

## 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4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（2013年4月発足。分子スケールナノサイエンスセンターを改組）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（2017年4月発足。分子制御レーザー開発研究センターを改組）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す。分子機能の開発と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す。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」（2018年4月発足）は、岡崎3機関の共通研究施設として2000年に設置された岡崎統合バイオサイエンスセンターの成果をさらに発展させるべく、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。2019年度には、産学官の連携研究を推進することを目指して、「社会連携研究部門」を新設した。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する新しい試みとして「小型集積レーザーコンソーシアム」を発足させ、平等拓範特任教授に着任いただいた。2018年度から、新たな試みとして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、および、施設の高度化などを担う人材として主任研究員の2つの新しい人事システムが始まった。2019年度からは、分子研の共同利用の施設や設備の高度な利用を目指して、所外の研究機関との協定に基づき、クロスアポイントメントによる研究人事を開始した。これまでの人事制度と併せて、分子研を支える重要な人材を所に迎えることで、研究所のさらなる活性化が期待される。

## 6-1 論文発表状況

分子研では毎年 Annual Review (英文) を発刊し、これに発表した全ての学術論文のリストを記載している。

論文の発表状況

編集対象期間	ANNUAL REVIEW	原著論文の数	総説等の数
1999.9. ~ 2000.8.	2000	337	30
2000.9. ~ 2001.8.	2001	405	65
2001.9. ~ 2002.8.	2002	489	59
2002.9. ~ 2003.8.	2003	530	45
2003.9. ~ 2004.8.	2004	435	40
2004.9. ~ 2005.8.	2005	402	44
2005.9. ~ 2006.8.	2006	340	21
2006.9. ~ 2007.8.	2007	267	44
2007.9. ~ 2008.8.	2008	214	30
2008.9. ~ 2009.8.	2009	265	67
2009.9. ~ 2010.8.	2010	263	56
2010.9. ~ 2011.8.	2011	252	31
2011.9. ~ 2012.8.	2012	266	59
2012.9. ~ 2013.8.	2013	280	52
2013.9. ~ 2014.8.	2014	171	38
2014.9. ~ 2015.8.	2015	193	40
2015.9. ~ 2016.8.	2016	207	29
2016.9. ~ 2017.8.	2017	160	31
2017.9. ~ 2018.8.	2018	178	52
2018.9. ~ 2019.8.	2019	214	29

## 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（平成9年4月設立）からの改組により、平成29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平成25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タな性質と、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、平成29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兼任）、信定克幸（准教授、理論・計算分子科学研究領域からの兼任）
- (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兼任）、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兼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ーピー・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、信定准教授は平成30年1月に残念ながら逝去された。平等准教授は平成30年10月に理化学研究所（放射光科学研究センター）に、また藤准教授は平成31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、平成30年5月には杉本敏樹准教授が物質分子科学研究領域からの、また

令和元年11月には江原正博教授と南谷英美准教授が理論・計算分子科学研究領域からの併任として就任した。

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ン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ことを計画している。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視野に入れている。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）

A-1) 専門領域：ナノ光物理化学

A-2) 研究課題：

- a) 先端的な近接場分光法の開発とプラズモン物質の特性に関する研究への展開
- b) ナノ構造物質におけるキラリティと局所的な光学活性
- c) 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) 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。基本的なシステムの完成後プラズモン物質を中心にナノ光学の研究に用いてきた。光学像の横方向分解能は50nm程度である。各種形状貴金属ナノ構造体の分光及び超高速ダイナミクスの近接場分光イメージング計測を行い、プラズモンモードの波動関数の二乗振幅や微粒子周辺の増強電場のイメージング、プラズモン波束の運動の可視化等が可能であることを示した。また近接場光学活性イメージング法を開発し、金属ナノ構造の局所光学活性、キラルな光場の空間構造とその利用の研究に適用しており、これが次に述べるように現時点でのグループの主要な研究内容に発展している。
- b) キラルな構造を持つ金ナノ構造体（主に2次元構造）を電子線描画法で作製し、開発した近接場光学活性イメージング装置を用い、局所的な光学活性を測定した。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を見出し、また局所的な強い光学活性がナノ構造内の遠隔的な電磁気学相互作用で現れていること、高い対称性を持つアキラルな金属ナノ長方形構造において、巨視的な光学活性は当然現れないが、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が得られている。これらの発展として、金属ナノ構造と分子とのキラルな光学的相互作用に関する研究を開始し、国内外の幾つかの研究グループとの共同研究も実施している。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未開拓であるが、我々は高い精度・確度で顕微鏡光学活性イメージングを可能とする装置を開発し、微結晶試料、液晶、生体組織等へのその応用を、共同研究を通じて開始している。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が確認されている。
- c) 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）。この時入射光にフェムト秒レーザーパルスを用いることで、非線形誘起分極によって、従来の光トラッピングとは全く異なる挙動を示すことを、数年前に報告した。非線形効果、共鳴効果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。また光と物質のキラリティもその挙動に影響を及ぼすことが予想され、予備的な結果を得ている。この研究展開を図ることを、今後の研究の今一つの柱とする。

B-1) 学術論文

**S. HASHIYADA, T. NARUSHIMA and H. OKAMOTO**, “Active Control of Chiral Optical Near Fields on a Single Metal Nanorod,” *ACS Photonics* **6**, 677–683 (2019).

**T. YAMADA, T. EGUCHI, T. WAKIYAMA, T. NARUSHIMA, H. OKAMOTO and N. KIMIZUKA**, “Synthesis of Chiral Labtb and Visualization of Its Enantiomer Excess by Induced Circular Dichroism Imaging,” *Chem. –Eur. J.* **25**, 6698–6702 (2019).

**C. GILROY, S. HASHIYADA, K. ENDO, A. S. KARIMULLAH, L. D. BARRON, H. OKAMOTO, Y. TOGAWA and M. KADODWALA**, “Roles of Superchirality and Interference in Chiral Plasmonic Biodetection,” *J. Phys. Chem. C* **123**, 15195–15203 (2019).

**K. Q. LE and H. OKAMOTO**, “Circularly Polarized Two-Photon-Induced Luminescence from Plasmonic Two-Dimensional Chiral Au Nanostructures,” *J. Phys.: Conf. Ser.* **1220**, 012004 (4 pages) (2019).

**S. HASHIYADA, K. ENDO, T. NARUSHIMA, Y. TOGAWA and H. OKAMOTO**, “Spectral Properties of Chiral Electromagnetic Near Fields Created by Chiral Plasmonic Nanostructures,” *J. Phys.: Conf. Ser.* **1220**, 012050 (4 pages) (2019).

B-3) 総説, 著書

成島哲也, 岡本裕巳, 「円二色性によるキラル分光イメージング」, *生物物理* **59**, 035–038 (2019).

岡本裕巳, 「プラズモン共鳴のエキゾチックな時空間構造」, 「プラズモンと光圧が導くナノ物質科学——ナノ空間に閉じ込めた光で物質を制御する——」, 日本化学会編, 化学同人, pp. 48–56 (2019).

**H. OKAMOTO**, “Local Optical Activity of Nano- to Microscale Materials and Plasmons,” *J. Mater. Chem. C* **7**, 14771–14787 (2019).

B-4) 招待講演 (\* 基調講演)

橋谷田俊, 成島哲也, 岡本裕巳, 「金属ナノ構造における局在光電場のキラリティ」, レーザー学会学術講演会第39回年次大会, 東京, 2019年1月.

**T. NARUSHIMA**, “Analysis of Local Chirality with Microscopic Circular Dichroism Imaging,” The 23<sup>rd</sup> Hiroshima International Symposium on Synchrotron Radiation, Materials and Biomolecular Science using VUV-SX Synchrotron Radiation, Hiroshima (Japan), March 2019.

成島哲也, 「ホモキラリティの起源としての星間塵ナノ微粒子の可能性」, 第1043回国立天文台談話会, 東京, 2019年4月.

**H. OKAMOTO**, “Visualization of nanoscale local chirality of plasmons,” 9<sup>th</sup> International Multidisciplinary Conference on Optofluidics (IMCO2019), Hong-Kong (China), June 2019.

**T. NARUSHIMA**, “A closer look at an optical near-field on interstellar dust nanoparticles as source of homochirality,” NAOJ workshop on Connecting Fundamental Physics, Chemistry, and the Origins of Biomolecular Homochirality, National Astronomical Observatory of Japan, Tokyo (Japan), June 2019.

岡本裕巳, 「プラズモン物質における光のキラリティの局所的増強とその利用」, 第16回プラズモンニック化学シンポジウム「キラルプラズモンの基礎と展開」, 東京, 2019年6月.

**H. OKAMOTO, S. HASHIYADA and T. NARUSHIMA**, “Nanoscale imaging and control of chiral optical fields,” The 10<sup>th</sup> International Conference on Materials for Advanced Technologies (ICMAT 2019), Singapore, June 2019.

**H. OKAMOTO**, “Nanoscale Imaging and Control of Chiral Plasmons,” 10<sup>th</sup> International Conference on Metamaterials, Photonic Crystals and Plasmonics (META2019), Lisbon (Portugal), July 2019.

**H. OKAMOTO**, “Visualization of chiral plasmons and near-field interactions,” The International Symposium on Plasmonics and Nanophotonics (iSPN2019), Ikuta Shrine Hall, Kobe (Japan), November 2019.\*

**H. OKAMOTO**, “Imaging, Control, Impact of Chiral Plasmons,” Materials Research Meeting 2019, Yokohama Symposia, Yokohama (Japan), December 2019.

#### B-6) 受賞, 表彰

岡本裕巳, 光科学技術研究振興財団研究者表彰 (1994).

岡本裕巳, 分子科学研究奨励森野基金 (1999).

井村考平, 応用物理学会講演奨励賞 (2004).

井村考平, ナノオプティクス賞 (2005).

井村考平, 分子構造総合討論会奨励賞 (2005).

井村考平, 光科学技術研究振興財団研究者表彰 (2007).

井村考平, 日本化学会進歩賞 (2007).

井村考平, 日本分光学会賞(奨励賞) (2007).

原田洋介, ナノオプティクス賞 (2010).

岡本裕巳, 日本化学会学術賞 (2012).

成島哲也, Yamada Conference LXVI Best poster award (Young Scientist) (2012).

橋谷田俊, 日本光学会 OPJ ベストプレゼンテーション賞 (2013).

西山嘉男, 日本分光学会年次講演会一般講演賞 (2014).

橋谷田俊, 日本化学会第 95 春季年会学生講演賞 (2015).

橋谷田俊, 第9回分子科学討論会分子科学会優秀ポスター賞 (2015).

西山嘉男, The 3<sup>rd</sup> Optical Manipulation Conference Outstanding Award (2016).

橋谷田俊, The Best Poster Presentation Award, NFO-14 (2016).

橋谷田俊, OSJ-OSA Joint Symposia Student Award (2016).

#### B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等員

日本化学会トピックス小委員会委員 (1993–1996).

日本分光学会編集委員 (1993–2001).

日本分光学会東海支部幹事 (2001–2012).

日本化学会東海支部常任幹事 (2003–2005).

分子科学研究会事務局 (2004–2006).

分子科学会運営委員 (2006–2008).

学会の組織委員等

The International Symposium on New Developments in Ultrafast Time-Resolved Vibrational Spectroscopy (Tokyo), Organizing Committee (1995).

The Tenth International Conference on Time-Resolved Vibrational Spectroscopy (Okazaki), Local Executive Committee (2001).

The Twentieth International Conference on Raman Spectroscopy (Yokohama), Local Organizing Committee (2006).

International Workshop on Soft X-ray Raman Spectroscopy and Related Phenomena (Okazaki), Local Organizing Committee (2006).

The 12<sup>th</sup> Korea-Japan Joint Symposium on Frontiers of Molecular Science (Jeju), Co-chair (2007).

Japan-Korea Joint Symposium on Molecular Science 2009 “Chemical Dynamics in Materials and Biological Molecular Sciences” (Awaji), Co-chair, Secretary general (2009).

The 7<sup>th</sup> Asia-Pacific Conference on Near-Field Optics (Jeju), Technical Program Committee (2009).

Yamada Conference LXVI: International Conference on the Nanostructure-Enhanced Photo-Energy Conversion, Programming Committee (2012).

1<sup>st</sup> Optical Manipulation Conference, Optics & Photonics International Congress 2014, Program Committee (2014).

2<sup>nd</sup> Optical Manipulation Conference, Optics & Photonics International Congress 2015, Program Committee (2015).

3<sup>rd</sup> Optical Manipulation Conference, Optics & Photonics International Congress 2016, Program Committee (2016).

The 14<sup>th</sup> International Conference on Near-Field Optics, Nanophotonics and Related Techniques, Local Organizing Committee (2016).

4<sup>th</sup> Optical Manipulation Conference, Optics & Photonics International Congress 2017, Program Committee (2017).

The 24<sup>th</sup> Congress of the International Commission for Optics (ICO-24), Program Committee Subcommittee (2017).

The 12<sup>th</sup> International Conference on Excitonic and Photonic Processes in Condensed Matter and Nano Materials (EXCON 2018), Program Advisory Board (2018).

The International Symposium on Plasmonics and Nanophotonics (iSPN2019), International Organizing Committee (2019).

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 (2006–2007).

日本学術振興会特別研究員等審査会専門委員 (2008–2010).

日本学術振興会国際事業委員会書面審査員 (2008–2010).

文部科学省研究振興局科学研究費補助金における評価に関する委員会 (理工系委員会) 委員 (評価者) (2010–2012).

日本学術振興会学術システム研究センター専門研究員 (2013–2017).

日本学術会議連携会員 (2017–).

日本学術振興会特別研究員等審査会専門委員 (2017–2018).

学術誌編集委員

*Journal of Photochemistry and Photobiology C: Photochemistry Reviews*, Advisory Board (2012–2018).

その他

スーパーサイエンスハイスクール (愛知県立岡崎高等学校) 活動支援 (2003, 2004).

総合研究大学院大学物理科学研究科副研究科長 (2010–2012).

総合研究大学院大学物理科学研究科研究科長 (2012–2014).

分子科学研究所運営会議議長 (2014–2018).

自然科学研究機構教育研究評議員 (2016–).

## B-10) 競争的資金

- 科研費基盤研究(A),「ナノ微粒子系の波動関数と励起状態の動的挙動」, 岡本裕巳 (2006年–2010年).
- 科研費特定領域研究「光–分子強結合場」(計画研究),「近接場顕微分光に基づく光反応場の動的可視化・制御」, 岡本裕巳 (2007年–2011年).
- 科研費挑戦的萌芽研究,「ナノ円二色性イメージングの開発と分子集合体キラリティ」, 岡本裕巳 (2009年–2011年).
- 科研費基盤研究(S),「ナノドット配列における結合励起状態の時空間特性と励起場制御」, 岡本裕巳 (2010年–2015年).
- 科研費若手研究(B),「近接場光励起領域近傍の空間分解分光イメージング」, 成島哲也 (2011年–2014年).
- 二国間交流事業共同研究(英国との共同研究),「ナノフォトニック物質の光電場構造・ダイナミクス解析」, 岡本裕巳 (2012年–2014年).
- 光科学技術研究振興財団研究助成,「キラル物質に都合の良い光電場の発生とその相互作用に関する研究」, 成島哲也 (2013年–2015年).
- 科研費基盤研究(C),「局所的に発現するナノ構造の強い光学活性の実態解明と物質系との相互作用への展開」, 成島哲也 (2014年–2017年).
- 科学技術振興機構さきがけ研究,「強い局所光学活性を利用したキラル光デバイス」, 成島哲也 (2014年–2018年).
- 科研費基盤研究(A),「キラルなプラズモン励起による不斉光化学場の展開」, 岡本裕巳 (2015年–2019年).
- 科研費挑戦的萌芽研究,「金属ナノ構造に誘起される局所的円偏光電場による磁性体中の磁化制御」, 岡本裕巳 (2015年–2017年).
- 科研費特別研究員奨励費,「金ナノ構造体の強い局所光学活性によるキラル光化学反応場の開拓」, 橋谷田俊 (2015年–2017年).
- 科研費特定領域研究(計画研究),「光圧を創る: 物質自由度を活用した捜査の高度化」, 岡本裕巳 (2016年–).
- 科研費基盤研究(B),「階層を越えた物質のキラリティの3次元分析: 汎用偏光二色性分光分析イメージング」, 成島哲也 (2017年–).
- 科研費研究活動スタート支援,「対称金属ナノ構造体と直線偏光を用いた不斉分子の高感度検出」, 橋谷田俊 (2017年–2019年).
- 科研費研究活動スタート支援,「Amplification of Chiral Light-Matter Interaction Using Bottom-Up 3D Chiral Nanoparticle」, AHN, Hyo-Yong (2019年–).
- 科研費研究活動スタート支援,「円偏光磁気力顕微鏡による局所磁場観測と局所磁場による磁性ナノ粒子制御」, 山西絢介 (2019年–).

## C) 研究活動の課題と展望

近接場分光イメージングによる研究を推進し、分子研着任当初の数年間では金属ナノ構造体に関して波動関数や光電場の空間分布をイメージするという独自の研究領域を拓いた。金属ナノ構造による光の局在化や増強などの性質・機能に関する新たな情報と方法論を提供し、多くの追従研究を生んだと考えている。その後研究を次のフェーズに進め、時間分解近接場分光では、10fsレベルの時間分解能で近接場測定を実現し、金属ナノ構造の多モードコヒーレント励起後の時空間ダイナミクスのイメージングが可能となるなど、一つの山を越える段階に到達したと考えている。その更なる展開のアイデアもあるが、非常に高度な技術を要する実験であり、人員も限られる状況下では困難が大きい。今一つのベクトルとして進めているナノ物質のキラリティの研究では、金属ナノ構造の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、成果が得られるようになってきた。例として、高い円偏光度を示す発光物

質系を見出し、その起源を解明した。通常の回折光学系による(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も開始している。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も検討を開始し、一部実際の共同研究も始めた。これらとは異なる研究課題として、微粒子の光トラッピングに関わる独自の研究萌芽(非線形共鳴光トラッピング)を見出し数年前に発表した。2016年度に関連する新学術領域研究が発足したことを契機に、光圧(勾配力、散乱力)によるナノ物質・分子の力学操作に関する新たな展開を図るべく、この研究領域にも注力しており、新たな成果も出つつある段階にある。

## 広帯域相関計測解析研究部門

藤 貴 夫 (准教授) (2010年2月1日～2019年3月31日)\*)

A-1) 専門領域：量子エレクトロニクス，レーザー物理，非線形光学，超高速分光

A-2) 研究課題：超短光パルスの研究

- a) 超短光パルスの超広帯域波長変換技術を使った分光法の開発
- b) 超短光パルスの位相制御，評価の研究
- c) 赤外ファイバーレーザーの開発

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 本研究室において，2 から 20  $\mu\text{m}$  までの波長領域で位相の揃ったコヒーレントな赤外光パルスを発生する技術と，そのスペクトルを可視光領域に変換することで，単一ショットで計測できる方法を開発した。この波長領域の光は，多くの分子振動準位と共鳴しており，非破壊で分子のダイナミクスを研究するのに適している。今年度の成果としては，この手法を赤外イメージングに応用することを行った。赤外像を可視領域に変換し，高性能な可視光用ハイスピードカメラで撮影した。赤外用カメラで直接計測する場合は，3000 ショット (3s) 積算する必要があるが，可視光への波長変換によって，単一ショット (1 ms) でのイメージ撮影を実現した。
- b) 本研究室で開発された光電場波形計測技術では，赤外領域のパルスの波形を計測することを行ってきた。今年度は，可視から近赤外領域のパルスについて，波形計測を行うため，5 fs 以下の 800 nm のパルスを発生させることを行った。チタンサファイア増幅器出力を中空ファイバに入射して，600–1000 nm まで広がったスペクトルを得ることができた。そのパルスの波形を単一ショットで計測し，5 fs のパルスが出ていることを確認した。
- c) 前年度は，チャープパルス増幅を基本としたトリウム固体レーザー再生増幅器を開発し，1.4 mJ のパルスエネルギーをもった 360 fs のパルスを発生させることができた。このレーザーの出力を，YAG 結晶や偏波保持 ZBLAN ファイバに集光し，2.5–4  $\mu\text{m}$  の帯域をもった白色光を発生できた。その白色光の位相について調べたところ，再生増幅の周回数を少なくすると，コヒーレンスが高くなることがわかった。今後は，前置増幅のファイバー増幅器をもう一段増やし，コヒーレンスの高いパルスを発生させることを行う予定である。

B-1) 学術論文

S. A. REZVANI, Y. NOMURA and T. FUJI, "Generation and Characterization of Mid-Infrared Supercontinuum in Bulk YAG Pumped by Femtosecond 1937 nm Pulses from a Regenerative Amplifier," *Appl. Sci.* **9**, 3399 (10 pages) (2019).

S. A. REZVANI, Y. NOMURA, K. OGAWA and T. FUJI, "Generation and Characterization of Mid-Infrared Supercontinuum in Polarization Maintained ZBLAN Fibers," *Opt. Express* **27**, 24499–24511 (2019).

S. A. REZVANI, Y. NOMURA, K. OGAWA and T. FUJI, "White Light Generation with 2- $\mu\text{m}$  Femtosecond Pulses from a Tm:YAP Regenerative Amplifier," *レーザー研究* **47**, 644–649 (2019).

B-2) 国際会議のプロシーディングス

**S. A. REZVANI, Y. NOMURA, K. OGAWA and T. FUJI**, “Generation and characterization of polarized supercontinuum pulses from ZBLAN fibers pumped by femtosecond 2  $\mu\text{m}$  pulses from a regenerative amplifier,” *OSA Laser Congress 2019 (ASSL, LAC, LS&C)*, Ath2A.4. (2019).

**Y. NOMURA, H. MURAKOSHI and T. FUJI**, “Short-wavelength thulium-doped fiber laser for three-photon microscopy,” *OSA Laser Congress 2019 (ASSL, LAC, LS&C)*, Ath2A.7. (2019).

**S. A. REZVANI, Y. NOMURA, K. OGAWA and T. FUJI**, “Characterization of supercontinuum pulses generated using a 2 $\mu\text{m}$  thulium-based regenerative amplifier,” *2019 Conference on Lasers and Electro-Optics Europe and European Quantum Electronics Conference*, ca-11.6 (2019).

**Y. NOMURA, H. MURAKOSHI and T. FUJI**, “Ultrafast light source at 1.8  $\mu\text{m}$  based on thulium-doped fibers for three-photon microscopy,” *2019 Conference on Lasers and Electro-Optics Europe and European Quantum Electronics Conference*, cj-1.4 (2019).

**Y. NOMURA and T. FUJI**, “Ultrafast thulium-doped fiber laser system at 1.8  $\mu\text{m}$  for multiphoton microscopy,” *CLEO: Science and Innovations*, SF2L.6 (2019).

**F. KUMAKI, H. SHIRAI, Y. NOMURA and T. FUJI**, “High harmonic generation in solids driven by sub-cycle mid-infrared pulses from laser filamentation,” *EPJ Web of Conferences*, **205**, 02023 (2019).

B-3) 総説, 著書

藤 貴夫, 「サブサイクル中赤外光パルスの発生と固体物理学への応用」, *固体物理* **54**, 693–704 (2019).

B-4) 招待講演

藤 貴夫, 「フェムト秒ツリウム固体レーザー再生増幅器の開発とそれを光源とした中赤外白色光発生」, 超高速光エレクトロニクス研究会第1回研究会, 電気通信大学, 調布, 2019年9月.

**T. FUJI**, “High harmonic generation in solids driven by sub-cycle mid-infrared pulses,” *IWTAQD 21*, Nagoya (Japan), June 2019.

藤 貴夫, 「サブサイクル中赤外光パルスによる固体からの高次高調波発生」, レーザー学会学術講演会第39回年次大会, 東海大学高輪キャンパス, 東京, 2019年1月.

B-6) 受賞, 表彰

藤 貴夫, 日本光学会奨励賞 (1999).

藤 貴夫, 大阪大学近藤賞 (2008).

藤 貴夫, 野村雄高, 白井英登, レーザー学会業績賞 (進歩賞) (2015).

野村雄高, 自然科学研究機構若手研究者賞 (2016).

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

レーザー学会「ファイバーレーザー技術」専門委員会委員 (2015–2017). (野村雄高)

電子情報通信学会超高速光エレクトロニクス時限研究専門委員会第4部会副査 (2017–2018).  
電子情報通信学会超高速光エレクトロニクス時限研究専門委員会第4部会主査 (2019–).  
電子情報通信学会超高速光エレクトロニクス時限研究専門委員会第2部会副査 (2017–). (野村雄高)  
電子情報通信学会超高速光エレクトロニクス特別研究専門委員会第2部会副査 (2019–).  
レーザー学会「ファイバーレーザー技術」専門委員会幹事 (2018–).

#### 学会の組織委員等

CLEO/Europe 2007 国際会議プログラム委員 (2007).  
化学反応討論会実行委員 (2009).  
CLEO/Pacific Rim 2009 国際会議プログラム委員 (2009).  
HILAS 国際会議プログラム委員 (2011).  
CLEO/Europe 2011 国際会議プログラム委員 (2011).  
HILAS 国際会議プログラム委員 (2012).  
CLEO/Europe2013 国際会議プログラム委員 (2013).  
CLEO/Pacific Rim 2013 国際会議プログラム委員 (2013).  
HILAS 国際会議プログラム委員 (2014).  
CLEO/USA2014 国際会議プログラム委員 (2014).  
CLEO/USA2015 国際会議分科プログラム委員長 (2015–2016).  
CLEO/Europe2015 国際会議プログラム委員 (2015).  
レーザー学会学術講演会第 35 回年次大会プログラム委員 (2014–2015).  
レーザー学会学術講演会第 38 回年次大会プログラム委員 (2017–2018). (野村雄高)  
ICO24 国際会議プログラム委員 (2017).  
Ultrafast Optics 2017 国際会議プログラム委員 (2017).  
Advanced Solid State Lasers: Sources プログラム委員 (2018–). (野村雄高)  
レーザー学会学術講演会第 39 回年次大会プログラム委員, 座長 (2018–2019).

#### 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・学術審議会量子科学技術委員会・超短パルスレーザーに係るロードマップ検討グループ専門有識者 (2017–2018).

#### 学術誌編集委員

*Optics Express*, Associate Editor (2018–).

#### B-10) 競争的資金

自然科学研究機構若手研究者による分野間連携研究プロジェクト, 「プラズマを使ったフェムト秒中赤外光パルス発生の研究」, 藤 貴夫 (2010年–2011年).

科研費基盤研究(B), 「超広帯域コヒーレント中赤外光を用いた新しい分光法の開拓」, 藤 貴夫 (2012年–2014年).

自然科学研究機構若手研究者による分野間連携研究プロジェクト, 「超短中赤外パルスを用いた生細胞内分子の無染色ライブイメージング法の開発」, 藤 貴夫 (2012年).

科学技術振興事業団先端計測分析技術・機器開発プログラム要素技術タイプ,「超広帯域コヒーレント赤外分光技術の開発」,藤 貴夫 (2012年–2015年).

科研費挑戦的萌芽研究,「自己参照による光電場の直接測定」,藤 貴夫 (2014年–2016年).

科研費特別研究員奨励費,「高次高調波発生による高繰り返し極端紫外光源の開発およびその応用」,野村雄高 (2010年).

豊秋奨学会海外渡航旅費助成,「153 nmにおけるコヒーレントな高繰り返し準連続光源」,野村雄高 (2011年).

光科学技術研究振興財団研究助成,「トリウム添加ファイバーによるフェムト秒レーザーの開発」,野村雄高 (2012年–2013年).

科研費若手研究(B),「中赤外領域における高繰り返しフェムト秒パルス光源の開発」,野村雄高 (2013年–2014年).

光科学技術研究振興財団研究助成,「自己参照による光電場波形の直接計測」,藤 貴夫 (2015年–2016年).

自然科学研究機構若手研究者による分野間連携プロジェクト,「新規赤外フェムト秒レーザーによる超深部シナプス内分子活性化イメージング」,藤 貴夫 (2015年–2017年).

天田財団一般研究開発助成,「高出力 2 $\mu$ m 超短パルスレーザー光源の開発」,野村雄高 (2015年–2017年).

科学技術振興機構さきかけ研究「生命機能メカニズム解明のための光操作技術」領域,「長波長レーザーによる超深部顕微分光システムの開発」,野村雄高 (2016年–2019年).

科研費基盤研究(B),「光電場波形計測法の開発と新しい非線形光学の開拓」,藤 貴夫 (2017年–2020年).

科学技術振興機構CREST研究,「超短赤外パルス光源を用いた顕微イメージング装置の開発と生命科学への応用」,藤 貴夫 (2017年–2023年).

#### C) 研究活動の課題と展望

ファイブレーションを用いた波長変換は、気体を媒質としながらも、高効率な超短光パルスの波長変換法として有効である。この光源を使った新規分光法が評価され、CRESTのプロジェクトに採択された。この手法をさらに発展させて、分子科学のみならず、生物、医療など異分野へ応用していくことを考えている。また、本研究室で独自に開発した新しい光電場波形計測法を、可視光領域へ拡張することを試みている。赤外パルスレーザーの開発では、ファイバーレーザー出力を、固体レーザーを基本とした増幅システムで増幅し、高強度パルスを得ることができた。また、そのパルスから発生させた白色光は、再生増幅器の周回数を少なくすることで、コヒーレンスが高くなることがわかった。今後、さらに再生増幅器の性能を高め、高強度赤外光パルス発生や、赤外ハイパースペクトラルイメージング装置の開発し、様々な分野へ応用することを考えている。

\*) 2019年4月1日豊田工業大学大学院工学研究科教授

## 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、鈴木准教授）、兼任PIが7名（斉藤教授、青野教授、加藤教授、飯野教授、古賀准教授、小林准教授、正岡准教授）の計10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。

2019年度の特筆すべき研究成果として、キラル分子モーターを利用した電子スピン制御に関する研究（山本グループ）が科学雑誌「*Nature Communications*」に掲載された。その他、階層分子システム解析研究部門の秋山グループからは、「*Nature Chemical Biology*」「*International Journal of Molecular Sciences*」誌等に国内外の大学や研究機関との共同研究成果が発表され、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）

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) KaiCはシアノバクテリア概日時計システムの中核をなす時計タンパク質である。これまでの研究 (*Science* 2015, *BIOPHYSICS* 2015, *Biophys. Physicobiol.* 2016, *Sci. Rep.* 2018) を通して、

- ① KaiCのATP加水分解活性(ATPase)がシステムの発振周期(約24時間)を規定する重要な因子であること、
- ② KaiCのATPaseが抑制的制御を受けて低活性化(12 ATP d<sup>-1</sup>)かつ温度補償(温度非依存)されていること、
- ③ ATPaseの遅い時間スケールを分子システム全体に波及させる巧妙な仕組みが整備されていること、

等を明らかにしてきた。しかしながら、これら①～③を実現している構造基盤がKaiCのどこに位置しているのか依然として不明であった。そこで2019年度は、KaiCにアミノ酸置換を網羅的に導入した変異体ライブラリを作製し、そこから上記①～③の項目に影響を及ぼす時計変異体を効率的にスクリーニングする系を構築した。

変異体ライブラリを効率的に調製するための工夫として、変異体KaiCの発現および精製の手順を大幅に見直した。具体的には、発現系のスケールダウン、並列処理を指向した精製工程のブロック化、アフィニティ・タグの最適化などに取り組み、これらの相乗効果によって複数のライブラリ候補を並列かつ迅速に調製できるようになった。他方、ライブラリから時計変異体を選別するための指標であるATPase活性についても、計測手法の効率化と高感度化を実施した。これらの創意工夫により、全体として従来比10倍以上のスループットを実現し、多数の周期変異体や温度補償変異体を発見するに至った (*Int. J. Mol. Sci.* 2019)。これ以外にも、KaiCの進化系統樹に基づいたライブラリ・スクリーニング系を新たに確立した (*Int. J. Biol. Macromol.* 2019)。両スクリーニング法から得た結果をもとに、アミノ酸変異の「空間配置」と「機能への影響」の相関関係が整理され、①～③を実現している構造基盤が同定されるものと期待される。

- 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 (*Nat. Chem. Biol.* 2019, *Free Radical Biol. Med.* 2019)。

B-1) 学術論文

**D. OUYANG, Y. FURUIKE, A. MUKAIYAMA, K. ITO-MIWA, T. KONDO and S. AKIYAMA**, “Development and Optimization of Expression, Purification, and ATPase Assay of KaiC for Medium-Throughput Screening of Circadian Clock Mutants in Cyanobacteria,” *Int. J. Mol. Sci.* **20**, 2789–2800 (2019). doi: 10.3390/ijms20112789

**M. OKUMURA, K. NOI, S. KANEMURA, M. KINOSHITA, T. SAIO, Y. INOUE, T. HIKIMA, S. AKIYAMA, T. OGURA and K. INABA**, “Dynamic Assembly of Protein Disulfide Isomerase in Catalysis of Oxidative Folding,” *Nat. Chem. Biol.* **15**, 499–509 (2019). doi: 10.1038/s41589-019-0268-8

**A. MUKAIYAMA, D. OUYANG, Y. FURUIKE and S. AKIYAMA**, “KaiC from a Cyanobacterium *Gloeocapsa* sp. PCC 7428 Retains Functional and Structural Properties Required as the Core of Circadian Clock System,” *Int. J. Biol. Macromol.* **131**, 67–73 (2019). doi: 10.1016/j.ijbiomac.2019.03.051

B-4) 招待講演 (\* 基調講演)

**S. AKIYAMA**, “Keynote Lecture “Frontiers of the Intermolecular Interactions Analysis of Biomolecules promoted by BioSAS,” PF Workshop, Tsukuba (Japan), September 2019.\* (*Keynote Lecture*)

**S. AKIYAMA**, “ATPase-Based in vitro Screening for KaiC Clock Mutants in Cyanobacteria,” XVI Congress of the European Biological Rhythms Society, Lyon (France), August 2019.

**S. AKIYAMA**, “Cyanobacterial circadian clock system through the chemistry of rhythm, structure, and evolutionary diversity,” V World Congress of Chronobiology, Suzhou (China), April 2019.\* (*Keynote Lecture*)

秋山修志, “Biochemistry and Structure of Circadian Clock Protein, KaiC,” 第 92 回日本生化学会大会, パシフィコ横浜, 横浜, September 2019.

秋山修志, 「地球の自転周期がエンコードされたタンパク質, KaiC」, 第 13 回分子科学討論会, 名古屋大学, 名古屋, September 2019.

B-6) 受賞, 表彰

**S. AKIYAMA**, The Protein Society Annual Poster Board Award (2002).

**S. AKIYAMA**, 2006 SAS Young Scientist Prize (2006).

秋山修志, 日本生物物理学会若手奨励賞 (2007).

秋山修志, 平成 20 年度文部科学大臣表彰若手科学者賞 (2008).

阿部 淳, 日本生物物理学会中部支部優秀発表賞 (2014).

向山 厚, 日本時間生物学会学術大会優秀ポスター賞 (2015).

秋山修志, 日本学術振興会賞 (2016).

秋山修志, 向山 厚, 文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム平成 28 年度利用 6 大成果賞 (2017).

**D. OUYANG**, V World Congress of Chronobiology (Suzhou, China), The poster presentation award (2019).

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 (2019–2020).

日本生物物理学会委員 (2011–2014).

日本生物物理学会代議員 (2017–2018).

日本生物物理学会分野別専門委員 (2010, 2012, 2015, 2016, 2017).

日本生物物理学会中部支部長 (2013–2015).

#### 学会の組織委員等

第18回日本時間生物学会学術大会実行委員 (2011).

第12回日本蛋白質科学会年会組織委員 (2012).

第50回日本生物物理学会年会実行委員 (2012).

The Winter School of Sokendai/Asian CORE Program (Jan. 13–16, 2015), Organizer (2015).

X線溶液散乱講習会主催 (2015–).

Okazaki Conference 2017 on Grand Challenges in Small-angle Scattering, Organizer (2017).

#### 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長期利用分科会委員 (2019–).

SPring-8利用研究課題審査委員会 (2011–2018).

#### 学会誌編集委員

日本生物物理学会「生物物理」会誌編集委員 (2009–2011, 2013–2014).

日本生物物理学会「生物物理」会誌副編集委員長 (2016–2017).

日本放射光学会「放射光」会誌編集委員 (2013–2015).

日本結晶学会「日本結晶学会」会誌編集委員 (2010–2012).

#### B-10) 競争的資金

科学技術振興機構さきがけ研究, 「時間と共に離合集散を繰り返す分子機械のX線小角散乱・動的構造解析」, 秋山修志 (2005年–2009年).

科研費若手研究(B), 「異常分散・X線小角散乱を利用した無配向生体高分子の2原子間距離計測」, 秋山修志 (2007年–2010年).

科研費若手研究(A), 「時を生み出すタンパク質 KaiC における ATPase 自己抑制・温度補償機構」, 秋山修志 (2010年–2013年).

科研費挑戦的萌芽研究, 「多チャンネル・セルを用いたハイスループットX線小角散乱」, 秋山修志 (2012年–2014年).

科研費若手研究(B), 「溶液中における時計タンパク質 KaiC の動態解析」, 向山 厚 (2013年–2014年).

科研費基盤研究(B), 「時計タンパク質の固有周波数の分子科学的解明」, 秋山修志 (2013年–2015年).

科研費挑戦的萌芽研究, 「時限機能付き薬剤輸送システムの開発」, 秋山修志 (2014年–2016年).

科研費新学術領域研究(研究領域提案型), 「X線小角散乱と液中高速AFMの相補利用による分子時計の離合集散計測」, 秋山修志 (2014年–2016年).

科研費基盤研究(A), 「生物時計システムの周期と温度補償制御ロジックの構造化学的解明」, 秋山修志 (2017年–2019年).

科研費基盤研究(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」, 秋山修志 (2017年–2021年).

#### C) 研究活動の課題と展望

概日時計システムの第1の性質にあたる遅さの起源については研究の見通しが立った。第2の性質に相当する温度補償性は概日時計に共通して観察される特徴であり、概日リズムが一般的な化学振動子と区別して扱われる理由の一つでもある。化学の世界では、「遅さ」と「温度補償性」は通常相容れない現象であるが、KaiCのATP加水分解反応は極端に遅く(12 d<sup>-1</sup>)かつ温度補償制御されている(Q<sub>10</sub> = 1.0)。基盤研究(S)の計画に沿って温度依存変異体の網羅的スクリーニングや構造ベースでの設計を行い、原子スケールの情報をもとに第1と第2の性質を互いに矛盾なく説明できるモデルを構築したい。

## 古賀 信 康 (准教授) (2014 年 4 月 1 日着任)

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)  $\alpha\beta$  型タンパク質構造のデザイン：これまでに2次構造パターンと3次構造モチーフの整合性に関するルールを発見し、これらのルールを用いることで100残基以下の様々な形状の $\alpha\beta$ 型タンパク質構造のデザインに成功してきた。これらのルールがより大きなサイズのタンパク質デザインにも適用可能かどうか検証するため、100残基以上のサイズのタンパク質構造のデザインに取り組んだ。その結果、これらルールに加えて、ルールを用いて描いた主鎖構造設計図と、実際に主鎖構造を組み立てたときの全体構造との整合性、すなわち、2次構造パターン-3次構造モチーフ-全体構造の間の整合性が重要であることを明らかにした。これらを考慮して5本ストランドの $\alpha\beta$ 型タンパク質を新たにデザインし、大腸菌に組み込み発現・精製し、生化学実験により折り畳み能を調べたところ、デザインは安定な構造を形成し、NMRにより決定された構造は、計算機モデルとよく一致していた。現在は、6本ストランドの $\alpha\beta$ 型タンパク質をデザインすることで、発見したデザイン原理の有効性を検証中である。
- b)  $\alpha$ ヘリカルタンパク質構造のゼロからのデザイン：複数の $\alpha$ ヘリックスが集まった $\alpha$ ヘリカル構造は、極めて多様な構造を生み出すことができ、加えてそれらの構造は柔軟であるため、機能発現に重要な役割を果たす。そこで様々な $\alpha$ 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することで、ヘリックス同士をつなぐループに典型的なループパターンが18種存在することを明らかにした。次に、これらのループパターンを組み合わせることで、計算機上で多様な形状の $\alpha$ ヘリカル構造の構築に成功した。計算機でデザインした典型的な全てのループパターンを網羅した5つの異なる形状の $\alpha$ ヘリカルタンパク質について、折り畳み能を生化学実験により調べたところ、これらデザインしたタンパク質は安定な構造を形成していた。これまでに、そのうちの3つに対してNMR構造解析を行ったところ、計算機モデルはNMR構造とよく一致していた。今後は、多様な $\alpha$ ヘリカル構造を用いることで、機能性タンパク質のデザインを行う。また、これら5つの異なる形状のデザインとは別に、計算機で長さ70残基、形状約800種類、配列約8000種類もの大量のデザイン配列を作り出すことに成功した。今後は、これら大量のデザイン配列を折りたたみ能や機能でスクリーニングする。
- c) デザインタンパク質の安定化機構の解明：デザインしたタンパク質の多くは、100℃でも変性しないという極めて興味深い特性を有する。この異常に高い安定性は、タンパク質の主鎖を局所的に制限することによって探索すべき構造空間を小さくしたことに起因するのか、あるいは、疎水性コアパッキングのような非局所相互作用によるものなのかを、疎水性コアのLeu, IleをValに変えてパッキングを損なうことにより調べた。その結果、全部で10残基のLeu, IleをValに変えても、タンパク質は同じトポロジーへと折りたたみ、かつ、まだ100℃以上の安定性を示した

ことから、タンパク質の主鎖を望みのトポロジーに折りたたみやすいように制限することがデザインタンパク質の極度な安定性を生み出していることが示唆された。

- d) 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。続いて、生化学実験によりデザインタンパク質の ATP 結合親和性の測定を行ったが、ATP に対して高い結合親和性を示さなかった。現在は、b) でデザインした  $\alpha$  ヘリカル構造を融合してアデニン環結合部位を作ることにより、高い ATP 結合親和性を示すタンパク質設計に取り組んでいる。
- e) 自然界のタンパク質構造を改造して創るヘム結合タンパク質：ヘムを例としてこれに結合するタンパク質をデザインすることで、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った。自然界のタンパク質をベースとして、その構造に大きなポケットを持つように計算機デザインで改造し、生化学実験によりデザインタンパク質のヘム結合能を調べた。その結果、デザインはヘムに結合していることが明らかになった。現在は、結合の親和性を向上させるべく再設計を行っている。
- f) 動的機能を発現する自然界のタンパク質 F-ATPase および 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 F-ATPase および V-ATPase を改造することで、そのメカニズムに迫った。分子動力学シミュレーション、1分子観測、結晶構造解析等あらゆる手法を駆使して、構造変化のメカニズムに迫ったところ、F-ATPase の構造変化に重要な部位を特定し、V-ATPase の動的機能発現における非触媒部位のアロステリックな役割を明らかにした。
- g) 自然界に存在しないトポロジーのデザイン：簡単な理論計算では考えることができるが、自然界には現存しないトポロジーが多数あることが示唆されている。本研究では、自然界に現存しない新規トポロジーを持つタンパク質分子を創ることで、新規トポロジーは物理化学的に立体構造形成することが困難なために存在していないのか、それとも偶然生物が見つけないだけなのか、これらの謎に迫る。網羅的なタンパク質立体構造データベース検索を行い、8つの新規トポロジーを同定した。これら新規トポロジーの計算機デザイン及び生化学実験による折りたたみ能の検証を行ったところ、デザインしたタンパク質は安定な構造を形成していた。そこで、NMR 構造解析を行ったところ、計算機モデルは NMR 構造とよく一致していた。とりわけ、8つのうちの1つのトポロジーは、両端を引っ張ったときに結び目を形成するという極めて特異な構造であり、折りたたみが難しそうな自然界に現存しない新規トポロジーを持つタンパク質をも人工的に創り出すことに成功したという事実は、これら8つの新規トポロジーは偶然生物が見つけないで、あるいは、進化の過程で淘汰されたということを示唆している。
- h) 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、バイオマス糖化に重要な  $\beta$  グルコシダーゼおよび PET 製品のバイオリサイクルに重要な PET 分解酵素の耐熱化を行っている。また、デザインタンパク質が極めて安定であることを利用して、デザインタンパク質そのものを融合する手法を使って創薬ターゲットの一つである GPCR の耐熱化も行っている。

B-1) 学術論文

**S. BASAK, R. P. NOBREGA, D. TAVELLA, L. M. DEVEAU, N. KOGA, R. TATSUMI-KOGA, D. BAKER, F. MASSI and C. R. MATTHEWS**, “Networks of Electrostatic and Hydrophobic Interactions Modulate the Complex Folding Free Energy Surface of a Designed  $\beta\alpha$  Protein,” *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* **116**, 6806–6811 (2019).

