

石 崎 章 仁 (特任准教授 (若手独立フェロー))(2012年3月1日着任)

A-1) 専門領域: 理論物理化学

A-2) 研究課題:

- a) 凝縮相化学動力学の量子理論
- b) 分子システムの環境適応性の理論

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) シングレットフィッシュョンは一つの一重項励起状態から二つの三重項励起状態が生じる過程でありペンタセンなどの有機結晶で観測されており, 有機太陽電池の光電変換効率を向上させる新たな指針の一つとして注目されている。数百ピコ秒程度でフィッシュョンが起こる分子系が存在する一方, ペンタセンやその誘導体のいくつかでは数百フェムト秒程度で起こることが分光実験によって示されている。多くの研究グループが実験, 理論の両面から研究を進めているが, フィッシュョンの反応速度を支配する機構の詳細は現状では未解明である。本研究では, 電子移動を記述する理論モデルを基にフィッシュョンのハミルトニアンを構築し量子ダイナミクス理論に基づいてフィッシュョン過程のダイナミクスを計算した。本研究の理論モデルは文献の分光実験で得られた数種類のペンタセン誘導体における反応速度を再現することができた。このモデルに基づき, 一重項励起状態と三重項励起状態間のエネルギーギャップ, 電荷移動状態のエネルギーの値がどのような条件であるときに超高速のフィッシュョンが実現し得るのかを検討し, 自由エネルギー曲面の解析によってフィッシュョンの反応速度, ダイナミクスにおける電子励起状態のエネルギー依存性について議論した。
- b) 光合成光捕集系における色素の電子励起エネルギー移動を議論する上で, 色素分子とタンパク質環境との相互作用によって形成される色素分子の励起エネルギー「地形」は重要な枠割を果たし, 電子励起がエネルギー地形の勾配に従って拡散するという描像で議論されてきた。このエネルギー地形は *in vitro* のサンプルを用いた分光実験とX線結晶構造の情報により決定され, また色素の電子状態の揺らぎとタンパク質の局所的な歪みの間には線形応答論が成り立つことが前提とされてきた。しかし, そのような議論では環境変動に応じた「高い効率で起こるエネルギー移動」と「過剰摂取したエネルギーを熱放出させる制御機構」という一見相反する2つの機構の自律的スイッチング・環境応答性を説明できない。本プロジェクトでは光合成エネルギー移動過程の環境応答性を生み出す物理化学機構を明らかにすべく, 超高速分光と単一分子分光の実験のグループと共同で色素タンパク質複合体のコンフォメーション変化とその原因, またコンフォメーション変化に伴う色素の再配置・エネルギー地形変化の可能性の検討している。

B-1) 学術論文

D. M. MONAHAN, L. V. WHALEY-MAYDA, A. ISHIZAKI and G. R. FLEMING, "Influence of Weak Vibrational-Electronic Couplings on 2D Electronic Spectra and Inter-Site Coherence in Weakly Coupled Photosynthetic Complexes," *J. Chem. Phys.* **143**, 065101 (11 pages) (2015).

Y. FUJIHASHI, G. R. FLMIENG and A. ISHIZAKI, "Impact of Environmentally Induced Fluctuations on Quantum Mechanically Mixed Electronic and Vibrational Pigment States in Photosynthetic Energy Transfer and 2D Electronic Spectra," *J. Chem. Phys.* **142**, 212403 (12 pages) (2015). (Invited)

B-2) 国際会議のプロシーディングス

D. M. MONAHAN, L. V. WHALEY-MAYDA, A. ISHIZAKI and G. R. FLEMING, “Interpreting Oscillations in Numerically Exact Simulations of 2D Electronic Spectra,” *Ultrafast Phenomena XIX*, 553–556 (2015).

B-3) 総説, 著書

石崎章仁, 「新著紹介, K. A. Dill and S. Bromberg, *Molecular Driving Forces; Statistical Thermodynamics in Chemistry, Physics, Biology, and Nanoscience*, Second Edition (Garland Science, London and New York, 2011)」*日本物理学会誌* **70** (12), p. 946 (2015).

B-4) 招待講演

石崎章仁, 「凝縮相量子ダイナミクスの理論とその光合成初期過程への展開」東京大学物性科学研究所, 柏市, 2015年12月.
A. ISHIZAKI, “Impacts of environmentally induced fluctuations on quantum mixtures in energy/charge transfer reactions and 2D electronic spectra,” The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies 2015 (PACIFICHEM 2015), Honolulu (U.S.A.), December 2015.

A. ISHIZAKI, “Non-Markovian quantum dynamical aspects in photosynthetic light harvesting systems,” CECAM Workshop 2015: Open Quantum Systems Computational Methods, Hong-Kong (China), December 2015.

石崎章仁, 「光合成光捕集系における電子励起エネルギー移動: 光学応答と量子動力学」立命館大学, 大津市, 2015年11月.
A. ISHIZAKI, “Title: N/A,” EMN Meeting on Ultrafast Research: Energy Material Nanotechnology, Las Vegas (U.S.A.), November 2015 (スケジュールの不都合により辞退)

石崎章仁, 「実時間量子散逸系の理論とその光合成初期過程への展開」第9回物性科学領域横断研究会: 凝縮系科学の最前線, 東京大学, 東京都文京区, 2015年11月.

