O<sub>2</sub>, NO and CO. The relations between the structures of metalloproteins with their functions have been inspected by a wide range of chemical methods including structure analysis by X-ray spectroscopy. Significant progress was achieved as demonstrated by the excellent results on the signal transducer protein HemAT from *Bacillus subtilis*. The mechanism of selective O<sub>2</sub> sensing by the heme was addressed studying the hydrogen bonding interaction by resonance Raman spectroscopy and comparing it with that for other bacteria. Three conformers were found in the O<sub>2</sub>-bound form with very similar H-bond patterns. Using the technique in the UV, different conformational changes upon binding of O<sub>2</sub>, CO and NO to the heme protein could be recognized. The findings suggest that hydrogen bonding of the heme-bound O<sub>2</sub> gives rise to structural changes that are communicated to the protein moiety.

The group of Prof. K. Kuwajima performs excellent work on the mechanisms of *in vitro* protein folding and molecular chaperone functions. Model globular proteins and molecular chaperones are studied that are known to mediate protein folding in biological cells. The experimental information is supplied by various spectroscopic and biophysical techniques, including circular dichroism and fluorescence spectroscopy, NMR, small-angle X-ray scattering, and the results supported by molecular dynamics simulations. The kinetics of the canine milk lysozyme folding and unfolding were investigated in detail and compared with previous results for  $\alpha$ -lact-albumin, revealing different pathways for the two proteins. Unfolding simulations were performed for the authentic and recombinant forms of goat  $\alpha$ -lactalbumin. In spite of their structural similarity different unfolding rates were found in the computations while the two forms display a common transition state structure in agreement with experimental data.

More recently the structure of the GroEL-GroES complex was investigated in solution under physiological conditions at different temperatures and nucleotide conditions. The small-angle X-ray scattering patterns were compared with calculated data derived from the known crystallographic structures. The results are necessary for the understanding of the biomolecular kinetics.

The group of Prof. K. Kato in the Division of Biomolecular Functions carries out highly interesting analyses on the microscopic scale of the structures and dynamics of biological macromolecules and their complexes. The exciting work also includes biomolecular machines and glycoproteins in immune systems and is essentially based on isotope-assisted nuclear magnetic resonance spectroscopy with a novel 920 MHz instrument. The superior spectral resolution of the NMR system was demonstrated for intrinsically disordered proteins in liquid solution where more detailed information on interactions, conformations and modifications could be accomplished. A <sup>13</sup>C NMR analysis of archaeal prefoldin, group II chaperonin and their complex was carried out, concentrating on structural regions not previously addressed by X-ray crystallography. The data revealed that certain terminal segments of protein subunits retain significant internal motion even for the complex in buffer solution.

## UVSOR Facility

It is an important function of the IMS to make advanced instrumentation available for guest scientists, in particular synchrotron radiation. At the UVSOR facility 9 beam lines are available for public users and further 4 lines for internal groups. Under the direction by Prof. N. Kosugi and in collaboration with Professor Masahiro Katoh the UVSOR-II storage ring and its injector have been notably



improved and important progress achieved towards more stable operation at higher beam flux. Four undulators are producing highly brilliant radiation in the VUV and soft X-ray region. A free-electron laser was installed with a pulse duration of 10 ps and output level of 1 W, the short-wavelength limit being shifted below 200 nm. In addition, intense THz pulses have been made available by UVSOR II, using a synchronized femtosecond Ti:Sapphire laser. A micro-density structure of the electron bunches in the storage ring is achieved by interaction with injected laser radiation yielding broadband coherent radiation around 0.3 THz. Using amplitude-modulated laser pulses the generation of quasi-monochromatic THz radiation was demonstrated for the first time in a uniform magnetic field.

Density-modulation in the undulator by electron-laser interaction with a period of the laser wavelength can produce coherent harmonics of laser light. Third harmonic generation of a Ti-Sa-Laser was accomplished and the optical properties of the coherent harmonics investigated.