**H. MURAKOSHI, H. HORIUCHI, T. KOSUGI, M. ONDA, A. SATO, N. KOGA and J. NABEKURA**, “ShadowR: A Novel Chromoprotein with Reduced Non-Specific Binding and Improved Expression in Living Cells,” *Sci. Rep.* **9**, 12072 (11 pages) (2019).

B-3) 総説, 著書

**R. KOGA and N. KOGA**, “Consistency principle for protein design,” *Biophys. Physicobiol.* **16**, 304–309 (2019).

小杉貴洋, 古賀理恵, 古賀信康, 「合理デザインによる新規タンパク質の創出: 現状とその可能性」, *実験医学*, 羊土社, **37(18)**, 11月号, 3089–3095 (2019).

B-4) 招待講演

古賀信康, 「タンパク質構造の合理的耐熱化法の開発」, ImPACT 野地プログラム最終成果報告会——人工細胞リアクタが拓くイノベーション——, 東京, 2019年3月.

古賀信康, 「タンパク質分子の合理設計: ゼロからの創成と天然物の改造」, 酵素工学研究会第81回講演会, 京都大学北部総合教育研究棟益川ホール, 京都, 2019年4月.

古賀信康, 「Generation of de novo designed protein structure library」, 沖縄科学技術大学院大学, 沖縄, 2019年7月.

古賀信康, 「合理的設計による新規タンパク質配列空間の探索」, 理化学研究所, 横浜, 2019年7月.

古賀信康, 「人工タンパク質構造ライブラリーの創出」, 第71回日本生物工学会大会シンポジウム「タンパク質工学におけるドライウエット技術融合の新展開」, 岡山, 2019年9月.

古賀信康, 「De novo design protein structure library」, 金沢大学ナノ生命科学研究所, 金沢, 2019年11月.

**T. KOSUGI**, “Design of Allosteric Site to Regulate Rotary Molecular Motor  $V_1$ -ATPase,” Frontier Bioorganization Forum 2019, KIAS, Soul (Korea), 2019年7月.

**T. KOSUGI**, “Allosteric Regulation of  $V_1$ -ATPase by Designing Walker Motif in Non-catalytic Interface,” The 2<sup>nd</sup> Tokyo ATPase Workshop, 東京大学, 東京, 2019年9月.

**S. MINAMI**, “Design of new fold proteins yet-unexplored in nature,” 分子研研究会「New Frontier in Protein Design & Engineering」, Okazaki, 2019年3月.

**N. KOBAYASHI**, “Cumulative thermostabilization of  $\beta$ -glucosidase with structure-based sequence profile information,” 分子研研究会「New Frontier in Protein Design & Engineering」, Okazaki, 2019年3月.

B-6) 受賞, 表彰

古賀信康, 第13回日本蛋白質科学会年会若手奨励賞 (2013).

古賀信康, 第51回日本生物物理学会年会若手奨励賞 (2013).

古賀信康, 分子科学研究奨励森野基金 (2018).

## B-7) 学会および社会的活動

### 学協会役員等

日本生物物理学会平成 27-29 年度分野別専門委員：タンパク質設計・ドラッグデザイン (2015-2019).

### 学会の組織委員等

分子研研究会「New Frontier in Protein Design & Engineering」(岡崎)オーガナイザー, 座長 (2019.3.15).

### その他

第 48 回若手ペプチド夏の勉強会(大学セミナーハウス(八王子))講師 (2016.7.31-8.2).

第 56 回生物物理若手の会夏の学校(支笏湖ユースホステル(千歳市))講師 (2016.9.4).

第 111 回分子科学フォーラム特別編「分子をデザインする」講師 (2017.2.3).

創価大学大学院工学研究科勉強会(創価大学大学院(東京八王子市))講師 (2017.6.30).

第 114 回国研セミナー「合理設計で探索する広大なタンパク質配列空間」(岡崎市立小豆坂小学校)講師 (2019.7.30).

情報機構「タンパク質のデザイン技術——現状と今後の展望」(東京)講師 (2019.9.13).

## B-8) 大学での講義, 客員

東京医科歯科大学,「大学院特別講義」, 2019 年 6 月 21 日.

京都大学理学部, 客員准教授,「化学特別講義 2」, 2019 年 12 月 9 日-11 日.

名古屋大学工学部,「応用物理学特論」,「応用物理学特別講義」, 2019 年 12 月 16 日-18 日.

## B-10) 競争的資金

自然科学研究機構アストロバイオロジーセンタープロジェクト研究,「地球上に存在しないトポロジーを持つタンパク質分子の合理設計」, 古賀信康 (2017 年-2019 年).

自然科学研究機構岡崎統合バイオサイエンスセンターオリオン公募研究,「創って理解するモータータンパク質の動作原理」, 古賀信康 (2016 年-2019 年).

内閣府革新的研究開発推進プログラム(ImPACT),「タンパク質構造の合理的安定化手法の開発:  $\beta$  グルコシダーゼの耐熱化」, 古賀信康 (2018 年-2019 年).

科研費若手研究(A),「改造して理解するモータータンパク質 F<sub>1</sub>-ATPase の動作原理」, 古賀信康 (2015 年-2019 年).

科学技術振興機構さきかけ研究,「細胞機能の制御・設計に向けたアロステリックタンパク質の人工設計」, 古賀信康 (2014 年-2017 年).

自然科学研究機構若手研究者による分野間連携研究プロジェクト,「世界最小蛍光タンパク質の創生——計算機科学と生体イメージングを繋ぐ——」, 小杉貴洋 (2018 年-2019 年).

## C) 研究活動の課題と展望

今年度は総勢 9 名で活動を行なった。前年度からの課題として, ①タンパク質デザイン手法を洗練させることで計算機デザインをより高速化すること, ②デザインしたタンパク質の折りたたみ能および機能発現能を, 大量かつ高速に検証する生化学実験手法を構築すること, に今年度も取り組んできた。結果として①について, ある程度手法を確立することができた。今後は②について, より注力していきたい。

## 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）

A-1) 専門領域：分子物性科学

A-2) 研究課題：

- a) 有機モットFET（FET = 電界効果トランジスタ）
- b) 有機超伝導FET
- c) カイラル伝導体によるスピン偏極デバイス

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 有機モット絶縁体  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]X (X = Cl, Br) の薄膜単結晶を用いたFETを作製し、その電気的特性を測定した。モット絶縁体中では電子間に働くクーロン反発と格子整合のために本来金属的であるべきキャリアの伝導性が極端に低い状態が実現しているが、トランジスタのゲート電界により静電キャリアドーピングが行われると実効的なクーロン反発が遮蔽されて金属的な伝導性が復活する。こうした原理による伝導性スイッチングはこれまでの半導体デバイスではほとんど使われてこなかったが、我々のグループが世界に先駆けて原理検証したものである。本年はモットFETの室温動作を目的として液晶性ドナー分子による単分子膜デバイスを作製し、さらに光反応による単分子膜の熱安定性向上を検討した。
- b) 上記モット絶縁体のモットハバードギャップを歪みや静電キャリアドーピングで小さくしていくと、低温において超伝導状態が実現することがこれまでの研究で明らかとなっている。基板からの歪みや冷却速度を制御することによって電荷ギャップを小さくしたFETあるいは電気二重層トランジスタを作製し、これにゲート電圧を印加することによって、電界誘起超伝導相とその周辺相に関する計測を行った。その結果、バンド幅とバンドフィリングをパラメーターとした時の基底状態相図において、バンドフィリングがちょうど0.5の時だけに現れる超伝導相など、これまで予想されていたものとは異なる点が多数見出された。また超伝導相近傍の異常金属相についても様々な知見を得ることができた。
- c) 有機モット絶縁体の中には、分子構造あるいは結晶構造に起因するカイラルな伝導体が存在する。また分子モーターは芳香族系の伝導性分子であるが、モーターの回転に伴って分子のカイラリティが交互に反転することが知られている。これらの伝導性とカイラリティが共存する系においては、伝導電子の運動方向に依存したスピン選択性（Chirality-Induced Spin Selectivity）が表れることが期待されるため、磁性電極を用いたスピン流検出に取り組んだ。その結果、いくつかの系で分子や結晶構造のカイラリティに由来すると思われる磁気抵抗効果を見出した。

B-1) 学術論文

**M. SUDA, Y. THATHONG, V. PROMARAK, H. KOJIMA, M. NAKAMURA, T. SHIRAOGAWA, M. EHARA and H. M. YAMAMOTO**, "Light-Driven Molecular Switch for Reconfigurable Spin Filters," *Nat. Commun.* **10**, 2455 (7 pages) (2019).

**G. KAWAGUCHI, A. A. BARDIN, M. SUDA, M. URUICHI and H. M. YAMAMOTO**, "An Ambipolar Superconducting Field-Effect Transistor Operating above Liquid Helium Temperature," *Adv. Mater.* **31**, 1805715 (6 pages) (2019).

**H. ITO, Y. EDAGAWA, J. PU, H. AKUTSU, M. SUDA, H. M. YAMAMOTO, Y. KAWASUGI, R. HARUKI, R. KUMAI and T. TAKENOBU**, “Electrolyte-Gating-Induced Metal-Like Conduction in Nonstoichiometric Organic Crystalline Semiconductors under Simultaneous Bandwidth Control,” *Phys. Status Solidi PRL* **13**, 1900162 (6 pages) (2019).

**T. CHOOPPAWA, M. SUDA, M. URUICHI, M. KUNASETH, S. NAMUANGRUK, P. RASHATASAKHON and H. M. YAMAMOTO**, “Development of Highly Soluble Perylenetetracarboxylic Diimide Derivative for n-Type Monolayer Field-Effect-Transistor,” *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **669**, 94–105 (2019).

**Y. KAWASUGI, K. SEKI, S. TAJIMA, J. PU, T. TAKENOBU, S. YUNOKI, H. M. YAMAMOTO and R. KATO**, “Two-Dimensional Ground-State Mapping of a Mott-Hubbard System in a Flexible Field-Effect Device,” *Sci. Adv.* **5**, eaav7282 (9 pages) (2019).

**D. HIROBE, M. SATO, M. HAGIHARA, Y. SHIOMI, T. MASUDA and E. SAITOH**, “Magnon Pairs and Spin Nematic Correlation in the Spin Seebeck Effect,” *Phys. Rev. Lett.* **123**, 117202 (7 pages) (2019).

B-4) 招待講演

**H. M. YAMAMOTO**, “Light-driven Molecular Switch for Reconfigurable Spin Filters,” Chirality @ The Nanoscale, Ascona (Switzerland), October 2019.

**H. M. YAMAMOTO**, “Spin Filter Driven by Molecular Motor,” 5<sup>th</sup> Japan-Thai workshop on TCC2019, Yokohama, October 2019.

**H. M. YAMAMOTO**, “Band-filling and Band-width control for  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]X embedded in field effect devices,” ISCOM2019, Tomar (Portugal), September 2019.

**H. M. YAMAMOTO**, “Light-driven molecular switch for reconfigurable spin filters,” 17<sup>th</sup> Japan-Korea Symposium on Molecular Science, Nagoya, July 2019.

**H. M. YAMAMOTO**, “Light-driven molecular switch for reconfigurable spin filters,” ANSCSE2019, Chiang Mai (Thailand), June 2019.

須田理行, 「機能性有機単分子膜を利用した固体物性の外場制御」, 第10回分子アーキテクトニクス研究会, 福岡(日本), 2019年11月.

**M. SUDA**, “Photo-control of Solid-state Electronic Properties by Interface Molecular Engineering,” Colloquium on Advanced Molecular Materials, Wako (Japan), July 2019.

**M. SUDA and H. M. YAMAMOTO**, “Light-driven Molecular Switch for Reconfigurable Spin Filters,” The 80<sup>th</sup> Okazaki Conference “Chirality-induced spin selectivity and its related phenomena,” Okazaki (Japan), May 2019.

須田理行, 「分子キラリティ制御に基づくスピン偏極電流の生成と外場制御」, 早稲田大学高等研究所「Top Runner's Lecture Collection of Science—物質の構造と対称性をもたらす電磁交差応答の最前線：マルチフェロイクスとスピントロニクス—」, 早稲田大学, 東京(日本), 2019年4月.

須田理行, 「界面光異性化分子を用いた電子物性の光制御」, 日本物理学会第74回年次大会シンポジウム「有機分子と表面の出会いがもたらす多体相関物性」, 福岡(日本), 2019年3月.

**D. HIROBE**, “Spin Seebeck Effects in One-dimensional Spin Liquids,” Spintronics Meets Topology in Quantum Materials, Santa Barbara (U.S.A.), November 2019.

#### B-5) 特許出願

特願 2019-092958,「キラリティ検出装置, キラリティ検出方法, 分離装置及び分離方法」, 戸川欣彦, 宍戸寛明, 山本浩史(大阪府立大学, 自然科学研究機構), 2019年.

特願 2019-092959,「キラル物質装置」, 戸川欣彦, 宍戸寛明, 山本浩史(大阪府立大学, 自然科学研究機構), 2019年.

#### B-6) 受賞, 表彰

**H. M. YAMAMOTO**, CrystEngComm Prize (2009).

山本浩史, 分子科学会奨励賞 (2009).

山本浩史, 理研研究奨励賞 (2010).

山本浩史, 科学研究費審査委員表彰 (2016).

山本浩史, 日本化学会学術賞 (2019).

須田理行, 分子科学討論会優秀講演賞 (2013).

須田理行, PCCP Prize (2016).

須田理行, 分子科学会奨励賞 (2016).

須田理行, 名古屋大学石田賞 (2016).

須田理行, 日本化学会進歩賞 (2017).

須田理行, 自然科学研究機構若手研究者賞 (2017).

須田理行, 分子科学研究奨励森野基金 (2017).

須田理行, 凝縮系科学賞 (2017).

須田理行, 文部科学大臣表彰 若手科学者賞 (2018).

#### B-7) 学会および社会的活動

##### 学協会役員等

物理学会領域7副代表 (2018).

物理学会領域7代表 (2019-).

日本化学会東海支部常任幹事 (2015-2016).

日本化学会プログラム編集委員幹事 (2013).

日本化学会物理化学ディビジョン幹事 (2014-2017).

分子科学会企画委員 (2012-2016), 運営委員 (2018-).

##### 学会の組織委員等

The 80<sup>th</sup> Okazaki conference 議長 (2019).

The 12<sup>th</sup> International Symposium on Crystalline Organic Metals, Superconductors and Magnets (ISCOM2017) 事務局長 (2017).

アジア科学セミナー組織委員 (2014-2015).

第13回分子科学討論会組織委員(渉外) (2018-).

MRM2019組織委員 (2018-).

文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

日本学術振興会情報科学用有機材料第 142 委員会運営委員 (2007–).

日本学術振興会情報科学用有機材料第 142 委員会 B 部会主査 (2014–2017).

学会誌編集委員

*Molecular Science* 編集委員 (2010–2011).

その他

総合研究大学院大学物理科学研究科構造分子科学専攻副専攻長 (2017).

理化学研究所研究員会議代表幹事 (2009–2010).

#### B-8) 大学での講義, 客員

東北大学大学院理学系研究科, 「強相関電子物理学特論」, 2019 年 12 月.

東北大学大学院理学系研究科, 委嘱教授, 2015 年 4 月–.

#### B-10) 競争的資金

科研費基盤研究 (A), 「有機強相関電子デバイスによる伝導性と磁性の制御」, 山本浩史 (2019 年–2022 年).

科学技術振興機構さきかけ研究「電子やイオンの能動的制御と反応」, 「スピン角運動量の能動的制御による革新的電気化学反応の創出」, 須田理行 (2019 年–2022 年).

科研費基盤研究 (B), 「有機結晶表面への光キャリア注入と光誘起二次元超伝導の創出」, 須田理行 (2019 年–2021 年).

大幸財団自然科学系学術研究助成, 「キラル分子モーター修飾ナノ粒子を利用した高スピン偏極電流の生成と外場制御」, 須田理行 (2019 年–2020 年).

科研費挑戦的研究 (萌芽), 「表面修飾ダイヤモンドにおける電界誘起超伝導の実現」, 須田理行 (2019 年–2020 年).

科研費新学術領域研究 (研究領域提案型) (公募研究), 「キラル配位子修飾金属ナノ粒子ネットワークに基づく新奇スピントロニクス素子の創出」, 須田理行 (2019 年–2020 年).

徳山科学技術振興財団研究助成, 「ポテンシャル乱れを排除した表面修飾ダイヤモンドにおける電界誘起高温超伝導の実現」, 須田理行 (2019 年).

野口遵研究助成金, 「キラル分子の利用による“磁性体と磁場を必要としない”新奇スピントロニクス素子の開発」, 須田理行 (2018 年–2019 年).

科研費新学術領域研究 (研究領域提案型) (公募研究), 「 $\pi$  電子系単分子膜 FET における歪み誘起相転移現象の探索」, 須田理行 (2017 年–2018 年).

科研費研究活動スタート支援, 「カイラル化合物による電流–スピン流相互変換」, 廣部大地 (2018 年–2020 年).

科研費基盤研究 (B), 「溶液プロセスによる二次元単分子層接合デバイスの創成」, 山本浩史 (2016 年–2018 年).

科研費若手研究 (A), 「光誘起電気二重層を利用した新奇超伝導トランジスタの開発」, 須田理行 (2016 年–2018 年).

科研費新学術領域研究 (公募研究), 「 $\pi$  電子系強相関物質を用いた歪み制御型相転移デバイスの開発」, 須田理行 (2015 年–2017 年).

科研費若手研究 (B), 「有機単分子膜モット FET の開発」, 須田理行 (2013 年–2015 年).

科学技術振興機構さきかけ研究, 「電子相関を利用した新原理有機デバイスの開発」, 山本浩史 (2009 年–2013 年).

科研費若手研究 (A), 「超分子ナノワイヤーの冗長性拡張による金属化」, 山本浩史 (2008 年–2011 年).

科研費特定領域研究(公募研究),「電極との直接反応によるDCNQIナノ単結晶作成とその機能探索」, 山本浩史 (2006年-2008年).

C) 研究活動の課題と展望

カイ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, 物性物理分野でも同じような対称性に基づく議論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。CISSはこれまで薄膜トンネルデバイスでしか観測されていない現象であるため, これがバルクになった場合にも観測可能な現象なのかどうかといった点や, 線形応答領域での計測を検証する必要がある。同時に, なぜ軽元素のみの化合物で巨大なスピン軌道相互作用が生じるのか, その詳細なメカニズムの解明にも, 理論・計算化学との共同研究によって取り組みたい。

鈴木敏泰 (准教授) (1998年1月1日～2019年3月31日)\*)

A-1) 専門領域：有機合成化学

A-2) 研究課題：

- a) ペリレン化合物のフッ素化とオプトエレクトロニクスへの応用
- b) DFT 計算による反応メカニズムの解明

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 芳香族化合物の完全フッ素化は、すべての水素をフッ素に変換するシンプルな手法であり、p 型半導体を n 型半導体に変換できる。これにより、分子量は大きく増加するが、融点、昇華温度、安定性などはあまり変化しない。また、ペンタセン ( $C_{22}H_{14}$ ) とフッ素化ペンタセン ( $C_{22}F_{14}$ ) のように、分子のサイズや対称性もよく似ている。このため、比較研究が容易で、高精度な光電子分光などを通じて、固体物性の深い理解に寄与している。本研究では、新たなターゲットとして、ペリレン化合物の完全フッ素化を目指している。今年度は、フッ素化ペリレン ( $C_{20}F_{12}$ ) の前駆体である  $C_{20}F_8(OMe)_4$ 、 $C_{20}F_8H_4$ 、 $C_{20}F_8I_4$  の合成に成功した。また、 $C_{20}F_8(OMe)_4$  および  $C_{20}F_8I_4$  については、単結晶 X 線構造解析を行うことができた。DFT 計算から予想されたように、ペリレンのナフタレン環は、フッ素原子の立体反発により 25 度から 27 度ねじれている。完全にハロゲン化された  $C_{20}F_8I_4$  では、2次元のブリック状の  $\pi$  スタックが見られ、さらにシート間ではフッ素とヨウ素間に 3.01 Å のハロゲン結合が存在する。このユニークな結晶構造が有機半導体の性能にどう影響するか興味深い。現在、所内外の物性研究者に提供すべく、収率の向上と大量合成に取り組んでいる。
- b) 最近、榎山グループはアルジミンの特異な [1,3]-転位反応を発見し、これが極めて高い不斉転写で進行することを見出した。昨年度、SMD/M06-2X-D3/6-311+G(d,p) レベルでの DFT 計算を行い、[1,3]-転位反応における二つの多段階ルートを提案した。今年度は、[3,3] シグマトロピー転位における立体化学について、詳細な DFT 計算を行った。その結果、キラルプレンステッド酸触媒による不斉転位反応において、イオン対の形成が特に重要であることがわかった。

B-1) 学術論文

**C. JONGWOHAN, Y. HONDA, T. SUZUKI, T. FUJINAMI, K. ADACHI and N. MOMIYAMA**, “Brønsted Acid-Initiated Formal [1,3]-Rearrangement Dictated by  $\beta$ -Substituted Ene-Aldimines,” *Org. Lett.* **21**, 4991–4995 (2019).

**Y. NAKAYAMA, R. TSURUTA, N. MORIYA, M. HIKASA, M. MEISSNER, T. YAMAGUCHI, Y. MIZUNO, T. SUZUKI, T. KOGANEZAWA, T. HOSOKAI, T. UEBA and S. KERA**, “Widely Dispersed Intermolecular Valence Bands of Epitaxially Grown Perfluoropentacene on Pentacene Single Crystals,” *J. Phys. Chem. Lett.* **10**, 1312–1318 (2019).

C) 研究活動の課題と展望

4月より機器センター・合成チームのチームリーダーとなり、主にナノプラット協力研究の有機合成支援を担当することとなった。今年度は、石川県警科学捜査研究所(ヒト肝ミクロソームを用いた $\alpha$ -PPPの光学活性代謝物の生成量評価)、横浜国立大学(新規触媒的不斉環化反応の開発を目指したスピロ型ビスヒドロキサム酸塩およびキラルチオキサントリウム塩の合成)、慶応義塾大学(フッ素化有機n型半導体の開発)の申請を受け入れ、楢山グループの支援の下、それぞれ期待された成果を上げることができた。また、ペリレン骨格の全ハロゲン化に成功したので、分子・物質合成プラットフォームを通じて、大学や企業の研究者にサンプルを提供していきたい。

\*) 2019年4月1日分子科学研究所機器センターチームリーダー

## 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）

A-1) 専門領域：物理化学，理論化学

A-2) 研究課題：

- a) 凝縮系反応に関する理論研究：酵素反応における構造励起状態と非平衡・動的影響
- b) 凝縮系反応に関する理論研究：不均一・動的に揺らぐ構造変化・反応の一分子解析
- c) 生体分子系の機能発現に関する理論研究：時計タンパク質 KaiC における概日リズム
- d) 生体分子系の機能発現に関する理論研究：光合成タンパク質における励起エネルギー移動
- e) 熱的物性発現・ガラス転移に関する理論研究：過冷却水の構造変化動力学

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 酵素反応は高い触媒活性と選択性を示す。酵素反応を凝縮系反応の一例として考え、cis-trans 異性化を例に如何に動力学が酵素反応に関わっているかについて解析を行っている。我々は、遷移状態と始状態と終状態を繋ぐ反応性軌道により反応動力学を解析し、始状態の平衡分布では見出すことのできない構造励起状態を経て非熱平衡かつ高速に基質の反応が進むこと等を解明した。本解析で明らかになった動的特徴は、過冷却液体などに見られる稀に起こる構造変化を想起させるものであり、それらの系や酵素反応の反応ダイナミクスの一般的特徴と考えている。
- b) 化学反応に関する研究として、凝縮系の不均一かつ動的な揺らぎの下で、構造変化や化学反応が如何に起こっているか一分子速度論の観点から解析も進めている。超長時間の分子動力学計算のデータを用い、水溶液中の BPTI タンパク質の構造変化動力学が如何に起こっているかについて解析している。また、1 価の陽イオンが選択的に透過するポリセオナミド B (pTB) におけるイオン透過機構の解明に向け、pTB の膜侵入や pTB によるイオン透過の動力学が如何に起こっているかについても解析を進めている。
- c) 生体分子系の機能発現機構に関する研究の一例として、Kai タンパク質系の概日リズムを解析している。この系の概日リズムは KaiA, KaiB, KaiC の3つのタンパク質により制御され、とくに KaiC が重要である。秋山らは、KaiC の構造を解明するとともに概日リズムの周期と ATP 加水分解能との相関を解明した。我々は、原子レベルでの ATP 加水分解反応機構の解析や素反応およびタンパク質の構造変化を考慮した数理モデルによる概日リズムの解析、KaiC の構造変化やリン酸化反応などの解析を進めている。
- d) 生体分子系の機能発現の解析として、光合成系の励起エネルギー移動 (EET) の解析を行っている。光合成系では、吸収された光エネルギーが反応中心へと効率よく伝達される。しかし、単純な系においても、その効率的 EET の分子機構は未解明である。我々は EET の解析に対し効率的な動力学計算手法を開発し、Fenna-Matthews-Olson (FMO) タンパク質の EET の解析を進めてきた。その結果、各色素の励起エネルギーに依存した揺らぎにより効率的な EET が達成されることを初めて明らかにした。
- e) 水の熱力学的性質の動的起源の解明に向け、構造変化を引き起こしやすい水素結合欠陥を特定するとともに、低温においても構造緩和が引き起こされることを解明した。さらに、低温・高温極限および調和振動子系で正しく振る舞

う量子力学的複素比熱の表式を理論仮説として導き、また、複素エントロピーの定義から振動および構造変化に由来するエントロピーを説明する理論を提案した。この結果を現実系に応用し、水では振動エントロピーが低温においても支配的であることを説明するとともに、ガラス転移に向かい比熱やエントロピー変化における動力学的起源を説明した。

#### B-1) 学術論文

**T. MORI and S. SAITO**, “Conformational Excitation and Non-Equilibrium Transition Facilitate Enzymatic Reactions: Application to Pin1 Peptidyl-Prolyl Isomerase,” *J. Phys. Chem. Lett.* **10**, 474-480 (2019).

**S. SAITO and B. BAGCHI**, “Thermodynamic Picture of Vitrification of Water through Complex Specific Heat and Entropy: A Journey through ‘No Man’s Land’,” *J. Chem. Phys.* **150**, 054502 (14 pages) (2019).

**T. L. C. JANSEN, S. SAITO, J. JEON and M. CHO**, “Theory of Coherent Two-Dimensional Vibrational Spectroscopy,” *J. Chem. Phys.* **150**, 100901 (17 pages) (2019). (Perspective)

**S. FUJIWARA, H. NAKAMURA, H. LI, H. MIYANISHI, T. MIZOGUCHI, T. YASUNAGA, T. OTSUKA, Y. HATANO and S. SAITO**, “Computational Strategy for Studying Structural Change of Tritium-Substituted Macromolecules by a Beta Decay to Helium-3,” *J. Adv. Simulat. Sci. Eng.* **6**, 94–99 (2019).

**H. LI, S. FUJIWARA, H. NAKAMURA, H. LI, T. MIZOGUCHI, T. YASUNAGA, T. OTSUKA, Y. HATANO and S. SAITO**, “Structural Changes in Tritium-Substituted Polymeric Materials by Beta Decays: A Molecular Dynamics Study,” *Plasma Fusion Res.* **14**, 3401106 (5 pages) (2019).

**S. SAITO, M. HIGASHI and G. R. FLEMING**, “Site-Dependent Fluctuations Optimize Electronic Energy Transfer in the Fenna-Matthews-Olson Protein,” *J. Phys. Chem. B* **123**, 9726–9772 (2019).

#### B-3) 総説, 著書

**M. OKUDA, M. HIGASHI, K. OHTA, S. SAITO and K. TOMINAGA**, “Vibrational Frequency Fluctuations of Ionic and Non-Ionic Vibrational Probe Molecules in Aqueous Solutions,” in *Coherent Multidimensional Spectroscopy*, M. Cho, Ed., Springer Series in Optical Sciences, Springer; Singapore, Chapter 12, pp. 259–285 (2019).

#### B-4) 招待講演

**S. SAITO**, “Supercooled water: Structure, dynamics, thermodynamics, and glass transition,” IMS symposium “Water at interfaces 2018,” Okazaki (Japan), January 2019.

**S. SAITO**, “Circadian rhythm of Kai system: A reaction model considering reactions and conformational changes,” Dynamics at the Interface of Chemistry and Biology, Bangalore (India), February 2019.

**S. SAITO**, “Supercooled water: Structure, dynamics, thermodynamics, and glass transition,” Department Seminar, Institute of Physics, National Chiao-Tung University, Hsinchu (Taiwan), May 2019.

**S. SAITO**, “Functions of biomolecular systems,” Colloquium, Institute of Physics, National Chiao-Tung University, Hsinchu (Taiwan), May 2019.

**S. SAITO**, “Excitation energy transfer in the Fenna-Matthews-Olson protein optimized by site-dependent fluctuations,” Indo-Japan workshop on “Frontiers in Molecular Spectroscopy: From Fundamentals to Applications in Chemistry and Biology,” Kobe (Japan), October–November 2019.

B-6) 受賞, 表彰

森 俊文, 分子科学会奨励賞 (2018).

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

理論化学討論会世話人会委員 (2002–2009).

日本化学会東海支部幹事 (2007–2008).

分子シミュレーション研究会幹事 (2007–2011, 2015–2019).

分子科学会運営委員 (2008–2012, 2016–).

分子科学会幹事 (2018–).

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

4<sup>th</sup> International Conference on Coherent Multidimensional Spectroscopy, Local Organizing Committee (2008).

International Symposium on Reaction Dynamics of Many-Body Chemical Systems, Chair (2009).

12<sup>th</sup> Japan-Korea Joint Symposium on Molecular Science, Local Organizing Committee (2009).

7<sup>th</sup> Congress of the International Society for Theoretical Chemical Physics, Local Organizing Committee (2011).

13<sup>th</sup> Korea-Japan Joint Symposium on Molecular Science, Co-Chair (2011).

Time Resolved Vibrational Spectroscopy 2013, Local Organizing Committee (2013).

IMS Workshop on “Hierarchical Molecular Dynamics: From Ultrafast Spectroscopy to Single Molecule Measurements,”  
Chair (2013).

14<sup>th</sup> Japan-Korea Joint Symposium on Molecular Science, Chair (2013).

1<sup>st</sup> China-Japan-Korea Tripartite Workshop on Theoretical and Computational Chemistry, Organizing Committee (2013).

2<sup>nd</sup> China-Japan-Korea Tripartite Workshop on Theoretical and Computational Chemistry, Co-Chair, Organizing Committee  
(2015).

Asia Academic Seminar 2015, Organizing Committee (2015).

3<sup>rd</sup> China-Japan-Korea Tripartite Workshop on Theoretical and Computational Chemistry, Organizing Committee (2017).

15<sup>th</sup> Korea-Japan Joint Symposium on Molecular Science, Co-Chair (2017).

2018 Annual meeting EMLG-JMLG, Local Organizing Committee (2018).

4<sup>th</sup> China-Japan-Korea Tripartite Workshop on Theoretical and Computational Chemistry, Organizing Committee (2019).

Pacificchem2020国内実行委員 (Computational and Theoretical 分野) (2017–2020).

文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

科学研究費委員会専門委員 (2006, 2014, 2015).

科学研究費助成事業評価委員会評価者 (2013, 2015).

情報学研究所運営委員会委員 (2010–2014).

核融合科学研究所外部評価委員会数値実験炉研究プロジェクト専門部会国内専門委員 (2012, 2015).

東北大学金属研究所計算材料科学センター運営委員会委員 (2015–).

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 (2016–2019).

## その他

- National Research Foundation of Korea 審査員 (2015–2017).  
European Research Council (ERC) 審査員 (2016–2017).  
National Academy of Sciences in India 評価員 (2018).  
計算物質科学人材育成コンソーシアム次世代研究者育成委員会委員 (2015–).  
計算科学研究機構人材育成タスクフォースWG 委員 (2015–).  
計算基礎科学ネットワーク拠点分子科学分野委員 (2012–).  
総合研究大学院大学全学入試監理委員会委員 (2019–).  
理化学研究所研究業績報告会アドバイザー (2019).

## B-10) 競争的資金

- 二国間交流事業日印共同研究, 「水の局所構造と水素結合ダイナミクス: 過冷却水と二成分液体」, 齊藤真司 (2018年度–2019年度).  
科研費若手研究(B), 「時計タンパク質における時空間階層運動の協奏が創る機能発現機構の理論的解明」, 甲田信一 (2018年度–2020年度).  
科研費基盤研究(C), 「酵素反応の動的機構の理論的解明」, 森 俊文 (2018年度–2020年度).  
科研費基盤研究(A), 「構造揺らぎ・構造変化に基づく生体分子の機能発現の理論的解明」, 齊藤真司 (2016年度–2020年度).  
科研費新学術領域研究(研究領域提案型)(公募研究), 「タンパク質の構造変化と化学反応が織り成す協働的な反応機構の解明」, 森 俊文 (2016年度–2017年度).  
科研費若手研究(B), 「タンパク質の動的構造と機能発現ダイナミクスの分子論的解明」, 森 俊文 (2015年度–2018年度).  
科研費研究活動スタート支援, 「天然変性タンパク質の動的構造と機能発現機構の分子論的解明」, 森 俊文 (2014年度).  
科研費基盤研究(B), 「生体分子の構造履歴ダイナミクスと機能発現の分子機構の理論的解明」, 齊藤真司 (2013年度–2015年度).  
科研費挑戦的萌芽研究, 「生体分子の構造変化に伴う状態遷移ダイナミクスの解析手法の開発とその応用」, 齊藤真司 (2011年度).  
二国間交流事業日印共同研究, 「水および水溶液の構造とダイナミクス: 理論と実験」, 齊藤真司 (2010年度–2011年度).  
科研費基盤研究(B), 「線形・非線形分光シミュレーションによる緩和および反応ダイナミクスの解明」, 齊藤真司 (2010年度–2012年度).  
科研費特定領域研究(計画研究), 「空間・時間不均一ダイナミクス理論の構築」, 齊藤真司 (2006年度–2009年度).

## C) 研究活動の課題と展望

我々は、ダイナミクスに敏感な多時間相関関数を利用し、液体の高速な揺らぎ・緩和、過冷却液体の動的不均一性、生体分子の幅広い時間スケールを持つ運動の動的結合の様相などの解析を行ってきた。揺らぎや緩和過程に関するこれらの理論研究を踏まえ、幅広い時空間スケールをもつ複雑な揺らぎの中から、とくに、遅い環境揺らぎをもつ生体分子系や(過冷却)液体等における化学反応が如何に起こり、機能・熱力学的性質が如何に生み出されるかについて、理論的解明を進めている。具体的には、生体分子系における化学反応の描像の獲得に加え、生体分子系の構造変化やイオンチャネルを例に一分子反応論の観点から凝縮系における反応の分子論的理解を目指している。また、生体分子系の機能に関する解析として、時計

タンパク質 KaiC の概日リズムの発現に関する原子・分子の微視的レベルから数理モデルを用いた巨視的レベルにいたる研究を進めている。さらに、最近、独自に開発してきた方法論を用いて FMO タンパク質における高効率な励起エネルギー移動の機構を解明した。今後、FMO タンパク質の励起エネルギー移動における振動の影響の解明を進めるとともに、高等植物における効率的励起エネルギー移動の分子機構の解明に向けた研究を進める。また、過冷却水の構造変化動力学の研究に関し、過冷却液体における揺らぎの中から如何に構造歪みが生じ構造緩和が進行するのかを解析することにより、構造欠陥と構造変化ダイナミクスの関連および過冷却液体に普遍的に見られる不均一構造変化動力学解明を目指している。

## 南谷英美 (准教授) (2019年4月1日着任)

A-1) 専門領域：計算材料学, 物性物理学

A-2) 研究課題：

- a) 固体におけるフォノン物性：電子フォノン及びフォノンフォノン相互作用
- b) 吸着分子が生み出す新奇界面磁性

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) フォノンは格子振動の量子であり、電気抵抗、超伝導体をもたらすクーパ対形成、絶縁体における熱伝導など、固体物理の各所で重要な役割を果たしている。これらの物性は、電子とフォノン、そしてフォノンとフォノンの相互作用によって決定されている。我々は特に、これらの相互作用が熱物性に与える影響に着目している。電子フォノン相互作用については、密度汎関数摂動理論を用いた相互作用強度の定量計算に加え、電子とフォノンのボルツマン方程式に基づいた、電子系からフォノン系へのエネルギー移行を追跡するためのプログラム開発を行っている。フォノンフォノン相互作用については、熱伝導率の計算に着目し、機械学習を援用することで計算時間を大幅に抑制することを目指している。フォノンフォノン相互作用の計算には、多数の変位パターン下で各原子にかかる力を計算することが必要になる。本年度は、高次元ニューラルネットワークポテンシャル (HDNNP) を用いて、微小な変位が入った Si および GaN 結晶における力を、第一原理計算と同等の精度で、かつ 800 分の 1 程度の計算時間で求められることを示した。さらに、HDNNP による熱伝導率計算が、第一原理計算を使った場合の結果を良く再現することも示した。
- b) 分子吸着が表面物性に様々な影響を与えることは、表面科学の分野では広く知られている。我々はこれまで、磁性を持った分子が吸着した際の近藤効果の発現を中心に理論的研究を進めてきた。最近では、分子吸着によって、金属基板の持つ磁性やスピン軌道相互作用に由来した電子状態を変調しうる可能性にも着目している。分子吸着に伴う界面磁性変調は *spinterface* と呼ばれ、スピントロニクス分野でも素子性能の向上や新規デバイス動作の可能性から注目されている。この分野の実験研究者と共同研究を進め、成果としてまず、鉛フタロシアニン (Pb-Phthalocyanine:PbPc) の単分子膜を Cu(111) 表面に形成した場合、スピン軌道相互作用由来の大きなバンド分裂をもった界面電子状態が現れ、スピン流を電流に変換する *inverse Edelstein* 効果が発現することを発見した。

B-1) 学術論文

**H. ISSHIKI, K. KONDOU, S. TAKIZAWA, K. SHIMOOSE, T. KAWABE, E. MINAMITANI, N. YAMAGUCHI, F. ISHII, A. SHIOTARI, Y. SUGIMOTO, S. MIWA and Y. OTANI**, "Realization of Spin-Dependent Functionality by Covering a Metal Surface with a Single Layer of Molecules," *Nano Lett.* **19**, 7119–7123 (2019).

**E. MINAMITANI, M. OGURA and S. WATANABE**, "Simulating Lattice Thermal Conductivity in Semiconducting Materials Using High-Dimensional Neural Network Potential," *Appl. Phys. Express* **12**, 095001 (5 pages) (2019).

**T. UCHIHASHI, S. YOSHIZAWA, E. MINAMITANI, S. WATANABE, Y. TAKAGI and T. YOKOYAMA**, "Persistent Superconductivity in Atomic Layer-Magnetic Molecule van der Waals Heterostructures: A Comparative Study," *Mol. Syst. Des. Eng.* **4**, 511–518 (2019).

#### B-4) 招待講演

**E. MINAMITANI**, “Computation of phonon related transport properties in semiconducting materials,” Summit of Materials Science 2019 and GIMRT User Meeting 2019, Tohoku University, Sendai (Japan), 2019年11月.

**E. MINAMITANI**, “Theory of single spin spectroscopy at surfaces: From Kondo singlet to spin-orbit interaction,” Exploring the Limits of Nanoscience with Scanning Probe Methods, Physikzentrum Bad Honnef (Germany), 2019年10月.

**E. MINAMITANI**, “Ab-initio simulation of phonon related transport phenomena: Inelastic electron tunneling spectroscopy & thermal conductivity,” Electron-phonon coupling: Computational methods for electronic transport in nanostructures and in bulk materials, Lugano (Switzerland), 2019年10月.

**E. MINAMITANI**, “Computation of Phonon Related Many-body Interactions in Semiconducting Materials,” The 17<sup>th</sup> Japan-Korea Symposium on Molecular Science, Nagoya (Japan), 2019年7月.

南谷英美, 「非弾性分光で探る表面界面の素励起: 理論的側面を中心に」, 第17回SPRING-8 ユーザー協同体顕微ナノ材料科学研究会・第14回日本表面科学会放射光表面科学研究部会・第3回プローブ顕微鏡研究部会合同シンポジウム, つくば, 2019年3月.

#### B-6) 受賞, 表彰

南谷英美, ロレアル・ユネスコ女性科学者日本奨励賞 (2008).

**E. MINAMITANI**, 6<sup>th</sup> International Symposium on Surface Science, Best Poster Awards (2011).

南谷英美, 日本物理学会若手奨励賞 (2017).

南谷英美, 分子科学研究奨励森野基金 (2018).

南谷英美, 平成31年度科学技術分野の文部科学大臣表彰 若手科学者賞 (2019).

#### B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

日本物理学会領域9領域運営委員 (2014–2015).

応用物理学会人材育成委員会委員 (2014–2015).

応用物理学会男女共同参画委員会委員 (2015–2016).

日本表面真空学会ダイバーシティ推進委員会委員 (2018–).

学会の組織委員等

22<sup>nd</sup> International Conference on Superlattices, Nanostructures and Nanodevices (ICSNN 2020), Program committee (2019–2020).

#### B-10) 競争的資金

科研費研究活動スタート支援, 「表面吸着磁性分子系における特異なスピン物性の解明」, 南谷英美 (2011年度–2012年度).

科研費若手研究(B), 「吸着分子のスピン状態解明に向けた階層的理論手法開発と近藤効果・磁気異方性への応用」, 南谷英美 (2013年度–2015年度).

科研費若手研究(B), 「スピン物性と電子相関を活用した分子素子設計のための理論手法開発」, 南谷英美 (2015年度–2016年度).