A. ISHIZAKI, “Influences of quantum mechanically mixed electronic and vibrational pigment states in photosynthetic energy transfer and 2D electronic spectra,” The 1st Mueunjae Symposium on “Chemistry & Light,” Pohang University of Science and Technology, Pohang (Korea), August 2015.

石崎章仁, 「高速レーザー分光と量子動力学理論で探る光合成捕集系の電荷 / エネルギー移動ダイナミクス」日本学術振興会 181 委員会研究会「生命革新機能と分子複合技術——生物の驚異的機能は人工的にできるのか?」大阪大学, 豊中市, 2015年7月.

A. ISHIZAKI, “Impacts of Environmentally Induced Fluctuations on Quantum Mixing in Energy/Charge Transfer Reactions and 2D Electronic Spectra,” The 15th International Congress of Quantum Chemistry (ICQC) Satellite Meeting “Recent Advances in Quantum Dynamics and Thermodynamics of Complex Systems,” Peking University, Beijing (China), June 2015.

A. ISHIZAKI, “Impacts of environmentally induced fluctuations on quantum mechanical mixtures in energy/charge transfers and 2D electronic spectra,” The 3rd Workshop on Coherent Energy Transport and Optimization in Photosynthesis, Nanyang Executive Centre, Singapore, May 2015.

A. ISHIZAKI, “The primary steps of photosynthesis explored with laser spectroscopic experiment & quantum dynamic theories,” The Lee Group, Department of Chemistry, Sungkyunkwan University, Suwon (Korea), April 2015.

A. **ISHIZAKI**, “Impacts of environmentally induced fluctuations on quantum mechanical mixtures in energy/charge transfers and 2D electronic spectra,” The Schlau-Cohen Group, Department of Chemistry, Massachusetts Institute of Technology, Cambridge (U.S.A.), April 2015.

A. **ISHIZAKI**, “Impact of Environmentally Induced Fluctuations on Quantum Mechanically Mixed Electronic and Vibrational States in Photosynthetic Energy Transfer and 2D Electronic Spectra,” Asian Academic Seminar 2015, Kolkata (India), March 2015.

A. **ISHIZAKI**, “The Primary Steps of Photosynthesis Explored with Nonlinear Laser Spectroscopic Experiments and Quantum Dynamics Theories,” 名古屋大学リポート分子科学研究所研修“New Research Frontier of Molecular Science; Harmonic Cooperation between Theory and Experiment,” Okazaki (Japan), January 2015.

A. **ISHIZAKI**, “Quantum Dynamical Aspects in Photosynthetic Energy Transfer,” The Second China-Japan-Korea tripartite Workshop on Theoretical and Computational Chemistry (CJK-WTCC-II), Kobe (Japan), January 2015.

B-6) 受賞, 表彰

石崎章仁, 第10回凝縮系科学賞 (2015).

石崎章仁, 日本物理学会第10回若手奨励賞 (2015).

B-7) 学会および社会的活動

学会の組織委員等

45th World Chemistry Congress of the International Union of Pure and Applied Chemistry (IUPAC-2015) 組織委員・物理化学 (2015).

第3回NINS Colloquium 「自然科学の将来像」運営組織委員 (2014).

NTU-IMS Faculty Exchange Meeting 世話人 (2014).

第22回化学ソルベール会議, scientific secretary (2010).

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).

その他

The Netherlands Foundation for Fundamental Research on Matter, external reviewer (2013,2015).

Research Grant Council of Hong Kong, external reviewer (2012).

B-10) 競争的資金

科研費若手研究(A), 「光合成光捕獲系における電子エネルギー移動ダイナミクスとその環境適応性の分子理論」石崎章仁 (2013年–2017年).

科研費研究活動スタート支援, 「光合成エネルギー移動ダイナミクスを制御するタンパク質構造の揺らぎと変化について」石崎章仁 (2012年–2013年).

Short-term Fellowship at Wissenschaftskolleg zu Berlin, “Bridging Quanta, Molecules, and Life: Theoretical investigation of responsive and autonomous behaviors of molecular systems,” Akihito Ishizaki (2012–2013).

日本学術振興会海外特別研究員事業,「光合成複合体における超高速エネルギー移動の量子力学的機構の解明」,石崎章仁(2008年–2010年).

科研費特別研究員奨励費,「超高速非線形分光による凝縮相中分子および分子集合体の量子動力学の理論的解析」,石崎章仁(2006年–2008年).

C) 研究活動の課題と展望

2008年より開始した光合成エネルギー移動の量子ダイナミクス理論のプロジェクトも収束しつつあり,本年より有機分子結晶におけるシングレットフィッション過程の理論解析など光合成エネルギー移動の理解に基づいた分子デバイス研究へと新たな展開を試みている。また,自然科学として当面の大きな課題は光合成光捕獲系が示す環境応答性というダイナミックで自律的な分子機構を理解することにある。多重の階層を跨ぐかもしれない問題の複雑さと現在の研究グループの小ささを鑑みて,この数年は将来の詳細かつ大規模な研究への展開に備えた理論の枠組み構築に重心を置くことになる。