The achievements of UVSOR-II have found a wide range of applications in different fields, i.e. in atomic and molecular science, bio-related research and material science. Numerous high quality investigations have been performed in different divisions of the facility so that a detailed account is beyond the scope of this report. As an example only the interesting studies of inner-shell photoexcitation and photoionization by the group of Prof. E. Shigemasa shall be mentioned. Electronic structures and decay dynamics in core-excited atoms and molecules have been investigated by soft X-ray radiation using Auger electron-ion coincidence spectroscopy and related methods. Thanks to the impressive technological improvements of the synchrotron facility, X-ray absorption was investigated in resonant Raman or Auger scattering that is not limited by lifetime broadening of the core-excited states. Well resolved X-ray absorption profiles were achieved revealing novel features of the molecular excitations.

## Conclusions

The scientific interests at the IMS are wide spread and have an important impact on the scientific community. First rank research is carried out at the frontiers of molecular science and the key areas of fundamental research in molecular science are well represented including topics relevant for potential applications. The expertise of the scientists is on the highest level. The scientific output as confirmed by the numerous publications in the leading international journals is significant, in spite of the limitations imposed on the institute by a moderate, if not unsatisfactory financial basis.

One general finding is that the research groups in the institute are amazingly small. Although the limited size may allow for a larger number of groups with different activities, it is felt that the size limits the efficiency of the scientific work. In fact, by comparing with other places in Europe and North America the small number of graduate students and post-docs is evident. Obviously the IMS is fully aware of this problem and has developed special programs for more graduate students and young researchers, e.g. by intensifying the collaboration with universities. It is strongly recommended to continue along these lines. In addition, increased funds are obviously required to attract more young researchers from Japan and abroad and to offer an attractive individual support.

Garching, April 30, 2009

A. Laubereau

日本国岡崎市 分子科学研究所

中村宏樹 所長 殿

分子科学研究所訪問（2009年3月2 - 3日）にかかる報告書

私は3月2 - 3日に分子科学研究所を訪問し、まず中村所長による概要説明から始まり、続いて4研究領域の主な研究者による口頭の説明を受けました。所長の説明により、日本における自然科学研究機構、また分子研の、大学共同利用機関としての重要な役割に関する大変興味深い知識が得られました。即ち、先進的な研究課題を支援すること、国内の協力研究制度により学術共同研究を振興すること、及び日本全国の第一線の研究者たちに大型施設の共同利用の機会を与えることです。続いて分子研の組織についての詳細、即ち4研究領域と、技術課を含めて7つの研究施設からなる構成が紹介されました。最近の組織再編が、研究所内のグループ間の協力関係を改善したことは明らかでしょう。中村教授は、分子研が現在、いくつかの特定研究プログラムによる広範な研究目標をもっていることを示され、また研究所のいくつかの顕著な成果について概要を説明されました。

大学共同利用機関の概念は、分子研が体現しているように、大変説得力のあるものであり、第一級の研究を強力な共同研究により推進するしくみになっています。それは例えば、920 MHz NMR装置のような高価な機器利用を促進することで、限られた資産の効率的な利用を最適化することに寄与しています。分子研はまた、国際的な研究プログラムをうまく取り纏めて運営しています。大学とのリンクを改善することで、分子研内の個々の研究グループの小ささを補うことが可能と思われれます。この点は将来に向けて更なる検討が必要でしょう。

研究内容の概要は、下記の研究領域にかかる報告として説明を受けました：

光分子科学，岡本裕巳教授

物質分子科学，横山利彦教授，

生命錯体分子科学，宇理須恒雄教授，及び

極端紫外光研究施設（UVSOR），加藤政博教授

訪問時間が限られていたため、全ての研究グループと接触することはできませんでした。私のこの報告は上記の研究領域に絞っており、分子研の研究活動の全ての範囲を含むものではありません。私は実験科学者であるため、理論・計算分子科学研究領域の訪問は短時間に留めましたし、また有益なコメントをする立場にもありませんが、全体的には極めて良い印象を持っています。全部で12名のグループリーダーと面談し、加えて光分子科学研究領域の4名の若い研究者による短い発表会に参加しました。インフォーマルなグループリーダーとの面談と上記発表会では、第一線の研究成果と現在の研究活動に関する詳細を知ることができました。一方で、議論を通じて、スペース、予算、マンパワーに関して見込まれる限界も見えてきました。UVSORのいくつかの研究室では前回の訪問時から非常に大きな進展があったことがわかりました。自作、或いは購入した装置の品質に関して、並外れた専門的レベルにあることが、議論を通して明らかになりました。