科学技術振興機構さきがけ研究,「層状物質における電子フォノン相互作用の波数・エネルギー分解第一原理解析」,南谷英美(2017年度-2020年度).

C) 研究活動の課題と展望

物質における熱の生成と伝搬は、基礎科学と応用の双方で重要な課題である。応用面では特に、半導体における定量的な熱生成・熱伝導シミュレーションが強く求められている。まずは第一原理計算と半古典描像であるボルツマン方程式を組み合わせた手法のプログラム開発を進め、半導体材料内の熱生成とその伝搬を追跡する計算技術の構築を目指す。現在の研究は主に、完全結晶を対象としているが、さらにデバイス動作で重要となる表面・界面、そして現実の物質では避けられない欠陥を含んだ系に広げることに注力する。

電子のボルツマン方程式については、バリー曲率に代表される多バンド効果を取り入れる手法が提案されている。一方で、フォノンのボルツマン方程式における多バンド効果の可能性や、温度勾配を多バンド効果にどのように取り入れるかについては、未だ不明な点が多い。ボルツマン方程式を介して、多バンド効果についての基礎理論研究と、第一原理計算による定量計算を組み合わせることで、現実物質における電磁場・歪・温度勾配を利用した、新奇な熱生成・熱伝搬の制御法の可能性を探る。

## 飯田 健二 (助教) (2013年12月1日着任)

A-1) 専門領域：量子力学，電気化学，統計力学

A-2) 研究課題：

a) ナノ界面系の光や電圧に対する応答機構の解明

A-3) 研究活動の概略と主な成果

a) 異種物質が接して構成される界面系は，電子デバイスや触媒の開発に関連して盛んに研究が行われている。近年では，二次元層状物質や金属ナノクラスターなどを用いて幾何的構造が精密に設計されるようになっており，光・電子機能に対する原子レベルの理解の深化が求められている。これまで我々は，第一原理計算プログラム SALMON を用いて，ナノサイズの界面系の光電子物性を明らかにしてきた。本年度は，実験グループと連携しつつ，近接場光を利用する光触媒や受光素子について，光学応答性の解析を進めた。また，銀ナノクラスターを酸化チタンに担持したヘテロ構造における光励起電子ダイナミクスについて，SALMON を用いて解析を行った。それにより，銀ナノクラスターから生じる光誘起電場によって，銀から酸化チタンへと電子が直接移動することを明らかにした。

B-1) 学術論文

**T. YATSUI, S. OKADA, T. TAKEMORI, T. SATO, K. SAICHI, T. OGAMOTO, S. CHIASHI, S. MARUYAMA, M. NODA, K. YABANA, K. IIDA and K. NOBUSADA**, “Enhanced Photo-Sensitivity in a Si Photodetector Using a Near-Field Assisted Excitation,” *Commun. Phys.* **2**, 62 (8 pages) (2019).

**T. YATSUI, Y. NAKAHIRA, Y. NAKAMURA, T. MORIMOTO, Y. KATO, M. YAMAMOTO, T. YOSHIDA, K. IIDA and K. NOBUSADA**, “Realization of Red Shift of Absorption Spectra Using Optical Near-Field Effect,” *Nanotechnology* **30**, 34LT02 (8 pages) (2019).

**M. NODA, K. IIDA, M. YAMAGUCHI, T. YATSUI and K. NOBUSADA**, “Direct Wave-Vector Excitation in an Indirect-Band-Gap Semiconductor of Silicon with an Optical Near-Field,” *Phys. Rev. Appl.* **11**, 044053 (7 pages) (2019).

**M. NODA, S. A. SATO, Y. HIROKAWA, M. UEMOTO, T. TAKEUCHI, S. YAMADA, A. YAMADA, Y. SHINOHARA, M. YAMAGUCHI, K. IIDA, I. FLOSS, T. OTOBE, K.-M. LEE, K. ISHIMURA, T. BOKU, G. F. BERTSCH, K. NOBUSADA and K. YABANA**, “SALMON: Scalable Ab-Initio Light-Matter Simulator for Optics and Nanoscience,” *Comput. Phys. Commun.* **235**, 356–365 (2019).

B-4) 招待講演

**K. IIDA**, “First-Principles Study of Heterostructures Consisting of Two-Dimensional Layered Materials under Light and Voltage Bias,” 17<sup>th</sup> Japan-Korea Symposium on Molecular Science “Advances in Materials and Molecular Sciences,” 愛知，名古屋，2019年7月。

**K. IIDA**, “Massively Parallel Calculations for Photoexcited Electron Dynamics in Nanostructures,” 二国間共同研究オープンセミナー「Theoretical and Computational Chemistry of Complex Systems」，愛知，岡崎，2019年7月。

B-6) 受賞, 表彰

飯田健二, 第12回分子科学会奨励賞 (2019).

B-7) 学会および社会的活動

学会の組織委員等

分子研研究会「光とナノ物質の相互作用: 分子科学の未来にむけて」世話人 (2018).

第21回理論化学討論会実行委員 (2018).

B-10) 競争的資金

科研費若手研究, 「光と印加電圧の相乗効果によって発現する薄膜とナノ粒子間の電子移動の機構解明」, 飯田健二 (2019年-2021年).

科研費基盤研究(B), 「可視プラズモニクスの新展開: 第2世代材料の学理構築」 (代表: 佐藤良太, 飯田健二 (研究分担者) (2018年-2022年).

文部科学省ポスト「京」重点課題(7)次世代の産業を支える新機能デバイス・高性能材料の創成 (代表: 矢花一浩), 「サブ課題B 光・電子融合デバイス」, 飯田健二 (研究分担者) (2018年-2019年).

科学技術振興機構 A-STEP 機能検証フェーズ試験研究タイプ, 「アイセーフ波長用高効率Si 受光センサの開発」 (代表: 八井崇), 飯田健二 (研究分担者) (2019年-2020年).

## 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) 量子散逸系の動力学理論に基づく凝縮相分子系における動的過程の理論研究
- b) 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) ヘリカル構造を持つ分子系はスピン状態に依存した電荷輸送を示すことが報告されており、カイラル誘起スピン選択 (CISS) 効果として注目を集めている。しかし、スピン選択性の起源および詳細なスピン輸送機構に関して理解が不十分なままである。特に、分子系に付随するどのような要素がスピン選択性に影響を与えるかを明らかにすることは、今後の分子スピントロニクス発展のために不可欠である。本研究課題では、量子コヒーレント伝導および分子性環境由来の古典ホッピング伝導の両過程の統一的取扱いを行うことで、CISS 効果の機構の理解を目指した理論研究を推し進めている。特に実験で観測されているスピン分極の分子長及び温度依存性と整合性を持つよう理論解析を進めている。

- b) 例えば光化学系 II 反応中心における初期電荷分離反応では、熱揺らぎ程度のエネルギー領域に複数の電子状態が存在する。しかし、既存の時間分解レーザー分光法では周波数分解能と時間分解能は Fourier 共役のトレードオフ関係にあり、その動的過程の実時間観測は困難なことが多い。本研究課題では、複雑分子系における分光学的研究への応用を念頭に、量子もつれ光を光源とする時間分解分光法の理論の構築を試みている。もつれ光子対の量子相関を利用することによりレーザーパルスなど古典光では不可能な周波数分解能と時間分解能の両立が可能となるような非線形光学応答関数の Liouville 経路を見出し、現在、分光シグナルの定式化を進めている。

さらに微小光共振器に閉じ込められた光と分子の相互作用を用いた分子系の観測と制御の理論研究も展開している。凝縮相における分子の電子励起エネルギーは気相の値から大きく変わり、また、量子ダイナミクスや化学反応ダイナミクスに大きな影響を与える。しかし、分子環境との相互作用による分光スペクトルのブロードニングのため凝縮相分子の電子励起エネルギーを正確に測定することは困難を極める。本年度は、分子系を微小光共振器に閉じ込められた光と強く結合させることにより生成される分子ポラリトンに着目し、凝縮相分子の電子励起エネルギーを正確に測定し得る手法を提案した。更に、分子ポラリトンに対する熱揺らぎの影響を調べることにより、分子ポラリトンのピーク幅と分子数を結ぶ指数スケールリングを導いた。この指数は分子環境のダイナミクスに関する情報を与えることを明らかにした。

B-1) 学術論文

**T. P. NGUYEN and A. ISHIZAKI**, "Precise Determination of Excitation Energies in Condensed-Phase Molecular Systems Based on Exciton-Polariton Measurements," *Phys. Rev. Research* **1**, 033019 (9 pages) (2019).

**T. P. NGUYEN and A. ISHIZAKI**, "Control of Quantum Dynamics of Electron Transfer in Molecular Loop Structures: Spontaneous Breaking of Chiral Symmetry under Strong Decoherence," *Phys. Rev. B* **99**, 064301 (9 pages) (2019).

B-4) 招待講演

**A. ISHIZAKI**, “Effects of dephasing upon quantum dynamical phenomena in condensed phase molecular processes,” Materials Research Meeting 2019 Materials Innovation for Sustainable Development Goals, Yokohama (Japan), December 2019.

**A. ISHIZAKI**, “Generation of pseudo-sunlight via quantum entangled photons and the interaction with molecules,” Department of Physics, University of Warwick, Coventry (U.K.), November 2019.

**A. ISHIZAKI**, “Intramolecular vibrations complement the robustness of primary charge separation in the photosystem II reaction center,” The 3<sup>rd</sup> International Solar Fuels Conference/International Conference on Artificial Photosynthesis-2019, Hiroshima (Japan), November 2019.

**A. ISHIZAKI**, “Generation of pseudo-sunlight via quantum entangled photons and the interaction with molecules,” Workshop on Biological Sensing and its Application, Keio University, Tokyo (Japan), October 2019.

**Y. FUJHASHI and A. ISHIZAKI**, “Intramolecular vibrations complement the robustness of primary charge separation in the photosystem II reaction center,” BIRS Workshop Charge and Energy Transfer Processes: Open Problems in Open Quantum Systems (19w5016), Alberta (Canada), August 2019.

石崎章仁, 「量子と古典のはざままで——分子系における量子散逸系とそのダイナミクス」, 東京大学先進科学研究機構, 東京都目黒区, 2019年7月.

**A. ISHIZAKI**, “Effects of dephasing upon quantum dynamical phenomena in condensed phase molecular processes,” the 23<sup>rd</sup> International Annual Symposium on Computational Science and Engineering, Chiang Mai University, Chiang Mai (Thailand), June 2019.

**A. ISHIZAKI**, “Generation of pseudo-sunlight via quantum entangled photons and the interaction with molecules,” Workshop on Quantum Noise and Quantum Environments, RIKEN, Wako (Japan), June 2019.

B-6) 受賞, 表彰

石崎章仁, 平成 29 年度科学技術分野の文部科学大臣表彰 若手科学者賞 (2017).

**G. SCHLAU-COHEN, A. ISHIZAKI and M. JOHNSON**, Young Investigator Grant 2017 from Human Frontier Science Program (2017).

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).

**A. ISHIZAKI**, Short-term Fellowship at Wissenschaftskolleg zu Berlin (2012).

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

日本物理学会領域 12 領域運営委員 (2017–2018).

日本化学会東海支部常任幹事 (2017–2018).

学会の組織委員等

日本学術振興会第 3 回日英先端科学シンポジウム企画委員 (2019).

The 1<sup>st</sup> QST International Symposium プログラム委員 (2016–2017).

The 45<sup>th</sup> 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

科学技術振興機構さきかけ研究「量子技術を適用した生命科学基盤の創出」領域, 「時間分解量子もつれ分光法: 理論基盤の構築と生体分子系への応用」, 藤橋裕太 (2019年-2023年).

科研費若手研究, 「Theoretical study of nonlinear optical responses of ultracold atomic systems: towards a high-resolution coherent multidimensional spectroscopy investigation of quantum many-body effects」, NGUYEN, Thanh Phuc (2019年-2022年).

科研費基盤研究(B), 「光合成初期過程の効率性と恒常性を制御する電荷分離・再結合反応の理論研究」, 石崎章仁 (2017年-2021年).

Human Frontier Science Program, Young Investigator Grant 2017 “Regulation of photosynthetic light harvesting: how does protein conformation control photophysics?” G. Schlau-Cohen, M. Johnson and A. Ishizaki (2017年-2020年).

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).

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).

#### 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)

A-1) 専門領域：量子化学，理論化学，理論触媒化学，光物性科学

A-2) 研究課題：

- a) 光学物性に関する分子集合体の理論的逆設計法の開発と応用
- b) 単層カーボンナノチューブの化学修飾による量子欠損の生成と近赤外発光波長制御
- c) Pt 発光錯体の熱耐性燐光発光制御：芳香族性および  $\pi$  共役構造と発光性能の相関
- d) 多配置電子相関理論に基づく電子共鳴状態理論の開発と電子付加結合解離系への応用
- e) 担持白金サブナノクラスターの構造と酸素還元反応に対する高い触媒活性の要因
- f) 金属微粒子触媒の理論解析：低温 NO 還元反応の反応機構および金属ナノ粒子の系統的分類
- g) ロジウムナノシートによる CO-NO 反応の高い触媒活性の解明

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 分子集合体の光学物性は、分子組成と集合体の構造により大きく変化することが知られており、新奇光学物質の開発を目指して、様々な分子集合体が開発されている。研究開発においては、光機能-構造の関係の解明と設計指針が必要とされる。本年度、光学物性の計算の逆問題に基づく光機能性分子集合体の設計法を開発した。本方法は、候補分子集合体を表すハミルトニアンを導入し、全探索が困難である莫大な候補分子集合体群において最適化による合理的かつ効率的な設計を可能にした。この方法を複数の候補分子種と候補空間配置をもつ一次元分子集合体の設計に適用し、強い光吸収・円二色性 (CD) をもつ集合体の分子組成・構造を提案した。また、適切な分子集合体の設計・形成と構成分子数の増大により、非線形的に CD を増大可能であることを明らかにした。高い光機能を得るために設計法による提案と精密な分子種・分子配向制御が重要であることを示した。
- b) 単層カーボンナノチューブ (SWCNT) では、化学修飾による分子変換および発光性量子欠陥が注目されている。実験と協力し、SWCNT の化学修飾による量子欠損の生成と近赤外発光の波長制御を研究した。第 1 - 第 3 世代のデンドロンを置換基に用い、置換基の立体効果によって付加位置を制御し、発光特性を制御することに成功した。また、分岐・環状アルキル基の化学修飾による付加位置制御および熱処理による発光波長制御にも成功し、その制御機構を理論計算によって明らかにした。さらに様々な径とカイラル指数の SWCNT(m,n) の系統的な理論計算を実施し、局所的 Clar 構造の六員環が最大数になるように置換され、発光波長を理論予測できることを見出した。この基礎原理に基づいて、径の異なる SWCNT の近赤外領域の発光波長制御が可能であることを示した。
- c) ヘテロ環状配位子を有する Pt, Ir 錯体は、金属-配位子電荷移動励起状態 ( $^3\text{MLCT}$ ) から強い燐光発光を示す。本研究では、*trans*-Bis[(b-iminomethyl)aryloxy]Pt(II) 分子群を設計・合成し、77 K の低温において高い量子収率で強い燐光発光を示すことを見出した。一部の錯体では高温で消光するが、無輻射失活は  $^3\text{MLCT}$  の反応面から最低エネルギー交差点 (MECP) を経由して基底状態に緩和することを理論的に明らかにした。さらに燐光発光の熱耐性は、 $^3\text{MLCT}$  の安定構造と MECP のエネルギー差に相関していることを示した。また、MECP の相対エネルギー位置は、MECP 近傍で Pt  $d\sigma^*$  軌道が配位子の  $\pi^*$  軌道と相互作用する強さによることを明らかにし、配位子のヘテロ環の芳香族性により制御できることを示した。

- d) 共鳴状態は準安定状態であり、電子状態では準安定アニオン、多価イオン、内殻ホール状態がある。我々は、電子共鳴状態の計算法として独自の射影型 CAP/SAC-CI 法や ACCC SAC-CI 法を開発し、任意の形状の分子に適用できるポロノイ・ポテンシャルを開発した。本年度は、多配置電子相関理論である XMS-CASPT2 法に複素吸収ポテンシャルを導入し、多配置性が重要となる結合解離領域やフェッシュバッハ共鳴に適用できる CAP/XMS-CASPT2 法を開発・実装した。この方法を  $\text{H}_2\text{CO}$  分子や  $\text{CH}_2\text{CH-Cl}$  分子の結合解離、 $\text{N}_2$  分子の結合解離に適用し、方法の信頼性と有効性を検証した。 $\text{CH}_2\text{CH-Cl}$  系では、電子付加共鳴状態  $\pi^*$  から  $\sigma^*$  へと緩和し、C-Cl 結合解離が誘起される反応経路を明らかにした。
- e) 燃料電池には白金が利用されているが、白金は希少元素であり、使用量の低減が求められている。特に、正極における酸素還元反応 (ORR) において、高活性な白金ナノクラスターの電極触媒への利用が期待されている。慶應義塾大学・中嶋グループでは独自のパルスマグネトロンスパッタリング法により、原子数が数個から数百個のナノクラスターを固体基板上に担持させる方法を開発し、確立している。最近、この手法を用いて、担持白金 6 量体が現行の白金標準触媒に比べて ORR が 1.7 倍程度高い質量活性を示すことを見出した。本研究では、グラフェン担持白金 6 量体の局所安定構造を DFT 計算によって精査し、EXAFS の計測結果と比較することにより、6 量体の構造が双四面体構造であることを明らかにした。さらに白金 6 量体の d 軌道エネルギーレベルや電荷分布から白金サブナノクラスターの触媒活性の起源を議論した。
- f) 三元触媒の研究開発では、希少元素である PGM 元素の低減やユビキタス元素への転換が期待されている。NO 還元反応は特に重要であり、様々な担持微粒子触媒が検討されている。我々は、銅元素に着目した研究開発を実施している。Cu クラスターでは、NO-CO 反応において低温では NO の二酸化が起こり、 $\text{N}_2\text{O}$  を経由する反応機構が進行することを提案した。さらに Ru, Rh, Pd, Ag クラスターについて、金属クラスター ( $\text{M}_{13}$ ,  $\text{M}_{55}$ ) の理論計算モデルを用いて検討し、 $\text{M} = \text{Ru}, \text{Rh}$  では NO の吸着解離が起こり、原子状 N から反応が進行すること、 $\text{M} = \text{Pd}$  では NO の分子状吸着が起こること、 $\text{M} = \text{Ag}$  では NO の二酸化から反応が進行することを明らかにした。またこれらの反応機構が金属の d 軌道と s 軌道のエネルギーレベルと相関すること、金属の電子構造で分類されることを示した。
- g) Rh は三元触媒に実装されており、高活性であるが希少元素であり、その減量が望まれている。最近、熊本大・町田グループの独自のアークプラズマ法により、Rh ナノシートが Rh ナノ粒子よりも NO 還元反応で高い触媒活性を示すことを見出され、Rh の大幅な減量の方法が開発された。本研究では、第一原理分子動力学シミュレーションの遷移状態探索により、NO 還元反応について Rh ナノシートと Rh ナノ粒子の触媒活性について比較・検討した。Rh<sub>55</sub> クラスター (1 nm 程度の直径) では、構造を柔軟に緩和できるために N 原子の配置に合わせて構造が歪み、中間体を安定化し、エネルギー障壁が高くなることを明らかにした。一方、Rh(111) 面のナノシートは剛直な形状を持ち、N 原子のホッピングが容易になり、安定な中間体を生成しないことから、Rh ナノ粒子よりも高活性であることを明らかにした。

#### B-1) 学術論文

**Y. MAEDA, H. MURAKOSHI, H. TAMBO, P. ZHAO, K. KURODA, M. YAMADA, X. ZHAO, S. NAGASE and M. EHARA,** “Thermodynamic Control of Quantum Defects on Single-Walled Carbon Nanotubes,” *Chem. Commun.* **55**, 13757–13760 (2019).

**Y.-X. ZHAO, M.-Y. LI, P. ZHAO, M. EHARA and X. ZHAO,** “New Insight into  $\text{U}@C_{80}$ : Missing  $\text{U}@D_3(31921)-C_{80}$  and Nuanced Enantiomers of  $\text{U}@C_1(28324)-C_{80}$ ,” *Inorg. Chem.* **58**, 14159–14166 (2019).

- H. TSUNOYAMA, A. OHNUMA, K. TAKAHASHI, A. VELLOTH, M. EHARA, N. ICHIKUNI, M. TABUCHI and A. NAKAJIMA**, “Enhanced Oxygen Reduction Activity of Platinum Subnanocluster Catalysts through Charge Redistribution,” *Chem. Commun.* **55**, 12603–12606 (2019).
- S. HU, W. SHEN, P. ZHAO, T. XU, Z. SLANINA, M. EHARA, X. ZHAO, Y. XIE, T. AKASAKA and X. LU**, “Crystallographic Characterization of  $\text{Er}_2\text{C}_2@C_2(43)\text{-C}_{90}$ ,  $\text{Er}_2\text{C}_2@C_2(40)\text{-C}_{90}$ ,  $\text{Er}_2\text{C}_2@C_2(44)\text{-C}_{90}$ , and  $\text{Er}_2\text{C}_2@C_1(21)\text{-C}_{90}$ : The Role of Cage-Shape on Cluster Configuration,” *Nanoscale* **11**, 17319–17326 (2019).
- Y.-X. ZHAO, M.-Y. LI, R.-S. ZHAO, K. YUAN, P. ZHAO, M. EHARA, S. NAGASE and X. ZHAO**, “Pivotal Role of Nonmetal Atoms in the Stabilities, Geometries, Electronic Structures, and Isoelectronic Chemistry of  $\text{Sc}_3\text{X}@C_{80}$  (X = C, N and O),” *J. Comput. Chem.* **40**, 2730–2738 (2019).
- Y.-X. ZHAO, K. YUAN, M.-Y. LI, M. EHARA and X. ZHAO**, “In-Depth Theoretical Probe into Novel Mixed-Metal Uranium-Based Endohedral Clusterfullerenes  $\text{Sc}_2\text{UX}@I_h(31924)\text{-C}_{80}$  (X = C, N),” *Inorg. Chem.* **58**, 10769–10777 (2019).
- N. TAKAGI, K. ISHIMURA, R. FUKUDA, M. EHARA and S. SAKAKI**, “Reaction Behavior of NO Molecule on Surface of  $\text{M}_n$  Particle (M = Ru, Rh, Pd, and Ag;  $n = 13$  and 55): Theoretical Study of Its Dependence on Transition-Metal Element,” *J. Phys. Chem. A* **123**, 7021–7033 (2019).
- P. ZHAO, Y. MAEDA and M. EHARA**, “Theoretical Insight into Configurational Selectivity of Functionalized Single-Walled Carbon Nanotubes Based on Clar Sextet Theory,” *J. Phys. Chem. C* **123**, 18629–18637 (2019).
- S. KINOSHITA, Y. INOKUCHI, Y. ONITSUKA, H. KOHGUCHI, N. AKAI, T. SHIRAOGAWA, M. EHARA, K. YAMAZAKI, Y. HARABUCHI, S. MAEDA and T. EBATA**, “The Direct Observation of the Doorway  $^1n\pi^*$  State of Methylcinnamate and Hydrogen-Bonding Effects on the Photochemistry of Cinnamate-Based Sunscreens,” *Phys. Chem. Chem. Phys.* **21**, 19755–19763 (2019).
- S. HU, P. ZHAO, W. SHEN, P. YU, W. HUANG, M. EHARA, Y. XIE, T. AKASAKA and X. LU**, “Crystallographic Characterization of  $\text{Er}_3\text{N}@C_{2n}$  ( $2n = 80, 82, 84, 88$ ): The Importance of a Planar  $\text{Er}_3\text{N}$  Cluster,” *Nanoscale* **11**, 13415–13422 (2019).
- M. SUDA, Y. THATHONG, V. PROMARAK, H. KOJIMA, M. NAKAMURA, T. SHIRAOGAWA, M. EHARA and H. M. YAMAMOTO**, “Light-Driven Molecular Switch for Reconfigurable Spin Filters,” *Nat. Commun.* **10**, 2455 (7 pages) (2019).
- Y. MAEDA, K. KURODA, H. TAMBO, H. MURAKOSHI, Y. KONNO, M. YAMADA, P. ZHAO, X. ZHAO, S. NAGASE and M. EHARA**, “Influence of Local Strain Caused by Cycloaddition on the Band Gap Control of Functionalized Single-Walled Carbon Nanotubes,” *RSC Adv.* **9**, 13998–14003 (2019).
- G. HAMASAKA, H. TSUJI, M. EHARA and Y. UOZUMI**, “Mechanistic Insight into the Catalytic Hydrogenation of Nonactivated Aldehydes with a Hantzsch Ester in the Presence of a Series of Organoboranes: NMR and DFT Studies,” *RSC Adv.* **9**, 10201–10210 (2019).
- T. SHIRAOGAWA and M. EHARA**, “Theoretical Study on the Optical Properties of Multichromophoric Systems Based on an Exciton Approach: Modification Guidelines,” *ChemPhotoChem* **3**, 707–718 (2019). (Front Cover)
- H. YOSHIDA, K. KOIZUMI, M. BOERO, M. EHARA, S. MISUMI, A. MATSUMOTO, Y. KUZUHARA, T. SATO, J. OHYAMA and M. MACHIDA**, “High Turnover Frequency CO–NO Reactions over Rh Overlayer Catalysts: A Comparative Study Using Rh Nanoparticles,” *J. Phys. Chem. C* **123**, 6080–6089 (2019).

**N. TAKAGI, K. ISHIMURA, H. MIURA, T. SHISHIDO, R. FUKUDA, M. EHARA and S. SAKAKI**, “Catalysis of Cu Cluster for NO Reduction by CO: Theoretical Insight into the Reaction Mechanism,” *ACS Omega* **4**, 2596–2609 (2019).

**R. INOUE, M. NAITO, M. EHARA and T. NAOTA**, “Heat-Resistant Properties in the Phosphorescence of Trans-Bis[ $\beta$ -(Iminomethyl)Aryloxy] Platinum(II) Complexes: Effect of Aromaticity on d- $\pi$  Conjugation Platforms,” *Chem. –Eur. J.* **25**, 3650–3661 (2019).

**M. EHARA and U. DEVA PRIYAKUMAR**, “Gold-Palladium Nanocluster Catalysts for Homocoupling: Electronic Structure and Interface Dynamics,” *Chem. Rec.* **19**, 947–959 (2019).

**S. M. A. H. SIDDIKI, M. N. RASHED, M. A. ALI, T. TOYAO, P. HIRUNSIT, M. EHARA and K. SHIMIZU**, “Lewis Acid Catalysis of Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> for Reactions of Carboxylic Acid Derivatives in the Presence of Basic Inhibitors,” *ChemCatChem* **11**, 383–396 (2019).

**N. TAKAGI, M. NAKAGAKI, K. ISHIMURA, R. FUKUDA, M. EHARA and S. SAKAKI**, “Electronic Processes in NO Dimerization on Ag and Cu Clusters: DFT and MRMP2 Studies,” *J. Comput. Chem.* **40**, 181–190 (2019). (Festschrift for Prof. Keiji Morokuma)

**T. SHIRAOGAWA, G. CANDEL, R. FUKUDA, I. CIOFINI, C. ADAMO, A. OKAMOTO and M. EHARA**, “Photophysical Properties of Fluorescent Imaging Biological Probes of Nucleic Acids: SAC-CI and TD-DFT Study,” *J. Comput. Chem.* **40**, 127–134 (2019). (Festschrift for Prof. Keiji Morokuma)

B-3) 総説, 著書

**M. EHARA and Y. MORISAWA**, “Theoretical and Experimental Molecular Spectroscopy of Far-Ultraviolet Region,” in *Molecular Spectroscopy: A Quantum Chemistry Approach*, Y. Ozaki, M. J. Wojcik and J. Popp, Eds., Wiley, pp. 119–145 (2019).

前田 優, 山田道夫, 江原正博, 「化学修飾によるカーボンナノチューブの機能化と評価」, “Chemical Functionalization and Characterization of Carbon Nanotube,” *炭素* **290**, 183–194 (2019).

高木 望, 福田良一, 江原正博, 榎 茂好, 「コアシェル型複合金属クラスターの安定性と電子状態:理論的アプローチ」, *J. Comput. Chem., Japan*, 特集号「触媒・電池の元素戦略研究:理論計算化学からのアプローチ」, **18**, 38–48 (2019).

B-4) 招待講演

**T. SHIRAOGAWA and M. EHARA**, “Theoretical Design of Photofunctional Molecular Aggregates for Chiroptical Properties: An Inverse Design Approach,” International Symposium on Circularly Polarized Luminescence and the Related Phenomena, Tokyo (Japan), December 2019.

**M. EHARA**, “Reaction and Dynamics at Interface Region of Condensed-Phase Au-Pd Nanocluster Catalysts,” Japan-India Mini Workshop, Kobe (Japan), October 2019.

**M. EHARA**, “Coordination Asymmetry: Frenkel-Exciton Decomposition Analysis of Circular Dichroism and Circularly Polarized Luminescence for Multichromophoric Systems,” The 9<sup>th</sup> Conference of the Asia-Pacific Association of Theoretical and Computational Chemists (APATCC 2019), Sydney (Australia), September 2019.

**M. EHARA**, “Theoretical Approaches for Coordination Asymmetry: Photoreaction in MMF and Chiroptical Spectroscopy,” Combination of Theoretical/Computational Studies and Experiments toward Porous Coordination Polymers/ Metal Organic Frameworks, Oslo (Norway), August 2019.

M. EHARA, "Frenkel-Exciton Decomposition Analysis of Circular Dichroism and Circularly Polarized Luminescence for Multichromophoric Systems," Pure and Applied Chemistry International Conference 2019 (PACCON 2019), Bangkok (Thailand), February 2019.

江原正博,「合金微粒子触媒の構造と機能に関する理論研究」,触媒学会若手会第40回夏の研修会,愛知,田原,2019年7月.

#### B-6) 受賞, 表彰

江原正博, APATCC (Asia-Pacific Association of Theoretical & Computational Chemists) Pople Medal (2009).

江原正博, QSCP (Quantum Systems in Chemistry and Physics) Promising Scientist Award of CMOA (Centre de Mecanique Ondulatoire Appliquee) (2009).

江原正博, 特別研究員等審査会専門委員及び国際事業委員会書面審査員表彰 (2018).

白男川貴史, 第22回理論化学討論会最優秀ポスター賞 (2019).

白男川貴史, 第13回分子科学討論会優秀ポスター賞 (2019).

#### B-7) 学会および社会的活動

##### 学協会役員等

近畿化学協会幹事 (2007–2013).

日本化学会東海支部常任幹事 (2011–2012, 2015).

日本化学会東海支部会計幹事 (2016).

日本化学会学術賞・進歩賞選考委員会分野別選考委員(複合領域) (2017–2018).

触媒学会元素戦略研究会世話人会委員 (2013–).

触媒学会界面分子変換研究会世話人会委員 (2015–).

触媒学会コンピュータの利用研究会世話人会委員 (2018–).

理論化学研究会世話人会委員 (2018–2019).

理論化学会幹事 (2019–).

##### 学会の組織委員等

XII<sup>th</sup> International Congress of Quantum Chemistry, Kyoto, Japan, Local Committee Member (2006).

VII<sup>th</sup> Congress of International Society for Theoretical Chemical Physics, Organization Committee (2008).

第3回分子科学討論会実行委員 (2009).

The V<sup>th</sup> Japan-Czech-Slovakia (JCS) Symposium on Theoretical Chemistry, Nara, Japan, Vice President, Organization Committee (2012–2013).

Charge Transfer Modeling in Chemistry: New Methods and Solutions for a Long-Standing Problem, Paris, France, Organization Committee (2014–2015).

Pacificchem 2015: Symposium (#277) Interplay between Theory and Experiment in Catalytic Research, Corresponding Symposium Organizer (2014–2015).

Japan-France-Spain Joint-Symposium on Theoretical and Computational Science of Complex Systems, Local Committee (2016).

分子研研究会「触媒の分子科学：理論と実験のインタープレイ最前線」所内対応 (2016).

第 33 回化学反応討論会 2017 実行委員 (2016–2017).

The VII<sup>th</sup> Japan-Czech-Slovakia (JCS) Symposium on Theoretical Chemistry, Prague, Czech, Organization Committee (2017–2018).

The 21<sup>st</sup> International Annual Symposium on Computational Science and Engineering, International Advisory Board (2017).

分子研研究会「電池の分子科学：理論と実験のインタープレイ最前線」所内対応 (2018).

第 21 回理論化学討論会実行委員 (2018).

第 13 回分子科学討論会実行委員，副実行委員長 (2018–2019).

Pacificchem 2020: Symposium (#393) Triangle of Heterogeneous Catalysis, Surface Science, and Theory, Corresponding Symposium Organizer (2018–2020).

The V<sup>th</sup> Theory and Applications of Computational Chemistry (TACC) Conference, Sapporo, Japan, Organizing Committee (2019–2020).

The VIII<sup>th</sup> Japan-Czech-Slovakia (JCS) Symposium on Theoretical Chemistry, Sapporo, Japan, Organization Committee (2019–2020).

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 (2012–2013).

日本学術振興会特別研究員等審査会専門委員 (2016–2017).

日本学術振興会国際事業委員会書面審査員・書面評価員 (2016–2017).

日本学術振興会卓越研究員候補者選考委員会書面審査員 (2016–2017).

日本学術振興会外国人特別研究員(一般)書面審査員 (2017–2018).

科学技術振興機構 (JST) 専門評価委員 (2017).

学会誌編集委員

*Journal of Computational Chemistry*, Editor (2012–).

*Theoretical Chemistry Accounts*, Editorial Board (2015–).

*Theoretical Chemistry Accounts*, Special Issue of Charge Transfer Modeling in Chemistry, Guest Editor (2015–2016).

*The Chemical Record*, Editorial Board (2015–).

*The Chemical Record*, Special Issue of “Challenges in Catalysis: From Theory to Experiment,” Guest Editor (2015–2016).

*The Chemical Record*, Special Issue of “Next Generation Li and Na Rechargeable Batteries,” Guest Editor (2017–2018).

*Journal of Computational Chemistry Japan*, Special Issue of “Element Strategy for Catalysts and Batteries: Approach from Theoretical and Computational Chemistry,” Guest Editor (2018–2019).

その他

元素戦略プロジェクト「実験と理論計算科学のインタープレイによる触媒・電池の元素戦略研究拠点」電子論グループ・リーダー (2012–2021).

次世代スパコン戦略プログラム「計算物質科学イニシアティブ」CMSI 運営委員会委員，企画室会議委員，第3部会小委員会委員 (2011–2015).

シミュレーションによる「自然科学における階層と全体」連携研究委員会委員 (2016–).

量子化学スクール世話人 (2011–).

計算物質科学人材育成コンソーシアムイノベーション創出人材育成委員会委員 (2015–).

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-).  
計算物質科学協議会準備委員会委員 (2019-).  
次世代ナノ統合シミュレーションソフトウェアの研究開発ナノ統合ソフト担当 (2008-2011).  
総合研究大学院大学物理科学コース別教育プログラム運営委員 (2016-).  
物質機能の解明・開拓先端研究統合教育プログラムWG 委員 (2016-).

#### B-8) 大学での講義, 客員

総合研究大学院大学物理科学研究科,「基礎理論化学」,2019年7月4日-5日,9日-10日.  
総合研究大学院大学物理科学研究科,分光学基礎コース,2019年3月11日-13日.  
大阪大学大学院工学研究科,非常勤講師,2008年-2019年,集中講義「計算機化学」,2019年4月25日-26日.  
京都大学実験と理論計算科学のインタープレイによる触媒・電池の元素戦略研究拠点ユニット,拠点教授,2012年9月-.  
北海道大学触媒研究所,招へい教員,2018年4月-2019年3月.

#### B-10) 競争的資金

二国間交流事業共同研究(日本-ノルウェー),「錯体超分子構造体の理論化学」,江原正博(2019年-2020年).  
科研費新学術領域研究「配位アシンメトリー:非対称配位圏設計と異方集積化が拓く新物質科学」(代表:塩谷光彦)(計画研究),「非対称金属配位場を有する超分子系の構造・物性・反応に関する理論研究」,江原正博(2016年-2020年).  
科研費基盤研究(B),「複雑量子状態の理論開発とナノ・バイオ系への応用」,江原正博(2016年-2018年).  
元素戦略プロジェクト「実験と理論計算科学のインタープレイによる触媒・電池の元素戦略研究拠点」,江原正博(2012年-2021年).  
科研費基盤研究(B),「強相関電子状態と電子共鳴状態の基礎理論の開発と複雑な量子状態への応用」,江原正博(2012年-2015年).  
科学技術振興機構先導的物質変換領域(ACT-C),「多核金属の協働作用で生み出すクラスター触媒の新反応」,江原正博(共同研究者)(2012年-2017年).  
科研費特別推進研究,「d-電子複合系の理論化学:新しい高精度大規模計算法による微視的理解と予測」,江原正博(研究分担者)(2010年-2014年).  
科研費基盤研究(B),「内殻電子過程の超精密理論分光」,江原正博(2009年-2011年).  
科学技術振興機構CREST研究,「マルチスケール・マルチフィジックス現象の統合シミュレーション」,江原正博(研究分担)(2008年-2012年).  
科研費特定領域研究(計画研究),「高精度電子状態理論の開発と励起状態化学への展開」,江原正博(2006年-2009年).

#### B-11) 産学連携

自動車用内燃機関技術研究組合(AICE),「計算化学による次世代ゼオライトの構造提案」,江原正博(2017年-2019年).

### 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。また、表面-分子系の電子状態を適切に表現できる方法を確立し、金属微粒子触媒、バルク触媒、表面光化学を理論的に解析する。触媒・電池元素戦略プロジェクトにおいて重要課題である自動車排ガス浄化触媒や化成品合成触媒に関する研究を実施する。

## 奥村久士(准教授)(2009年5月1日着任)

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) 全長のアミロイドβペプチドの凝集シミュレーション
- b) 赤外自由電子レーザーによるAβアミロイド線維の破壊
- c) αシヌクレインフラグメントの2量体形成過程の分子動力学シミュレーション
- d) クマムシのタンパク質 RvSAHS1 の構造安定性の解明

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(Aβ)ペプチドが球状に凝集してできたオリゴマーあるいは線維状に凝集してできたアミロイド線維が原因で引き起こされると言われている。Aβペプチドのオリゴマー構造やその形成過程は明らかになっていない。そこで我々は42アミノ酸残基からなるAβペプチドAβ42の凝集過程を大規模分子動力学シミュレーションにより調べた。陽的な水中に32本の全長Aβペプチドを入れ、そのダイナミクスと構造変化の過程を調べた。その結果、時間が経過するにつれ分子間βシート構造を持つ凝集体が生成された。その構造を今後解析する予定である。
- b) Aβペプチドのアミロイド線維に対し赤外自由電子レーザーを照射する非平衡分子動力学シミュレーションを行った。照射するレーザーの波数をAβアミロイド線維の主鎖におけるC=O二重結合の伸縮モードと共鳴させると水素結合を形成しているN-HとC=O間の距離が離れ、アミロイド線維が破壊された。さらに破壊された後のAβペプチドの構造を調べたところ、ヘリックス構造が多く形成されていた。この現象はこれまでの実験と一致するものである。この理由を解明するため、種々の構造に対する共鳴波数を計算したところ、ヘリックス構造だけ共鳴波数がずれており、そのためヘリックス構造だけが形成されやすくなっていることを明らかにした。
- c) αシヌクレインは水溶液中で特定の構造を持たない、140残基のアミノ酸で構成される天然変性タンパク質である。凝集して繊維を形成することでパーキンソン病を引き起こすと言われている。特にαシヌクレイン繊維形成の核となる領域のフラグメントに着目し、そのフラグメント2本に対して定温定圧レプリカ置換シミュレーションを実行した。その結果、分子間反平行βシートを形成する構造が最も存在確率が高いこと、およびその凝集過程を明らかにした。
- d) クマムシは乾燥に伴い樽のような形状に移行し乾眠状態に至る。乾眠状態のクマムシは高温や低温、放射線照射などの極限環境を生き抜く能力があるが、極限環境下でクマムシの細胞が保護される仕組みは明らかでない。クマムシに発現するタンパク質RvSAHS1の構造の揺らぎがその乾眠機構に関わると考えられているため、全原子分子動力学シミュレーションを用いてRvSAHS1の構造の安定性を調べた。その結果、RvSAHS1のβバレル構造が大きく揺らぐこと、RvSAHS1のN末端にある天然変性領域が大きく揺らぐことなどの性質を発見した。一方、良く似た構造を取るヒトの肝臓にある脂肪酸結合タンパク質ではこれらの性質は確認されなかった。RvSAHS1のこれらの性質が果たす機能を今後考察する。

B-1) 学術論文

**Y. TACHI, Y. OKAMOTO and H. OKUMURA**, "Conformational Change of Amyloid-β 40 in Associated with Binding to GM1-Glycan Cluster," *Sci. Rep.* **9**, 6853 (11 pages) (2019).

**M. YAMAUCHI and H. OKUMURA**, “Replica Sub-Permutation Method for Molecular Dynamics and Monte Carlo Simulations,” *J. Comput. Chem.* **40**, 2694–2711 (2019).

**S. G. ITOH, M. YAGI-UTSUMI, K. KATO and H. OKUMURA**, “Effects of a Hydrophilic/Hydrophobic Interface on Amyloid- $\beta$  Peptides Studied by Molecular Dynamics Simulations and NMR Experiments,” *J. Phys. Chem. B* **123**, 160–169 (2019).

**N. MURAKI, K. ISHII, S. UCHIYAMA, S. G. ITOH, H. OKUMURA and S. AONO**, “Structural Characterization of HypX Responsible for CO Biosynthesis in the Maturation of NiFe-Hydrogenase,” *Commun. Biol.* **2**, 385 (12 pages) (2019).

**S. YANAKA, R. YOGO, R. INOUE, M. SUGIYAMA, S. G. ITOH, H. OKUMURA, Y. MIYANARI, H. YAGI, T. SATOH, T. YAMAGUCHI and K. KATO**, “Dynamic Views of the Fc Region of Immunoglobulin G Provided by Experimental and Computational Observations,” *Antibodies* **8**, 39 (13 pages) (2019).

**K. KERDPOL, J. KICUNTOD, P. WOLSCHANN, S. MORI, C. RUNGNIM, M. KUNASETH, H. OKUMURA, N. KUNGWAN and T. RUNGROTMONGKOL**, “Cavity Closure of 2-Hydroxypropyl- $\beta$ -cyclodextrin: Replica Exchange Molecular Dynamics Simulations,” *Polymers* **11**, 145 (15 pages) (2019).

**Y. KAWASHIMA, K. ISHIMURA and M. SHIGA**, “Ab Initio Quantum Mechanics/Molecular Mechanics Method with Periodic Boundaries Employing Ewald Summation Technique to Electron–Charge Interaction: Treatment of the Surface–Dipole Term,” *J. Chem. Phys.* **150**, 124103 (14 pages) (2019).

**N. TAKAGI, K. ISHIMURA, R. FUKUDA, M. EHARA and S. SAKAKI**, “Reaction Behavior of the NO Molecule on the Surface of an  $M_n$  Particle ( $M = \text{Ru, Rh, Pd, and Ag}$ ;  $n = 13$  and  $55$ ): Theoretical Study of Its Dependence on Transition-Metal Element,” *J. Phys. Chem. A* **123**, 7021–7033 (2019).

