

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)

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

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ンは1つの一重項励起状態から2つの三重項励起状態に分裂する過程であり、ペンタセン等の有機結晶で観測されている。この現象を利用することで有機太陽電池の光電変換効率の向上が期待されるため、フィッシュンの反応速度を支配する分子機構の解明に向けて近年多くのグループによって盛んに研究されている。最近報告されたペンタセン誘導体のいくつかの超高速分光実験により、分子内振動モードが超高速のフィッシュン過程の実現に重要な役割を果たす可能性が示唆されている。しかし、従来の多くの量子力学理論による研究では、分子内振動が誘起する電子状態の揺らぎの記述はタンパク質環境、溶媒による揺らぎの記述に適切である *overdamped* ブラウン振動子モデルによって粗視化され、分子内振動の物理的描像を無視した揺らぎの記述に基づいてフィッシュンの解析が行われてきた。本研究では、分子内振動による揺らぎの記述に *underdamped* ブラウン振動子モデルを用いることで、理論モデルと分光データの整合性の取れたフィッシュン反応のモデル化を試み、分子内振動モードがフィッシュン反応のダイナミクスに与える影響について解析した。本研究の理論モデルは分光実験によるペンタセン誘導体のフィッシュン速度、温度依存性、二次元電子分光の振動コヒーレンスの寿命を再現できている。このモデルの解析によって、従来の理論研究の予測と異なりフィッシュンのダイナミクスが分子内振動モードの振動数に非常に敏感であることを示した。また、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、分子内振動の振動数の値がどのような条件のときにフィッシュンの反応速度が最適化されるかを検討した。

B-1) 学術論文

Y. FUJHASHI and A. ISHIZAKI, "Fluctuations in Electronic Energy Affecting Singlet Fission Dynamics and Mixing with Charge-Transfer State: Quantum Dynamics Study," *J. Phys. Chem. Lett.* **7**, 363–369 (2016).

Y. FUJHASHI, G. R. FLEMING and A. ISHIZAKI, "Influences of Quantum Mechanically Mixed Electronic and Vibrational Pigment States in 2D Electronic Spectra of Photosynthetic Systems: Strong Electronic Coupling Cases," *J. Chin. Chem. Soc.* **63**, 49–56 (2016). (Invited)

K. SUN, Y. FUJHASHI, A. ISHIZAKI and Y. ZHAO, "A Variational Master Equation Approach to Quantum Dynamics with Off-Diagonal Coupling in a Sub-Ohmic Environment," *J. Chem. Phys.* **144**, 204106 (8 pages) (2016).

B-2) 国際会議のプロシーディングス

T. TERAMOTO, N. H. LEWIS, T. OLIVER, A. ISHIZAKI and G. R. FLEMING, "Revealing the Excited State Dynamics of Betaine-30 Using Two-Dimensional Electronic-Vibrational Spectroscopy," *International Conference on Ultrafast Phenomena (Ultrafast Phenomena 2016)*, paper UTu4A.3 (2016).

B-4) 招待講演

石崎章仁,「Sir Martin Wood Prize Lecture: 実時間量子散逸系理論の開発とその分子系励起ダイナミクスへの展開」, 大阪大学シグマホール, 豊中市, 2016年12月.

石崎章仁,「第18回サー・マーティン・ウッド賞受賞講演: Theory of real-time quantum dissipative dynamics and its application to photosynthetic light harvesting systems」, 英国大使館大使公邸, 東京都千代田区, 2016年11月.

A. ISHIZAKI, “Interplays between quantum effects and dynamic fluctuations in photosynthetic light harvesting,” Workshop of Quantum Simulation and Quantum Walks 2016, Prague (Czech), November 2016.

A. ISHIZAKI, “Interplays between quantum effects and dynamic fluctuations in photosynthetic light harvesting and application to an organic photovoltaic system,” Indo-Japan Discussion Meeting on Frontiers in Molecular Spectroscopy: From Fundamentals to Applications on Material Science and Biology, Indian Institute of Technology Kanpur, Kanpur (India), November 2016.

石崎章仁, “Interplays between quantum effects and dynamic fluctuations in photosynthetic light harvesting,” 国立情報学研究所, 東京都千代田区, 2016年10月.

石崎章仁, “Interplays between quantum effects and dynamic fluctuations in photosynthetic light harvesting,” 理化学研究所, 和光市, 2016年9月.

石崎章仁,「光合成光捕集系におけるエネルギー移動, 電荷移動: 光学応答と量子ダイナミクス」, 第56回分子科学若手の会夏の学校, 京都大学, 京都市, 2016年8月.

A. ISHIZAKI, “Quantum dynamics in photosynthetic light harvesting,” Solar Fuel Catalyst Workshop, Seoul National University, Seoul (Korea), May 2016.

A. ISHIZAKI, “Effects of vibrational modes on 2D electronic spectra and energy transfer dynamics in photosynthetic systems,” DOE Workshop on Optimal Coherence in Chemical and Biophysical Dynamics, Washington DC (U.S.A.), April 2016.

石崎章仁,「第10回若手奨励賞受賞講演: 凝縮相量子動力学理論に基づく光合成エネルギー移動・電荷分離過程の理論研究」, 日本物理学会第71回年次大会, 東北学院大学, 仙台市, 2016年3月.

A. ISHIZAKI, “Quantum dynamics in photosynthetic light harvesting,” 7th OCARINA International Symposium, Osaka City University, Osaka (Japan), March 2016.

石崎章仁,「光合成光捕集系におけるエネルギー・電荷移動ダイナミクス: 量子動力学と光学応答」, 日立製作所中央研究所, 国分寺市, 2016年3月.

石崎章仁,「凝縮相量子ダイナミクス理論と光合成エネルギー移動・電荷分離への展開」, 奈良女子大学理学部物理学科, 奈良市, 2016年2月.

A. ISHIZAKI, “Fluctuations in electronic energy affecting singlet fission dynamics and mixing with charge-transfer state: Quantum dynamics study,” Pure and Applied Chemistry International Conference 2016 (PACCON2016), Bangkok (Thailand), February 2016.

石崎章仁,「凝縮相量子ダイナミクス理論とその光合成初期過程への展開」, “量子と生命”研究会, 大阪大学基礎工学研究科, 豊中市, 2016年2月.

B-6) 受賞, 表彰

石崎章仁, 第18回サー・マーティン・ウッド賞 (2016).

A. ISHIZAKI, The Best Article Award 2016 of Journal of the Chinese Chemical Society (2016).

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

量子科学技術研究開発機構 The 1st QST International Symposium プログラム委員 (2016–2017).

The 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).

第56回分子科学若手の会夏の学校第2分科会「凝縮相化学動力学の理論—光学応答と量子動力学」講師 (2016.8.22–25).

B-8) 大学での講義, 客員

名古屋大学大学院理学研究科, 客員教授, 2016年4月–2017年3月.

東京理科大学理学部, 特別講義「生命を支える光——光合成の物理と化学」, 2016年12月3日.

総合研究大学院大学物理科学研究科, 「理論化学」, 2016年7月.

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、昨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。