## 光分子科学研究領域

この研究領域は4つの部門で組織されており、その内3部門を訪問しました。

光分子科学第一研究部門の岡本教授率いるグループでは、ナノ構造物質の新奇な光学的性質と光制御に関して、空間的、分光学的、時間的な分解能を実現する、フェムト秒レーザーパルスを用いた走査型近接場分光を用いて研究しています。実験手法は、標準的な近接場顕微鏡のほか、1光子及び2光子誘起発光、表面増強ラマン散乱、超高速透過測定を含んでおり、これによりナノプレート、ナノロッドその他の構造体に対して、50 nmの空間分解能、100 fsの時間分解能の最先端のイメージングを可能としています。井村助教の協力により、様々な金属ナノ微粒子や分子集合体の局所的・時間的・分光学的な性質に関する独創的な研究がなされ、空間コヒーレンスや表面励起に関する重要な情報をもたらし、メソスコピックな金属のプラズモン共鳴の波動関数を決定することも可能としています。それは例えば化学合成された金及び銀ナノロッドや金ナノプレートについてなされています。近接場透過イメージが縦モードプラズモン共鳴について得られ、計算された局所状態密度と非常に良く一致しています。時間分解ポンプ-プローブ測定では、近接場パルス励起で金ナノロッドの電子温度が上昇してスペクトルシフトを誘起することを明らかにしています。これらの仕事は分子ワイヤーにおける光学励起の縦伝播の観測にも拡張されています。これらの結果は秀逸なもので、将来の量子コンピューターの研究分野における量子光学ワイヤの開発やプラズモン集積系の発展の基礎を与えるものです。

光分子科学第一研究部門の大島教授のグループでは、超高速レーザーによる分子の量子状態操作法の開発を行っています。現在の研究活動は、核の動き、即ち回転と低波数振動の波束を中心に行っています。この研究では、共鳴多光子イオン化を用いて、超音速噴流中の分子に対する、非断熱的な分子配向、或いはそれに対応する回転分布の生成を実現しています。長谷川助教の協力で、この方法はごく最近、断熱的に0.5 Kまで冷却したベンゼンに適用されました。810 nm、150 fsのレーザーパルスを強度 $2.2 \text{ TW/cm}^2$ で用いることで、 $J=10$ までの非共鳴回転励起を可能としました。ベンゼンの回転状態の位相に関する情報を得ることについても、時間的に遅延したレーザーパルスを与えた結果起こる状態分布の変調を測定することにより、成功しています。数値シミュレーションの結果との比較により、回転波束の再構成が可能となっています。この手法の非断熱的振動励起への拡張は現在進行中です。この新しい研究法は、化学反応動力学の完全状態選択的な計測に向けた地ならしとなるものです。

光分子科学第二研究部門では、新しい量子技術、例えば光化学反応経路の制御等で必要条件となる高精度コヒーレント制御が研究されています。大森賢治教授のグループでは新しい波束干渉法を開発し、超音速噴流中の小分子に対して、位相制御された振動波束の干渉の研究で注目すべき結果が得られています。再現性の高いフェムト秒レーザーパルスと特製の超安定マイケルソン干渉計を組み合わせ、アト秒の時間分解能を実現し、それにより二つの励起パルスの位相まで制御された線形な重ね合わせを作り出しています。パルス対の明確な位相関係を分子の振電励起に転写し、量子干渉を発生させています。ヨウ素に適用した例では、分子集団の波動関数の振幅と位相双方の情報が得られています。最近大森教授と香月助教の協力で、プローブパルスを加えることで、量子干渉に関する空間-時間イメージを得ることに成功しています。 $I_2$ の振電波束運動の計測について、ピコメートル、フェムト秒の分解能が示されています。この新しい方法で得られた干渉パターンは「量子カーペット」と命名されました。シミュレーションを援用することで、分子の電子励起状態のポテンシャル曲線を再構築することも可能です。このグループの仕事は、例えば量子計算やその他の量子技術への応用の可能性において、とりわけ重要なものと言えます。