B-3) 総説, 著書

**M. YAMAUCHI, Y. MORI and H. OKUMURA**, “Molecular Simulations by Generalized-Ensemble Algorithms in Isothermal-Isobaric Ensemble,” *Biophys. Rev.* **11**, 457–469 (2019).

B-4) 招待講演

奥村久士, 「アルツハイマー病を引き起こすタンパク質凝集体の分子動力学シミュレーション」, 広島大学放射光科学研究センター HiSOR セミナー, 広島, 2019年11月.

奥村久士, 「分子動力学シミュレーションで見る生体分子の構造変化: アミロイド線維の形成と赤外自由電子レーザーによる破壊」, FEL-TUS 医工融合シンポジウム, 東京, 2019年11月.

奥村久士, 「タンパク質凝集の分子動力学シミュレーション」, 第2回ExCELLS シンポジウム, 岡崎, 2019年11月.

奥村久士, 「各種統計アンサンブルの生成法」, 第13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, 2019年9月.

奥村久士, 「A $\beta$  アミロイド線維の分子動力学シミュレーション」, 第9回高分子物理学研究会, 豊田, 2019年8月.

奥村久士, 「分子動力学シミュレーションで見るアルツハイマー病原因物質」, 九州大学公開講演会最新化学談話シリーズ令和元年度第1回談話会, 福岡, 2019年7月.

奥村久士, 「Development of replica-permutation method and molecular dynamics simulations of amyloid- $\beta$  aggregates」, 東京工業大学第5回北尾研セミナー, 東京, 2019年5月.

奥村久士,「コンピューターシミュレーションで見るアルツハイマー病原因物質」, 近畿大学第4回DoIK シンポジウム, 福岡, 2019年3月.

奥村久士,「アミロイドβ ペプチドのオリゴマーとアミロイド線維の分子動力学シミュレーション」, スーパーコンピュータワークショップ 2018, 愛知, 2019年1月.

伊藤 暁,「レプリカ置換分子動力学法の生体高分子への応用」, 第9回高分子物理学研究会, 豊田, 2019年8月.

伊藤 暁,「分子シミュレーションで解き明かすアルツハイマー病に関連する生体高分子の凝集過程」, 平成31年度九州地区高分子若手研究会・夏の講演会, 北九州, 2019年7月.

石村和也,「大規模並列量子化学計算プログラムSMASHの開発と応用計算」, 第7回材料系ワークショップ, 東京, 2019年2月.

H. OKUMURA, “Molecular dynamics simulations for aggregation of amyloid-β peptides,” IMS-PCOSS Bilateral Symposium, Xiamen (China), December 2019.

H. OKUMURA, “Molecular insight into protein aggregation by computer simulation,” 2<sup>nd</sup> International Conference on Materials Research and Innovation, Bangkok (Thailand), December 2019.

H. OKUMURA, “Molecular dynamics simulations of full-length amyloid-β peptides,” 23<sup>rd</sup> International Annual Symposium on Computational Science and Engineering (ANSCSE23), Chiang Mai (Thailand), June 2019.

H. OKUMURA, “Molecular dynamics simulations of proteins,” Taiwan IBC-ExCELLS MOU Workshop 2019, Taipei (Taiwan), June 2019.

H. OKUMURA, “All-atom molecular dynamics simulations of amyloid-β aggregates,” International Conference of Computational Methods in Sciences and Engineering 2019, Rhodos (Greece), May 2019.

S. G. ITOH, “Aggregation process of amyloid-β peptides by the Coulomb replica permutation method,” 23<sup>rd</sup> International Annual Symposium on Computational Science and Engineering (ANSCSE23), Chiang Mai (Thailand), June 2019.

K. ISHIMURA, “Development of Massively Parallel Quantum Chemistry Calculation Program SMASH and its Applications,” 34<sup>th</sup> Computational Materials Design (CMD) Workshop, Osaka (Japan), February 2019.

#### B-6) 受賞, 表彰

奥村久士, 分子シミュレーション研究会学術賞 (2014).

伊藤 暁, 平成25年度日本生物物理学会中部支部講演会優秀発表者賞 (2014).

伊藤 暁, 新学術領域研究「動的秩序と機能」第3回国際シンポジウムポスター発表賞 (2015).

山内仁喬, 日本化学会東海支部長賞 (2018).

山内仁喬, International HPC Summer School 2018, Parallel Programming Challenge GPU track, Winner (2018).

山内仁喬, 第44回生体分子科学討論会優秀ポスター賞 (2017).

山内仁喬, 第11回分子科学討論会優秀ポスター賞 (2017).

#### 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-).

日本物理学会領域12運営委員 (2015-2016).

日本生物物理学会中部支部会幹事 (2013-2015).

分子シミュレーション研究会幹事 (2011–2014, 2018–), オブザーバー (2014–2018).

学会の組織委員等

分子シミュレーションスクール実行委員 (2011–2016).

自然科学における階層と全体シンポジウム実行委員 (2012–2016).

学会誌編集委員

分子シミュレーション研究会会誌「アンサンブル」編集委員 (2004–2006).

その他

ポスト「京」重点課題5「エネルギーの高効率な創出, 変換・貯蔵, 利用の新規基盤技術の開発」運営委員 (2016–).

次世代スパコン戦略プログラム「計算物質科学イニシアティブ」第3部会研究担当者 (2010–2016), 広報小委員会委員 (2010–2014).

#### B-8) 大学での講義, 客員

総合研究大学院大学物理科学研究科, 「生体分子シミュレーション入門」, 2019年12月12日.

九州大学大学院理学研究院, 化学特別講義「拡張アンサンブル分子動力学法と生物化学への応用」, 2019年7月16日–18日.

#### B-10) 競争的資金

自然科学研究機構岡崎統合バイオサイエンスセンターオリオン公募研究, 「アミロイド線維における動秩序形成機構を解明し阻害法を開発する計算分子科学」, 奥村久士 (2016年度–2018年度).

科研費新学術領域研究「生命分子システムにおける動的秩序形成と高次機能発現」(公募研究), 「アミロイド線維の動的秩序形成過程の全貌の理論的解明」, 奥村久士 (2016年度–2017年度).

自然科学研究機構若手研究者による分野間連携研究プロジェクト, 「シミュレーションと実験の連携によるアミロイド線維形成の機構解明」, 奥村久士 (2015年度).

科研費新学術領域研究「生命分子システムにおける動的秩序形成と高次機能発現」(公募研究), 「親水性/疎水性溶液界面でのアミロイドベータペプチド凝集機構の理論的研究」, 奥村久士 (2014年度–2015年度).

自然科学研究機構岡崎統合バイオサイエンスセンターオリオン公募研究, 「アミノ酸・タンパク質・タンパク質複合体の階層をつなぐ計算分子科学: アミロイド線維形成を理解するために」, 奥村久士 (2013年度–2015年度).

自然科学研究機構若手研究者による分野間連携研究プロジェクト, 「天文学と連携した分子動力学シミュレーションのための新しい数値積分法の開発」, 奥村久士 (2012年度).

科研費若手研究(B), 「計算機シミュレーションで探るアミロイドベータペプチドの多量体形成過程」, 伊藤 暁 (2012年度–2014年度).

科研費若手研究(B), 「新しい分子動力学シミュレーション手法の開発とタンパク質折りたたみ問題への応用」, 奥村久士 (2011年度–2014年度).

#### C) 研究活動の課題と展望

- a) これまでに42アミノ酸残基からなるA $\beta$ ペプチドA $\beta$ 42の凝集過程の全原子分子動力学シミュレーションを実行した。今後このデータを解析する。具体的には何量体が形成しやすいのか, N末に存在する荷電性アミノ酸残基や $\beta$ ドメインに存在する疎水性残基の役割に注目して解析を行う。さらに40アミノ酸残基からなるA $\beta$ 40についても同様の大規模分子動力学シミュレーションを実行する。

- b) アルツハイマー病の原因とされるA $\beta$  ペプチドのアミロイド線維に対し赤外自由電子レーザーを照射する非平衡分子動力学シミュレーションを行ったが、A $\beta$  ペプチドは脳深部に存在するため実際にアルツハイマー病患者の脳にレーザーを照射するのは難しい。それに対し、透析アミロイドーシスの原因である $\beta$ 2 ミクログロブリンのアミロイド線維は手首の皮膚近くに存在するため将来的にレーザー照射治療が実現する可能性は比較的高い。そこで $\beta$ 2 ミクログロブリンのアミロイド線維に対してレーザーを照射する分子動力学シミュレーションを行い、その破壊過程をA $\beta$  アミロイド線維の場合と比較、議論する。
- c) 今後はより大きなオリゴマーの構造を調べる。単量体状態の全長のA $\beta$  を30本程度水溶液中に配置して分子動力学シミュレーションを行い、その凝集過程を観察する。このシミュレーションでは500万原子程度の巨大系の計算を行い、単量体→二量体→三量体→四量体と凝集していく過程での構造変化を調べる。特にどのアミノ酸残基が凝集に重要な役割を果たしているのか見つけ出す。
- d)  $\alpha$  シヌクレインの凝集には細胞膜との結合が重要と考えられている。また、細胞膜に結合するのは $\alpha$  シヌクレインのN末領域であることが分かっている。そこで $\alpha$  シヌクレインのN末領域と細胞膜を陽溶媒中に用意し、分子動力学シミュレーションを実行する。数種類の細胞膜についてシミュレーションを行い、 $\alpha$  シヌクレインが結合しやすい細胞膜とそうでない細胞膜の特徴とその理由を明らかにする。
- e) クマムシの活動状態におけるRvSAHS1の動的性質を明らかにしたので、次に乾燥状態におけるRvSAHS1の動的、静的性質を解明するため、乾燥状態におけるRvSAHS1の分子動力学シミュレーションを行う。具体的には水を徐々に取り除くシミュレーションを行い、その構造変化を調べる。さらにRvSAHS1がリガンドを取り込むことが機能に重要と考えられるのでリガンドを取り込む過程のシミュレーションも行う。

## 石 田 干 城 (助教) (2004 年 11 月 1 日着任)

A-1) 専門領域：理論化学，計算化学

A-2) 研究課題：

- a) 溶液内化学反応およびエネルギー移動過程に関する理論的研究
- b) 分子動力学法によるイオン液体中の液体構造と動的挙動に関する理論的研究
- c) 量子化学計算と分子動力学法を用いたイオン液体による高分子セルロースの溶解・分解過程に関する理論的研究

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) これまで提案，及び改良を進めてきた時間依存形式による溶質分子の電子状態の時間依存変化を記述する理論的方法を色素分子中の光励起による電子移動反応プロセスの研究に応用した。この研究により，励起状態での超高速電子移動反応プロセスと溶媒和過程を光励起後フェムト秒オーダーで解析することを可能にした。今年度はこの方法論を光励起によって引き起こされる電子移動とエネルギー移動が重要となるバタイン色素の問題へと適用し，計算・研究を行った。現在，研究成果を学術論文として投稿準備中である。
- b) イオン液体中の構造解析から出発し，イオン液体の特有の挙動の一つである構造の不均一性や室温付近でのガラス性挙動に注目して研究を進めている。分子動力学法を用いて数万原子オーダーでの大きな系の長時間シミュレーションを行った。得られた結果より，イオン液体は陽・陰イオンの構造の違いによって各イオン種が非一様な分布をしていることが示され，このことが構造の不均一性の原因となっていることが明らかになってきた。さらに，通常液体では過冷却状態において現れる動的不均一性と類似の挙動を，室温において示すことを明らかにした。現在，イオン液体中の構造不均一性とイオン分子の動きとの関係や，動的不均一性の分子論的起源について研究を進めている。
- c) 生体内の細胞壁の基本骨格部分である高分子セルロースを炭水化物に分解する際にイオン液体が有効であることに注目した研究を計画，実行した。量子化学計算を用いた研究から，高分子セルロース間に働くセルロース間水素結合強度は水中に較べてイオン液体中では弱められることがわかった。また，分子動力学シミュレーションの結果より，高分子セルロース内の疎水性領域と親水性領域ではセルロース鎖間相互作用エネルギーの弱められ方に大きな違いがあって，セルロースの溶解過程に大きく影響を及ぼしていることも明らかになった。さらに，陰イオンによる分子内水素結合の分断によりセルロース鎖の剛性が弱くなることで陰イオンの高分子セルロース中への侵入が起こり，続いて分子間水素結合の分断が陰イオンにより促進されることが明らかになった。また，陽イオンはセルロース鎖中のグルコース環上周辺に存在し，ファンデルワールス力によるグルコース環との相互作用によってセルロース鎖の溶解に寄与していることも明らかにした。これらの研究成果は学術論文としてまとめられ，学術雑誌，*The Journal of Physical Chemistry*，に現在投稿中である。

B-10) 競争的資金

科研費特定領域研究(公募研究),「溶液内光励起反応プロセスと溶媒和ダイナミクス」,石田干城(2008年–2009年).

科研費特定領域研究(公募研究),「分子動力学法によるイオン液体の理論的研究」,石田干城(2008年–2009年).

科研費基盤研究(C),「分子内及び分子間エネルギー移動を起源とする光機能発現の理論的解明」,石田干城(2011年–2013年).

## 理論・計算分子科学研究部門

藤田 貴 敏（特任准教授（若手独立フェロー））（2016年4月1日着任）

A-1) 専門領域：理論化学，計算物質科学

A-2) 研究課題：

- a) 有機分子集合体のための高精度電子状態理論の開発
- b) 有機／有機界面の電荷移動状態の解析

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 大規模分子集合体に対する高精度電子状態理論の確立を目指して，フラグメント分子軌道法と GW/Bethe-Salpeter 方程式（GW/BSE）法を組み合わせた計算手法の開発を行った。GW/BSE 法は誘電関数を第一原理的に考慮しつつ，軌道エネルギーや励起エネルギーを計算できる手法であり，比較的低計算コストで信頼性の高い結果が得られる。本研究では，分極関数のフラグメント近似と，分子内の電子相関を GW で扱いつつ環境の分極効果を COHSEX で考慮する方法を組み合わせることにより，大規模系における GW 準粒子エネルギーを効率よく計算する手法を提案した。また，BSE 法による励起状態計算の実装もおこなった。本計算手法は，不均一環境にある分子集合体の取り扱いに適しているため，有機トランジスタや有機／有機界面などの有機デバイス系の電子状態計算に有用である。
- b) 有機太陽電池系のペンタセン／C<sub>60</sub> 界面の電荷移動（CT）励起状態の解析を行った。界面電荷移動状態は電荷分離・電荷再結合の中間状態に関与することから，有機光デバイス系のエネルギー変換過程において重要な役割を担う。本研究では開発した FMO-GW/BSE 法をペンタセン／C<sub>60</sub> 界面構造に適用し，界面 CT 状態の誘起分極エネルギーや励起子束縛エネルギーの解析を行った。また，得られた界面 CT 状態のエネルギーが外部量子収率スペクトルから見積もられる実験値とよく一致していることも確認した。

B-1) 学術論文

**T. FUJITA, Y. NOGUCHI and T. HOSHI**, “Charge-Transfer Excited States in the Donor/Acceptor Interface from Large-Scale GW Calculations,” *J. Chem. Phys.* **151**, 114109 (8 pages) (2019).

**T. HOSHI, H. IMACHI, A. KUWATA, K. KAKUDA, T. FUJITA and H. MATSUI**, “Numerical Aspect of Large-Scale Electronic State Calculation for Flexible Device Material,” *Jpn. J. Ind. Appl. Math.* **36**, 685–698 (2019).

B-4) 招待講演

**T. FUJITA**, “Development of the Large-Scale GW+Bethe-Salpeter Equation Method Based on Fragment Molecular Orbital Method for Applications to Organic Materials,” The Asia-Pacific Association of Theoretical and Computational Chemists (APATCC 2019), University of Sydney, Sydney (Australia), October 2019.

**T. FUJITA**, “Charge Transfer States at the Organic Donor–Acceptor Interface from the Many-Body Green Function Method,” IMS-IAMS Joint Discussion, Institute for Molecular Science, Okazaki, Aichi (Japan), September 2019.

藤田貴敏, 「大規模第一原理計算による有機半導体材料の電子物性研究」, ELSEES 研究会, 中央大学, 東京 (日本), 2019年9月.

**T. FUJITA**, “Theoretical Investigation on Effects of Polarization and Delocalization on Excited States in Organic Semiconductors,” CEMS Topical Meeting on Organic Photoelectrons: Theory, Materials, Interfaces, and Spectroscopy, Riken, Wako, Saitama (Japan), July 2019.

藤田貴敏, 「フラグメント分子軌道法の開発と有機半導体材料への応用」, 物性研究所スパコン共同利用・CCMS 合同研究会「計算物質科学の新展開」, 東京大学物性研究所, 千葉, 柏(日本), 2019年4月.

#### B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

量子生命科学会評議員 (2019-).

学会誌編集委員

理論化学会誌「フロンティア」編集委員 (2019-).

その他

量子化学スクール世話人 (2016-).

有機固体若手の会世話人 (2018-2019).

#### B-10) 競争的資金

科研費基盤研究(C), 「第一原理計算による光励起物性予測と有機光電子材料への応用」, 藤田貴敏 (2019年-2021年).

科研費特別研究員奨励費, 「大規模電子状態計算を用いた水クラスターの理論的研究」, 藤田貴敏 (2010年-2011年).

#### C) 研究活動の課題と展望

今後はFMO-GW/BSE法の開発を進める予定である。現在の実装では電子励起が一分子に局在化した励起状態しか取り扱うことができないが、今後開発を進めることにより分子集合体で形成される非局在化した励起状態も計算できる手法を実装する予定である。さらに、FMO法による励起状態計算と波束ダイナミクス法と組み合わせることにより、エネルギー変換過程の実時間量子ダイナミクスへと展開していく。開発した手法を太陽電池系に適用することにより、エネルギー変換効率を上昇させるための分子設計の指針を得る。

## 岡崎 圭一（特任准教授（若手独立フェロー））（2016年6月1日着任）

A-1) 専門領域：理論生物物理学

A-2) 研究課題：

- a) トランスポーター  $\text{Na}^+/\text{H}^+$  antiporter のイオン輸送メカニズムの解明
- b) F-BAR タンパク質 Pacsin1 が引き起こす生体膜変形メカニズムの解明
- c) 糖鎖分解型モーター・キチナーゼの1方向性運動メカニズムの解明

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) ナトリウムイオンとプロトンを細胞の内外で交換するトランスポーター  $\text{Na}^+/\text{H}^+$  antiporter（交換輸送体）は、細胞内のイオン濃度調節などにかかわっており、創薬ターゲットにもなっている。そのイオン輸送メカニズムに迫るために、まずイオン結合サイトの交互アクセスを可能にするタンパク質の構造変化を、低解像度電顕データを用いた構造モデリングと長時間平衡 MD シミュレーションより明らかにした。さらに、交互アクセスにおける構造変化ダイナミクスを、遷移パスサンプリング手法を用いた MD シミュレーションにより明らかにした。その結果、疎水性ゲートの存在が明らかになり、イオンの漏れを防ぐのに役立っていることがわかった。この疎水性ゲートの残基を実験的に変異させて相互作用を弱めることで、元の野生型より速くイオンを輸送する変異体が得られた。これは、構造変化の遷移状態バリアが下がったことによって交互アクセスの速度が上がったことによると考えられる。
- b) 細胞において生体膜はダイナミックに変形し、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。このような生体膜変形は、一連のタンパク質が誘起している。その一つが F-BAR タンパク質であり、その中でも Pacsin1 というものに我々は注目した。Pacsin1 は、生体膜を様々な直径のチューブやベシクルに変形することが知られている。このような多様な膜変形能の分子メカニズムを解明するため、Pacsin1・生体膜系の全原子・粗視化シミュレーションを行った。まず、全原子 MD シミュレーションにより Pacsin1 が膜上で構造変形することが見られた。これを参照として、粗視化 MD におけるタンパク質力場を調整した。次に、粗視化 MD シミュレーションにより Pacsin1 の膜上での会合と会合複合体による膜変形のシミュレーションを行った。そこで得られた膜の曲率は、実験で見られていた太いチューブの曲率を説明することができた。また、バックルした膜を用意して、その曲がった膜上で Pacsin1 がどのように曲率をセンシングするかシミュレーションで調べた。その結果、Pacsin1 がセンシングした曲率は、縞模様のチューブやベシクルの曲率を説明できることがわかった。
- c) キチナーゼは甲殻類などの外骨格の主成分であるキチン鎖を分解しながら1方向に進むリニア分子モーターである。その動作メカニズムに実験家（飯野グループ）と共同で取り組んだ。1分子実験によるステップの検出とその速度論的解析により Burnt-bridge Brownian ratchet メカニズムによって1方向性の運動が実現されていることが分かった。このメカニズムの背後にある自由エネルギープロファイルと拡散係数を、隠れマルコフモデルに基づいた新規手法を開発して、推定している。

B-1) 学術論文

**K. OKAZAKI, D. WÖHLERT, J. WARNAU, H. JUNG, Ö. YILDIZ, W. KÜHLBRANDT and G. HUMMER**, “Mechanism of the Electroneutral Sodium/Proton Antiporter PaNhaP from Transition-Path Shooting,” *Nat. Commun.* **10**, 1742 (10 pages) (2019). doi: 10.1038/s41467-019-09739-0

**M. I. MAHMOOD, H. NOGUCHI and K. OKAZAKI**, “Curvature Induction and Sensing of the F-BAR Protein Pacsin1 on Lipid Membranes via Molecular Dynamics Simulations,” *Sci. Rep.* **9**, 14557 (11 pages) (2019). doi: 10.1038/s41598-019-51202-z

B-3) 総説, 著書

中村彰彦, 岡崎圭一, 古田忠臣, 櫻井 実, 飯野亮太, 「キチン加水分解酵素は熱ゆらぎを利用して1方向に動きながら結晶性バイオマスを分解する」, *生物物理* **59(6)**, 330–333 (2019).

B-4) 招待講演

岡崎圭一, 「遷移パスサンプリングによる膜輸送タンパク質の基質輸送メカニズムの解明」, スーパーコンピュータワークショップ 2018, 岡崎市, 2019年1月.

**K. OKAZAKI, A. NAKAMURA and R. IINO**, “Dynamic energy landscape of a linear motor chitinase from single-particle tracking trajectories,” The 57<sup>th</sup> Annual Meeting of the Biophysical Society of Japan, Miyazaki (Japan), September 2019.

**K. OKAZAKI**, “Molecular simulation and modeling of functional dynamics in F<sub>0</sub>F<sub>1</sub> ATP synthase,” 2<sup>nd</sup> Tokyo ATPase Workshop, The University of Tokyo, Tokyo, September 2019.

岡崎圭一, 「生体分子マシンにおける機能ダイナミクスの分子シミュレーション」, 第12回ChemBioハイブリッドレクチャー, 東京大学, 東京, 2019年10月.

B-6) 受賞, 表彰

岡崎圭一, 日本生物物理学会若手奨励賞 (2014).

B-7) 学会および社会的活動

学会の組織委員等

分子シミュレーションスクール世話人 (2016–2019).

日本生物物理学会分野別専門委員 (アロステリズム) (2017).

日本生物物理学会運営委員 (2010–2011).

その他

Netherlands Organisation for Scientific Research (NWO), Innovational Research Incentives Scheme, external reviewer (2017).

B-10) 競争的資金

科研費基盤研究(B), 「トランスポーターの基質輸送速度を変える変異の理論的予測」, 岡崎圭一 (2018年–2020年).

自然科学研究機構融合発展促進研究プロジェクト, 「バイズ推定を用いた生体分子モーターの動作メカニズムの解明: 一分子実験と分子シミュレーションの橋渡し」, 岡崎圭一 (2016年–2018年).

日本学術振興会海外特別研究員, 「生体分子モーターにおけるアロステリック遷移の自由エネルギー計算」, 岡崎圭一 (2012年–2014年).

日本学術振興会特別研究員(PD), 「分子モーターの動作機構のマルチスケールな解析: 全原子・粗視化シミュレーション」, 岡崎圭一 (2009年–2012年).

### 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。本年は、トランスポーター  $\text{Na}^+/\text{H}^+$  antiporter についてと F-BAR タンパク質 Pacsin1 についての論文をそれぞれ出版することができた。さらに、糖鎖分解型モーター・キチナーゼの1方向性運動モデル推定についても論文にまとめているところである。このようなメカニズム解明の研究と並行して、シミュレーションを用いた合理的デザインによるバイオセンサー開発も進めているところである。

## 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)

A-1) 専門領域：量子物理学, 原子分子光物理学, 量子情報科学, 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) 超高速量子シミュレータの開発
- g) バルク固体の極限コヒーレント制御

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次元位相メモリーの可能性を実証することに成功した。

- d) 分子メモリー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) ほぼ絶対零度まで冷やした極低温のルビジウム原子集団にAPMを適用することによって、60万個の粒子の量子多体問題を近似無しに1ナノ秒(ナノ=10<sup>-9</sup>)以内でシミュレートできる世界最速の「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。

#### B-1) 学術論文

**M. MIZOGUCHI, Y. ZHANG, M. KUNIMI, A. TANAKA, S. TAKEDA, N. TAKEI, V. BHARTI, K. KOYASU, T. KISHIMOTO, D. JAKSCH, A. GLÄTZLE, M. KIFFNER, G. MASELLA, G. PUPILLO, M. WEIDEMÜLLER and K. OHMORI**, “Ultrafast Creation of Overlapping Rydberg Electrons in an Atomic BEC and Mott-Insulator Lattice,” *arXiv* 1910.05292 (2019).

**H. KATSUKI, Y. OHTSUKI, T. AJIKI, H. GOTO and K. OHMORI**, “Engineering Quantum Wave-Packet Dispersion with a Strong Non-Resonant Femtosecond Laser Pulse,” *arXiv* 1910.08241 (2019).

#### B-4) 招待講演 (\* 基調講演)

**K. OHMORI**, “Ultrafast many-body electron dynamics in an ultracold atomic BEC and Mott insulator lattice,” Topical Conference on Quantum Computing 2019 (TCQC2019), Kyoto Brighton Hotel, Kyoto (Japan), December 2019.\*

**K. OHMORI**, Panel Discussion on Quantum Simulation, Topical Conference on Quantum Computing 2019 (TCQC2019), Kyoto Brighton Hotel, Kyoto (Japan), December 2019.\*

**K. OHMORI**, “Ultrafast many-body electron dynamics in an ultracold atomic BEC and Mott insulator lattice,” Annual Conference Series “Frontiers in Synthetic Quantum Systems; 2019 Focus: Quantum Simulations in Optical Lattices and Beyond,” Tian-Ping Hotel, Shanghai (China), December 2019.\*

大森賢治, 「量子力学に残された100年の謎に迫る」, 第123回分子科学フォーラム, 岡崎コンファレンスセンター, 岡崎(日本), 2019年12月.\*

大森賢治, 「量子力学100年の謎と量子テクノロジー」, 自然科学研究機構 教育研究評議会, 東京(日本), 2019年11月.

**K. OHMORI**, “Ultrafast many-body electron dynamics in an ultracold atomic BEC and Mott insulator lattice,” The Conference “Quantum Computing in Near Term,” Programme on “Quantum Simulation—from Theory to Applications,” Erwin Schrödinger International Institute for Mathematics and Physics (ESI), Universität Wien, Vienna (Austria), October 2019.

**K. OHMORI**, “Japan’s quantum-technology policy and its international strategy,” The EU Quantum Flagship event: “Exploring and Making Quantum Technology,” Aalto University, Helsinki (Finland), October 2019.\*

**K. OHMORI**, Panel Discussion: International Cooperation in Quantum Technology, The EU Quantum Flagship event: “Exploring and Making Quantum Technology,” Aalto University, Helsinki (Finland), October 2019.\*

大森賢治,「アト秒・ナノメートル精度の超高速量子シミュレータの開発と量子コンピューティングへの応用」, JST 戦略的創造研究推進事業 新技術説明会 ～情報処理～, JST 東京本部別館, 東京 (日本), 2019年9月.\*

**K. OHMORI**, “Ultrafast many-body electron dynamics in a strongly correlated ultracold Rydberg gas,” The 14<sup>th</sup> Femtochemistry Conference, Jin Jiang Hotel, Shanghai (China), August 2019.\*

**K. OHMORI**, “Ultrafast many-body electron dynamics in a strongly correlated ultracold Rydberg gas,” P&A AMO Seminar, Rice University, Houston (USA), July 2019.

**K. OHMORI**, “Ultrafast many-body electron dynamics in a strongly correlated ultracold Rydberg gas,” TSRC Workshop “Quantum Dynamics and Spectroscopy in Condensed-Phase Materials and Bio-Systems,” Telluride Science Research Center (TSRC), Telluride (USA), June 2019.

**K. OHMORI**, “Ultrafast many-body electron dynamics in a strongly correlated ultracold Rydberg gas,” International Symposium: Highly-excited States and Non-covalent Interactions, The University of Manchester, Manchester (U.K.), June 2019.\*

**K. OHMORI**, “Ultrafast many-body electron dynamics in a strongly correlated ultracold Rydberg gas,” The 4<sup>th</sup> International Workshop on Rydberg Atoms and Molecules, Hangzhou (China), June 2019.\*

**K. OHMORI**, “Ultrafast many-body electron dynamics in a strongly correlated ultracold Rydberg gas,” IAS Workshop “Quantum Simulation of Novel Phenomena with Ultracold Atoms,” The Hong Kong University of Science and Technology, Hong Kong (China), May 2019.

大森賢治,「量子シミュレーションの国内外の動向と展望」, JST CRDS, JST 東京本部別館, 東京 (日本), 2019年4月.

大森賢治,「量子シミュレーションの国内外の動向と課題」, 日本物理学会 第74回年次大会シンポジウム「量子シミュレーションの最前線: 極低温粒子系から探る宇宙・ハドロン・物性物理」, 九州大学, 福岡 (日本), 2019年3月.\*

大森賢治,「量子力学に残された100年の謎に迫る」, 経団連 第1回産学連携セミナー, 経団連会館, 東京 (日本), 2019年2月.

溝口道栄,「極低温ボース-アインシュタイン凝縮体の超高速リユードベリ励起」, 岐阜大学, 岐阜市 (日本), 2019年9月.

#### B-6) 受賞, 表彰

大森賢治, 文部科学大臣表彰 科学技術賞 (2018).

大森賢治, 松尾財団宅間宏記念学術賞 (2017).

大森賢治, 独フンボルト賞 (2012).

大森賢治, アメリカ物理学会フェロー表彰 (2009).

大森賢治, 日本学士院学術奨励賞 (2007).

大森賢治, 日本学術振興会賞 (2007).

大森賢治, 光科学技術研究振興財団研究表彰 (1998).

大森賢治, 東北大学教育研究総合奨励金 (1995).

香月浩之, 英国王立化学会 PCCP 賞 (2009).

香月浩之, 光科学技術研究振興財団研究表彰 (2008).

#### B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

分子科学研究会委員 (2002–2006).

分子科学会設立検討委員 (2005–2006).

分子科学会運営委員 (2006–2007, 2010–2017).

原子衝突研究協会運営委員 (2006–2007).

学会の組織委員等

14<sup>th</sup> International Conference on Spectral Line Shapes 国際プログラム委員 (1998).

21<sup>st</sup> International Conference on the Physics of Electronic and Atomic Collisions 準備委員, 組織委員 (1999).

The 5<sup>th</sup> East Asian Workshop on Chemical Reactions 組織委員長 (2001).

分子構造総合討論会実行委員 (1995).

第19回化学反応討論会実行委員 (2003).

原子・分子・光科学 (AMO) 討論会プログラム委員 (2003–).

APS March meeting; Focus Topic Symposium “Ultrafast and ultrahighfield chemistry” 組織委員 (2006).

APS March meeting satellite “Ultrafast chemistry and physics 2006” 組織委員 (2006).

第22回化学反応討論会実行委員 (2006).

European Research Council (ERC), Invited Panel Evaluator (2007).

European Research Council (ERC), Invited Expert Referee (2007–).

8<sup>th</sup> Symposium on Extreme Photonics “Ultrafast Meets Ultracold” 組織委員長 (2009).

The 72<sup>nd</sup> Okazaki Conference on “Ultimate Control of Coherence” 組織委員 (2013).

A Peter Wall Colloquium Abroad and The 73<sup>rd</sup> Okazaki Conference on “Coherent and Incoherent Wave Packet Dynamics” 組織委員 (2013).

1<sup>st</sup> International Symposium on Advanced Photonics “Quantum Many-Body Science and Technology” 組織委員 (2016).

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

QuantERA (<https://www.quantera.eu>), Invited Remote Reviewer (2017–).

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

2<sup>nd</sup> International Symposium on Advanced Photonics “Attosecond Science” 組織委員 (2018).

ゴードン会議 (Gordon Research Conference: GRC) “Quantum Control of Light and Matter,” 2019 副議長, 2021 議長 (2017–).

ゴードン会議 (Gordon Research Conference: GRC) 評議会メンバー (2019–).

文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

内閣府 量子技術イノベーション戦略・ロードマップ検討グループメンバー (2019–).

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

文部科学省 科学技術・学術審議会 量子科学技術委員会 量子情報処理 (主に量子シミュレーション) に係るロードマップ検討グループメンバー (2017–).

日本学術振興会 日仏先端科学シンポジウム PGM (2010–2012).

日本学術振興会 HOPE ミーティング 事業委員 (2012–2016).

日本学術振興会 日独学術コロキウム 学術幹事 (2013–2014).

学会誌編集委員

*Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, IOP, Editorial Board (2018–).

*Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, IOP, International Advisory Board (2015–2017).

## その他

長い伝統と世界的な権威を誇る米国のゴードン会議 (Gordon Research Conference: GRC) の副議長 (2019)、議長 (2021)、評議会メンバー (2019-) として分子研の国際的な認知度の向上に貢献。

第 123 回分子科学フォーラム (2019 年 12 月 13 日, 岡崎コンファレンスセンター 大隈ホール) において, およそ 200 名の超満員 (立ち見多数) の聴衆の前で「量子力学に残された 100 年の謎に迫る」と題した一般公開講演を行い, 市民への分子研の研究力アピールに貢献。

内閣府および文部科学省からの依頼で, 内閣府 量子技術イノベーション戦略のロードマップ策定を担当 (2019-)。

内閣府および文部科学省からの依頼で, 量子テクノロジーに関する日欧 2 者間会議の議長として日欧の今後の協力体制の構築に貢献 (2019 年 12 月 17 日, 京都プライトンホテル)。

日本政府代表 (内閣府および文部科学省) として EU 量子フラッグシップ全体会議 (2019 年 10 月, ヘルシンキ) に招かれ, 招待講演・パネルディスカッションを通じて量子テクノロジー分野における日米欧の今後の協力体制の構築に貢献。

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・専門委員として, 量子テクノロジー開発および量子ビーム (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貢献。

JST CRDS からの依頼で, 量子シミュレーションの国内外の動向と展望に関するレクチャー (2019 年 4 月 22 日, JST 東京本部別館) を行い, 内閣府 量子技術イノベーション戦略の戦略プロポーザルの提案に貢献。

分子研 国際諮問委員会において文科省 Q-LEAP プログラムにおける超高速量子シミュレータ開発に関するプレゼンを行うとともに諮問委員のラポッターに対応し, 分子研の研究力アピールに貢献。

自然科学研究機構 教育研究評議会 (2019 年 11 月 28 日, 自然科学研究機構 本部) において「量子力学 100 年の謎と量子テクノロジー」に関する講演を行い, 分子研の研究力アピールに貢献。

文部科学省からの依頼で, 林芳正文部科学大臣と欧州連合 (EU) Carlos Moedas 欧州委員 (研究・科学・イノベーション担当) との間の「量子技術分野の今後の協力に関する合意」 (2018 年 1 月 8 日, ブリュッセル) に貢献。

文部科学省からの依頼で, 日米間の「量子技術分野の今後の協力」のための米国国立科学財団 (NSF) および米国エネルギー省 (DOE) との日米政府間会議 (2018 年 3 月 9 日, ワシントン DC) に出席し, 林芳正文部科学大臣と NSF の France A. Córdova 長官との会談 (2018 年 5 月 1 日, ワシントン DC) における量子技術分野での日米協力に関する意見交換の実現に大きく貢献。

EU の Quantum Technology Flagship の一環として開催された European Quantum Technologies Community Meeting (2018 年 4 月 19 日, ZEISS Forum, Oberkochen, Germany) に日本の量子科学技術コミュニティの代表として招かれ, 日本・EU・米国の各代表・政府関係者とのパネルディスカッションにおいて, 量子科学技術分野における日・米・EU 間の協力について議論。

平成 16 年度安城市シルバーカレッジ「原子のさざ波と不思議な量子の世界」。

岡崎市立小豆坂小学校 第 17 回・親子おもしろ科学教室「波と粒の話」。

立花隆+自然科学研究機構シンポジウム 爆発する光科学の世界——量子から生命体まで——「量子のさざ波を光で制御する」。

## B-8) 大学での講義, 客員

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

## B-10) 競争的資金

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-2028年).

科研費 特別推進研究,「アト秒精度の超高速コヒーレント制御を用いた量子多体ダイナミクスの探求」,大森賢治(2016年-2021年).

科学技術振興機構さきかけ研究(受託研究),「極低温ドレスト原子集団の超精密制御による非可換トポロジカル量子現象の探索」,素川靖司(2016年-2020年).

科学技術振興機構CREST 研究,「アト秒精度の凝縮系コヒーレント制御」,大森賢治(2010年-2016年).

科研費 基盤研究(A),「アト秒ピコメートル精度の時空間コヒーレント制御法を用いた量子/古典境界の探索」,大森賢治(2009年-2011年).

科研費 特別研究員奨励費,「非線形波束干渉法の開発とデコヒーレンスシミュレーターへの応用」,大森賢治(2009年-2010年).

科研費 特別研究員奨励費,「極低温原子分子の超高速コヒーレント制御」,大森賢治(2008年-2010年).

## B-11) 産学連携

浜松ホトニクス(株),「超高速量子シミュレータの開発」,大森賢治(2016年-).

(株)日立製作所,「超高速量子シミュレータの開発」,大森賢治(2018年-).

## 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4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 分子ベースの量子情報科学の開拓: 高精度の量子位相操作によって分子内の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実現を目指す。さらに, 単一分子の操作を目指して, 冷却分子の生成を試みる。
- ④ レーザー冷却された原子集団のコヒーレント制御: レーザー冷却された原子集団への振幅位相情報の書き込みとその時間発展の観測・制御。さらに極低温分子の生成とコヒーレント制御。これらを通じて, 量子多体問題のシミュレーション実験, 量子情報処理, 極低温化学反応の観測と制御を目指す。

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）

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) 有機半導体薄膜の電荷輸送機構の研究
- c) 有機半導体薄膜の界面電子単位接合機構の研究
- d) 機能性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
- e) 機能性分子薄膜の振動状態と電子励起計測
- f) 自己組織化と分子認識機能の分光研究
- g) 分子薄膜の作製と評価：成長ダイナミクス，構造と分子配向

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。2014年度より新たに超短パルスレーザー光を励起源として電子状態を測定し，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開始した。2019年より新型運動量分解光電子顕微鏡の開発をUVSOR 施設の中期計画として進める。
- b) 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し，分子間相互作用の大きさ・ホール有効質量など，バンド伝導移動度を評価した。有機単結晶ヘテロ界面の成膜に成功し，エネルギー分散関係の検出に成功した。温度依存測定による準粒子評価を進めている。  
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。
- c) 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。極めて高感度に光電子を捕捉し，評価可能な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とらえた。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単位形成までを統括検討し，エネルギー単位接合機構の解明を目指している。数値解析による定量評価を実施した。
- d) 高配向有機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，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いる。多様な有機薄膜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評価してきた。また理論計算から，二次元角度分解測定により分子軌道の可視化が行え，配向分子系（固体）における分子計測の新たなツールとなりうることを提案した。新たに放射光を利用した波数分解光電子

放射顕微測定を実施するとともに、局在電子系における一電子近似の限界を検討し、弱相互作用系の物理を議論している。UVSOR 施設における新型運動量分解光電子顕微鏡の利用が不可欠である。

- e) 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開始した。
- f) 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機構の解明を目指している。また超分子系の固相膜を作製し、自己組織化や原子・分子捕獲などによる電子状態への影響を測定することで、分子認識機能について分光学的に研究している。プローブ顕微鏡実験を共同研究で推進し、構造と電子状態の相関研究を開始した。
- g) 有機分子薄膜(高分子薄膜)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。

#### B-1) 学術論文

**H. YAMANE, F. MATSUI, T. UEBA, T. HORIGOME, S. MAKITA, K. TANAKA, S. KERA and N. KOSUGI**, “Acceptance-Cone-Tunable Electron Spectrometer for Highly-Efficient Constant Energy Mapping,” *Rev. Sci. Instrum.* **90**, 093102 (7 pages) (2019).

**R. NEMOTO, P. KRUEGER, A. HARTINI, T. HOSOKAI, M. HORIE, S. KERA and T. YAMADA**, “Well-Ordered Monolayer Growth of Crown-Ether Ring Molecules on Cu(111) in Ultra-High Vacuum: A STM, UPS, and DFT Study,” *J. Phys. Chem. C* **123**, 18939–18950 (2019).

**R. SCHLESINGER, F. BUSSOLOTTI, J. YANG, S. SADOFEV, A. VOLLMER, S. BLUMSTENGEL, S. KERA, N. UENO and N. KOCH**, “Gap States Induce Soft Fermi Level Pinning upon Charge Transfer at ZnO/Molecular Acceptor Interfaces,” *Phys. Rev. Mater.* **3**, 074601 (8 pages) (2019).

**S. PARK, T. SCHULTZ, A. HAN, A. ALJARB, X. XU, P. BEYER, A. OPITZ, R. OVSYANNIKOV, L.-J. LI, M. MEISSNER, T. YAMAGUCHI, S. KERA, P. AMSALEM and N. KOCH**, “Electronic Band Dispersion Determination in Azimuthally Disordered Transition-Metal Dichalcogenide Monolayers,” *Commun. Phys.* **2**, 68 (6 pages) (2019).

**T. KIRCHHUEBEL, O. L. A. MONTI, T. MUNAKATA, S. KERA, R. FORKER and T. FRITZ**, “The Role of Initial and Final States in Molecular Spectroscopies,” *Phys. Chem. Chem. Phys.* **21**, 12730–12747 (2019).

**Y. NAKAYAMA, R. TSURUTA, N. MORIYA, M. HIKASA, M. MEISSNER, T. YAMAGUCHI, Y. MIZUNO, T. SUZUKI, T. KOGANEZAWA, T. HOSOKAI, T. UEBA and S. KERA**, “Widely Dispersed Intermolecular Valence Bands of Epitaxially Grown Perfluoropentacene on Pentacene Single Crystals,” *J. Phys. Chem. Lett.* **10**, 1312–1318 (2019). (*Front Cover selected*)

**M. SCHWARZE, C. GAUL, R. SCHOL, F. BUSSOLOTTI, A. HOFACKER, K. S. SCHELLHAMMER, B. NELLI, B. D. NAAB, Z. BAO, D. SPOLTRE, K. VANDEWAL, J. WIDMER, S. KERA, N. UENO, F. ORTMANN and K. LEO**, “Molecular Parameters Responsible for Thermally Activated Transport in Doped Organic Semiconductors,” *Nat. Mater.* **18**, 242–248 (2019).

B-4) 招待講演 (\* 基調講演)

S. KERA, "Energy and spatial distribution of frontier orbital state for organic thin films," 2<sup>nd</sup> International Conference on Materials Research and Innovation (ICMARI), Bangkok (Thailand), December 2019.

S. KERA, "A perspective of frontier orbital state for weakly bound molecules on the surface," 25<sup>th</sup> Users' Meeting & Workshops at NSRRC; Workshop II: Scientific Opportunities of Soft X-Ray/VUV Nano-Spectroscopy & Nano-Imaging at TPS, Hsinchu (Taiwan), September 2019.

S. KERA, "Photoelectron spectroscopy of semiconducting organic molecules," 18<sup>th</sup> European Conference on Applications of Surface and interface Analysis (ECASIA), Dresden (Germany), September 2019.\* [Keynote]

S. KERA, "Evolution of  $\pi$  orbital state upon assembling the molecules on the surface," 14<sup>th</sup> International Symposium on Functional  $\pi$ -Electron Systems (F $\pi$ 14), Berlin (Germany), June 2019.

S. KERA, "Imaging electron delocalization upon assembling the molecules," 1<sup>st</sup> international workshop on momentum microscopy and spectroscopy, Okazaki, February 2019.

S. KERA, "Electronic band dispersion of perovskite single crystal: MAPbI<sub>3</sub>," International Workshop on Organic Semiconductors and Related Materials, Chiba, January 2019.

解良 聡, 「有機半導体の輸送電荷の特徴: 光電子分光法による電子状態測定から」, 第4回固体化学フォーラム, 岡崎, 2019年6月.

解良 聡, 「有機半導体分子の電子状態の特徴とその局在性の変遷」, 日本学術振興会マイクロビームアナリシス第141委員会第176回研究会, 岡崎コンファレンスセンター, 岡崎, 2019年5月.

解良 聡, 「分子集合体における電子局在性」, 第17回SPring-8 ユーザー協同体顕微ナノ材料科学研究会・第14回日本表面真空学会放射光表面化学研究部会・第3回日本表面真空学会プローブ顕微鏡研究部会合同シンポジウム, つくば, 2019年3月.

解良 聡, 「光電子分光法による有機半導体の物性・機能評価」, 第13回応化談話会節分サロン, 東大, 東京, 2019年2月.

解良 聡, 「有機半導体結晶における電子格子相互作用」, 第32回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 福岡国際会議場, 福岡, 2019年1月.

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

UVSOR 利用者懇談会世話人 (2012–2014).

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).

学会の組織委員等

The 17<sup>th</sup> Japan-Korea Molecular Science Symposium, Chair (Nagoya 2019).

第32回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウムプログラム委員会委員長, 同実行委員会副委員長 (2019).

The 9<sup>th</sup> Workshop on Advanced Spectroscopy of Organic Materials for Electronic Applications, International Program Committee (Germany 2018).

The 9<sup>th</sup> International Conference of Electronic Structure and Processes at Molecular-Based Interfaces, Advisory Panel (Singapore 2017).

The 16<sup>th</sup> Japan-Korea Molecular Science Symposium, Co-Chair (Busan, Korea 2017).

第 28, 29, 30, 31 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 (2014, 2015, 2016, 2017).

第 75, 76, 77, 78 回応用物理学会秋季学術講演会プログラム編成委員 (2014, 2015, 2016, 2017).

第 61, 62, 63, 64 回応用物理学会春季学術講演会プログラム編成委員 (2014, 2015, 2016, 2017).

The 4<sup>th</sup> Workshop on Physics in Organic Optoelectronics, Co-Chair (Soochow, China 2016).

学協会連携分子研研究会「表面科学の最先端技術と分子科学(第7回真空・表面科学若手研究会)」運営委員 (2016).

第 76 回岡崎コンファレンス “Workshop on Advanced Spectroscopy of Organic Materials for Electronic Applications” 主催者 (2016).

MPI-PKS 国際重点研究会 “Prospects and Limitations of Electronic Structure Imaging by Angle Resolved Photoelectron Spectroscopy,” Co-Chair (Dresden, Germany 2016).

JSPS-NSFC Joint 3<sup>rd</sup> Workshop on Physics in Organic Optoelectronics, Chair (IMS, Okazaki 2015).

JSPS-NSFC Joint 2<sup>nd</sup> Workshop on Physics in Organic Optoelectronics, Co-chair (Soochow Univ., China 2014).

第 27 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウムプログラム委員 (2013).

JSPS-NSFC Joint 1<sup>st</sup> Workshop on Physics in Organic Optoelectronics, Co-chair (Tokyo Univ. of Sci., Japan 2013).

UVSOR 研究会「UVSOR 有機固体専用ラインの今後の展開」主催者 (2012).

The 4<sup>th</sup> Workshop on Advanced Spectroscopy of Organic Materials for Electronic Applications (ASOMEA4), Local Committee (Chiba, Japan 2007).

21 世紀 COE プログラム若手主導研究会主催者 (2006).

Workshop on Electrical and Electronic Properties in Crystalline Thin Films of Small-Molecules, Co-chair (Chiba, Japan 2005).

UVSOR 研究会「有機薄膜の放射光利用研究：BL8B2 の歩みと今後の展開」主催者 (2007).

学会誌編集委員

真空誌編集委員 (2008–2009).

*Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, Guest Editor (2014).

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

その他

千葉大学工学部工学同窓会部会幹事 (2008–2013).

#### B-8) 大学での講義, 客員

京都大学大学院理学研究科, 客員教授, 「化学特別講義」, 2019 年

広島大学大学院理学研究科, 客員教授, 「放射光科学特論 II」, 2019 年.

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–2019 年.

蘇州大学, 客員教授, 2014 年 4 月–2019 年.

## B-10) 競争的資金

科研費挑戦的萌芽研究,「有機デバイス材料の個性を知る:移動度の直接評価」,解良 聡(2008年-2009年).  
科研費若手研究(A),「分子性固体における電荷輸送とその動的現象の解明」,解良 聡(2008年-2010年).  
科研費基盤研究(B),「パイ共役分子による低次元超格子ヘテロ界面構造とその電子状態」,解良 聡(2011年-2013年).  
日本学術振興会二国間交流事業共同研究費(NSFC),「有機タンDEM光電子デバイスの有機半導体の本性を活用した高性能化」,解良 聡(2013年-2015年).  
科研費基盤研究(A),「精密電子状態評価による有機半導体界面に特徴的な電子機能の解明」,解良 聡(2014年-2016年).  
科研費基盤研究(A),「分子集合体における電子局在性とその電子-フォノン相互作用の影響」,解良 聡(2018年-).  
科研費国際共同研究加速基金(国際共同研究強化(B)),「光電子波数顕微鏡法で切り拓くナノスピン・オービトロニクス」,解良 聡(2019年-).

## C) 研究活動の課題と展望

機能性分子に代表される弱相互作用物質系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,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て進めている。シンクロトロン放射光を利用した各先端分光法(角度分解光電子分光法,共鳴光電子分光法,軟X線吸収分光法,X線定在波分光法など),高感度紫外光電子分光法,気相光電子分光法,レーザー励起二光子光電子分光法,低エネルギー逆光電子分光法,スポット分析型低速電子線回折法を用いた実験を進めている。今年度はメンバーが総替わりし,新たに博士研究員2名による新体制でスタートした。継続的な国際共同研究により研究成果の発信力を維持した。次年度は助教の確保が責務である。一方,UVSOR放射光施設の施設長として国内の当該コミュニティの基盤強化を推進するためのユーザー支援に注力している。UVSOR施設は放射光を利用した分子科学研究分野で国際的な競争力があり,欧米の先端放射光施設と相補的な国際共同研究拠点として貢献している。放射光利用実験の新規軸として,運動量分解光電子顕微鏡(Momentum Microscope)装置を導入する。装置導入において,欧米からの遅れを取り戻すべく基本設計に独自性を含めるため,開発メーカーとの議論を進めてきた。また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を締結し,装置開発とその利用展開についての共同研究を推進することで同意した。予算的な支援として国際共同研究加速基金(B)の獲得に成功した。次年度は本装置の利用を推進するが,有機固体系のオールジャパン体制(実験班,理論班)を構築し,戦略的に新奇実験を牽引する。国内の量子ビーム関連施設の将来計画が随所で俄かに動きだし,UVSOR施設についても次世代施設UVSOR-IVの計画立案に奔走した。次年度は具体的な予算獲得の方策を検討する段階に移行する。

## 長坂将成(助教)(2007年4月1日着任)

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液体の局所構造解析
- b) 低エネルギー領域の軟X線吸収分光測定のための検出器の開発
- c) 電極固液界面の局所構造解析

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 1 keV 以下の軟X線領域には化学研究に重要な C, N, O の K 吸収端や遷移金属 (Mn, Fe など) の L 吸収端が存在するため, 液体の局所構造を元素選択的に調べられる有望な光領域である。しかしながら, 軟X線の液体による吸収が大きく, 液体層を 1  $\mu\text{m}$  以下にしなければ軟X線吸収分光 (XAS) 測定が不可能であった。我々は液体層の厚さを 20 nm ~ 2000 nm の範囲で調整できる透過型液体セルを独自に開発して, 液体試料の XAS 測定に成功した。更に, 量子化学に基づく内殻励起計算の結果と, XAS によるピークシフトを比較することで, 異なる元素ごとに液中の分子間相互作用を調べる手法を確立した。本年度は微小不均一性を示すアセトニトリル水溶液の XAS 測定を行い, 水とアセトニトリルの双極子相互作用により, アセトニトリルのクラスターが生成することで, 中間の濃度領域で微小不均一性が現れることを明らかにした。
- b) 200 eV 以下の低エネルギー領域には, Li-K, B-K, P-L, S-L 吸収端があるため重要であるが, 回折格子により分光された一次光の透過率が非常に小さく, 高次光に埋もれてしまうため, XAS 測定は困難であった。そこで, 試料を透過した軟X線を金基板に照射して, 放出される Au 4f 光電子の運動エネルギー分析により, 一次光由来の光電子強度だけを収量する新しいタイプの検出器を開発した。
- c) Au(111) 電極上の水の局所構造を調べるために, 蛍光収量型の電気化学セルを開発した。これにより, 異なる電位における水の構造変化と, 電極表面での酸化物形成を, O-K 吸収端 XAS 測定から調べた。

B-1) 学術論文

**M. NAGASAKA, H. YUZAWA, N. TAKADA, M. AOYAMA, E. RÜHL and N. KOSUGI,** “Laminar Flow in Microfluidics Investigated by Spatially-Resolved Soft X-Ray Absorption and Infrared Spectroscopy,” *J. Chem. Phys.* **151**, 114201 (7 pages) (2019).  
**J. REN, D. S. ACHILLEOS, R. GOLNAK, H. YUZAWA, J. XIAO, M. NAGASAKA, E. REISNER and T. PETIT,** “Uncovering the Charge Transfer between Carbon Dots and Water by In Situ Soft X-Ray Absorption Spectroscopy,” *J. Phys. Chem. Lett.* **10**, 3843–3848 (2019).

B-4) 招待講演

**M. NAGASAKA,** “Soft X-Ray Absorption Spectroscopy of Liquid for Understanding Chemical Processes in Solution,” Japan-Korea Molecular Science Symposium “Advances in Materials and Molecular Sciences,” Nagoya (Japan), July 2019.  
長坂将成, 「軟X線 XAFS の使いどころ: 何が観えて何が解かるのか」, 日本化学会第 99 春季年会特別企画講演「化学者のための放射光ことはじめ——XAFS 構造解析の基礎と先端応用」, 甲南大学, 兵庫, 神戸, 2019年3月。  
長坂将成, 「軟X線 XAFS による溶液反応のその場観測」, 電磁波励起反応場第 188 委員会 2019年度第1回ワークショップ「マイクロ波「その場」観察の新展開」, 東京工業大学大岡山キャンパス, 東京, 2019年5月。

長坂将成,「液体の軟X線吸収分光測定の実状と今後の展望」,第25回HiSOR研究会「小型放射光リングによる多彩な量子ビームの発生と応用」,広島大学,広島,東広島,2019年10月.

長坂将成,「軟X線吸収分光法による溶液反応のオペランド観測」,日本表面真空学会放射光表面科学研究部会「放射光を利用したオペランド表面界面観測の最先端:構造から機能・反応へ」,つくば国際会議場,茨城,つくば,2019年10月.

#### B-6) 受賞,表彰

長坂将成,第25回井上研究奨励賞(2009).

長坂将成,第4回分子科学会優秀講演賞(2010).

長坂将成,第18回日本放射光学会奨励賞(2014).

長坂将成,平成27年度電気化学会論文賞(共同受賞)(2015).

長坂将成,分子科学研究奨励森野基金(2016).

長坂将成,日本化学会第31回若い世代の特別講演会特別講演証(2017).

長坂将成,第10回分子科学会奨励賞(2017).

長坂将成,自然科学研究機構若手研究者賞(2019).

#### B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

日本放射光学会行事委員(2013–2015,2017–2019).

学会の組織委員等

第14回XAFS討論会プログラム委員(2011),実行委員(2011).

日本放射光学会第7回若手研究会共同世話人(2014).

International Workshop on Trends in Advanced Spectroscopy in Materials Science (TASPEC), Organizing Committee (2018).

#### B-10) 競争的資金

科研費若手研究(スタートアップ),「共鳴X線光電子分光法による分子クラスターの電子状態の解明」,長坂将成(2007年–2008年).

科研費若手研究(B),「表面共吸着系の電子状態の同時観測法の開発と電極反応への展開」,長坂将成(2009年–2010年).

科研費若手研究(A),「軟X線吸収分光法による電極固液界面の局所電子構造の解明」,長坂将成(2011年–2013年).

住友財団基礎科学研究助成,「下部臨界温度を持つ溶液の局所構造解析とその起源の解明」,長坂将成(2014年–2015年).

光科学技術研究振興財団研究助成,「軟X線吸収分光法による電極固液界面の紫外光励起過程の解明」,長坂将成(2015年–2016年).

科研費基盤研究(C),「マイクロ流路を用いた溶液反応の時間分解軟X線分光法の開発」,長坂将成(2016年–2018年).

旭硝子財団研究奨励(第1分野),「オペランド軟X線吸収分光法による電気二重層の局所構造変化の解明」,長坂将成(2017年–2018年).

自然科学研究機構新分野創成センター先端光科学研究分野プロジェクト,「軟X線吸収分光法による光化学系IIタンパク質の酸素発生中心の構造解析」,長坂将成(2018年,2019年).

科研費基盤研究(B),「超高速軟X線吸収分光法による光化学系IIタンパク質の光合成反応の機構解明」,長坂将成(2019年–2021年).

公益財団法人村田学術振興財団研究助成,「軟X線吸収分光法によるリチウムイオン電池のオペランド測定」,長坂将成(2019年–2020年).

## 光源加速器開発研究部門（極端紫外光研究施設）

加藤 政 博(教授) (2000年3月1日着任, 2004年1月1日昇任～2019年3月31日)\*  
(特任教授) (2019年4月1日着任)

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。
- b) 自由電子レーザー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。次世代の放射光源である回折限界リングや高繰り返し極紫外自由電子レーザーに関する基礎研究を進めた。
- c) 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。
- d) 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。
- e) 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継続している。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ている。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。
- f) アンジュレータ放射光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。

B-1) 学術論文

L. GUO and M. KATOH, "pn-Type Substrate Dependence of CsK<sub>2</sub>Sb Photocathode Performance," *Phys. Rev. Accel. Beams* **22**, 033401 (6 pages) (2019).

**H. ZEN, H. OHGAKI, Y. TAIRA, T. HAYAKAWA, T. SHIZUMA, I. DAITO, J.-I. YAMAZAKI, T. KII, H. TOYOKAWA and M. KATOH**, “Demonstration of Tomographic Imaging of Isotope Distribution by Nuclear Resonance Fluorescence,” *AIP Adv.* **9**, 035101 (7 pages) (2019).

**H. KAWAGUCHI and M. KATOH**, “Orbital Angular Momentum of Liénard–Wiechert Fields,” *Prog. Theor. Exp. Phys.* **2019**, 083A02 (18 pages) (2019).

**Y. HIKOSAKA, T. KANEYASU, M. FUJIMOTO, H. IWAYAMA and M. KATOH**, “Coherent Control in the Extreme Ultraviolet and Attosecond Regime by Synchrotron Radiation,” *Nat. Commun.* **10**, 4988 (5 pages) (2019).

**T. KANEYASU, Y. HIKOSAKA, M. FUJIMOTO, H. IWAYAMA and M. KATOH**, “Controlling the Orbital Alignment in Atoms Using Cross-Circularly Polarized Extreme Ultraviolet Wave Packets,” *Phys. Rev. Lett.* **123**, 233401 (5 pages) (2019).

B-2) 国際会議のプロシーディングス

**M. KATOH**, “Optical Vortex Emitted from Free Electrons in Nature,” *SPIE Proc. 11099, Light in Nature VII*, 1109903 (2019).

B-4) 招待講演

**M. KATOH**, “Spatial Structure of Radiation from Relativistic Electrons,” The 38<sup>th</sup> JSST Annual International Conference on Simulation Technology, Miyazaki (Japan), November 2019.

**M. KATOH**, “Structured light beams from synchrotron,” International Conference on Materials and Systems for Sustainability 2019, Nagoya (Japan), November 2019.

B-6) 受賞, 表彰

島田美帆, 第8回日本加速器学会奨励賞 (2011).

平 義隆, 第7回日本物理学会若手奨励賞 (2012).

肥田洋平, 第9回日本加速器学会年会賞(ポスター部門) (2012).

丹羽貴弘, 第9回日本加速器学会年会賞(ポスター部門) (2012).

平 義隆, 第9回日本加速器学会年会賞(口頭発表部門) (2012).

梶浦陽平, 第10回日本加速器学会年会賞(ポスター部門) (2013).

稲垣利樹, 第11回日本加速器学会年会賞(ポスター部門) (2014).

伊藤圭也, 第12回日本加速器学会年会賞(ポスター部門) (2015).

宮内智寛, 第12回日本加速器学会年会賞(ポスター部門) (2015).

高嶋圭史, 保坂将人, 山本尚人, 加藤政博, 竹田美和, 第20回超伝導科学技術賞(未踏科学技術協会) (2016).

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 (2008–2009, 2014–2017).

日本放射光学会評議員 (2006–2009, 2010–2012, 2013–2015, 2016–2018, 2019–).

学会の組織委員等

日本加速器学会組織委員 (2004–).

日本放射光学会第13回年会プログラム委員長 (2000).

日本加速器学会第10回年会プログラム委員長(2013).  
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(2015–2016).  
日本学術振興会審査・評価部会委員(2017).  
高エネルギー加速器研究機構ERL計画推進委員会委員(2009–).  
高エネルギー加速器研究機構ERL計画評価専門委員会委員長(2017).  
高エネルギー加速器研究機構Photon Factory Machine Advisory Committee 委員(2017).  
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–).  
学会誌編集委員  
日本放射光学会誌編集委員(2001–2002).

B-8) 大学での講義, 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–.

B-10) 競争的資金

科研費基盤研究(B), 「電子ビームのレーザー微細加工によるコヒーレント光発生」, 加藤政博(2008年–2010年).  
文部科学省光・量子科学研究拠点形成に向けた基盤技術開発プロジェクト 量子ビーム基盤技術開発プログラム, 高度化ビーム技術開発課題, 「リング型光源とレーザーを用いた光発生とその応用」, 加藤政博(2008年–2012年).  
科研費基盤研究(B), 「超狭帯域真空紫外コヒーレント放射光源の開発」, 加藤政博(2011年–2013年).  
科研費基盤研究(B), 「シンクロtron放射による真空紫外コヒーレント光渦ビームの発生」, 加藤政博(2014年–2016年).  
科研費基盤研究(A), 「渦放射光発生技術の高度化と利用への展開」, 加藤政博(2017年–).

C) 研究活動の課題と展望

UVSORは2000年以降の高度化により, 既に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。この光源性能を100%引き出すための安定性の向上を目指し, パルス六極磁石による高度な入射方式の開発やビーム不安定性抑制法の開発を名古屋大学と協力し継続している。また老朽化対策や将来計画に関する検討にも積極的に取り組む。自由電子レーザー及び外部レーザーを用いたコンプトン散乱ガンマ線の発生とその利用法の開拓に, 名古屋大学, 京都大学, 量子技術研究開発機構, 山形大学などと協力し取り組んでいる。発生法の開発から, 核共鳴蛍光イメージング法の開発, 光子光子相互作用に関する基礎物理学実験, 陽電子消滅法による材料評価など, 応用技術へ重心を移す。放射光による光渦の生成については, 広島大学, 名古屋大学などと協力し, その光学的特性の詳細評価, さらに放射光光渦同士合成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を継続して進める。また, 深紫外・真空紫外域の光渦ビームを用いた光渦と物質系の相互作用に関する実験研究を九州シンクロtron光センター, 富山大学などと協力し継続して進める。二連アンジュレータを用いた孤立原子系の量子状態制御は今後幅広い波長域へ展開できる可能性があり, 外部資金の獲得にも努め, 引き続き世界を先導する研究に注力する。

\*) 2019年4月1日広島大学放射光科学センター教授

## 電子ビーム制御研究部門（極端紫外光研究施設）

松 井 文 彦（主任研究員）（2018年4月1日着任）

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) 電子分光装置の新規開発とビームラインの高度化
- b) 光電子回折・分光に関する現象の解明と測定手法開発
- c) 表面電子物性・化学特性にかかわる新奇現象の解明

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) 導入計画推進を主務とする。MMを開発した 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いる。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。電子物性研究に有力な 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現する MM をデザインし、今年度は FZJ や装置メーカーと打ち合わせを重ね導入を実現した。②他方、受け入れ予定の BL6U では従来型の静電半球分析器に機械式電子軌道ディフレクタを組み合わせた広角取込み角度分解光電子分光システムを完成させ、これを利用した成果が国際学会での招待講演に繋がった。③並行して全天球エネルギー・スピン分析器を考案、特許出願し開発中である。①は価電子帯光電子分光用の high-end 型、②は汎用型の波数分解光電子分光装置、③は内殻光電子ホログラフィー用の角度・スピン分解光電子分光装置という位置づけである。
- b) 連続的なエネルギー可変性が放射光の最大の特徴である。BL6U は軟X線領域 (45–700 eV) をカバーする直線偏光ビームラインである。① UVSOR の測定系チームとともに光学系のオゾン洗浄を行い、分子科学で重要となる C 吸収端の光を供給できるようにした。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。また、吸収端にてグラファイトの  $\pi$  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。共鳴 Auger 電子スペクトルに価電子帯分散があらわれる現象の発見は重要であり国際学会で招待講演の内容となった。②光エネルギー可変性を活かし  $k_z$  分散測定や偏光特性を活かした原子軌道波動関数解析の知見は BL6U での共同研究推進の基盤となっている。
- c) 光電子回折・分光を用いて  $\text{Mo}_4\text{O}_{11}$  や層状物質など低次元物質の電子構造相転移の研究している。層状物質は容易に劈開でき、その表面の電子状態の研究が盛んであるが、劈開容易面とバルクの平均構造は全く別物であることをいくつかの系について明らかにしてきた。試料作製・物性評価グループとの共同研究を進め、アルカリ金属ドーブ系など嫌気性の試料を取り扱い、上述のビームラインで測定できる装置を構築した。

B-1) 学術論文

**F. MATSUI, S. MAKITA, H. MATSUDA, T. OHIGASHI, H. YAMANE and N. KOSUGI, "Identification of Twinning-Induced Edges on the Cleaved Graphite Crystal Surface," *J. Phys. Soc. Jpn.* **88**, 114704 (3 pages) (2019).**

**F. MATSUI, K. YASUDA, N. MAEJIMA, H. MATSUI, T. MATSUSHITA and H. DAIMON**, “Chemical and Magnetic Properties of Polycrystalline Iron Surface Revealed by Auger Electron Holography, Spectroscopy, and Microscopy,” *Jpn. J. Appl. Phys.* **58**, 110602 (8 pages) (2019).

**T. KINOSHITA, T. MURO, T. MATSUSHITA, H. OSAWA, T. OHKOCHI, F. MATSUI, H. MATSUDA, M. SHIMOMURA, M. TAGUCHI and H. DAIMON**, “Progress in Photoelectron Holography at SPring-8,” *Jpn. J. Appl. Phys.* **58**, 110503 (11 pages) (2019).

**D. Y. USACHOV, A. V. TARASOV, F. MATSUI, M. MUNTWILER, K. A. BOKAI, V. O. SHEVELEV, O. Y. VILKOV, M. V. KUZNETSOV, L. V. YASHINA, C. LAUBSCHAT, A. COSSARO, L. FLOREANO, A. VERDINI and D. V. VYALIKH**, “Decoding the Structure of Interfaces and Impurities in 2D Materials by Photoelectron Holography,” *2D Materials* **6**, 045046 (2019).

**E. UESUGI, T. UCHIYAMA, H. GOTO, H. OTA, T. UENO, H. FUJIWARA, K. TERASHIMA, T. YOKOYA, F. MATSUI, J. AKIMITSU, K. KOBAYASHI and Y. KUBOZONO**, “Fermi Level Tuning of Ag-Doped Bi<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> Topological Insulator,” *Sci. Rep.* **9**, 5376 (8 pages) (2019).

**H. YAMANE, F. MATSUI, T. UEBA, T. HORIGOME, S. MAKITA, K. TANAKA, S. KERA and N. KOSUGI**, “Acceptance-Cone-Tunable Electron Spectrometer for Highly-Efficient Constant Energy Mapping,” *Rev. Sci. Instrum.* **90**, 093102 (7 pages) (2019).

**M. TAGUCHI, F. MATSUI, N. MAEJIMA, H. MATSUI and H. DAIMON**, “Disorder and Mixed Valence Properties of Sr<sub>2</sub>FeMoO<sub>6</sub> Studied by Photoelectron Diffraction and X-Ray Absorption Spectroscopy,” *Surf. Sci.* **684**, 53–56 (2019).

**T. GREBER, A. P. SEITSONEN, A. HEMMI, J. DREISER, R. STANIA, F. MATSUI, M. MUNTWILER, A. A. POPOV and R. WESTERSTRÖM**, “Circular Dichroism and Angular Deviation in X-Ray Absorption Spectra of Dy<sub>2</sub>ScN@C<sub>80</sub> Single-Molecule Magnets on *h*-BN/Rh(111),” *Phys. Rev. Mater.* **3**, 014409 (5 pages) (2019).

B-2) 国際会議のプロシーディングス

**Y. FUJITA, H. OTA, T. MATSUSHITA, T. MURO, Y. SENBA and F. MATSUI**, “Mapping Nanometer and Micrometer-Scale Structures at Graphite Surface by Photoelectron Diffraction,” *Surf. Interface Anal.* **51**, 74–78 (2019).

**Y. HASHIMOTO, M. TAGUCHI, S. FUKAMI, H. MOMONO, T. MATSUSHITA, H. MATSUDA, F. MATSUI and H. DAIMON**, “Site-Sensitive X-Ray Photoelectron Spectroscopy of Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> by Photoelectron Diffraction,” *Surf. Interface Anal.* **51**, 115–119 (2019).

B-3) 総説, 著書

**R. EGUCHI and F. MATSUI**, “Graphite and Intercalated Compound Superconductors: Atomic and Electronic Structures,” in *Physics and Chemistry of Carbon-Based Materials: Basis and Applications*, Y. Kubozono, Ed., Springer Nature; Singapore Pte Ltd., Chapter 1, pp. 1–28 (2019).

B-4) 招待講演

**F. MATSUI**, “Resonant Auger electron diffraction and resonant photoelectron spectroscopy,” ALC’19, Kyoto (Japan), October 2019.

#### B-5) 特許出願

特願 2019-190516, 「球面収差調整カソードレンズ, 球面収差補正静電型レンズ, 電子分光装置, 及び光電子顕微鏡」, 松田博之, 松井文彦(自然科学研究機構), 2019年.

#### B-7) 学会および社会的活動

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-).

12<sup>th</sup> International Symposium on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices '19 出版委員 (2018-2020).

文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

日本学術振興会マイクロビームアナリシス第 141 委員会企画幹事 (2014-).

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(B), 「軌道磁気量子数計測法の確立と低次元電子物性研究への応用」, 松井文彦 (2017年-2020年).

科研費新学術領域研究(研究領域提案型), 「3D活性サイト科学のプラットフォーム構築による総括と研究支援」(代表: 大門寛), 松井文彦(研究分担者) (2014年-2019年).

科研費新学術領域研究(研究領域提案型), 「3D活性サイト科学の海外拠点・国際ネットワーク構築」(代表: 大門寛), 松井文彦(研究分担者) (2015年-2019年).

科研費新学術領域研究(研究領域提案型), 「顕微光電子ホログラフィーによる活性サイトの時間分解3D原子イメージング」(代表: 木下豊彦), 松井文彦(研究分担者) (2014年-2019年).

科研費国際共同研究加速基金(国際共同研究強化(B)), 「光電子波数顕微鏡法で切り拓くナノスピン・オービトロニクス」(代表: 解良 聡), 松井文彦(研究分担者) (2019年-2022年).

## 大 東 琢 治 (助教) (2011 年 8 月 1 日着任)

A-1) 専門領域：X線光学

A-2) 研究課題：

- a) 走査型透過軟X線顕微鏡ビームラインの発展
- b) 走査型透過軟X線顕微鏡を用いた応用手法の開発

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) リチウム K 吸収端 (~55 eV) の高分解能吸収分光の実現に向けて、高次光フィルター機能を備えた高効率の集光光学素子 (Fresnel zone plate) の開発を行なった。これを用いた光学系の評価を行なった結果、エネルギー分解能 ( $E/\Delta E$ ) は約 1,700 で、空間分可能 83 nm であることが判った。これを用いてリチウムイオン電池電極を FIB 加工した試料に分布する、リチウムの化学状態分析を行なった。
- b) JAMSTEC 高知コア研、極地研究所、SPring-8、JAXA、そして分子研の5機関での分析機器において、試料の大気非暴露条件下を維持したまま分析を行うことのできる“施設間横断型分析システム”の構築を行い、これを用いて大気非暴露条件下でリチウムイオン電池の観察を行なった。ここで得られた成果は論文として、現在投稿中である。

B-1) 学術論文

**K. SHINOHARA, S. TONE, T. EJIMA, T. OHIGASHI and A. ITO**, “Quantitative Distribution of DNA, RNA, Histone and Proteins Other than Histone in Mammalian Cells, Nuclei and a Chromosome at High Resolution Observed by Scanning Transmission Soft X-Ray Microscopy (STXM),” *Cells* **8**, 164 (20 pages) (2019).

**M. Y. ISMAIL, M. PATANEN, J. A. SIRVIO, M. VISANKO, T. OHIGASHI, N. KOSUGI, M. HUTTULA and H. LIIMATAINEN**, “Hybrid Films of Cellulose Nanofibrils, Chitosan and Nanosilica—Structural, Thermal, Optical, and Mechanical Properties,” *Carbohydr. Polym.* **218**, 87–94 (2019).

**F. MATSUI, S. MAKITA, H. MATSUDA, T. OHIGASHI, H. YAMANE and N. KOSUGI**, “Identification of Twinning-Induced Edges on the Cleaved Graphite Crystal Surface,” *J. Phys. Soc. Jpn.* **88**, 114704 (3 pages) (2019).

B-4) 招待講演

**T. OHIGASHI**, “Development of in-situ sample cells for scanning transmission X-ray microscopy,” The 23<sup>rd</sup> International Annual Symposium on Computational Science and Engineering, Cheng Mai (Thailand), June 2019.

**T. OHIGASHI**, “Recent Status and Developments of a Scanning Transmission X-Ray Microscopy Beamline in UVSOR-III Synchrotron,” 25<sup>th</sup> NSRRC User’s Meeting and Workshop, Hsinchu (Taiwan), September 2019.

**T. OHIGASHI**, “Recent developments and researches by using scanning transmission X-ray microscopy in UVSOR synchrotron,” 7<sup>th</sup> International Conference of Sabaragamuwa University of Sri Lanka, Belihuloya (Sri Lanka), November 2019.

## B-7) 学会および社会的活動

### 学会の組織委員等

SpectroNanoscropy Workshop, Organizing Committee (2014-).

X線結像光学研究会幹事 (2015-).

第 32回日本放射光学会年会シンポジウム組織委員会 (2018-2019).

International Conference on X-ray Optics and Applications 2017 プログラム委員 (2016-2017).

第 26回バイオイメージング学会学術集会プログラム委員 (2017).

第 13回X線結像光学研究会組織委員会 (2015).

第 27回日本放射光学会年会シンポジウム組織委員会 (2013).

分子研研究会 (学協会連携)・放射光学会第 8回若手研究会「軟X線イメージングの描く未来」主催 (2015).

### 学会誌編集委員

*Synchrotron Radiation News*, Editor (2017-).

日本放射光学会誌編集委員 (2012-2014).

### その他

出前授業「X線で見える小さな世界～塗り薬からはやぶさ2まで～」岡崎市立常盤中学校 (2019).

第一回KITサイエンスカフェ講師 (2018).

## B-8) 大学での講義, 客員

立命館大学 SR センター, 特別研究員, 2018年-.

## B-10) 競争的資金

科研費基盤研究(C) (一般), 「走査型透過軟X線顕微鏡による超軽元素2次元化学状態分析法の開発」, 大東琢治 (2016年-2018年).

## B-11) 産学連携

共同研究, (株)住友ゴム工業, 「走査型透過X線顕微鏡を用いたポリマー中の薬品・添加剤の分散及び化学状態解析」, 大東琢治 (2017年-).

## 光物性測定器開発研究部門（極端紫外光研究施設）

田中清尚（准教授）（2014年4月1日着任）

A-1) 専門領域：物性物理学，放射光科学

A-2) 研究課題：

- a) 高温超伝導体の電子状態の解明
- b)  $\mu$ フォーカス角度分解光電子分光と新規スピン分解角度分解光電子分光装置の開発
- c) 角度分解光電子分光における低温技術の開発

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) UVSOR BL5Uにおいて、鉄系高温超伝導体  $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$  の角度分解光電子分光測定を行った。近年新しく報告され注目を集めている  $\text{C}_4$  相の組成においてのみ、特異な超伝導ギャップを観測した。具体的には  $\Gamma$  点近傍のホール面を形成するバンドの一つがほぼ完全に抑制されていること、さらに電子面を形成しているバンドに顕著な運動量空間依存性を観測した。この結果により、中性子散乱で  $\text{C}_4$  相においてのみ観測されている異常な振る舞いが、フェルミ面間のネスティングを考慮することで説明できることが判明した。
- b) ビームラインとエンドステーションの全面的な更新を行っていた UVSOR BL5U は2016年度より高分解能角ビームラインとしてユーザー利用を開始し、2018年度に試料直前に最終集光ミラーを配置することでビームを  $400 \text{ (H)} \times 120 \text{ (V)} \mu\text{m}$  から  $23 \text{ (H)} \times 40 \text{ (V)} \mu\text{m}$  に集光することに成功している。今年度は試料を動かすことなく電子状態の運動量空間依存性を測定できるディフレクターの開発が終了し、BL5U で利用できるすべての励起光エネルギー・レンズモードにおいて、ディフレクターの使用が可能となった。さらに試料位置のモーター制御と連動した光電子取得ソフトウェアを開発・実装し、光電子強度の空間依存性をマッピングできるようになった。この開発により微細な試料や不均一な試料の測定が可能となった。また高効率スピン分解角度分解光電子分光測定の計画も進めている。
- c) 角度分解光電子分光実験の高エネルギー分解能測定には、試料をどれだけ冷却できるかが重要となる。BL5U 用に開発した冷却可能な5軸マニピュレータは、これまで試料部において  $3.8 \text{ K}$ 、参照用金部で  $3.2 \text{ K}$  という放射光施設の光電子分光装置としては世界でもトップクラスの低温を実現している。現在 UVSOR で最も高分解能な測定が可能である BL7U では、これまで試料を  $12 \text{ K}$  までしか冷却することができなかったため、その性能を十分に生かすことができていなかったが、新たに6軸マニピュレータの開発を進め、試料部において  $4.5 \text{ K}$ 、参照用金部で  $4.2 \text{ K}$  を達成した。現在さらなる低温化を目指して、ソフトウェアによる熱伝導解析を行っている。

B-1) 学術論文

**T. ADACHI, S. IDETA, Z. TIN, H. USUI, K. TANAKA, S. MIYASAKA and S. TAJIMA**, “Electronic Structure of  $\text{Sr}_{1-y}\text{Ca}_y\text{Fe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$  ( $x = 0.25, y = 0.08$ ) Revealed by Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy,” *J. Phys. Soc. Jpn.* **88**, 084701 (8 pages) (2019).

**Y. OHTSUBO, Y. YAMASHITA, K. HAGIWARA, S. IDETA, K. TANAKA, R. YUKAWA, K. HORIBA, H. KUMIGASHIRA, K. MIYAMOTO, T. OKUDA, W. HIRANO, F. IGA and S. KIMURA**, “Non-Trivial Surface States of Samarium Hexaboride at the (111) Surface,” *Nat. Commun.* **10**, 2298 (7 pages) (2019).

S. YAMANAKA, K. TONAMI, M. IWASHITA, K. YOSHIDA, R. TAKEUCHI, S. IDETA, K. TANAKA, K. MASE, K. YAMADA, H. YOSHIDA and Y. NAKAYAMA, “High Sensitivity Detection of the Frontier Electronic States of  $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$  Single Crystals by Low Energy Excitation,” *Appl. Phys. Express* **12**, 051009 (5 pages) (2019).

K. TANAKA, N. HIEU, G. VINCINI, T. MASUI, S. MIYASAKA, S. TAJIMA and T. SASAGAWA, “Quantitative Comparison between Electronic Raman Scattering and Angle-Resolved Photoemission Spectra in  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  Superconductors: Doping Dependence of Nodal and Antinodal Superconducting Gaps,” *J. Phys. Soc. Jpn.* **88**, 044710 (6 pages) (2019).

H. SHIONO, S. ISHIHARA, K. MIMURA, H. SATO, E. SCHWIER, K. SHIMADA, M. TANIGUCHI, S. IDETA, K. TANAKA, T. ZHUANG, K. MATSUMOTO, K. HIRAOKA and H. ANZAI, “Temperature Dependence of the Kondo Resonance Peak in Photoemission Spectra of  $\text{YbCdCu}_4$ ,” *AIP Conf. Proc.* **2054**, 040013 (4 pages) (2019).

#### B-4) 招待講演

田中清尚, 「UVSORにおける高温超伝導体の超伝導ギャップ測定, 先端磁気分光と理論計算の融合研究: 『界面多極子相互作用』が拓く新しい学理」, 東京, 2019年6月.

#### B-7) 学会および社会的活動

学会の組織委員等

日本放射光学会プログラム副委員長 (2019).

学会誌編集委員

日本放射光学会誌編集委員 (2014–2016).

日本放射光学会誌編集委員 (2016–). (出田真一郎)

#### B-10) 競争的資金

科研費若手研究 (スタートアップ), 「高温超伝導体の反射型テラヘルツ時間領域分光」, 田中清尚 (2008年–2009年).

科研費若手研究 (B), 「電荷・スピンストライブ秩序相を有する高温超伝導体の電子構造」, 田中清尚 (2012年–2014年).

グローバルCOEプログラム「物質の量子機能解明と未来型機能材料創出」萌芽的研究, 「鉄系超伝導体における低エネルギー電荷応答」, 田中清尚 (2012年).

自然科学研究機構新分野創成センターイメージングサイエンス研究分野プロジェクト, 「ディフレクターを用いた新しい高分解能運動量空間電子状態イメージング」, 田中清尚 (2015年).

科研費若手研究 (B), 「角度分解光電子分光及びフェムト秒時間分解電子線回折による高温超伝導起源の解明」, 出田真一郎 (2015年–2016年).

#### C) 研究活動の課題と展望

これまで整備・立ち上げを進めてきたUVSORのBL5Uの高分解能角度分解光電子分光ビームラインはユーザー利用を開始した。現在、高分解能を利用した角度分解光電子分光実験を行っており成果が出始めている。今年度は角度分解光電子分光装置の電子レンズ部(ディフレクター)の開発が完了し、昨年度導入した $\mu$ フォーカスビームと合わせることで微小な試料や不均一な試料の測定が可能となった。新しい高効率スピン分解測定手法の開発も進めている。

## 光化学測定器開発研究部門（極端紫外光研究施設）

岩 山 洋 士（助教）（2010年4月1日着任）

A-1) 専門領域：軟X線分子分光，光化学反応動力学

A-2) 研究課題：

- a) 液晶相物質の in situ 透過型軟X線吸収分光法の開発
- b) X線自由電子レーザーを用いた時間分解・透過型軟X線吸収分光法の開発

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 液晶分子は分子が凝集し集団となることで複屈折などの機能を有する材料であり，分子1個の性質を調べただけではその機能・物性解明には不十分である。水などの液相のX線吸収スペクトル計測を可能にした UVSOR BL3U の液体セルを用いて，in situ 液晶相での液晶分子を対象に透過型X線吸収スペクトル計測を行っている。実験で用いた試料は，代表的な液晶分子であり棒状形状を有する 4-Cyano-4'-pentylbiphenyl (5cb) を用いた。また固相・液晶相また液晶相・液体相の相転移温度がそれぞれ 22 °C, 35 °C と常温付近であるため，試料温度を制御することで3つの相での XAS 測定を行った。

固相・液晶相・液体相でX線吸収スペクトルのピークシフトが観測されたが，このエネルギーシフトから局所的な液晶分子周辺の弱い相互作用による電子状態の変化を理解するためには，高精度な理論計算と比較する必要がある。内殻空孔状態を計算することができるソフトウェア Stobe を導入し，量子化学計算を行えるよう環境を整え，スペクトルのピークアライメントを行った。

ベンゼン環由来の C 1s→ $\pi^*$  に対応するピークの温度変化に着目すると，固相から液晶相相転じともない高エネルギーシフトしていることが明らかになった。ベンゼン分子の先行研究例によると，このエネルギーシフトは分子間のベンゼン環間の  $\pi$ - $\pi$  相互作用が弱くなっていることに相当する。観測された高エネルギーシフトは固相から液晶相になり分子位置の秩序を失い，分子間の相互作用が弱くなったためと考えられる。

- b) X線自由電子レーザー SACLA BL1 を利用した液体試料用の pump-probe 法による時間分解・透過型軟X線吸収分光器の開発を提案し，2019年度 SACLA 基盤開発プログラムに採択され研究を進めている。化学反応の多くは溶液内で起こり，また光合成をはじめとした光化学反応また生命現象は細胞液内でおこることを考えると，固相・気相に加え液相を研究対象に加えることは重要である。特に，軟X線領域は生命において重要な炭素，窒素，酸素元素の K 殻吸収端を含む。SACLA BL1 の利用可能な基本波（1次光）の光エネルギーは約 40 ~ 120 eV であり，これまで軟X線吸収分光は難しいと思われていたが，我々は5次光，すなわち 600 eV までレーザー発振していることを気体試料 Ar(2p) および CO<sub>2</sub>(Cl<sub>1s</sub>, O1s) の透過型X線吸収スペクトルにより明らかにし，本 BL にて透過型軟X線吸収分光法が可能であることを示した。

B-1) 学術論文

**T. KANEYASU, Y. HIKOSAKA, M. FUJIMOTO, H. IWAYAMA and M. KATOH,** “Controlling the Orbital Alignment in Atoms Using Cross-Circularly Polarized Extreme Ultraviolet Wave Packets,” *Phys. Rev. Lett.* **123**, 233401 (5 pages) (2019).