光分子化学第三研究部門では、強レーザー場における分子の動的挙動が菱川准教授の主要な研究で、サブ 10 fs、 $10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> 領域のレーザーパルス下での原子分子の研究を行っています。このような極限的条件下では、外部からのレーザー場は、分子内部のクーロン場と同程度となり、クーロン爆発等の新たな現象を惹き起します。励起場中では多価イオンが生成してフラグメントに分裂しますが、その運動量を解析して分子の初期構造を逆追跡することが可能です。この大変興味深い研究で、光と分子の相互作用に関する理解が深まるといえるでしょう。伏谷助教との協力により開発されたこの新奇な方法はポンプ - プロブクーロン爆発イメージング法と命名されました。この方法で、アセチレンに関して以下のことを示しています。重水素化アセチレンカチオン  $C_2D_2^{2+}$  を第一のレーザーパルスで生成し、高強度の第二のレーザーパルス (9 fs, 800 nm) の照射によって 2 価カチオンは  $C_2D_2^{3+}$  に転換されます。その結果起こるクーロン爆発をモニターし、重水素原子が超高速で移動するところを可視化することに成功しました。この方法はさらに三重イオンコインシデンス運動量イメージング法に拡張され、強レーザー場中のアセチレン - ピニリデン異性化反応に適用して、ここでも水素移動が起こることを突き止めました。出発分子種から 9 fs パルスによって生成するフラグメントの運動量は、より長い 35 fs のパルスによって生成するピニリデンの運動量とは大きく異なる分布を示す測定結果が得られています。水素移動は様々な化学過程において重要な役割を担っており、これを深く理解することは、化学反応制御の一つの糸口となることでしょう。研究グループは軟 X 線パルスを化学過程の研究に適用することも行っています。例えば 41 eV での臭素の解離反応の検出などがあります。ネオン中の高次高調波発生によるアト秒パルス発生は現在進行中で、これらの研究のさらに高い時間分解能の実現手段を与えるものになるでしょう。

光分子化学第三研究部門の他のグループでは、極めて洗練された放射光を用いた内殻分光を、分子性固体や DNA について行っています。見附准教授のグループによるフラーレンの光イオン化・解離ダイナミクスの研究は、そうした分野の一つのハイライトです。また放射光とレーザーを組み合わせたポンプ - プロブや二重共鳴の実験で、かなりの進展が実現しています。

#### 物質分子科学研究領域

西教授が率いるこの研究領域では、新分子物質系や高次分子集合体の分野で顕著な成果が得られています。容易な生成法の開発の他、分子系の電子特性、光学特性、磁気特性や触媒活性、化学的特性が調べられています。例えば、ガスセンサーに用いる金属 - 炭素ナノシステムが挙げられます。この路線で、導電率変化によって室温で  $O_2$  センサーに用いられる  $Cu_2C_2$  ナノケーブルが開発されています。細いナノワイヤやナノケーブルを自己組織化する技術開発は注目すべきものです。さらに直径を制御したナノ微粒子列、触媒活性の期待される銀 - 炭素ナノスポンジ構造、気体吸蔵に応用可能な中空多角形グラファイト構造等の作成法でも見るべき成果が得られています。当研究領域では、カーボンに内包したナノ微粒子の合成、構造・磁氣的性質の研究においても、大きな成功をおさめています。広範な工業的応用が考えられるという視点からも、これらの仕事に対して、研究領域の資源配分を改善して重点化することが求められます。

横山教授のグループでは、磁性薄膜の研究がおこなわれています。金属薄膜の表面を化学的に修飾して、例えば吸着誘起のスピン転移や形状変化を起こし、磁氣的性質を新しい方式を含む様々な分光手法により決定しています。従来法より著しく改善された X 線磁気円二色性 (MCD) 計測系が UVSOR-II 光源のビームラインに設置され、これには 7 T までの高磁場超電導磁石と液体ヘリウムクライオスタットも装備されています。当研究グループでは最近、ニッ

ケル薄膜の光電子放出 MCD が、仕事関数の閾値近傍の光子エネルギーで異常に増強することを発見しています。これはフェムト秒レーザーパルスを用いることを可能とし、放射光源と比較して高い時間分解能をもたらすこととなります。この新しい紫外 MCD 光電子顕微鏡 (PEEM) を用いた最初の成果は、Cu(001) 面上にエピタキシャル成長した Ni 層に対して得られ、200 fs の時間分解能が実現されています。この方法は 2 光子誘起 MCD にも拡張されました。Cu(001) 面上の Co の軌道磁気モーメントの著しい増大が、当グループの先駆的な仕事で示されました。自己組織的に生成した Co ナノロッドの磁氣的性質も同じ装置で研究されています。低次元磁石は、将来の記憶媒体への応用で興味深い可能性を有しています。

他にも、当研究領域では、有機電子デバイスで重要な研究がなされています。分子スケールナノサイエンスセンターでは、平本教授が有機半導体の生成、ナノ構造デザイン、長期耐久性に関する研究を行っています。有機太陽電池として世界最高効率で、フラレンとフタロシアニンを同時堆積した 1  $\mu\text{m}$  の i 層をもつ p-i-n 構造によって得られています。分子研の研究プロジェクトの内、応用への高いポテンシャルを持つ一連の研究の中で今一つのハイライトとして、高い電子移動度をもつ n 型分子性半導体である完全フッ素化オリゴフルオレン分子、人工分子による光合成系モデルが挙げられます。

#### 生命錯体分子科学研究領域

生体系の制御機構を理解する上で、金属タンパクの役割は重大なものです。生体分子機能研究部門の青野教授と共同研究者は、分子代謝や信号伝達で重要な新しい機能をもつ蛋白質について研究しています。特に  $\text{O}_2$ 、NO や CO 等の気体二原子分子のセンサータンパク質には興味を持たれます。金属タンパク質の構造と機能の関係について、X 線分光による構造解析等の手法をも含む様々な化学的方法によって研究がされています。その重要な進展のあった例として、*Bacillus subtilis* の情報伝達タンパク分子 HemAT についての優れた成果があります。ヘムによる  $\text{O}_2$  に選択的なセンシングの機構について、共鳴ラマン分光を用いた水素結合の研究により提案がなされ、他の細菌との比較が行われています。 $\text{O}_2$  結合型でよく似た水素結合パターンを有する三つのコンフォマーが見出されています。紫外領域の実験によって、 $\text{O}_2$ 、CO と NO のヘムタンパクへの結合におけるコンフォメーション変化の差を認めることができます。これらの発見はヘムに結合した  $\text{O}_2$  の水素結合が構造変化を惹き起し、それがタンパク部位に伝わることを示唆するものです。

桑島教授のグループでは、*in vitro* のタンパク質フォールディングのメカニズムと分子シャペロンの機能に関して、秀でた研究を行っています。球状タンパクのモデル系と、生細胞中のタンパク質フォールディングを媒介することで知られている分子シャペロンの研究がなされています。様々な分光法や生物物理学的手法、例えば円二色性、蛍光分光、NMR、X 線小角散乱等の実験手段で情報が得られ、またそれらを分子動力学シミュレーションによってサポートしています。イヌ乳リゾチームのフォールディング・アンフォールディングの速度論的研究が詳細になされ、 $\alpha$ -ラクトアルブミンに関する以前の結果と比較して、これら二つのタンパク質のフォールディング経路の差を明らかにしています。アンフォールディングのシミュレーションを、真正及び遺伝子組換えのヤギ  $\alpha$ -ラクトアルブミンについて行っています。それらは構造が類似しているにもかかわらず、アンフォールディングの速度の計算結果に差が見出され、一方で共通な遷移状態の構造を示している、この結果は実験結果との一致を見えています。

ごく最近では、GroEL-GroES 複合体の、生理学的条件下の溶液中の構造について、異なる温度、異なるヌクレオチ

ド条件で調べています。X線小角散乱パターンを、知られている結晶構造データをもとに計算した結果と比較しています。この研究の結果は、生体分子の速度論的挙動を理解するために不可欠のものです。