**Y. HIKOSAKA, T. KANEYASU, M. FUJIMOTO, H. IWAYAMA and M. KATOH**, “Coherent Control in the Extreme Ultraviolet and Attosecond Regime by Synchrotron Radiation,” *Nat. Commun.* **10**, 4988 (5 pages) (2019).

**H. FUKUZAWA, R. R. LUCCHESI, X. J. LIU, K. SAKAI, H. IWAYAMA, K. NAGAYA, K. KREIDI, J. R. HARRIES, Y. TAMENORI, Y. MORISHITA, I. H. SUZUKI, N. SAITO and K. UEDA**, “Probing Molecular Bond-Length Using Molecular-Frame Photoelectron Angular Distributions,” *J. Chem. Phys.* **150**, 174306 (5 pages) (2019).

**H. IWAYAMA and J. R. HARRIES**, “Resonant-Auger-State-Selected Dissociation Dynamics and Dissociation Limits of N 1s  $\rightarrow$   $\pi^*$  Core Excited N<sub>2</sub> Molecules Studied Using a Two-Dimensional Auger-Electron-Photoion Coincidence Method,” *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **232**, 40–44 (2019).

**K. FUCHIZAKI, T. SAKAGAMI and H. IWAYAMA**, “Pressure-Induced Local Symmetry Breaking upon Liquid–Liquid Transition of GeI<sub>4</sub> and SnI<sub>4</sub>,” *J. Chem. Phys.* **150**, 114501 (11 pages) (2019).

**J. R. HARRIES, H. IWAYAMA, S. KUMA, M. IIZAWA, N. SUZUKI, Y. AZUMA, I. INOUE, S. OWADA, T. TOGASHI, K. TONO, M. YABSHI and E. SHIGEMASA**, “Superfluorescence, Free-Induction Decay, and Four-Wave Mixing: Propagation of Free-Electron Laser Pulses through a Dense Sample of Helium Ions,” *Phys. Rev. Lett.* **121**, 263201 (5 pages) (2018).

#### B-6) 受賞, 表彰

岩山洋士, 原子衝突若手奨励賞 (2018).

#### B-7) 学会および社会的活動

学会の組織委員等

第 27 回日本放射光学会年会放射光科学合同シンポジウムプログラム委員 (2014).

第 28 回日本放射光学会年会放射光科学合同シンポジウムプログラム委員 (2015).

第 32 回日本放射光学会年会放射光科学合同シンポジウムプログラム委員 (2019).

日本物理学会領域1運営委員(原子・分子分科) (2018–2019).

学会誌編集委員

日本放射光学会誌編集委員 (2010–2012, 2018– ).

#### B-10) 競争的資金

松尾学術研究助成, 「極端紫外レーザー光によるクラスター発光分光分析」, 岩山洋士 (2010年).

科研費若手研究(B), 「自由電子レーザー励起によるレーザープラズマ光源の研究開発」, 岩山洋士 (2012年–2014年).

科研費若手研究(B), 「高温ガスセルを用いた振動励起した分子の光電子分光法の開発」, 岩山洋士 (2016年–2018年).

## 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）

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固体高分子形燃料電池への応用
- b) X線吸収分光，X線磁気円二色性などを用いた磁性材料等の構造・物性解析

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固体高分子形燃料電池（PEFC）電極触媒の *in situ* 測定を継続して行っている。2019年も引き続きPEFC電極の硫黄被毒の影響などについて取り組み、光電子分光法により様々な硫黄化学種の電位を計測することで、硫黄化学種が電極・電解質のいずれに存在するかを確定する新しい方法論を開発するなどの成果が上がった。
- b) 分子研シンクロトロン放射光施設 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。2019年は、強磁性遷移金属窒化物超薄膜の構造・磁性の関する共同研究等を行った。また、X線自由電子レーザー SACLA を用いて、磁性薄膜の元素選択スピンドイナミクスの研究を推進した。さらに、磁性合金等の硬X線 XAFS 測定を行い、局所電子状態・幾何構造解析に関する研究も継続的に進めており、2019年は国際共同研究も実施した。

B-1) 学術論文

**Y. WAKISAKA, D. KIDO, H. UEHARA, Q. YUAN, F. E. FEITEN, S. MUKAI, S. TAKAKUSAGI, Y. UEMURA, T. YOKOYAMA, T. WADA, M. UO, O. SEKIZAWA, T. URUGA, Y. IWASAWA and K. ASAKURA**, “Development of Surface Fluorescence X-Ray Absorption Fine Structure Spectroscopy Using a Laue-Type Monochromator,” *Chem. Rec.* **19**, 1157–1165 (2018).

**S. IKEMOTO, X. HUANG, S. MURATSUGU, S. NAGASE, T. KOITAYA, H. MATSUI, G. YOKOTA, T. SUDOH, A. HASHIMOTO, Y. TAN, S. YAMAMOTO, J. TANG, I. MATSUDA, J. YOSHINOBU, T. YOKOYAMA, S. KUSAKA, R. MATSUDA and M. TADA**, “Reversible Low-Temperature Redox Activity and Selective Oxidation Catalysis Derived from the Concerted Activation of Multiple Metal Species on Cr and Rh-Incorporated Ceria Catalysts,” *Phys. Chem. Chem. Phys.* **21**, 20868–20877 (2019).

**A. ISHIHARA, T. NAGAI, K. UKITA, M. ARAO, M. MATSUMOTO, L. YU, T. NAKAMURA, O. SEKIZAWA, Y. TAKAGI, K. MATSUZAWA, T. NAPPORN, S. MITSUSHIMA, T. URUGA, T. YOKOYAMA, Y. IWASAWA, H. IMAI and K. OTA**, “Emergence of Oxygen Reduction Activity in Zirconium Oxide-Based Compounds in Acidic Media: Creation of Active Sites for Oxygen Reduction Reaction,” *J. Phys. Chem. C* **123**, 18150–18159 (2019).

**T. UCHIHASHI, S. YOSHIKAWA, E. MINAMITANI, S. WATANABE, Y. TAKAGI and T. YOKOYAMA**, “Persistent Superconductivity in Atomic Layer-Magnetic Molecule van der Waals Heterostructures: a Comparative Study,” *Mol. Syst. Des. Eng.* **4**, 511–518 (2019).

**T. HATTORI, T. MIYAMACHI, T. YOKOYAMA and F. KOMORI**, “Electronic and Magnetic Properties of the Fe<sub>2</sub>N Monolayer Film Tuned by Substrate Symmetry,” *J. Phys.: Condens. Matter* **31**, 255001 (6 pages) (2019).

**T. YOKOYAMA and S. CHAVEANGHONG**, “Anharmonicity in Elastic Constants and Extended X-Ray-Absorption Fine Structure Cumulants,” *Phys. Rev. Mater.* **3**, 033607 (10 pages) (2019).

**L. YU, Y. TAKAGI, T. NAKAMURA, T. SAKATA, T. URUGA, M. TADA, Y. IWASAWA, S. MASAOKA and T. YOKOYAMA**, “Operando Observation of Sulfur Species Poisoning Polymer Electrolyte Fuel Cell Studied by Near Ambient Pressure Hard X-Ray Photoelectron Spectroscopy,” *J. Phys. Chem. C* **123**, 603–611 (2019).

**T. KOITAYA, S. YAMAMOTO, Y. SHIOZAWA, Y. YOSHIKURA, M. HASEGAWA, J. TANG, K. TAKEUCHI, K. MUKAI, S. YOSHIMOTO, I. MATSUDA and J. YOSHINOBU**, “CO<sub>2</sub> Activation and Reaction on Zn-Deposited Cu Surfaces Studied by Ambient-Pressure X-Ray Photoelectron Spectroscopy,” *ACS Catal.* **9**, 4539–4550 (2019).

**J. TANG, S. YAMAMOTO, T. KOITAYA, A. YOSHIGOE, T. TOKUNAGA, K. MUKAI, I. MATSUDA and J. YOSHINOBU**, “Mass Transport in the PdCu Phase Structures during Hydrogen Adsorption and Absorption Studied by XPS under Hydrogen Atmosphere,” *Appl. Surf. Sci.* **480**, 419–426 (2019).

**J. TANG, S. YAMAMOTO, T. KOITAYA, Y. YOSHIKURA, K. MUKAI, S. YOSHIMOTO, I. MATSUDA and J. YOSHINOBU**, “Hydrogen Adsorption and Absorption on a Pd-Ag Alloy Surface Studied Using In-Situ X-Ray Photoelectron Spectroscopy under Ultrahigh Vacuum and Ambient Pressure,” *Appl. Surf. Sci.* **463**, 1161–1167 (2019).

B-3) 総説, 著書

横山利彦, 高木康多, 中村高大, 唯美津木, 宇留賀朋哉, 岩澤康裕, 「専用ビームラインの研究から～ BL36XU (電気通信大学) ～オペランド大気圧硬X線光電子分光による固体高分子形燃料電池の劣化・被毒機構追跡」, *SPring-8/SACLA 利用者情報* **24**, 257–262 (2019).

**T. URUGA, M. TADA, O. SEKIZAWA, Y. TAKAGI, T. YOKOYAMA and Y. IWASAWA**, “SPring-8 BL36XU: Synchrotron Radiation X-Ray-Based Multi-Analytical Beamline for Polymer Electrolyte Fuel Cells under Operating Conditions,” *Chem. Rec.* **19**, 1444–1456 (2019).

横山利彦, 「燃料電池における反応を解明する」, 「放射光利用の手引——農水産・医療, エネルギー, 環境, 材料開発分野などへの応用——」, 東北放射光施設推進会議推進室編集, アグネ技術センター, p. 110–116 (2019).

横山利彦, 「大気圧環境下の試料を光電子分光法で評価する」, 「放射光利用の手引——農水産・医療, エネルギー, 環境, 材料開発分野などへの応用——」, 東北放射光施設推進会議推進室編集, アグネ技術センター, p.257–263 (2019).

高木康多, 横山利彦, 岩澤康裕, 「雰囲気制御型硬X線光電子分光による固体高分子形燃料電池電極のオペランド計測」, *表面と真空* 2019 特集「オペランド計測による電池・燃料電池の動的過程」, **62**, 1–6 (2019).

**T. KOITAYA, S. YAMAMOTO, I. MATSUDA and J. YOSHINOBU**, “Surface Chemistry of Carbon Dioxide on Copper Model Catalysts Studied by Ambient-Pressure X-Ray Photoelectron Spectroscopy,” *e-J. Surf. Sci. Nanotechnol.* **17**, 169–178 (2019).

B-4) 招待講演

横山利彦, 「ミクロの世界をのぞく～光を使って～」, 唐津市民講座, 唐津, 2019年9月.

横山利彦, 「XAFS の展望」, 日本XAFS 研究会夏の学校 2019, 唐津, 2019年9月.

**T. YOKOYAMA**, “Thermal Expansion and Elasticity Softening of Alloys,” Invited Seminar in University of Science and Technology Beijing, Beijing (China), May 2019.

横山利彦, 「XAFS 基礎」, Nanotech CUPAL 第8回KEK 放射光利用技術入門コース, つくば, 2019年3月.

小坂谷貴典, 「軟X線雰囲気光電子分光を用いたメタン転換反応のオペランド観測」, 2019年日本表面真空学会学術講演会, つくば, 2019年10月.

**K. YAMAMOTO**, “Element specific observation of photo-induced magnetization dynamics by using x-ray free electron laser,” The Japan Society of Applied Physics, Sapporo (Japan), 2019年9月.

B-6) 受賞, 表彰

中川剛志, 日本物理学会第4回若手奨励賞 (2010).

高木康多, 日本物理学会第2回若手奨励賞 (2008).

中川剛志, 日本表面科学会第3回若手研究者部門講演奨励賞 (2006).

上村洋平, 第21回日本放射光学会奨励賞 (2017).

山本航平, 第46回応用物理学会講演奨励賞 (2019).

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

日本XAFS 研究会会長 (2015–2020).

日本XAFS 研究会幹事 (2001–2007, 2010–2014).

日本放射光学会評議員 (2004–2005, 2008–2010, 2011–2012, 2014–2015, 2018–2019).

Executive Committee member of the International X-Ray Absorption Society (2003.7–2009.8).

学会の組織委員等

第14回XAFS 討論会実行委員長プログラム委員長 (2011).

XAFS 討論会プログラム委員 (1998–2019).

第15回X線吸収微細構造国際会議プログラム委員 (2011–2012).

日本放射光学会年会組織委員 (2005), プログラム委員 (2005, 2011, 2019, 2020).

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・学術審議会研究開発基盤部会委員 (2019–).

文部科学省科学技術・学術審議会基礎基盤研究部会研究基盤整備・高度化委員 (2017–2018).

文部科学省元素戦略と大型研究施設の連携に関するシンポジウム企画委員 (2017–2019).

日本学術振興会学術システム研究センター化学班専門研究員 (2010–2012).

文部科学省ナノテクノロジー・ネットワーク運営委員 (2007–2011).

日本学術振興会科学研究費委員会専門委員 (2004–2005, 2008–2009, 2015–2016).

日本学術振興会科学研究補助金学術創成研究費評価委員 (2008).

高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所放射光共同利用実験審査委員会実験課題審査部会委員 (2003–2009), 同化学材料分科会主査 (2005–2009).

SPring-8 ユーザー協同体 (SPRUC) 機関代表者 (2012–2018).

名古屋工業大学人事部会外部委員 (2015).

広島大学放射光科学研究センター外部評価委員 (2017).

広島大学放射光科学研究センター運営委員 (2018–).

#### 学会誌編集委員

日本放射光学会誌編集幹事 (編集委員長) (2005–2006).

日本放射光学会誌編集委員 (2004–2006).

#### 競争的資金等の領域長等

科学研究費補助金特定領域研究「分子スピン」総括班事務局 (2003–2006).

#### その他

文部科学省ナノテクノロジー・プラットフォーム「分子・物質合成プラットフォーム代表機関」業務主任者 (運営責任者) (2012–2021).

文部科学省ナノテクノロジー・プラットフォーム「分子・物質合成プラットフォーム実施機関」業務主任者 (実施責任者) (2012–2021).

文部科学省ナノテクノロジー・ネットワーク「中部地区ナノテク総合支援」業務主任者 (拠点長) (2007–2011).

本多記念会本多フロンティア賞選考委員 (2016, 2019).

本多記念会本多記念研究奨励賞選考委員 (2012, 2013, 2015).

公益信託分子科学研究奨励森野基金推薦委員 (2018–).

#### B-8) 大学での講義, 客員

総合研究大学院大学物理科学研究科, 「物性科学概論」, e-learning, 2019年.

#### B-10) 競争的資金

科研費研究活動スタート支援, 「放射光X線を用いた強磁性体の光誘起磁性ダイナミクスの元素選択的観察」, 山本航平 (2019年–2021年).

科学技術振興機構さきかけ研究「革新的触媒の科学と創製」領域, 「オペランド観測に基づくメタン転換触媒および反応場の設計」, 小坂谷貴典 (2017年–2020年).

科研費若手研究(B), 「モデル合金触媒における動的表面構造変化と反応性に関する研究」, 小坂谷貴典 (2017年–2019年).

受託研究, 科学技術振興機構ACCEL 研究「自己組織化技術に立脚した革新的分子構造解析」, 「ナノテクノロジープラットフォーム・結晶スポンジ法による分子構造解析」, 横山利彦 (2017年–2018年).

受託研究, NEDO 固体高分子形燃料電池利用高度化技術開発事業「普及拡大化基盤技術開発」触媒・電解質・MEA 内部現象の高度に連成した解析, セル評価 (2015年–2017年), MEA 性能創出技術開発 (2018年–2019年), 横山利彦.

科研費基盤研究(A) (一般), 「微量元素高速時間分解X線吸収分光の開発と機能性材料への展開」, 横山利彦 (2015年–2017年).

受託研究, NEDO 固体高分子形燃料電池実用化推進技術開発「基盤技術開発」MEA 材料の構造・反応物質移動解析, 「時空間分解X線吸収微細構造 (XAFS) 等による触媒構造反応解析」, 横山利彦 (2011年–2014年).

科研費基盤研究(A), 「キラル光電子顕微鏡の開発」, 横山利彦 (2010年–2012年).

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。2017年11月に高木康多助教が転出、2018年4月に上村洋平助教が転出したが、2018年6月に小坂谷貴典助教が着任し、雰囲気制御光電子分光等を用いた表面化学反応機構解明を目標とした研究への展開、さらには、2019年4月に山本航平助教が着任し、SACLA/SPring-8を利用して、磁性薄膜のフェムト秒超高速スピンドYNAMICSおよびコヒーレントX線回折・共鳴X線磁気散乱による磁性薄膜イメージング研究を進めている。

## 杉本敏樹（准教授）（2018年5月1日着任）

A-1) 専門領域：物理化学，分光学，機能物性化学，表面界面物性

A-2) 研究課題：

- a) 和周波発生振動分光法による結晶氷表面の新たな構造転移の発見とナノサイズ効果の解明
- b) 水分子間水素結合において特異的に競合する2種の量子効果の解明
- c) オペランド赤外分光法によるメタン水蒸気改質光触媒の反応活性種の解明
- d) 水素感度と極微空間分解能を有する非線形顕微分光法の開発

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 水分子の集合体である氷は地球大気においては極域の上空に，宇宙においては星間分子雲に偏在しており，その表面は大気や分子雲の環境に重要な影響を及ぼす種々の化学反応・分子進化の反応場として機能している。我々は，氷表面における水分子の微視的な構造や動的性質を解明するべく，超高真空中で作製した高純度な単結晶氷 1h の最安定 (0001) 表面（ベール面）に対してヘテロダイン検出和周波発生（SFG）振動分光を行った。氷表面の水素結合 OH の伸縮振動バンドとダングリング OH の伸縮振動バンドについてピーク強度と波数分布の温度依存性を系統的に測定した。その結果，従来の研究において存在が想定されていた『結晶氷最表面における水素（ダングリング OH）秩序相（Fletcher 相）』が実際には存在しないことを実証することに成功した。また，「結晶氷の最表面層には結晶相とも液体相（擬似液体相）とも異なる“熱力学的に安定”な中間相（非晶質相）が 120 K から 200 K の温度領域において存在する」ことを世界初で発見した。さらに，ナノサイズの単結晶氷 1h の微粒子を作成し，その (0001) 表面について同様の測定を行ったところ，この結晶相-中間相の転移温度が氷のナノサイズ化に伴って 90 K 程度にまで低下することを見出した。
- b) 水素は最も軽い元素であるため，水素を介して形成される分子間の水素結合は，その零点振動やトンネル効果といった「核の量子効果」の影響を一般に強く受ける。我々は，様々な同位体濃度比をもつ同位体混合結晶氷 ( $\text{H}_2\text{O}+\text{HDO}+\text{D}_2\text{O}$ ) を作製し，その氷の昇温脱離過程を同位体選択的かつ系統的に世界初で観測した。その結果，①水素結合の切断を直接担う脱離水分子が重水素化されることによって水素結合のエネルギーが増大すること（脱離分子種依存性），及び②脱離水分子と相互作用する周囲の水分子が重水素化されることによって水素結合のエネルギーが減少すること（同位体環境依存性）を発見した。遷移状態理論と水素結合の量子力学的モデル計算による考察の結果，①脱離分子種依存性については，脱離分子の表面吸着状態（始状態）における『束縛回転振動の零点エネルギー』に起因することを導き出した。さらに，②同位体環境依存性については，H を介した O-H $\cdots$ O 結合と D を介した O-D $\cdots$ O 結合で分子間ポテンシャルに差異を生じさせる『非調和結合における量子効果』に起因することを見出した。この二種類の量子効果が競合することにより，H を D に置換することで水分子間の水素結合距離が長くなる（体積が大きくなる）にもかかわらず，その結合はむしろ強くなる（結合エネルギーは大きくなる）という特異な現象が水分子の凝集系（液体水や氷）において発現することを明らかにすることができた。
- c) 非常に安定なメタン分子の C-H 結合を活性化させるには典型的には 700 °C 以上の高温が必要となり大量のエネルギー消費を伴う。メタン活性化を室温近傍で実現する化学技術として，我々は NaTaO<sub>3</sub> や TiO<sub>2</sub>，Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> などの酸化物微粒子光触媒によるメタンの水蒸気改質反応に着目し，メタン活性化に資する光触媒反応メカニズムを解明するための拡散反射オペランド赤外分光装置を独自に構築した。メタンガスや水蒸気の圧力を系統的に変化させた条件

下での反応評価とオペランド赤外分光により、これらの光触媒試料に対して普遍的に、35–40 kJ/mol 程度のエネルギーでメタン分子が酸化的解離吸着する過程がメタン改質光触媒反応全体の律速過程であることが明らかになった。また、このメタン初期酸化反応を直接担う触媒表面の活性種は水酸基ラジカル（水分子が光誘起正孔を補足して解離したもの）であることを解明することに成功し、酸化物表面の酸素イオン種はメタン活性化に直接寄与していないことが判明した。これにより、光照射によって生じた光誘起正孔 ( $h^+$ ) を表面吸着水分子と反応させて水酸基ラジカル ( $\cdot\text{OH}$ ) に効率的に変換させることがメタン改質反応活性の増大に極めて重要であることが明らかになった。

- d) 表面界面水分子系の水素結合ネットワークにおいて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）”を極微空間分解能で観測する“原子スケールの極微分光法”の開発に取り組んでいる。三端子電極を用いた電気化学エッチングを用いてプラズモニック金属（Au など）をベースとした STM 探針の作製に成功した。現在達成している先端曲率半径は数十 nm であり、さらに探針先端を先鋭化させるためのスパッタリングやナノ微細加工に取り掛かる準備を進めている。また、新たに導入した STM 装置による単原子像の取得にも成功しており、次いで極微分光を実施するために必要な STM 装置内外の光学系の構築を進めている。

#### B-1) 学術論文

**T. SUGIMOTO, Y. OTSUKI, T. ISHISYAMA, A. MORITA, K. WATANABE and Y. MATSUMOTO**, “Topologically Disordered Mesophase at Topmost Surface of Crystalline Ice Between 120 and 200 K,” *Phys. Rev. B* **99**, 121402(R) (7 pages) (2019).

**Y. OTSUKI, K. WATANABE, T. SUGIMOTO and Y. MATSUMOTO**, “Enhanced Structural Disorder at a Nanocrystalline Ice Surface,” *Phys. Chem. Chem. Phys.* **21**, 20442–20453 (2019).

**H. KATO, T. SUGIMOTO, K. HARADA, K. WATANABE and Y. MATSUMOTO**, “Unveiling Two Deuteration Effects on Hydrogen-Bond Breaking Process of Water Isotopomers,” *Phys. Rev. Mater.* **3**, 112001(R) (7 pages) (2019).

#### B-2) 国際会議のプロシーディングス

**A. SAKURAI, K. ANDO and S. ASHIHARA**, “Ultrafast Proton/Deuteron Dynamics in Solid Oxide Observed with Infrared Pump-Probe Spectroscopy,” *EPJ Web of Conferences* **205**, 04024 (3 pages) (2019).

#### B-3) 総説、著書

杉本敏樹, 「水分子凝集系における水素原子の位置に敏感な和周波発生振動分光法」, *エレクトロニクスコミュニケーション* **34**, 19–24 (2019).

杉本敏樹, 石山達也, 「和周波発生振動分光計測と分子シミュレーションからみる氷表面の分子構造」, *アンサンブル：分子シミュレーション研究会誌* **21**, 177–184 (2019).

#### B-4) 招待講演

**T. SUGIMOTO**, “Proton ordering in heteroepitaxial ice films,” IMS Symposium Water at Interfaces 2018, Okazaki Conference Center, Okazaki (Japan), January 2019.

**T. SUGIMOTO**, “Emergent proton ordering in heteroepitaxial ice films on metal substrates,” International Workshop on Nonlinear Optics at Interfaces 2019, Fudan University, Shanghai (China), June 2019.

**T. SUGIMOTO**, “Challenge of infrared spectroscopy: Unveiling water-assisted carrier trapping at TiO<sub>2</sub> nano-photocatalyst with distinct particle morphologies,” The 81<sup>st</sup> Okazaki Conference, Okazaki Conference Center, Okazaki (Japan), December 2019.

杉本敏樹,「水分子の向きが揃った特殊な結晶水の生成」, 第119回分子科学フォーラム, 岡崎コンファレンスセンター, 岡崎, 2019年1月.

杉本敏樹,「高効率水分解光触媒の実現に向けた触媒表面分光計測の挑戦」, 第1回シンポジウム「階層縦断的アプローチによる革新的光エネルギー変換系の開拓」, 神戸大学, 神戸, 2019年4月.

櫻井敦教,「超高速分光で切り開く固体中プロトン伝導メカニズムの理解」, 2019年度日本分光学会年次講演会「分光学夢シンポジウム」, 京都大学, 京都, 2019年5月.

#### B-6) 受賞, 表彰

杉本敏樹, 第14回日本物理学会若手奨励賞 (2019).

杉本敏樹, 第12回分子科学会奨励賞 (2019).

杉本敏樹, 分子科学研究奨励森野基金 (2018).

杉本敏樹, 日本分光学会奨励賞 (2018)

杉本敏樹, 日本化学会第98回春季年会優秀講演賞(学術) (2018).

**T. SUGIMOTO**, PCCP Prize 2018 (2018).

杉本敏樹, 第33回表面科学学術講演会講演奨励賞(若手研究者部門) (2014).

杉本敏樹, 日本真空学会第39回熊谷記念真空科学論文賞 (2014).

杉本敏樹, 表面・界面スペクトロスコーピー 2010学生奨励賞 (2010).

**T. SUGIMOTO**, IIS PhD Student Live 2010, Best Presentation Award (2010).

杉本敏樹, 第49回真空に関する連合講演会優秀ポスター賞 (2008).

#### B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

日本表面科学会関西支部幹事 (2013–2018).

日本表面真空学会若手部会幹事 (2018–).

学会の組織委員等

The 9<sup>th</sup> International Symposium on Surface Science (ISSS-9), Publication committee (2019–2020).

8<sup>th</sup> Asian Spectroscopy Conference (ASC2021), Organizing committee (2019–2021).

International Workshop on Nonlinear Optics at Interfaces 2021, Conference vice Chair (2019–2021).

The 81<sup>st</sup> Okazaki Conference, Conference Chair (2019).

IMS Symposium Water at Interfaces 2018, Conference co-Chair (2018–2019).

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・学術研究所科学技術動向研究センター専門調査員 (2014–2016).

B-8) 大学での講義, 客員

総合研究大学院大学物理科学研究科,「基礎光化学」,2019年7月15日-17日.

B-10) 競争的資金

科学技術振興機構さきかけ研究,「原子スケール極微和周波分光法の開発と界面水分子の局所配向イメージングへの応用展開」,杉本敏樹(2019年度-2022年度).

科研費基盤研究(A),「水素感度と極微空間分解能を有する非線形顕微分光法の開発と表面水素結合系への応用」,杉本敏樹(2019年度-2021年度).

科研費研究活動スタート支援,「金属表面水素の高分解能計測を可能とする新規顕微分光法の開発」,櫻井敦教(2019年度-2020年度).

科学技術振興機構さきかけ研究,「オペランド分光計測に基づくメタンの部分酸化還元光触媒反応場の創製と学理構築」,杉本敏樹(2016年度-2019年度).

科研費若手研究(A),「光触媒/水界面における完全水分解反応の活性増大メカニズムの解明」,杉本敏樹(2016年度-2018年度).

科研費新学術領域研究(公募研究),「星間ダスト表面におけるアモルファス氷の強誘電性と触媒機能」,杉本敏樹(2016年度-2017年度).

科研費新学術領域研究(公募研究),「星間ダスト表面におけるアモルファス氷の強誘電性と触媒機能」,杉本敏樹(2014年度-2015年度).

科研費若手研究(B),「構造を規定した酸化物-擬似液体水界面における光触媒メカニズムの解明」,杉本敏樹(2014年度-2015年度).

科研費研究活動スタート支援,「水分子雰囲気下における,よく規定された酸化物表面の光触媒メカニズムの解明」,杉本敏樹(2012年度).

C) 研究活動の課題と展望

ヘテロダイン検出法和周波発生(SFG)振動分光法や時間分解赤外吸収分光等による,金属や酸化物表面における水分子凝集系の研究により,「終端(表面・界面)が存在する不均一な水分子凝集系においては,たった一分子層の水分子の配向(水素の配置)が周辺の水素結合の構造や誘電物性等に大きな影響を及ぼす」ことが分かってきた。しかし,これらの知見に関して更に根源的なレベルでの疑問点「そもそも固体表面のどのようなファクターによって第一層水分子吸着系に配向秩序が創発されるのか? その際に,全体としてH-up状態が優勢になるのかH-down状態が優勢になるのかを決める要因は何なのか?」などに関しては,現時点ではほとんど何も分かっていない。これらの根本的なメカニズムを解明するためには,原子レベルで構造を規定・制御した種々の固体表面上の水分子凝集系に対して系統的なSFG測定を展開していく必要がある。それと同時に,水素感度と極微空間分解能を有する新しい非線形顕微分光法を開発し,より本質的な微視的知見に迫る高度な分光研究を展開していく必要がある。今後のこのような研究展開により,水分子凝集系の特異的な構造や物性,化学的機能を自在にデザイン・制御するための表面科学を開拓し,基礎学理構築を目指す。

## 電子物性研究部門

中 村 敏 和 (准教授) (1998年6月1日～2019年3月31日)\*)

A-1) 専門領域：物性物理学, 物質科学, 磁気共鳴

A-2) 研究課題：

- a) 磁気共鳴法による有機導体・低次元スピン系の電子状態理解
- b) パルスおよび高周波 ESR を用いたスピン科学研究の新しい展開

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 分子研所有のパルスおよび高周波 ESR を用いて, 高分解能 ESR・高エネルギー特性を利用した複雑なスピン構造の決定, 多周波領域にわたるスピンドイナミクス計測, 多重パルスシステムによる構造解析といった種々な点から, スピン科学研究展開を行っている。当該グループだけでなく所外の ESR コミュニティーと連携を取り, パルス・高周波 ESR の新たな可能性や研究展開を議論し, 大学共同利用機関である分子研からのスピン科学の情報発信を行っていく。
- b) 有機導体・低次元スピン系の特異な電子状態に興味を持ち, 微視的な観点からその電子状態やスピン・電荷ダイナミクスを明らかにするために磁気共鳴測定を行っている。一次元電子系の競合電子相の起源に迫るために, 4 GPa に迫る系統的な超高圧力下の NMR 測定ならびにパルス ESR を行い, リエントラント反強磁性相や量子臨界点の是非, 電荷秩序相と基底状態の相関について研究を行っている。この他, 新規な自己ドープ型有機導体の強磁場 ESR を用いた研究, 新規な金属錯体や導電性分子物質に関する微視的研究も行っている。

B-1) 学術論文

**J. MORIMOTO, Y. FUKUDA, D. KURODA, T. WATANABE, F. YOSHIDA, M. ASADA, T. NAKAMURA, A. SENOO, S. NAGATOISHI, K. TSUMOTO and S. SANDO,** “A Peptoid with Extended Shape in Water,” *J. Am. Chem. Soc.* **141**, 14612–14623 (2019).

**M. SUYAMA, S. TAKANO, T. NAKAMURA and T. TSUKUDA,** “Stoichiometric Formation of Open-Shell  $[\text{PtAu}_{24}(\text{SC}_2\text{H}_4\text{Ph})_{18}]^-$  via Spontaneous Electron Proportionation between  $[\text{PtAu}_{24}(\text{SC}_2\text{H}_4\text{Ph})_{18}]^{2-}$  and  $[\text{PtAu}_{24}(\text{SC}_2\text{H}_4\text{Ph})_{18}]^0$ ,” *J. Am. Chem. Soc.* **141**, 14048–14051 (2019).

**S. KITOU, A. NAKANO, S. KOBAYASHI, K. SUGAWARA, N. KATAYAMA, N. MAEJIMA, A. MACHIDA, T. WATANUKI, K. ICHIMURA, S. TANDA, T. NAKAMURA and H. SAWA,** “Effect of Cu Intercalation and Pressure on Excitonic Interaction in 1T-TiSe<sub>2</sub>,” *Phys. Rev. B* **99**, 104109 (10 pages) (2019).

**S. KITOU, S. KOBAYASHI, T. KANEKO, N. KATAYAMA, S. YUNOKI, T. NAKAMURA and H. SAWA,** “Honeycomb Lattice Type CDW Formed by Cooperative Interaction in Cu Intercalated 1T-TiSe<sub>2</sub>,” *Phys. Rev. B* **99**, 081111(R) (6 pages) (2019).

**A. HATANO, N. TERADO, Y. KANNO, T. NAKAMURA and G. KAWAI,** “Synthesis of a Protected Ribonucleoside Phosphoramidite-Linked Spin Label via an Alkynyl Chain at the 5' Position of Uridine,” *Synth. Commun.* **49**, 136–145 (2019).

## B-6) 受賞, 表彰

中村敏和, 日本学術振興会特別研究員等審査会専門委員の表彰 (2018).

中村敏和, 日本物理学会第 22 回論文賞 (2017).

中村敏和, 日本学術振興会科研費審査委員の表彰 (2015).

古川 貢, 電子スピンスイエンズ学会奨励賞 (2012).

杉浦晃一, 日本化学会東海支部長賞 (2010).

## B-7) 学会および社会的活動

### 学協会役員等

日本物理学会領域7世話人 (2000–2001).

日本物理学会代議員 (2001–2003).

日本物理学会名古屋支部委員 (2001–2007, 2013–).

日本化学会実験化学講座編集委員会委員 (2002).

電子スピンスイエンズ学会担当理事 (2004–2005).

電子スピンスイエンズ学会運営理事 (2006–2011).

電子スピンスイエンズ学会副会長 (2014–2015).

電子スピンスイエンズ学会会長 (2016–2018).

電子スピンスイエンズ学会代議員 (2018–).

アジア環太平洋EPR/ESR 学会 (Asia-Pacific EPR/ESR Society) 秘書/財務 (2004–2008), 日本代表 (2010–2014).

日本化学会化学便覧基礎編改訂6版編集委員会委員 (2015–2018).

### 学会の組織委員等

Asia-Pacific EPR/ESR Symposium 2006, Novosibirsk, Russia, International Organizing Committee, 組織委員 (2006).

分子構造総合討論会 2006 (静岡), プログラム委員 (2006).

A Joint Conference of the International Symposium on Electron Spin Science and the 46<sup>th</sup> Annual Meeting of the Society of Electron Spin Science and Technology (ISESS-SEST2007) Shizuoka, Japan Organizing Committee, 組織委員 (2007).

Asia Pacific EPR Society—EPR Symposium 2008, Cairns, Queensland, Australia, International Advisory Committee, 組織委員 (2008).

第3回分子科学討論会 2009 (名古屋), プログラム委員 (2009).

第 49 回電子スピンスイエンズ学会年会 (名古屋), プログラム委員 (2010).

Asia Pacific EPR/ESR Symposium 2012, Oct. 11th–15th, 2012, Beijing, China, International Organizing Committee, 組織委員 (2012).

Joint Conference of APES2014, IES and SEST2014 (APES-IES-SEST2014), Nov. 12th–16th, 2014, Nara, Japan, プログラム委員長 (2014).

第 57 回電子スピンスイエンズ学会年会 (札幌), プログラム委員 (2018).

第 13 回分子科学討論会 (名古屋), 実行委員 (2019).

第 58 回電子スピンスイエンズ学会年会 (川崎), 実行委員, プログラム委員 (2019).

The 22<sup>nd</sup> Meeting of the International Society of Magnetic Resonance (ISMAR 2021), Osaka, Japan, Executive Committee, 実行委員 (2017–).

文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

東京大学物性研究所物質合成・設備共同利用委員会委員 (2005–2007).

東京大学物性研究所物質設計評価施設運営委員会委員 (2011–2013).

日本学術振興会科学研究費委員会専門委員 (2013–2015).

日本学術振興会特別研究員等審査委員会専門委員, 卓越研究員候補者選考委員会書面審査委員及び国際事業委員会書面審査委員・書面評価員 (2016–2018).

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 (2017–).

大阪市立大学共用化事業ESR 委員会委員 (2018–).

学会誌編集委員

電子スピンスイエンズ学会編集委員 (2003).

電子スピンスイエンズ学会編集委員長 (2004–2005).

電子スピンスイエンズ学会編集アドバイザー (2006–2013).

#### B-10) 競争的資金

科研費基盤研究(B), 「先端磁気共鳴計測による電子対相関の解明」, 中村敏和 (2013年–2015年).

科研費挑戦的萌芽研究, 「パルスESRによる距離計測技術を用いたプリオン凝集体構造の解明」, 中村敏和 (2012年–2013年).

科研費基盤研究(B), 「低次元系の特異な電子相を利用したデバイス創製ならびにスピンドYNAMIX研究」, 中村敏和 (2008年–2011年).

科研費特定領域研究「100 テスラ領域の強磁場スピン科学」(公募研究), 「シアノバクテリア由来光化学II 複合体の高磁場ESRによる研究」, 中村敏和 (2008年–2009年).

#### C) 研究活動の課題と展望

本グループでは, 分子性固体の電子状態(磁性, 導電性)を主に微視的な手法(ESR, NMR)により明らかにしてきた。有機導体など強相関低次元電子系の未解決な問題の解明を行うとともに, 生体関連試料を含む分子性物質の機能性に関する研究を行ってきた。多周波ESR (X-, Q-, W-bands)・パルス二重共鳴法(ELDOR, ENDOR)を用いた他に類を見ない磁気共鳴分光測定を中心に多数の協力研究・共同研究を受け入れ, 最先端のESR 測定研究の展開を全世界に発信してきた。

\*) 2019年4月1日分子科学研究所機器センターチームリーダー

## 分子機能研究部門

平本 昌宏 (教授) (2008年4月1日着任)

A-1) 専門領域：有機半導体，有機太陽電池，有機エレクトロニクスデバイス

A-2) 研究課題：

- a) *pn* ホモ接合有機太陽電池
- b) バンド伝導性有機半導体を用いた有機太陽電池

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 有機太陽電池では、ドナー (D) /アクセプター (A) の2種類の半導体材料を用いて励起子を解離するが、D/Aのエネルギー差に起因する電圧ロスが大きい問題がある。そこで今回、電子とホール両方に対して高移動度を示す両極性の有機半導体である、ジインデノバレン (DIP) 1種類のみを用いた有機太陽電池を作製した。DIP層に、アクセプターとドナードーパント ( $\text{MoO}_3$ ,  $\text{Cs}_2\text{CO}_3$ ) をそれぞれ共蒸着することで、*pn* ホモ接合を形成した。ドーピング濃度5%において、ノンドープに比べて8倍の短絡電流密度の増加を観測した。内蔵電界が接合界面の数分子に集中し、隣接分子のHOMO, LUMOが電荷分離エネルギー関係になり、30%の非常に高い内部量子効率で励起子を解離する機構を提案し実証した。以上のように、有機太陽電池においても、単結晶シリコンと同様に、1種類の半導体に *pn* 接合を形成して高効率で光電変換を起こすことができることを実証した。
- b) バンド伝導性を示すルプレン単結晶バルクに、アクセプター ( $\text{MoO}_3$ ) を5 ppmの極微量ドーピングし、生成キャリア濃度の温度依存性をHall効果によって測定した結果、ホール生成の活性化エネルギーとして、90 meVというかなり小さな値を観測した。同じ系において、表面ドーピングを行った場合も同様の結果が得られた。この結果は、バンド伝導有機半導体におけるドーピングでは、プラス電荷とマイナス電荷が弱く束縛された、ワニエ励起子型の状態が形成され、室温においても高効率でキャリア生成できることを示している。また、バンド伝導性有機半導体の超高速移動度を利用して、基板に水平方向にキャリアを取り出す水平2層セルを作製し、驚異的な水平距離1.3 mmのキャリア輸送に成功し、開放端電圧1.0 V、曲線因子0.48の美しい光起電力特性を観測した。  
バンド伝導有機半導体は、キャリア生成、キャリア輸送において、これまでにない性能を示し、新しい有機太陽電池材料として非常に有望である。

B-1) 学術論文

M. KIKUCHI, S. MAKMUANG, S. IZAWA, K. WONGRAVEE and M. HIRAMOTO, "Doped Organic Single Crystal Photovoltaic Cell," *Org. Electron.* **64**, 92–96 (2019).

M. KIKUCHI, M. HIROTA, T. KUNAWONG, Y. SHINMURA, M. ABE, Y. SADAMITSU, A. M. MOH, S. IZAWA, M. IZAKI, H. NAITO and M. HIRAMOTO, "Lateral Alternating Donor/Acceptor Multilayered Junction for Organic Solar Cells," *ACS Appl. Energy Mater.* **2**, 2087–2093 (2019).

S. IZAWA, A. PERROT, J. LEE and M. HIRAMOTO, "Organic *pn* Homo Junction Solar Cell," *Org. Electron.* **71**, 45–49 (2019).

**M. KIKUCHI, S. IZAWA, N. RAI and M. HIRAMOTO**, “Very Low Activation Energy for Carrier Generation of Surface Doped Organic Single Crystals Observed by Hall Effects,” *Appl. Phys. Lett.* **115**, 113301 (4 pages) (2019).

**H. UENO, I. JEON, H. LIN, A. THOTE, T. NAKAGAWA, H. OKADA, S. IZAWA, M. HIRAMOTO, S. MARUYAMA and Y. MATSUO**, “Li@C<sub>60</sub> Endohedral Fullerene as Supramolecular Dopant for C<sub>60</sub> Electron-Transporting Layer Promoting Efficiency in Perovskite Solar Cells,” *Chem. Commun.* **55**, 11837–11839 (2019).

**S. IZAWA, N. SHINTAKU, M. KIKUCHI and M. HIRAMOTO**, “Importance of Interfacial Crystallinity to Reduce Open-Circuit Voltage Loss in Organic Solar Cells,” *Appl. Phys. Lett.* **115**, 153301 (4 pages) (2019).

B-3) 総説, 著書

**S. IZAWA and M. HIRAMOTO**, “Doping for Controlling Donor/Acceptor Interfacial Structure in Organic Solar Cells,” *The Review of Laser Engineering*, Special Issue on Recent Progress in Solar Cell Controlled by Surface Structures and Interface Between Two Materials, **47(3)**, 151–155 (2019). (in Japanese)

**M. HIRAMOTO**, “pn-Control of Phthalocyanine Films and Doping Sensitization,” *Kagaku Kogyo*, Special Issue on New Developments of Phthalocyanines, **70(3)**, 203–207 (2019). (in Japanese)

**M. HIRAMOTO**, “Development of New Concept Organic Solar Cell Using Lateral Alternating Multilayered Junction,” *Clean Energy*, **28(6)**, 48–54 (2019). (in Japanese)

**M. HIRAMOTO, M. KIKUCHI and S. IZAWA**, “Lateral Junction for Single Crystalline Organic Solar Cells,” in *Liquid and Single Crystals: Properties, Manufacturing and Uses*, J. Groosen, Ed., NOVA Science Publishers, Inc.; New York, Chapter 6, pp. 205–239 (2019).

B-4) 招待講演

**M. HIRAMOTO**, “Bandgap Science for Organic Solar Cells,” NANO TALK #10 “Advances in Photovoltaic Materials and Fabrications,” NANOTEC, Bangkok (Thailand), June 2019.

**M. HIRAMOTO**, “Bandgap Science for Organic Solar Cells,” 2<sup>nd</sup> International Conference on Materials Research and Innovation (ICMARI), Kasetsart University, Bangkok (Thailand), December 2019.

平本昌宏, 伊澤誠一郎, 「高移動度有機半導体を用いた有機太陽電池」, 有機エレクトロニクス研究会「有機材料・薄膜, 有機デバイス一般」, 愛知県日間賀島, 2019年1月.

平本昌宏, 「高移動度有機半導体を用いた有機太陽電池」, 有機EL討論会(第29回例会), 岡崎コンファレンスセンター, 岡崎, 2019年11月.

平本昌宏, 「有機太陽電池」, 高専-豊橋技術科学大学太陽電池シンポジウム」, 妙義グリーンホテル, 群馬県富岡市, 2019年12月.

B-6) 受賞, 表彰

平本昌宏, 応用物理学会第11回フェロー表彰(2017).

嘉治寿彦, 応用物理学会有機分子・バイオエレクトロニクス分科会奨励賞(2013).

嘉治寿彦, 第31回(2011年秋季)応用物理学会講演奨励賞(2011).

平本昌宏, 国立大学法人大阪大学教育・研究貢献賞(2006).

平本昌宏, 応用物理学会有機分子・バイオエレクトロニクス分科会論文賞 (2006).

平本昌宏, JJAP(Japanese Journal of Applied Physics) 編集貢献賞 (2004).

平本昌宏, 電子写真学会研究奨励賞 (1996).

伊澤誠一郎, 10<sup>th</sup> International Conference on Molecular Electronics and Bioelectronics (M&BE10) 若手研究者講演賞 (2019).

## B-7) 学会および社会的活動

### 学会の組織委員等

応用物理学会有機分子・バイオエレクトロニクス分科会幹事 (1997–1998, 2001–2002).

応用物理学会有機分子・バイオエレクトロニクス分科会年会講演プログラム委員 (2002–2003).

Korea-Japan Joint Forum (KJF)—Organic Materials for Electronics and Photonics, Organization Committee Member (2003–).

「有機固体における伝導性・光伝導性および関連する現象」に関する日中合同シンポジウム組織委員 (2007–2010).

応用物理学会有機分子・バイオエレクトロニクス分科会年会講演プログラム委員長 (2008–2009).

Fifth International Conference on Molecular Electronics and Bioelectronics (M&BE5)(Miyazaki), Organization Committee Member (2009).

東京大学物性研究所2011年度後期短期研究会「エネルギー変換の物性科学」オーガナイザーメンバー (2011).

有機薄膜太陽電池サテライトミーティング世話人代表 (2009–2014).

The 37<sup>th</sup> International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS2010) “Organic Semiconductor Materials and Devices,” 31 May–4 June 2010, Takamatsu Kagawa, Japan, Programm Committee Member of the Session (2010).

The 40<sup>th</sup> International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS 2013), “Organic Semiconductors and Flexible Materials,” Kobe Convention Center, Kobe, Japan, May 19–23, Program Committee Member (2013).

The 6<sup>th</sup> World Conference on Photovoltaic Energy Conversion (WCPEC-6), Kyoto International Conference Center, Kyoto, Japan, Nov. 23–27, Program Committee Member and Chairman (2014).

27<sup>th</sup> International Photovoltaic Science and Engineering Conference (PVSEC-27), Shiga, Japan, 12–17 Nov., Area: Organic and Dye-sensitized Solar Cells, Area Chair (2017).

第79回応用物理学会秋季学術講演会(名古屋国際会議場, 名古屋, 9/20)「深化する有機半導体結晶: 量子解放の分子科学に向けて」シンポジウムオーガナイザー (2018).

応用物理学会有機分子・バイオエレクトロニクス分科会幹事 (2017–2018). (伊澤誠一郎)

応用物理学会有機分子・バイオエレクトロニクス分科会常任幹事 (2019–2020). (伊澤誠一郎)

応用物理学会若手チャプター副代表 (2018–2020). (伊澤誠一郎)

第79回応用物理学会秋季学術講演会(名古屋国際会議場, 名古屋, 9/20)「深化する有機半導体結晶: 量子解放の分子科学に向けて」シンポジウム世話人 (2018). (伊澤誠一郎)

10<sup>th</sup> International Conference on Molecular Electronics and Bioelectronics (M&BE10), Nara, June 25-27, 国際会議実行委員 (2019). (伊澤誠一郎)

### 文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

科学技術交流財団(財)「有機半導体の基礎科学と有機太陽電池への応用に関する研究会」座長 (2009–2011).

京都大学化学研究所全国共同利用・共同研究拠点連携基盤専門小委員会委員 (2011–2012).

ERATO (戦略的創造研究推進事業) 追跡評価評価委員(評価委員長: 阿知波首都大学東京名誉教授) (中村活性炭素クラスタープロジェクト(2004–2009) 追跡評価) (2015.7–10).

NEDO (新エネルギー・産業技術総合開発機構) 「次世代材料評価基盤技術開発/有機薄膜太陽電池材料の評価基盤技術開発」研究評価委員会(分科会) 委員(中間評価) (2015.8.19–11.4).

NEDO (新エネルギー・産業技術総合開発機構) 「高性能・高信頼性太陽光発電の発電コスト低減技術開発」中間評価分科会分科会長代理 (2017.8–2018.3).

#### 学会誌編集委員

*Japanese Journal of Applied Physics (JJAP)* 誌編集委員 (2001–2002, 2004–2007).

*Japanese Journal of Applied Physics (JJAP)* 誌ゲストエディター (2005).

*Japanese Journal of Applied Physics (JJAP)* 誌PVSEC27特集号 (vol. 57) ゲストエディター (2018).

#### 競争的資金等の領域長等

東北大学電気通信研究所共同プロジェクト研究「有機半導体デバイスの基礎と応用」研究代表者 (2003–2005).

さきがけ「太陽光と光電変換」研究領域 領域アドバイザー (2009–2017).

戦略的創造研究推進研究(CREST) 「低エネルギー, 低環境負荷で持続可能なものづくりのための先導的な物質変換技術の創出(ACT-C)」研究領域 領域アドバイザー (2012–2018).

#### その他

岡崎ビジネス大賞評価委員 (2012).

岡崎ものづくり協議会学識委員 (2011–).

#### B-8) 大学での講義, 客員

大阪大学ナノ高度学際教育研究訓練プログラムナノ社会人教育夜間講義(平成 31年度), 大阪大学中之島センター, 「有機太陽電池(I)(II)」, 2019年1月8日.

#### B-9) 学位授与

菊地 満, 「Effects of Charge Carrier Transport on Device Performance of Organic Crystalline Solar Cells」, 2019年3月, 博士(理学).

#### B-10) 競争的資金

NEDO 「太陽光発電システム未来技術研究開発」, 「超階層ナノ構造を有する高効率有機薄膜太陽電池の研究開発」, 平本昌宏(分担) (2006年–2009年).

科学技術振興機構CREST 研究, 「二酸化炭素排出抑制に資する革新的技術の創出」, 「有機薄膜太陽電池の高効率化に関する研究」, 平本昌宏(分担) (2008年–2009年).

科研費基盤研究(B)(2), 「有機半導体のイレブンナイン超高純度化による10% 効率有機薄膜太陽電池の開発」, 平本昌宏(2009年–2012年).

科研費挑戦的萌芽研究, 「直立超格子ナノ構造を組み込んだ高効率有機太陽電池」, 平本昌宏 (2009年–2010年).

科研費挑戦的萌芽研究, 「クロスドーピングによる有機薄膜太陽電池」, 平本昌宏 (2012年–2013年).

科学技術振興機構CREST 研究,「太陽光を利用した独創的クリーンエネルギー生成技術の創出」研究領域,「有機太陽電池のためのバンドギャップサイエンス」,平本昌宏 (2009年-2015年).

科研費基盤研究(B),「共蒸着膜のpn 制御による 15% 効率有機タンデム太陽電池の開発」,平本昌宏 (2013年-2016年).

NEDO (新エネルギー・産業技術総合開発機構), エネルギー・環境新技術先導プログラム「pn 制御有機半導体単結晶太陽電池の開発」,平本昌宏 (2015年-2016年).

科研費基盤研究(B) (一般),「有機単結晶エレクトロニクス」,平本昌宏 (2017年-2020年).

科研費挑戦的研究(萌芽),「超バルクヘテロ接合有機太陽電池の開発」,平本昌宏 (2017年-2019年).

科研費挑戦的研究(萌芽),「ドーピング有機単結晶ウェハーを用いた新原理太陽電池」,平本昌宏 (2019年-2021年).

科研費研究活動スタート支援,「混合膜中の界面構造制御による有機薄膜太陽電池の高効率化」,伊澤誠一郎 (2016年-2017年).

科研費若手研究,「超高移動度分子を用いた有機太陽電池」,伊澤誠一郎 (2018年-2021年).

マツダ財団研究助成,「理論限界に迫る有機太陽電池の実現」,伊澤誠一郎 (2018年-2020年).

中部科学技術センター学術・みらい助成,「有機太陽電池の理論限界効率への挑戦」,伊澤誠一郎 (2018年-2019年).

### C) 研究活動の課題と展望

平本は, 研究員1名(谷原)を雇用し, 学生1名(Jaseela P. I. (M1), 2019.10入学)を指導し, 科研費研究テーマ「有機単結晶エレクトロニクス」及び「ドーピング有機単結晶ウェハーを用いた新原理太陽電池」を推進している。伊澤助教は, 有機太陽電池における電荷再結合抑止による電圧ロス低減, ノンフラーレンアクセプターに関する研究を強力に推進し, 学生1名(Ji-Hyun Lee (D2), 2018.10入学)を指導し, 論文量産態勢に入り, 研究室の柱になっている。今年度受け入れた国際インターンシップ生2名(Adrien Girault, Jeremy Roudin (M1, 2019.4-2019.8, Chimie ParisTech))は, 平本, 伊澤で1名ずつ分担して指導した。

密接な共同研究が増えている。高橋教授(静岡大学工学部)の研究室において合成した新規ノンフラーレンアクセプターを用いて有機太陽電池を作製評価し, 論文執筆段階に入り, 科研費を共同出願した。榎山准教授(分子研)の合成した両極性有機半導体を用いて, 両極性ドーピングと太陽電池応用の研究を進めている。

なお, 国際インターンシップ生として2017年に半年在籍したS. Makmuang (Chulalongkorn 大博士課程学生)の仕事が論文として掲載されたこともあり, 特別共同利用研究員として, 来年度1年間在籍予定。学生は海外主体となっている。国際インターンシップ学生, 共同研究は, マンパワー強化に有効で, これらを利用して研究室のアクティビティーをさらに強化する。

## 西村 勝之 (准教授) (2006年4月1日着任)

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) 固体 NMR による糖鎖脂質含有二重膜上で誘起されるアミロイド  $\beta$  会合状態の構造解析
- b) アミロイドタンパク質の大量発現系の確立
- c) 固体 NMR プロープの開発
- d) 固体 NMR を用いた各種分子材料の構造解析

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) アミロイド  $\beta$  タンパク質 ( $A\beta$ ) はアルツハイマー病の発症に深く関与すると考えられ，凝集して不溶性のアミロイド線維を形成する。本研究では， $A\beta$  と高い親和性を有する糖鎖脂質 GM1 を含有した脂質膜下で形成される  $A\beta$  オリゴマーの構造解析に基づき，アミロイド線維形成分子機構を解明することを目的としており，加藤 (晃) 教授グループと共同研究を行っている。これまで行った実験結果に基づき二次構造を同定し，GM1 存在下では，前研究で決定した中性脂質膜上で誘起される構造とは異なる分子構造を示すことが判明した。複数の  $^{13}\text{C}$  同種核相関二次元 NMR 実験から得た長距離相関信号に基づき，分子間配座の検討を行うと共に，異なる距離依存性条件下で同二次元相関実験の追実験を行った。検討の結果，大まかな分子配座モデル案の構築に成功した。現在，長距離相関信号の分子内，分子間の寄与を区別する同二次元相関実験を行っており，これで全ての実験を完了し，詳細な分子構造決定を完結する予定である。
- b) 昨年度からアミロイドタンパク質の大量発現系の構築に関して，国立感染症研究所の谷生道一博士と共同研究を行っている。複数回発現系を変更し，ようやく大腸菌を用いた目的タンパク質の大量発現まで実験法を確立した。現在，高純度精製法の確立を試みている。
- c) 独自デザインの実験実現を最終目的として，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 プロープの開発を昨年度より行っている。まずベースとなる固体 NMR プロープとして 2.5mm 試料管用試料回転モジュール，および回転検出用の光電圧変換モジュール，温度センサーの3部品のみ同社製部品を使用し，それ以外を全て独自に設計，制作した 2.5mm 試料管用固体 MAS  $^1\text{H}$ -X 二重共鳴プロープの制作を行った。プロープ設計と同時並行で各部品の改良を行い，部品製作，設置に必要な治具から独自に開発した。ヒーターモジュール以外の各モジュールの個別動作確認を完了し，配線と調整を残す段階まで完了した。また，多くの共通構造を有する  $^1\text{H}$ - $^{13}\text{C}$ - $^{15}\text{N}$  三重共鳴プロープ，および試料管径の異なる 4.0mm 試料管用固体 MAS  $^1\text{H}$ -X 二重共鳴プロープの開発も同時並行で進めている。最終的に，今回購入したモジュールも，全て独自設計モジュールに置き換えるため，これらのモジュール開発も行っており，温度センサーは設計を完了した。
- d) 固体 NMR を用いた分子材料の構造解析に関して，昨年度より3件の共同研究を引き続き行っている。茨城大学の福元博基准教授のグループとの共同研究で，同グループで開発された新規含フッ素透明性樹脂に関連する分子の解析を行った。次に，大阪大学の戸部義人教授グループとの共同研究で，同グループで開発された有機分子材料の電子状態解析を行った。 $^1\text{H}$ - $^{13}\text{C}$  異種核相関二次元 NMR の解析から，研究対象分子の一つに関して解析を完了し，比較対象試料の調製完了を待つ状態である。さらに，愛知教育大学の西 信之教授，日鉄ケミカルとの共同研究で，同グループで開発された分子材料の解析を行い，信号の暫定的な帰属，および状態解析を行った。

B-1) 学術論文

S. KATAOKA, H. FUKUMOTO, T. KAWASAKI-TAKASUKA, T. YAMAZAKI, K. NISHIMURA, T. AGOU and T. KUBOTA, "Effective Synthesis of Fluorine-Containing Phenanthrene Bearing Hydroxyl Group Using Mallory Reaction and Its Application for Fluorinated Polymers," *J. Fluorine Chem.* **218**, 84–89 (2019).

B-6) 受賞, 表彰

西村勝之, 日本核磁気共鳴学会優秀若手ポスター賞 (2002).

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

日本核磁気共鳴学会評議員 (2009–2010, 2013–2014).

日本核磁気共鳴学会選挙管理委員 (2005).

日本生物物理学学会分野別専門委員 (2004–2009).

学会の組織委員等

第 27 回生体系磁気共鳴国際会議 (ICMRBS) 実行委員, プログラム委員 (2013–2016).

第 51 回 NMR 討論会プログラム委員 (2012).

学会誌編集委員

日本生物物理学学会欧文誌 *Biophysics*, Advisory board (2005–2009).

*Global Journal of Biochemistry*, Editorial Board (2010–2013).

B-10) 競争的資金

科研費基盤研究(C), 「超分子構造の分子間配座解析に資する固体 NMR 解析法開発とその適用」, 西村勝之 (2019 年–2021 年).

科研費基盤研究(C), 「脂質膜を介した生体超分子構造形成機構の解析に資する固体 NMR 測定法開発と適用」, 西村勝之 (2016 年–2018 年).

科研費基盤研究(C), 「非標識固体試料解析のための固体 NMR 新規測定法開発」, 西村勝之 (2013 年–2015 年).

科研費基盤研究(C), 「固体 NMR による新規室温磁場配向膜を用いた膜表在性タンパク質脂質結合機構の解明」, 西村勝之 (2010 年–2012 年).

科研費萌芽研究, 「試料状態変調型固体 NMR プローブ開発とその適用」, 西村勝之 (2008 年–2009 年).

B-11) 産学連携

共同研究, (株)日鉄ケミカル&マテリアル, 「ナノ材料の固体 NMR 研究」, 西村勝之 (2019).

C) 研究活動の課題と展望

これまで行ってきた脂質膜上で形成されるアミロイド $\beta$  ペプチドオリゴマーの研究が, ようやく構造モデル構築まで到達した。前研究の中性脂質膜上での構造との比較から GM1 の役割が明瞭になり, 研究総括に近づいている。また, 同研究後の次期ターゲットのアミロイドタンパク質の大量発現系の構築を, 別の共同研究先と進めてきた。予定より大幅に遅れ 2 年近く苦戦したが, ようやくゴールが見えた状態である。来年度からは次期研究に注力したいと思う。さらに昨年度から開発を行っている独自の固体 NMR プローブが, ようやく完成間近な状態となった。今後, これを活用, 発展させて行きたい。

## 小林 玄 器 (准教授) (2018 年 4 月 1 日着任)

A-1) 専門領域：無機固体化学，固体イオニクス，電気化学，蓄電・発電デバイス

A-2) 研究課題：

- a) H<sup>-</sup> 導電性酸水素化物の物質探索
- b) H<sup>-</sup> 導電性酸水素化物のイオン導電機構解析
- c) H<sup>-</sup> のイオン導電現象を利用した新規イオニクスデバイスの創成

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 電気化学測定系の改良によって， $AE_2LiH_3O$  ( $AE = Sr, Ba$ ) の高温相の導電率を正確に計測できるようになり，Sr 系，Ba 系共に，高温相では  $10^{-2} \text{ S}\cdot\text{cm}^{-1}$  を超える極めて高い導電率がほぼ温度に依存せずを得られることが明らかになった。アレニウスプロットから見積もられた活性化エネルギーは  $10 \sim 30 \text{ kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$  程度であり，H<sup>-</sup> 超イオン導電状態であると考えられる。また， $AE_2LiH_3O$  ( $AE = Sr, Ba$ ) の Li や Ba の一部を他の元素に置換することで高温相を安定化することができ，実用性能の基準値である  $10^{-3} \text{ S}\cdot\text{cm}^{-1}$  以上の導電率を  $300 \text{ }^\circ\text{C}$  以下で達成することができた。
- b) 中性子準弾性散乱測定から， $Ba_2LiH_3O$  が温度上昇に伴って超イオン導電状態に転移する過程の水素のダイナミクスを調べた結果，高温相での高い導電率は，H<sup>-</sup> の移動度の大幅な向上ではなく，イオン導電機構の変化が主に関与していることが示唆された。
- c) H<sup>-</sup> 導電体を電解質に用いた固体デバイスを作製し，電気化学的な Ti への水素吸蔵放出に成功した。これは，電気化学デバイス反応によって  $\text{H}^- \rightleftharpoons \text{e}^- + \text{H}^0$  の酸化還元を制御した初めての例である。

B-1) 学術論文

**H. UBUKATA, T. BROUX, F. TAKEIRI, K. SHITARA, H. YAMASHITA, A. KUWABARA, G. KOBAYASHI and H. KAGEYAMA**, "Hydride Conductivity in an Anion-Ordered Fluorite Structure  $LnHO$  with an Enlarged Bottleneck," *Chem. Mater.* **31**, 7360–7366 (2019).

**T. BROUX, H. UBUKATA, C. J. PICKARD, F. TAKEIRI, G. KOBAYASHI, S. KAWAGUCHI, M. YONEMURA, Y. GOTO, C. TASSEL and H. KAGEYAMA**, "High-Pressure Polymorphs of  $LaHO$  with Anion Coordination Reversal," *J. Am. Chem. Soc.* **141**, 8717–8720 (2019).

**F. TAKEIRI, A. WATANABE, A. KUWABARA, H. NAWAZ, N. AYU, M. YONEMURA, R. KANNO and G. KOBAYASHI**, " $Ba_2ScHO_3$ : H<sup>-</sup> Conductive Layered Oxyhydride with H<sup>-</sup> Site Selectivity," *Inorg. Chem.* **58**, 4431–4436 (2019).

**N. MATSUI, G. KOBAYASHI, K. SUZUKI, A. WATANABE, A. KUBOTA, Y. IWASAKI, M. YONEMURA, M. HIRAYAMA and R. KANNO**, "Ambient Pressure Synthesis of  $La_2LiHO_3$  as a Solid Electrolyte for a Hydrogen Electrochemical Cell," *J. Am. Ceram. Soc.* **102**, 3228–3235 (2019).

B-3) 総説，著書

小林玄器, 「ヒドリド導電体～物質開発の現状と電池への応用可能性～」, *電気化学 (DENKIKAGAKU)*, **87(Autumn)**, 227–232 (2019).

小林玄器,「H<sup>-</sup> 導電体の物質開発:新たな水素利用技術の創出に向けて」, *化学と工業 (Chemistry & Chemical Industry)* **72(8)**, 668–670 (2019).

B-4) 招待講演 (\* 基調講演)

小林玄器,「水素のマイナスイオン“ヒドリド”を伝導するセラミックス～新物質開拓とエネルギーデバイスへの応用可能性～」, 第119回分子科学フォーラム, 岡崎コンファレンスセンター, 岡崎, 2019年1月.

小林玄器,「ヒドリド導電性酸水素化物の物質開拓」, 第4回科学技術交流財団「マイクロフォトニクス」研究会, 分子科学研究所明大寺キャンパス, 岡崎, 2019年2月.

小林玄器,「ヒドリドイオン導電性材料の物質開拓」, 電気化学会第86回大会, 京都大学吉田キャンパス, 京都, 2019年3月.\* (田川記念固体化学奨励賞受賞講演)

小林玄器,「ヒドリドイオン導電体の物質開拓と電気化学デバイスへの応用可能性」, 日本学術振興会先進セラミックス第124委員会第158回会議, 東京工業大学田町キャンパス, 東京, 2019年8月.

小林玄器,「H<sup>-</sup> 導電性酸水素化物のアニオン配列制御とイオン導電特性」, 日本金属学会 2019年秋期講演大会, 岡山大学津島キャンパス, 岡山, 2019年9月.\*

小林玄器,「H<sup>-</sup> 導電性酸水素化物のアニオン配列制御とイオン導電特性」, 2019年第80回応用物理学会秋期学術講演会, 北海道大学札幌キャンパス, 札幌, 2019年9月.

小林玄器,「H<sup>-</sup> 導電体および電気化学デバイス開発の現状と課題」, 第2回ヒドリドイオニクス研究会, 岡崎コンファレンスセンター, 岡崎, 2019年10月.

**G. KOBAYASHI**, “Study on H<sup>-</sup> Conductive Oxyhydrides,” The 81<sup>st</sup> Okazaki Conference “Forefront of Measurement Technologies for Surface Chemistry and Physics in Real-Space, k-Space, and Real-Time,” Okazaki (Japan), December 2019.

**G. KOBAYASHI**, “Study on H<sup>-</sup> Conductive Oxyhydrides,” IMS-PCOSS Bilateral Symposium, Xiamen (China), December 2019.

B-6) 受賞, 表彰

小林玄器, 分子科学研究奨励森野基金 (2019).

小林玄器, 田川記念固体化学奨励賞 (2019).

小林玄器, 第7回石田賞 (2018).

小林玄器, 第39回本多記念研究奨励賞 (2018).

橋本英樹, 小林玄器, 鈴木智子, 第三回ネイチャー・インダストリー・アワード特別賞 (2013).

小林玄器, 手島精一記念研究賞(博士論文賞)(2011).

**G. KOBAYASHI**, The American Ceramics Society Spriggs Phase Equilibria Award (2010).

**G. KOBAYASHI**, International Conference on Materials for Advanced Technologies 2009, Best Poster Award (2009).

B-7) 学会および社会的活動

学会の組織委員等

第51回電池討論会実行委員 (2011).

2013年電気化学秋季大会実行委員 (2013).

- 第 56 回電池討論会実行委員 (2015).
- 第 42 回固体イオニクス討論会実行委員 (2016).
- 第 58 回高压討論会実行委員 (2017).
- 第 1 回ヒドリドイオニクス研究会 (第 72 回固体イオニクス研究会) 世話人 (2018).
- 第 4 回固体化学フォーラム研究会世話人 (2019).
- 第 2 回ヒドリドイオニクス研究会 (第 75 回固体イオニクス研究会) 世話人 (2019).

#### B-8) 大学での講義, 客員

総合研究大学院大学物理科学研究科, 集中講義「基礎電子物性論」, 2019 年 12 月 16 日-17 日.

#### B-10) 競争的資金

科研費新学術領域「複合アニオン化合物の創製と新機能」(公募研究), 「ヒドリド超イオン導電体の物質探索」, 小林玄器 (2017 年-2018 年).

科研費若手研究(A), 「新規イオニクスデバイスの開発に向けたヒドリド導電性物質の探索」, 小林玄器 (2015 年-2017 年).

科学技術振興機構さきかけ研究「新物質科学と元素戦略」, 「ヒドリド酸化物の直接合成による新規機能性材料の探索」, 小林玄器 (2012 年-2016 年).

科研費若手研究(B), 「ヒドリド含有酸化物を基軸とした新規機能性材料の探索」, 小林玄器 (2012 年-2014 年).

科研費研究活動スタート支援, 「逆ペロブスカイト型新規リチウムイオン導電体の創成」, 小林玄器 (2011 年-2012 年).

#### C) 研究活動の課題と展望

##### H<sup>-</sup> 導電性酸水素化物の物質探索および新規イオニクスデバイスの創製

若手独立フェローとして着任した 2013 年度から一貫して取り組んできた H<sup>-</sup> 導電性酸水素化物の物質探索については, Ba<sub>2</sub>LiH<sub>3</sub>O が合成できたことで大きく進展した。Ba<sub>2</sub>LiH<sub>3</sub>O が 300-400 °C で示す H<sup>-</sup> 導電特性 ( $\sigma \geq 10^{-2} \text{ S}\cdot\text{cm}^{-1}$ ) は, 格子内からの脱水などの影響によりプロトン (H<sup>+</sup>) による従来の水素のイオン輸送では達成できなかった特性であり, 無加湿下で負の電荷を保ったまま単一でイオン拡散できる H<sup>-</sup> ならではの特徴を活かすことができた結果といえる。また, 今年度は, Ba<sub>2</sub>LiH<sub>3</sub>O に元素置換を施す事で超イオン導電性を示す高温相を低温で安定化させることに成功しており, 300 °C 以下で実用性能の導電率を得ることができた。今後は 200 °C 以下で実用性能を達成することが具体的な目標となる。

K<sub>2</sub>NiF<sub>4</sub> 型構造以外の骨格構造を有する H<sup>-</sup> 導電性酸水素化物の合成も着実に進展しており, 物質開発の新しい方向性が見出せた。中性子準弾性散乱や固体 NMR による H<sup>-</sup> 導電機構解析も H<sup>-</sup> 超イオン導電状態での導電機構の変化を捉えており, 今後のさらなる研究により, H<sup>-</sup> 導電体の学理を体系化していきたい。

H<sup>-</sup> のイオン導電現象の電池反応への応用に関しては, 合成した酸水素化物を固体電解質に用いた電気化学デバイスを作製し, 水素化・脱水素化反応への応用を検討した。H<sup>+</sup> を用いた従来技術と比較して高効率に反応が進行することが明らかとなり, 水素化・脱水素化反応における H<sup>-</sup> 利用の優位性が認められた。今後は, 反応の原理検証, デバイス構成の最適化, H<sup>-</sup> が関与する素反応の開拓を目指す。一方, Ti などの金属電極に H<sup>-</sup> 導電体を利用して水素吸蔵放出することにも成功しており, デバイス構成の最適化による可逆性の向上を目指すと共に新たな応用可能性を検証していきたい。

## 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）

A-1) 専門領域：生物無機化学

A-2) 研究課題：

- a) コリネバクテリアのヘム取込みに関与するヘム結合・輸送タンパク質の構造機能相関解明
- b) ヒドロゲナーゼ生成に関与する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) コリネバクテリア属細菌 *Corynebacterium glutamicum* のヘム取り込み系は、宿主からのヘム獲得、およびヘムトランスポーターへのヘム輸送に関与するタンパク質 HtaA, HtaB と細胞内にヘムを取り込むトランスポーターシステムである HmuT-HmuUV から構成されている。本研究では、本システムによるヘム取込み反応の詳細な分子機構を明らかにするため、HtaA, HtaB の結晶構造解析を行った。HtaA はリンカーでつながれた N 末端ドメイン (HtaA-N) と C 末端ドメイン (HtaA-C) から、HtaB は 1 つのドメインから構成されている。HtaA-N, HtaA-C, HtaB は、いずれもホロ型 (ヘム結合型) として単離精製された。本研究で決定した HtaA-C および HtaB の全体構造は、以前に構造決定した HtaA-N と高い相同性を示した。いずれの構造においても、Tyr が第 5 配位子としてヘム鉄に配位しており、Tyr は近傍の His と水素結合を形成していた。また、HtaA-N で観測されていた、ヘムプロピオン酸と Ser 間での水素結合、Phe とヘムピロール環の間の  $\pi$ - $\pi$  スタッキングも、HtaA-N, HtaA-C, HtaB すべてで保存されており、これらの相互作用が、ヘム認識に重要な役割を果たしていることを示唆している。全体構造が高い相同性を示す一方、結合するヘムの配向やヘム結合部位周辺のループの長さには、違いが見られた。ヘム獲得・輸送反応において、ヘム軸配位子である Tyr と近傍の His 間での水素結合が果たす役割を明らかにするため、His を Ala に置換した HtaA-N, HtaA-C, HtaB の変異型タンパク質を調製した。いずれの変異体も、アポ型として単離精製されたことから、これら変異体ではヘムへの結合親和性が低下していることが分かった。これら変異体の結晶化条件のスクリーニングを行った結果、HtaA-C の H434A 変異体の結晶が得られ、その結晶構造を決定した。HtaA-C の H434A 変異体の結晶構造では、非対称単位中の 2 分子が N 末端の  $\beta$ -strand のドメインスワップによって二量体を形成していた。この二量体構造では、ヘムの軸配位子となる Tyr が隣り合う分子のヘム結合領域に入り込んでいることが分かった。これらの結果を基に、HtaA/HtaB 間でのヘム輸送反応において、タンパク質がダイナミックに構造変化 (ドメインスワッピングが起こる) することにより、ホロ型 HtaA とアポ型 HtaB 間で同様な二量体構造を過渡的に形成し、ヘム輸送反応が進行するという反応モデルを提唱した。
- b) 水素ガスの酸化反応・プロトンの還元反応を触媒する酵素であるヒドロゲナーゼは、バクテリアなどによる水素代謝において中心的な役割を果たしている他、最近では燃料電池用触媒としての利用も期待されている金属酵素である。活性中心の構造の違いにより、[NiFe] 型、[FeFe] 型、[Fe] 型の 3 種のヒドロゲナーゼが存在するが、いずれの場合も活性中心の Fe には、CO が配位している。この CO は、酵素反応により生合成されることが分かっているが、CO 生成反応の分子機構は不明な状況であった。本研究では、[NiFe] 型ヒドロゲナーゼが利用している CO の生合成に関

わる酵素 (HypX) の結晶構造を決定し, HypX がこれまでに全く例の無い反応により CO を合成していることを明らかにした。HypX は二つのドメイン (N 末ドメインと C 末ドメイン) から構成されており, 分子内部にはこれら二つのドメインにまたがる形でキャビティーが存在している。また, C 末ドメイン側のキャビティーには, 補酵素 A (coenzyme A: CoA) が結合していることが分かった。得られた結晶構造を基に, 下記のような CO 合成反応機構を提唱した。HypX の N 末ドメインと C 末ドメインでは, それぞれ異なる二つの化学反応が進行する。N 末ドメインでは, 反応基質として N 末ドメイン中のキャビティーに結合したホルミルテトラヒドロ葉酸から CoA へのホルミル基転移反応が進行する。この時, キャビティー中の CoA は直鎖状に伸びたコンフォメーションを取り, CoA の末端にある -SH 基は N 末ドメインに結合したホルミルテトラヒドロ葉酸中のホルミル基の側に位置し, CoA へのホルミル基転移反応によりホルミル -CoA が反応中間体として生成する。生成したホルミル -CoA は, CoA 分子の末端部分に存在するホルミル基が, HypX の C 末ドメイン中の酵素活性サイトに位置するよう, キャビティー中で大きくそのコンフォメーションが変化する。C 末ドメインでは, ホルミル -CoA からの CO 脱離反応が進行し, CO と CoA が生成する。

#### B-1) 学術論文

**N. MURAKI, C. KITATSUJI, Y. OKAMOTO, T. UCHIDA, K. ISHIMORI and S. AONO**, “Structural Basis for Heme Transfer Reaction in Heme Uptake Machinery from Corynebacteria,” *Chem. Commun.* **55**, 13864–13867 (2019).

**N. MURAKI, K. ISHII, S. UCHIYAMA, S. G. ITOH, H. OKUMURA and S. AONO**, “Structural Characterization of HypX Responsible for CO Biosynthesis in the Maturation of NiFe-Hydrogenase,” *Commun. Biol.* **2**, 385 (12 pages) (2019).

#### B-4) 招待講演

青野重利, 「ヘムが関与する生体内シグナルセンシングおよびシグナル伝達」, 同志社大学ナノ・バイオサイエンス研究センター私大戦略「細胞自在操作のための分子化学技術の開発拠点形成」2018年度成果報告会, 同志社大学, 京田辺市, 2019年4月.

**S. AONO**, “Structural Characterization of HypX Responsible for CO Biosynthesis in the Maturation of [NiFe]-Hydrogenases,” Frontier Bioorganization Forum 2019, Seoul (Korea), July 2019.

**S. AONO**, “Structural Characterization of HypX Responsible for CO Biosynthesis to assemble the active site of [NiFe]-Hydrogenase,” 2019 Korea-Taiwan-Japan Biological Inorganic Chemistry Symposium, Taichung (Taiwan), November 2019.

#### B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

触媒学会生体関連触媒研究会世話人 (2002–).

日本化学会生体機能関連化学部会幹事 (2007–2014).

日本化学会東海支部常任幹事 (2009–2010).

日本化学会生体機能関連化学・バイオテクノロジーディビジョン幹事 (2014–2015).

日本化学会生体機能関連化学・バイオテクノロジーディビジョン主査 (2016–2017).

学会の組織委員等

14<sup>th</sup> International Conference on Biological Inorganic Chemistry 組織委員会総務委員長 (2009).

The first International Symposium on Biofunctional Chemistry 組織委員 (2012).  
Japan-Korea Seminar on Biomolecular Sciences—Experiments and Simulations 組織委員 (2008–2010, 2012–2016).  
文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等  
日本学術振興会特別研究員等審査会専門委員 (2005–2007).  
日本学術振興会国際事業委員会書面審査員 (2005–2007).  
日本学術振興会科学研究費委員会専門委員 (2010–2012, 2014–2015, 2019–2020).  
日本学術振興会特別研究員等審査会専門委員及び国際事業委員会書面審査委員・書面評価員 (2016–2017).  
大阪大学蛋白質研究所専門委員会委員 (2016).  
大阪大学蛋白質研究所専門委員会委員長 (2017).  
学会誌編集委員  
*J. Biol. Inorg. Chem.*, Editorial Advisory Board (2002–2004).  
*Biosensors*, Editorial Board (2010–2018).  
*Chemistry Letters*, Section Editor (2013–).  
その他  
総合研究大学院大学物理科学研究科構造分子科学専攻長 (2016–).  
豊田理化学研究所審査委員会委員 (2019–).

#### B-10) 競争的資金

科研費特定領域研究(公募研究),「ガス分子により駆動される新規なセンサータンパク質の機能発現機構」, 青野重利 (2007年–2010年).  
ノバルティス科学振興財団研究奨励金,「ガス分子により駆動される生体内シグナル伝達の分子機構解明」, 青野重利 (2010年).  
野田産業科学研究研究所研究助成,「ヘムをシグナル分子とする *Lactococcus lactis* における遺伝子発現制御」, 青野重利 (2011年).  
科研費挑戦的萌芽研究,「環境汚染物質検出用の高感度蛍光プローブを装備したホーミングセルの創製」, 青野重利 (2011年–2012年).  
科研費基盤研究(B),「ガス分子による生体機能制御に関与するセンサータンパク質の構造と機能」, 青野重利 (2011年–2013年).  
科研費挑戦的萌芽研究,「生物の環境センシング機能を基盤とした高感度な環境汚染物質検出システムの構築」, 青野重利 (2013年–2014年).  
科研費若手研究(B),「ビタミン B12 を感光色素とする新規光センサーの構造機能研究」, 村木則文 (2014年–2016年).  
科研費挑戦的萌芽研究,「環境汚染物質に対する自発集積能を有する高感度汚染検出システムの構築」, 青野重利 (2015年–2016年).  
科研費若手研究(B),「過渡的複合体に着目したヘムリレー輸送の分子機構の解明」, 村木則文 (2017年–2018年).  
科研費基盤研究(B),「新規な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」, 青野重利 (2017年–2020年).  
科研費新学術領域研究「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–2023年).

### 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行きたいと考えている。

## 加藤 晃 一（教授）（2008年4月1日着任）

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) NMR 分光法をはじめとする物理化学的手法による複合糖質およびタンパク質の構造・ダイナミクス・相互作用の解析
- b) 統合的アプローチによる生命分子の構造機能解析

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 代表的な抗体である免疫グロブリン G (IgG) の Fc 領域に結合している糖鎖は、免疫細胞上に発現している Fc $\gamma$  受容体 (Fc $\gamma$ R) との相互作用を通じて発揮されるエフェクター機能の発動に大きな影響を与えている。これまで、IgG と Fc $\gamma$ R の相互作用は、IgG から切り出した Fc 断片を対象にした結晶構造解析がもたらす静的情報に基づいて議論されてきた。これに対して我々は、両者の相互作用の実態解明に向けて、糖鎖を含めた Fc の 3 次元構造ダイナミクスを精査した。そのために、水溶液中の Fc の分子動力学計算を実施し、その結果を核磁気共鳴法 (NMR) と X 線小角散乱により実験的に評価した。これにより、Fc を構成する糖鎖とアミノ酸残基の相互作用のネットワークの動態を可視化することが可能となり、糖鎖が規定する Fc 局所の構造ダイナミクスが Fc $\gamma$ R との会合を制御する仕組みが明らかとなった。また、細胞膜上での IgG の分子挙動を理解するために、高速原子間力顕微鏡を用いて細胞膜模倣環境における Fc $\gamma$ R と IgG の相互作用をリアルタイムで観測するとともに、水素重水素交換質量分析法により IgG と Fc $\gamma$ R との相互作用部位を探索した。その結果、IgG と Fc $\gamma$ R の相互作用には、Fc 領域のみならず Fab 領域も直接関わっていることを初めて明らかにした。本研究の成果は、タンパク質工学的な分子デザインを通じて抗体医薬の高機能化をはかる上で重要な知見を与えるものである。一方、NMR がバイオ医薬品としての抗体の構造評価をする上で実用的なツールとなることを、大規模な国際共同研究を通じて実証することができた。
- b) 巨大プロテアーゼ複合体であるプロテアソームの構造形成がサブユニット集合を介助する一連のシャペロンの関与のもとで進行するプロセスであることに注目し、複合体の中核をなす  $\alpha$  リングを標的として、その形成過程を追跡した。 $\alpha$  リングは 7 種類の異なるサブユニット ( $\alpha 1$ - $\alpha 7$ ) から成るヘテロ 7 量体である。溶液中における集合状態を解析したところ、 $\alpha 7$  のみが 7 量体のリングが 2 つ重なったホモ 14 量体を形成することが明らかとなった。さらに、結晶構造情報に基づいて部位特異的変異を施すことで、 $\alpha 7$  のホモ 14 量体を 7 量体化することや、単量体として安定に存在させるなど、その集合状態を制御することに成功した。こうして単量体化した  $\alpha 7$  と特定のサブユニット同士を組み合わせることにより、ヘテロ 14 量体構造を構築することにも成功した。また、X 線結晶構造解析によりアセンブリーシャペロンである PAC3 および PAC4 の 3 次元構造を決定するとともに、NMR 解析を通じて、PAC3 上の  $\alpha 6$  サブユニットの結合部位と予想されるループが柔軟な構造をとることを明らかにした。一方、シアノバクテリアの概日リズムを担う時計タンパク質の相互作用に関しても、NMR と質量分析を組み合わせた構造解析を実施した。その結果、KaiC のリング内に埋もれている C 末端が、ATP の加水分解に伴って溶液中に露出することによって KaiA と相互作用することを見出した。さらに、ATP の加水分解に伴う KaiC 6 量体と KaiB との協同的な結合を捉えるとともに、KaiB 間の協同的な相互作用に重要なアミノ酸残基を同定した。以上の研究を通じて、タンパク質の離合集散の分子機構の構造基盤を与える知見を得ることができた。

B-1) 学術論文

**S. G. ITOH, M. YAGI-UTSUMI, K. KATO and H. OKUMURA**, “Effects of a Hydrophilic/Hydrophobic Interface on Amyloid- $\beta$  Peptides Studied by Molecular Dynamics Simulations and NMR Experiments,” *J. Phys. Chem. B* **123**, 160–169 (2019).

**R. G. BRINSON, J. P. MARINO, F. DELAGLIO, L. W. ARBOGAST, R. M. EVANS, A. KEARSLEY, G. GINGRAS, H. GHASRIANI, Y. AUBIN, G. K. PIERENS, X. JIA, M. MOBILI, H. G. GRANT, D. W. KEIZER, K. SCHWEIMER, J. STÄHLE, G. WIDMALM, E. R. ZARTLER, C. W. LAWRENCE, P. N. REARDON, J. R. CORT, P. XU, F. NI, S. YANAKA, K. KATO, S. R. PARNHAM, D. TSAO, A. BLOMGREN, T. RUNDLÖF, N. TRIELOFF, P. SCHMIEDER, A. ROSS, K. SKIDMORE, K. CHEN, D. KEIRE, D. I. FREEDBERG, T. SUTER-STAHLE, G. WIDER, G. ILC, J. PLAVEC, S. A. BRADLEY, D. M. BALDISSERI, M. I. SFORÇA, A. C. M. ZERI, J. Y. WEI, C. M. SZABO, C. A. AMEZCUA, J. B. JORDAN and M. WIKSTRÖM**, “Enabling Adoption of 2D-NMR for the Higher Order Structure Assessment of Monoclonal Antibody Therapeutics,” *mAbs* **11**, 94–105 (2019).

**Y. HARADA, T. SUZUKI, T. FUKUSHIGE, Y. KIZUKA, H. YAGI, M. YAMAMOTO, K. KONDO, H. INOUE, K. KATO, N. TANIGUCHI, T. KANEKURA, N. DOHMAE and I. MARUYAMA**, “Generation of the Heterogeneity of Extracellular Vesicles by Membrane Organization and Sorting Machineries,” *Biochim. Biophys. Acta, Gen. Subj.* **1863**, 681–691 (2019).