生体分子機能研究部門の加藤教授のグループでは、生体高分子とその複合体のミクロな構造とダイナミクスに関する大変興味深い解析が行われています。生体分子機械や免疫システムの糖タンパクに関する素晴らしい研究も行われており、それらでは同位体法を援用した核磁気共鳴分光法と 920 MHz NMR の新装置が、本質的な基盤となっています。NMR システムの秀逸な分光分解能は溶液中の無秩序構造タンパク質について示され、コンフォメーション、相互作用、修飾に関するより詳細な情報に到達することに成功しました。古細菌プレフォルディン、グループ II シャペロニン、およびそれらの複合体に対しては、以前の X 線結晶解析では不明であった構造部位を中心に、<sup>13</sup>C NMR 解析が行われました。その結果、あるタンパク質サブユニットの末端部位が、緩衝液中の複合体においても内部運動を維持していることが明らかとなっています。

#### 極端紫外光研究施設 (UVSOR)

分子研の一つの重要な機能として、外部の研究者に対して、先端的な装置、特に放射光施設のような設備を開放することがあります。UVSOR では一般利用者のための 9 本のビームラインに加えて内部のグループのための 4 本のラインがあります。小杉教授の指揮の下、加藤政博教授との協力により、UVSOR-II 蓄積リングと電子注入装置には、より高い安定性とビームフラックスの実現に向けて、注目すべき改善と重要な進展がありました。4 台のアンジュレーターは VUV から軟 X 線における高輝度な放射を可能としています。自由電子レーザーも設置され、パルス幅 10 ps、出力 1 W が出ており、短波長側の限界は 200 nm 以下まで来ています。さらに、同期したフェムト秒 Ti:Sapphire レーザーを用いることで、強力な THz パルスも UVSOR-II で得られるようになっています。蓄積リング中の電子パンチに、導入されたレーザー光との相互作用により電子密度のミクロ構造を生成し、それによって 0.3 THz 付近のブロードなコヒーレント放射が得られています。レーザーパルスを振幅変調することで、均一磁場中での準単色の THz 光の発生が初めて示されました。

レーザー波長の周期をもった電子 - レーザー相互作用による、アンジュレーター中での電子密度変調は、レーザー光のコヒーレント高調波発生を可能とします。チタンサファイアレーザーの第 3 高調波の発生が現に達成され、コヒーレント高調波の光学的性質が調べられています。

UVSOR-II の成果は広い範囲の研究分野への応用に広がっています。例えば原子分子科学、生物関連研究や物質科学等です。施設の他の部門では数多くの高いレベルの研究が行われており、詳細な説明はこの報告の範囲を超えています。ここでは一つの例として繁政准教授のグループの内殻光励起・光イオン化に関する興味深い研究を挙げるにとどめます。内殻励起原子分子の電子構造や緩和ダイナミクスが、軟 X 線放射光を用いたオージェ電子 - イオンコインシデンス分光法、及び関連した方法によって研究されています。シンクロトロン施設の特筆すべき技術的進展のおかげで、X 線吸収が、内殻励起状態の寿命幅に制限されないオージェ散乱過程や共鳴ラマン過程を用いて研究できるようになっています。よく分解された X 線吸収プロファイルが得られ、分子励起の新奇な特性が明らかにされてきています。

おわりに

分子研における科学的な興味の対象は広範にわたっており、サイエンスのコミュニティに対して大きなインパクトを与えています。分子科学のフロンティアの研究領域で第一線の研究が行われており、それらは分子科学の基礎研究のキーとなる分野に相当し、応用に繋がりうるトピックスも含まれています。研究者の専門的技量は最高レベルです。予算的な裏付けが、不満足ではないにしろ、抑制され限られた状況を強いられているにも拘らず、自然科学における成果は意義深い重要なもので、それは一流の国際誌に多数の論文が掲載されていることから明らかです。

一般的なことで一つ気付いたのは、研究所の研究グループのサイズが驚くほど小さいことです。大きさを抑制することによって異なる研究活動を行うグループ数を多くすることはできますが、小さな研究室のサイズは科学研究の効率を制限してしまうと思われます。実際、ヨーロッパや北米の他の研究機関と比較して、大学院生や博士研究員の数の少なさは明らかです。分子研では勿論このことを十分承知しており、より多くの大学院生と若手研究者を獲得するための特別プログラム、例えば大学との協力関係を強くすること等を進めています。このような試みを継続することを強くお勧めする次第です。付け加えて、多くの日本国内及び海外の若手研究者を引きつけ、魅力ある個人に対する支援を提供するために、予算の増額が必須です。

Garching にて、2009年4月30日

A. Laubereau