**T. MATSUI, S. KAMATA, K. ISHII, T. MARUNO, N. GHANEM, S. UCHIYAMA, K. KATO, A. SUZUKI, N. ODAUEDA, T. OGAWA and Y. TANAKA**, “SDS-Induced Oligomerization of Lys49-Phospholipase A<sub>2</sub> from Snake Venom,” *Sci. Rep.* **9**, 2330 (8 pages) (2019).

**NARENTUYA, Y. TAKEDA-UCHIMURA, T. FOYEZ, Z. ZHANG, T. O. AKAMA, H. YAGI, K. KATO, Y. KOMATSU, K. KADOMATSU and K. UCHIMURA**, “GlcNAc6ST3 Is a Keratan Sulfate Sulfotransferase for the Protein-Tyrosine Phosphatase PTPRZ in the Adult Brain,” *Sci. Rep.* **9**, 4387 (11 pages) (2019).

**Y. HARADA, Y. KIZUKA, Y. TOKORO, K. KONDO, H. YAGI, K. KATO, H. INOUE, N. TANIGUCHI and I. MARUYAMA**, “N-Glycome Inheritance from Cells to Extracellular Vesicles in B16 Melanomas,” *FEBS Lett.* **593**, 942–951 (2019).

**T. SATOH, M. YAGI-UTSUMI, K. OKAMOTO, E. KURIMOTO, K. TANAKA and K. KATO**, “Molecular and Structural Basis of the Proteasome  $\alpha$  Subunit Assembly Mechanism Mediated by the Proteasome-Assembling Chaperone PAC3-PAC4 Heterodimer,” *Int. J. Mol. Sci.* **20**, 2231 (10 pages) (2019).

**T. SEKIGUCHI, T. SATOH, E. KURIMOTO, C. SONG, T. KOZAI, H. WATANABE, K. ISHII, H. YAGI, S. YANAKA, S. UCHIYAMA, T. UCHIHASHI, K. MURATA and K. KATO**, “Mutational and Combinatorial Control of Self-Assembling and Disassembling of Human Proteasome  $\alpha$  Subunits,” *Int. J. Mol. Sci.* **20**, 2308 (14 pages) (2019).

**Y. YUNOKI, K. ISHII, M. YAGI-UTSUMI, R. MURAKAMI, S. UCHIYAMA, H. YAGI and K. KATO**, “ATP Hydrolysis by KaiC Promotes Its KaiA Binding in the Cyanobacterial Circadian Clock System,” *Life Sci. Alliance* **2**, e201900368 (7 pages) (2019).

**S. YANAKA, R. YOGO, R. INOUE, M. SUGIYAMA, S. G. ITOH, H. OKUMURA, Y. MIYANOIRI, H. YAGI, T. SATOH, T. YAMAGUCHI and K. KATO**, “Dynamic Views of the Fc Region of Immunoglobulin G Provided by Experimental and Computational Observations,” *Antibodies* **8**, 39 (13 pages) (2019).

**R. YOGO, Y. YAMAGUCHI, H. WATANABE, H. YAGI, T. SATOH, M. NAKANISHI, M. ONITSUKA, T. OMASA, M. SHIMADA, T. MARUNO, T. TORISU, S. WATANABE, D. HIGO, T. UCHIHASHI, S. YANAKA, S. UCHIYAMA and K. KATO**, “The Fab Portion of Immunoglobulin G Contributes to Its Binding to Fcγ Receptor III,” *Sci. Rep.* **9**, 11957 (10 pages) (2019).

**R. INOUE, T. NAKAGAWA, K. MORISHIMA, N. SATO, A. OKUDA, R. URADE, R. YOGO, S. YANAKA, M. YAGI-UTSUMI, K. KATO, K. OMOTO, K. ITO and M. SUGIYAMA**, “Newly Developed Laboratory-Based Size Exclusion Chromatography Small-Angle X-Ray Scattering System (La-SSS),” *Sci. Rep.* **9**, 12610 (12 pages) (2019).

**R. MURAKAMI, Y. YUNOKI, K. ISHII, K. TERAUCHI, S. UCHIYAMA, H. YAGI and K. KATO**, “Cooperative Binding of KaiB to the KaiC Hexamer Ensures Accurate Circadian Clock Oscillation in Cyanobacteria,” *Int. J. Mol. Sci.* **20**, 4550 (10 pages) (2019).

**C. CHO, J. JANG, Y. KANG, H. WATANABE, T. UCHIHASHI, S. J. KIM, K. KATO, J. Y. LEE and J.-J. SONG**, “Structural Basis of Nucleosome Assembly by the Abo1 AAA+ATPase Histone Chaperone,” *Nat. Commun.* **10**, 5764 (13 pages) (2019).

B-3) 総説, 著書

**M. YAGI-UTSUMI**, “NMR Characterization of Conformational Dynamics and Molecular Assemblies of Proteins,” *Biol. Pharm. Bull.* **42**, 867–872 (2019).

加藤晃一, 矢木真穂, 山口拓実, 「糖鎖解析技術：核磁気共鳴 (NMR) 法」, 「糖鎖分析」, 日本分析化学会編, 丸善出版, pp. 209–214 (2019).

植草義徳, 加藤晃一, 矢木真穂, 「NMR による糖鎖-タンパク質相互作用の解析」, 「糖鎖分析」, 日本分析化学会編, 丸善出版, pp. 246–252 (2019).

矢木宏和, 鈴木達哉, 谷中冴子, 山口拓実, 加藤晃一, 「核磁気共鳴分光法と分子動力学計算を通じて観る糖鎖の動的構造とレクチンの糖鎖認識の理解」, *医学のあゆみ* **69**, 761–767 (2019).

**C. SATO, K. KATO, Y. YAMAGUCHI, D. KOHDA, R. KATO, K. G. N. SUZUKI, K. KIKUCHI, G. HIRAI, Y. KIZUKA, K. TANAKA, Y. NAKASHIMA and M. SETOU**, “Structural Biology of Glycans,” in *Glycoscience: Basic Science to Applications*, N. Taniguchi, T. Endo, J. Hirabayashi, S. Nishihara, K. Kadomatsu, K. Akiyoshi and K. F. Aoki-Kinoshita, Eds., Springer, Singapore, 35–63 (2019).

B-4) 招待講演 (\* 基調講演)

**K. KATO and T. SATO**, “Mechanistic insights on the dynamics of proteasome formation,” 2019 EWU-NCU joint symposium (第3回名古屋市立大学-梨花女子大学ジョイントシンポジウム), 名古屋, 2019年2月.

矢木真穂, 「神経変性疾患の解明を目指した構造生物学研究」, サントリー生命科学財団セミナー, 京都, 2019年3月.

加藤晃一, 「極限環境生命探査: ExCELLS の挑戦」, 宇宙科学談話会, 相模原, 2019年3月.

加藤晃一, 「生命分子システムの動秩序形成機構の探究」, 第3回名古屋リズム研究会, 名古屋, 2019年3月.

**K. KATO**, “Determinants for Glycoprotein Fates in Cells,” International Symposium on Bio-CHAINS from Single Molecules to Highly Organized Systems, 岐阜, 2019年6月.

**K. KATO**, “What is ExCELLS?” ExCELLS visit talks, Taipei (Taiwan), 2019年6月.

**M. YAGI-UTSUMI**, “Biophysical characterization of environment-dependent biomolecular assemblies,” ExCELLS visit talks, Taipei (Taiwan), 2019年6月.

加藤晃一, 白瀧千夏子, 「生命創成探究センター (ExCELLS) の共同利用研究」, 第19回日本蛋白質科学会年会・第71回日本細胞生物学会大会合同年次大会, 神戸, 2019年6月.

**K. KATO**, “Experimental and Computational Approaches for Elucidating Glycofunctional Mechanisms,” The 23<sup>rd</sup> International Annual Symposium on Computational Science and Engineering: Expanding Your Mind, Chiang Mai (Thailand), 2019年6月.\*

**K. KATO**, “NMR characterization of dynamic conformations and interactions of functional oligosaccharides and antibody glycoproteins,” 8<sup>th</sup> Asia-Pacific NMR Symposium, Singapore, 2019年7月.

**S. YANAKA, R. YOGO, R. INOUE, M. SUGIYAMA, S. G. ITOH, H. OKUMURA, Y. MIYANOIRI, H. YAGI, T. SATOH, T. YAMAGUCHI and K. KATO**, “Dynamic Views of the Fc Portion of Immunoglobulin G Provided by Experimental and Computational Observations,” Frontier Bioorganization Forum 2019, Seoul (Korea), 2019年7月.

**M. YAGI-UTSUMI, S. G. ITOH, H. OKUMURA, K. NISHIMURA and K. KATO**, “NMR characterization of conformational transition of amyloid- $\beta$  on ganglioside membrane,” Frontier Bioorganization Forum 2019, Seoul (Korea), 2019年7月.

**K. KATO, T. SUZUKI, T. WATANABE, T. SAITO, G. YAN, T. SATOH, S. YANAKA, H. YAGI and T. YAMAGUCHI**, “Biomolecular engineering of Lewis X-containing oligosaccharides,” Frontier Bioorganization Forum 2019, Seoul (Korea), 2019年7月.

加藤晃一, 「令和初めての夏に想う, 抗体のNMR から学んだこと」, 第20回若手NMR研究会, 蒲郡, 2019年8月.

谷中冴子, 「抗体の構造研究から学ぶ, 研究者ってどんな職業?」, 中高生のための未来教室——ホンネで語るライフサイエンスの道! , 東京, 2019年9月.

**K. KATO, R. YOGO, H. YAGI and S. YANAKA**, “Dynamic Views of Structures and Interactions of Antibodies,” The 10<sup>th</sup> Toyota RIKEN International Workshop on Science of Life Phenomena Woven by Water and Biomolecules, 長久手, 2019年9月.

**S. YANAKA**, “Experimental and computational observations of the dynamics of the Fc region of immunoglobulin G,” Satellite meeting for PF Workshop “Marriage of Computational and Experimental Techniques for Solution Small-Angle Scattering,” Kumatori, 2019年9月.

加藤晃一, 「物質と生命をつなぐ分子のオーケストレーション」, 第3回J-PARC 国際シンポジウム「宇宙・物質・生命の起源を求めて」市民公開講座, つくば, 2019年9月.

**M. YAGI-UTSUMI and K. KATO**, “Biophysical characterization of environment-dependent protein assemblies of physiological and pathological interest,” 第57回日本生物物理学会年会, 宮崎, 2019年9月.

**K. KATO**, “Lessons Learned from Antibody NMR,” Prof. Yoji Arata memorial session, The 58<sup>th</sup> Annual Meeting of the Nuclear Magnetic Resonance Society of Japan, Kawasaki, 2019年11月.

矢木真穂, 「アルツハイマー病の解明を目指したNMR 構造研究」, 東京大学社会連携講座: 革新分子構造解析講座公開シンポジウム——低分子からタンパク質まで, 統合分子構造解析——, 東京, 2019年11月.

矢木真穂, 「古細菌タンパク質の高次構造多型の解析」, 2019年度第1回中性子構造生物学研究会, 東京, 2019年11月.

**K. KATO, T. SUZUKI, T. WATANABE, T. SAITO, G. YAN, T. SATOH, S. YANAKA, H. YAGI and T. YAMAGUCHI**, “Glycoengineering based on biomolecular science,” 2<sup>nd</sup> International Conference on Materials Research and Innovation (ICMARI), Bangkok (Thailand), 2019年12月.

**K. KATO**, “Biophysical insights into dynamical protein assembly systems,” IMS-PCOSS Bilateral Symposium, Xiamen (China), 2019年12月.

B-6) 受賞, 表彰

加藤晃一, 日本薬学会奨励賞 (2000).

神谷由紀子, 特定領域研究「タンパク質の社会」全体班会議ポスター優秀賞 (2008).

西尾美穂, 第 73 回日本生化学会中部支部例会奨励賞 (2009).

神谷由紀子, 糖鎖科学名古屋拠点若手研究者奨励賞 (2009).

矢木真穂, 第 74 回日本生化学会中部支部例会奨励賞 (2010).

西尾美穂, 糖鎖科学名古屋拠点第 8 回「若手の力フォーラム」奨励賞 (2010).

加藤晃一, 日本薬学会学術振興賞 (2011).

矢木真穂, 第 11 回蛋白質科学会年会若手奨励賞 (2011).

山本さよこ, The International Symposium on Nuclear Magnetic Resonance 2011 (ISNMR 2011) 若手ポスター賞 (2011).

加藤晃一, 第 48 回ヘルツ賞 1 等賞 (2011).

山口拓実, 日本化学会第 92 春季年会優秀講演賞 (学術) (2012).

**Y. ZHANG**, 平成 24 年度総合研究大学院大学学長賞 (2012).

雲井健太郎, 第 12 回日本蛋白質科学会年会ポスター賞 (2012).

山口拓実, 第 15 回日本糖質学会ポスター賞 (2013).

**Y. HANG**, 糖鎖科学中部拠点奨励賞 (2013).

山口拓実, 第 7 回バイオ関連化学シンポジウム講演賞 (2013).

山口拓実, 第 3 回自然科学研究機構若手研究者賞 (2014).

**T. ZHU**, 第 87 回日本生化学会大会若手優秀発表者賞 (鈴木紘一メモリアル賞) (2014).

矢木真穂, The 3<sup>rd</sup> International Symposium of “Dynamical ordering of biomolecular systems for creation of integrated functions” Poster Presentation Award (2015).

**A. SIKDAR**, The Winter School of Sokendai/ Asian CORE Program, Poster Presentation Award (2015).

**T. ZHU**, 第 12 回「若手の力」フォーラム平成 27 年度糖鎖科学中部拠点奨励賞 (2015).

**T. ZHU**, The 4<sup>th</sup> International Symposium of “Dynamical ordering of biomolecular systems for creation of integrated functions” Poster Presentation Award (2015).

谷中冴子, 第 32 回井上研究奨励賞 (2016).

谷中冴子, 第 80 回日本生化学会中部支部例会奨励賞 (2016).

與語理那, OIIB retreat 2016 Best Poster Award (2016).

柚木康弘, 第 4 回将来を見据えた生体分子の構造・機能解析から分子設計に関する研究会優秀発表賞 (2016).

谷中冴子, The 5<sup>th</sup> International Symposium of “Dynamical ordering of biomolecular systems for creation of integrated functions” Poster Presentation Award (2017).

柚木康弘, 第 81 回日本生化学会中部支部会奨励賞 (2017).

與語理那, 第 81 回日本生化学会中部支部会奨励賞 (2017).

與語理那, The 6<sup>th</sup> International Symposium of “Dynamical ordering of biomolecular systems for creation of integrated functions” Poster Presentation Award (2018).

矢木真穂, 平成 30 年度日本薬学会奨励賞 (2018).  
齋藤泰輝, ExCELLS Young Scientists Forum 2018, Poster Presentation Award (2018).  
本田怜奈, 平成 30 年度糖鎖科学中部拠点奨励賞 (2018).  
小藤加奈, 日本病院薬剤師会東海ブロック・日本薬学会東海支部合同学術大会 2018 ベストプレゼン賞 (2018).  
齋藤泰輝, 第 6 回将来を見据えた生体分子の構造・機能解析から分子設計に関する研究会優秀発表賞 (2018).  
本田怜奈, 日本化学会東海支部長賞 (2018).  
與語理那, 日本薬学会第 139 年会学生優秀発表賞 (2018).  
齋藤泰輝, 第 1 回日本糖質学会優秀講演賞 (2019).  
本田怜奈, 第 21 回日本糖質学会ポスター賞 (2019).  
柚木康弘, 第 26 回学術大会日本時間生物学会優秀ポスター賞 (2019).  
梅澤芙美子, 第 3 回 Glycolleague 優秀発表賞 (2019).

#### 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 (2012–2016).  
日本生化学会評議員 (2002–), 代議員 (2005–).  
日本糖質学会評議員 (2003–), 理事 (2013–).  
日本核磁気共鳴学会評議員 (2006–2012, 2016–), 理事 (2008–2012, 2014–), 副会長 (2016–2017), 会長 (2018–).  
NPO バイオものづくり中部理事 (2008–2017).  
日本蛋白質科学会理事 (2010–2014, 2015–), 副会長 (2016–2018).  
日本糖鎖科学コンソーシアム幹事 (2012–), 常任幹事 (2016–).  
日本生物物理学会委員 (2013), 代議員 (2014–2015).  
日本生化学会中部支部幹事 (2014–2016), 副支部長 (2015–2016).

##### 学会の組織委員等

The 71<sup>st</sup> Okazaki Conference “New perspectives on molecular science of glycoconjugates” 組織委員 (2011).  
第 51 回 NMR 討論会運営委員 (2012).  
第 27 回生体系磁気共鳴国際会議 (ICMRBS) 実行委員 (2013–2016).  
第 13 回糖鎖科学コンソーシアムシンポジウム世話人代表 (2015).  
第 25 回バイオイメージング学会組織委員・大会長 (2016).  
第 81 回日本生化学会中部支部例会・シンポジウム世話人代表 (2017).  
国際磁気共鳴学会 2021 (ISMAR2021) 実行委員 (2018–).  
ISMAR-APNMR-NMRSJ-SEST2021 合同会議実行委員会委員, 募金委員会委員長 (2019–).

##### 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 (2009–).  
日本学術振興会先端科学シンポジウム事業委員会プランニング・グループ・メンバー (2009–2011).  
生物系特定産業技術研究支援センターイノベーション創出基礎的研究推進事業書類審査専門委員 (2009).  
大阪大学蛋白質研究所専門委員会委員 (2014–), 同委員長 (2015).

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- ).  
独立行政法人科学技術振興機構戦略研究推進部外部評価委員 (2012-2014).

経済産業省第3者委員会委員 (2013).

文部科学省研究振興局委員会評価者 (2013-2017).

独立行政法人大学評価・学位授与機構教育研究評価委員会専門委員 (2015-2016).

公益財団法人水谷糖質科学振興財団選考委員 (2016- ).

理化学研究所NMR 施設NMR 利用研究ワーキンググループ委員 (2016).

公益財団法人薬学研究奨励財団選考委員 (2016-2018), 選考委員会幹事 (2017).

公益財団法人農林水産・食品産業技術振興協会一次書面審査専門評価委員 (2016-2017).

日本学術会議連携会員 (2017- ).

先端科学 (FoS) シンポジウム事業委員会委員 (2018- ).

#### 学会誌編集委員

*Open Glycoscience*, Editorial board member (2008- ).

*Glycoconjugate Journal*, Editorial board member (2009- ).

*World Journal of Biological Chemistry*, Editorial board member (2010- ).

*Journal of Glycomics & Lipidomics*, Editorial board member (2010-2015).

*Glycobiology*, Editorial board member (2011- ).

*The Journal of Biochemistry*, Associate Editor (2014-2017).

*Scientific Reports*, Editorial board member (2015- ).

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

#### 競争的資金等の領域長等

新学術領域研究「生命分子システムにおける動的秩序形成と高次機能発現」領域代表者 (2013-2017).

#### その他

(株) グライエンス科学技術顧問 (2004-2014), 取締役 (2005-2013).

(株) 医学生物学研究所科学技術顧問 (2014-2016).

総合研究大学院大学統合生命科学特別委員会委員長 (2013-2015).

出前授業「身近な化学反応で学ぶ! タンパク質のかたちとはたらき」矢作北中学校 (2016). (矢木真穂)

広報誌OKAZAKI 第53号「出前授業:身近な化学反応から学ぼう! タンパク質のかたちとはたらき」, 矢木真穂, 2017年3月.

一般財団法人バイオインダストリー協会「未来へのバイオ技術」講演 (2018).

#### B-8) 大学での講義, 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, 「構造生物学」「薬学物理化学II」「生命薬科学研究入門」「薬学概論」「一般教養科目 創薬と生命」「免疫学」「バイオインフォマティクス」「創薬科学・知的財産活用論」, 2015年-.

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

国立長寿医療研究センター認知症先進医療開発センター, 客員研究員, 2011年4月-.

## B-10) 競争的資金

科研費新学術領域研究「揺らぎが機能を決める生命分子の科学」(計画研究),「NMR を利用したタンパク質および複合糖質の揺らぎの検出とその機能連関の探査」,加藤晃一 (2008年–2013年).

科研費基盤研究(B),「ポスト小胞体品質管理における細胞内レクチンの分子認識と超分子形成の構造基盤の解明」,加藤晃一 (2009年–2011年).

科研費研究活動スタート支援,「アミロイド線維末端の特異構造の解明に基づく線維伸長メカニズムの理解」,矢木真穂 (2011年–2013年).

科研費挑戦的萌芽研究,「分子シャペロン機能を有するシャトル型プロテアソーム活性化因子の同定と構造機能解析」,加藤晃一 (2012年–2014年).

科研費基盤研究(A),「糖鎖認識系を標的とする創薬を目指した複合糖質機能の構造基盤の解明と分子設計」,加藤晃一 (2012年–2016年).

科研費新学術領域研究「生命分子システムにおける動的秩序形成と高次機能発現」(総括班),「生命分子システムにおける動的秩序形成と高次機能発現の研究に関する総括」,加藤晃一 (2013年–2018年).

科研費新学術領域研究「生命分子システムにおける動的秩序形成と高次機能発現」(計画研究),「生命分子の動的秩序形成におけるマイクロ-マクロ相関の探査と設計原理の探求」,加藤晃一 (2013年–2018年).

科研費挑戦的萌芽研究,「機能性ネオ糖脂質クラスターを利用した神経幹細胞の幹細胞性制御」,加藤晃一 (2014年–2016年).

科研費若手研究(B),「ガングリオシド糖脂質クラスター上におけるアミロイドβの構造転換の精密解析」,矢木真穂 (2015年–2017年).

科研費基盤研究(A),「多元的構造生物学アプローチによるプロテアソーム形成機構の解明と創薬への展開」,加藤晃一 (2015年–2019年).

科研費新学術領域研究,「生命分子システムにおける動的秩序形成と高次機能発現の研究推進のための国際活動支援」,加藤晃一 (2015年–2019年).

宇宙航空研究開発機構「さほう」利用フィジビリティスタディ,「神経変性疾患の発症機構解明に向けた微小重力環境下でのアミロイド線維形成と性状評価」,加藤晃一 (2016年).

科研費若手研究(B),「アミロイド線維の伸長末端の3次元構造情報に基づく重合機構の理解および創薬展開」,矢木真穂 (2017年–2019年).

科研費新学術領域研究「動的構造生命科学を拓く新発想測定技術——タンパク質が動作する姿を活写する——」(公募研究),「抗体の分子認識を契機とする補体系の活性化を活写する」,谷中冴子 (2017年–2019年).

科研費若手研究,「抗体とFc受容体の新規相互作用様式の解明と抗体工学への展開」,谷中冴子 (2018年–2020年).

科研費基盤研究(A),「先端計測アプローチの統合による抗体の構造動態と機能発現の連関機構の解明」,加藤晃一 (2019年–2023年).

科研費基盤研究(C),「タンパク質分子を取り巻く環境を考慮した構造解析によるアミロイド形成機構の解明」,矢木真穂 (2019年–2022年).

#### B-11) 産学連携

産業技術総合研究所,「酵母発現系での糖タンパク質の生産法」,加藤晃一 (2019年).

大陽日酸(株),「タンパク質の安定同位体標識技術の開発」,加藤晃一 (2019年).

東ソー(株),「単一糖鎖結合抗体のFcR への結合性解析」,加藤晃一 (2019年).

#### C) 研究活動の課題と展望

複雑な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探査するアプローチ法を開拓するとともに、多角的な機能解析を併せて実施し、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形成する仕組みを真に理解するためには、生体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不可欠である。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遂行するとともに、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す。こうした目的に向けて、緩歩動物の乾眠現象の分子機構、深海における生命体共生の分子基盤、動物細胞における分泌タンパク質の細胞内輸送と糖鎖修飾の連関の仕組みを探究する。

## 飯野亮太（教授）（2014年6月1日着任）

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：

- a) 回転分子モーター  $V_1$  の化学力学エネルギー変換機構を解明
- b) 光学顕微鏡によるマルチカラー高速高精度1分子観察を実現

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 高速高精度な1分子解析を用い，高分解能の構造情報が得られている腸球菌由来の  $V_1$  モーターを対象とし，回転運動の詳細な1分子解析を行うことに成功した。具体的には， $V_1$  モーターの回転軸に直径 40 nm の金ナノ粒子を回転運動の可視化プローブとして取り付け，独自に開発した対物レンズ型全反射照明暗視野レーザー顕微鏡を用いて 100 マイクロ秒の時間分解能で回転運動を1分子解析することに成功した。1分子解析の結果，1個の ATP の加水分解に相当する  $120^\circ$  の回転がさらに， $40^\circ$  と  $80^\circ$  のより小さな角度の回転（サブステップ）に分離できることを初めて発見した。また，ATP 加水分解が遅い変異体を用い，さらに反応生成物の ADP を加えた実験では，本来の回転方向（ $V_0$  部分からみて反時計回り）とは逆向きに  $-80^\circ$  もしくは  $-40^\circ$  回転する様子が観察された。回転運動中の停止時間の分布を解析することで， $40^\circ$  サブステップ前の停止では3つ， $80^\circ$  サブステップ前の停止では1つ，合計で4つの時定数が得られ，これらの時定数が ATP 加水分解反応の4つの素過程（ATP の結合，ATP のリン酸結合の開裂，反応生成物 ADP の解離，反応生成物リン酸の解離）に対応することを明らかにした。さらに，1分子解析で得られた結果を X 線結晶構造解析による構造情報と組み合わせることで， $V_1$  の化学力学共役機構のモデルを提案した。本研究で明らかにした  $V_1$  の化学力学共役機構では，反応生成物のリン酸が先に  $V_1$  から解離し，もう一つの反応生成物の ADP は後から解離する。類縁の  $F_1$  モーターとの比較で興味深いのは， $F_1$  ではこの順番が逆（ADP が先，リン酸が後）な点である。細胞内には ATP と ADP の両方が存在し，しかも ATP の濃度は ADP の 10 倍程度高いことが知られている。 $F_1$  が細胞内で ATP 加水分解の逆反応である ATP 合成を行うためには，このような細胞内環境下で ATP ではなく ADP を選択的に結合する必要がある。 $F_1$  は逆反応の ATP 合成時，リン酸を先に結合することで ATP の結合を防いでいると考えられる。他方，細胞内での  $V_1$  の役割は ATP 加水分解によるイオンの能動輸送（電気化学ポテンシャルの形成）であり，この場合はリン酸と ADP のどちらが先に解離しても問題ない。このように， $F_1$  と  $V_1$  の化学力学共役機構の違いは，それぞれの生理的な役割と密に関係していることが示唆された。
- b) 光学顕微鏡によるマルチカラー高速1分子イメージングを実現した。銀ナノ粒子は紫色光に，金銀合金ナノ粒子（金と銀を 1 : 1 で混合）は青色光に共鳴し，それらの光を強く散乱する。光の波長によって散乱の効率が異なる特性を利用することで，金，銀，金銀合金ナノ粒子を見分けられると考えた。3種のナノ粒子の散乱光を選択的に捉えるため，マルチカラー全反射暗視野顕微鏡を開発した。照明光学系は共鳴波長に合致した複数のレーザー（404 nm, 473 nm, 561 nm）で構成され，3種のナノ粒子を同時に照明することができる。また，検出光学系にスリットを開いた分光器を用いることで，高速 CMOS カメラの受光面の異なる部分に，各波長の散乱像を同時に結像できる。プローブには，直径 30 nm の銀ナノ粒子，30 nm の金銀合金ナノ粒子，40 nm の金ナノ粒子を用いた。本装置では，銀ナノ粒子は 404 nm，金銀合金ナノ粒子は 473 nm，金ナノ粒子は 561 nm のチャンネルでそれぞれ，高いコントラストの散乱像が得られた。また得られた散乱像のシグナル／ノイズ比は高く，100 マイクロ秒の時間分解能で 2 nm，1 ミリ

秒の時間分解能で 0.6 nm の位置決定精度を達成できた。次に、開発した装置で生体分子の観察を行った。まず、ガラス基板上に形成した人工生体膜中を拡散運動するリン脂質の様子を観察した。金、銀、金銀合金ナノ粒子で標識されたリン脂質の挙動を、100 マイクロ秒の時間分解能で同時に追跡することに成功した。また、膜上の金ナノ粒子と金銀合金ナノ粒子が近接して粒子対を形成する様子を観察することができた。金属ナノ粒子は、お互いが非常に近接すると相互作用して、共鳴波長が長波長（赤色）側へシフトすることが知られている。開発装置に赤色（649 nm）のレーザー光をさらに追加して計測したところ、粒子対の近接に伴って赤色の散乱光が増大する様子も捉えられた。粒子対が近接する時間は数ミリ秒程度であり、開発装置はこのような一過的な現象を詳細に捉えることを可能にした。さらに、生体内で物質輸送を担うモータータンパク質キネシンの観察も行った。キネシンの片足に金、銀、金銀合金ナノ粒子を結合させ、100 マイクロ秒の時間分解能で動きを観察した。先行研究と一致する 16 nm の歩幅で、レールである微小管の上を直進する様子を捉えることができた。

#### B-1) 学術論文

**J. ANDO, A. NAKAMURA, M. YAMAMOTO, C. SONG, K. MURATA and R. IINO**, “Multicolor High-Speed Tracking of Single Biomolecules with Silver, Gold, Silver-Gold Alloy Nanoparticles,” *ACS Photonics* **6**, 2870–2883 (2019). DOI: 10.1021/acsp Photonics.9b00953

**T. IIDA, Y. MINAGAWA, H. UENO, F. KAWAI, T. MURATA and R. IINO**, “Single-Molecule Analysis Reveals Rotational Substeps and Chemo-Mechanical Coupling Scheme of *Enterococcus hirae* V<sub>1</sub>-ATPase,” *J. Biol. Chem.* **294**, 17017–17030 (2019). DOI: 10.1074/jbc.ra119.008947

**Y. ZHANG, Y. MINAGAWA, H. KIZOE, K. MIYAZAKI, R. IINO, H. UENO, K.V. TABATA, Y. SHIMANE and H. NOJI**, “Accurate High-Throughput Screening Based on Digital Protein Synthesis in a Massively Parallel Femtoliter Droplet Array,” *Sci. Adv.* **5**, eaav8185 (11 pages) (2019). DOI: 10.1126/sciadv.aav8185

#### B-3) 総説、著書

中村彰彦, 岡崎圭一, 古田忠臣, 櫻井 実, 飯野亮太, 「キチン加水分解酵素は熱ゆらぎを利用して1方向に動きながら結晶性バイオマスを分解する」, *生物物理* **59**, 330–333 (2019).

#### B-4) 招待講演 (\* 基調講演)

**R. IINO**, “Single-molecule dynamics of motor proteins visualized by plasmonic nanoprobe,” 2<sup>nd</sup> NIBB-Princeton Joint Symposium, Okazaki (Japan), October 2019.

**R. IINO**, “Watching dynamic motions of protein motors with plasmonic nanoprobe,” Seminar at School of Chemistry, University of Southampton, Southampton (U.K.), October 2019.

**R. IINO**, “Watching dynamic motions of protein motors with plasmonic nanoprobe,” Seminar at School of Chemistry,, University of Manchester, Manchester (U.K.), October 2019.

**R. IINO**, “Watching dynamic motions of protein motors with plasmonic nanoprobe,” PhysChem seminar, School of Chemistry, University of Edinburgh, Edinburgh (U.K.), October 2019.

**R. IINO**, “Watching dynamic motions of protein motors with plasmonic nanoprobe,” Seminar at School of Chemistry, University of Bristol, Bristol (U.K.), October 2019.

**R. IINO**, “Watching dynamic motions of hydrolysis-powered protein motors with plasmonic nanoprobe,” The 10<sup>th</sup> Toyota RIKEN international workshop, Nagakute (Japan), September 2019.

**R. IINO**, “Visualizing dynamic motions of protein molecular motors with plasmonic nanoprobe,” 2019 Japan-Korea Molecular Science Symposium, Nagoya (Japan), July 2019.

**R. IINO**, “Watching motor protein dynamics with plasmonic nanoprobe,” 2<sup>nd</sup> East Asian Symposium on Single-Molecule Biological Sciences, Seoul (Korea), July 2019.

**R. IINO**, “Single-molecule dynamics of protein molecular motors visualized by plasmonic nanoprobe,” The workshop in NCCR, University of Basel, Basel (Switzerland), February 2019.

**R. IINO**, “Dynamics of Protein Molecular Motors Visualized with Plasmonic Nanoprobe,” LaSIE Seminar, Osaka University, Osaka (Japan), January 2019.

飯野亮太, 「プラズモニクナノプローブでタンパク質分子モーターの動きを観る」, OCU 先端光科学シンポジウム, 大阪市立大学, 大阪, 2019年10月.\*

飯野亮太, 「プラズモニクナノ粒子を用いた分子モーターの高速高精度1分子イメージング」, 第9回分子モーター討論会, 国立遺伝学研究所, 三島, 2019年6月.

飯野亮太, 「バイオマス多糖を効率的に分解する生体分子モーターの作動原理」, 高分子学会バイオミメティクス研究会, 産総研臨海副都心センター, 東京, 2019年6月.

飯野亮太, 「1分子計測, 構造解析, シミュレーションで探るタンパク質分子モーターの作動機構」, 第24回べん毛研究交流会, ホテル明山荘, 蒲郡, 2019年3月.

中村彰彦, 「ATPに頼らず動く新規リニアモーター酵素」, 生体エネルギー研究会第45回討論会, 九州工業大学, 福岡, 2019年12月.

#### B-6) 受賞, 表彰

中村彰彦, 日本生物物理学会若手奨励賞 (2019).

飯田龍也, 日本生物物理学会学生発表賞 (2019).

中村彰彦, ATI (公益財団法人新世代研究所) 研究奨励賞 (2019).

中村彰彦, 第32回セルラーゼ研究会ポスター賞 (2018).

飯田龍也, 日本生物物理学会中部支部講演会最優秀発表賞 (2018).

石渡大貴, 日本化学会東海支部長賞 (2017).

安藤 潤, 日本分光学会平成29年度年次講演会若手講演賞 (2017).

**R. IINO**, Emerging Investigator. Lab on a Chip., The Royal Society of Chemistry, U.K. (2012).

#### 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 (2019.6–2021.5).

日本生物物理学会中部支部長 (2019.5–2021.4).

日本化学会東海支部常任幹事 (2019.3–2020.2).

日本生物物理学会分野別専門委員 (E-04. タンパク質工学) (2018).

日本分光学会中部支部幹事 (2017.10-) . (安藤 潤)  
日本生物物理学学会分野別専門委員 (E-04. タンパク質工学) (2016).  
日本生物物理学学会分野別専門委員 (A-13. モータータンパク質) (2014).  
日本生物物理学学会代議員 (2014–2016).  
日本生物物理学学会中部支部会計 (2019.6–2020). (中村彰彦)

#### 学会の組織委員等

第 25 回日本バイオイメーキング学会学術集会副大会長 (2016).

#### 学会誌編集委員

日本生物物理学学会学会誌「生物物理」編集委員 (2014–2015).  
*Frontiers in Bioengineering and Biotechnology*, Associate Editor (2015.4.29-).

#### その他

公益財団法人新世代研究所バイオ単分子研究会委員 (2012.4.2–2020.3).  
日本生物物理学学会小中高校への講師派遣サポート事業講師 (2016.11-).  
出前授業「温度と分子の状態」岩津中学校 (2017). (中村彰彦)  
公益財団法人新世代研究所水和ナノ構造研究会委員 (2019.4.2–2020.3).

#### B-10) 競争的資金

住友財団環境研究助成, 飯野亮太 (2019年).  
自然科学研究機構 ExCELLS 特別共同研究, 飯野亮太 (2019年).  
科研費新学術領域研究「発動分子科学」(計画研究),「生体・人工発動分子によるエネルギー変換過程の1分子計測法の開発」, 飯野亮太 (2018年–2022年).  
科研費基盤研究(B),「生体1分子オンゲストローム計測法の開発」, 飯野亮太 (2018年–2020年).  
科研費新学術領域研究「レゾナンスバイオ」(公募研究),「プラズモニクナノ粒子を用いたマルチカラー1分子観察法の開発」, 飯野亮太 (2018年).  
科研費基盤研究(B),「金属ナノ粒子によるタンパク質ドメインの高速高精度イメージング技術の開発」, 安藤潤 (2018年–2020年).  
自然科学研究機構若手研究者による分野間連携研究プロジェクト,「独立に進化した動物・植物・微生物の糖質消化システムを分子機能構造から読み解く」, 中村彰彦 (2018年).  
科研費挑戦的研究(萌芽),「結晶性多糖表面を動きながら連続的に分解する酸化還元型酵素を創る」, 飯野亮太 (2017年–2018年).  
自然科学研究機構新分野創成センターイメージングサイエンス研究分野プロジェクト,「プラズモニクナノ粒子による生体分子のマルチカラー1分子イメージング法の開発」, 安藤 潤 (2017年).  
自然科学研究機構新分野創成センターイメージングサイエンス研究分野プロジェクト,「金ナノプローブ表面の電場増強を利用した生体分子モーターの動きと化学反応の複合1分子計測法の開発」, 飯野亮太 (2016年).  
科研費新学術領域研究「動的秩序と機能」(公募研究),「糖質加水分解サイボグリア分子モーターの創生」, 飯野亮太 (2016年–2017年).  
科研費新学術領域研究「柔らかな分子系」(公募研究),「金属ナノプローブを用いた分子モーターの運動と構造変化の高速1分子計測」, 飯野亮太 (2016年–2017年).

科研費若手研究(B),「高速高精度一分子観察による結晶性糖質分解機構の解明」,中村彰彦(2016年–2017年).  
 科研費新学術領域研究「動的構造生命」(公募研究),「高時空間分解能一分子観察と理論解析を組み合わせた分子モーター運動解析法の開発」,中村彰彦(2016年–2017年).  
 自然科学研究機構新分野創成センターイメージングサイエンス研究分野プロジェクト,「金ナノロッドの高速高精度光学イメージングによる生体分子モーターの複合1分子計測」,飯野亮太(2015年).  
 科研費基盤研究(B),「ナトリウムイオン輸送性V-ATPaseのエネルギー変換機構の解明」,飯野亮太(2015年–2017年).  
 科研費研究活動スタート支援,「セルロース分解酵素のモーター運動に寄与する構造要素の解明」,中村彰彦(2015年–2016年).  
 科研費新学術領域研究「動的秩序と機能」(公募研究),「ATP駆動サイボーグ回転分子モーターの創生」,飯野亮太(2014年–2015年).  
 科研費新学術領域研究「柔らかな分子系」(公募研究),「金ナノロッドを用いた分子モーター構造ダイナミクスの高速1分子計測」,飯野亮太(2014年–2015年).  
 科研費特別研究員奨励費,「ダブルドメインセルラーゼの吸着バランス制御による結晶性多糖構造分解反応の促進」,中村彰彦(2013年–2014年).  
 科研費基盤研究(B),「リニアモータータンパク質糖質加水分解酵素の1ナノメートルステップの1分子計測」,飯野亮太(2012年–2014年).  
 科研費挑戦的萌芽研究,「生体・人工ハイブリッドナノモーターの創製」,飯野亮太(2012年–2013年).  
 科研費新学術領域研究「揺らぎと生体機能」(公募研究),「分子モーターの構造揺らぎを調べる超高速配向イメージング法の開発」,飯野亮太(2011年–2012年).  
 科研費特定領域研究「高次系分子科学」(公募研究),「生細胞内1分子FRET法による回転モータータンパク質のダイナミクス計測」,飯野亮太(2010年–2011年).  
 科研費新学術領域研究「揺らぎと生体機能」(公募研究),「モータータンパク質の揺らぎと性能の相関を調べる超高速光学顕微鏡の開発」,飯野亮太(2009年–2010年).  
 科研費若手研究(B),「プロトン駆動力で回転するATP合成酵素を1分子技術とマイクロデバイスで可視化する」,飯野亮太(2009年–2010年).  
 科研費若手研究(B),「プロトン駆動力で回転する生体分子モーターATP合成酵素の1分子計測」,飯野亮太(2006年–2008年).  
 日本学術振興会二国間交流事業共同研究,「生細胞内で働くATP合成酵素の回転速度を1分子技術で計測する」,飯野亮太(2010年–2011年).

### C) 研究活動の課題と展望

回転分子モーターについては、今後は $V_1$ 部分だけでなく、V-ATPase ( $V_0$ と $V_1$ の複合体全体)を対象とし、エネルギー変換機構、エネルギー変換効率および可逆性について理解したいと考えている。V-ATPaseは、ナノサイズのエネルギー変換装置であり、ナノサイズの発電装置とも言える。本研究を、V-ATPaseのエネルギー変換の仕組みの研究へとさらに発展させることで将来、生体に適合した発電装置の開発等に繋がる可能性が期待される。また、金属ナノ粒子を用いたマルチカラーイメージングでは、複数種の生体分子により発現される生命現象を、マイクロ秒の時間分解能とナノメートルの位置決定精度で詳細に捉えることを可能にする。また、モータータンパク質をはじめとする生体分子機械は、複数の部品が複合体を形成して機能する。今後は、モータータンパク質内部の複数の部品がいかに関係して直進運動や回転運動を実現するのか、その仕組みを解明する。

## 栗原 顕 輔 (特任准教授) (2014年5月1日着任)

A-1) 専門領域：界面化学, 超分子化学

A-2) 研究課題：

- a) 生命起源解明を志向した液-液相分離を示す液滴型原始細胞の構築

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 現在の生命の始祖である原始細胞は、自己触媒的に自己再生産する分子システムと捉えることができる。本研究課題では単純な分子を出発物質とする原始細胞モデルの創成を目指し、水中で再帰的にかつ自己触媒的に自己再生産を行う液滴の構築を試みた。我々は水中で自発的なペプチド生成反応を行うようなチオエステル化シスチンを設計・合成し、ペプチド生成を伴いながら水中で液滴を形成することを微分干渉顕微鏡にて確認した。さらに同じチオエステル化シスチンを液滴に再添加すると、液滴が繰り返し肥大・融合・分裂ダイナミクスを起こすことを見いだした。この液滴は液-液相分離を示しており、脂質や水溶性高分子である RNA や DNA などの核酸を外部より添加すると、脂質を液滴の内側領域に、核酸を液滴の外側領域に取込み濃縮した。

B-1) 学術論文

**Y. NATSUME, E. NOGUCHI and K. KURIHARA**, "Spontaneous Localization of Particles in Giant Vesicles Owing to Depletion Force," *J. Phys. Soc. Jpn.* **88**, 033001 (5 pages) (2019).

**M. MATSUO, Y. KAN, K. KURIHARA, T. JIMBO, M. IMAI, T. TOYOTA, Y. HIRATA, K. SUZUKI and T. SUGAWARA**, "DNA Length-Dependent Division of a Giant Vesicle-Based Model Protocell," *Sci. Rep.* **9**, 6916 (11 pages) (2019).

**M. MATSUO, S. OHYAMA, K. SAKURAI, T. TOYOTA, K. SUZUKI and T. SUGAWARA**, "A Sustainable Self-Reproducing Liposome Consisting of a Synthetic Phospholipid," *Chem. Phys. Lipids* **222**, 1-7 (2019).

**H. ITOGA, R. MORIKAWA, T. UETA, T. MIYAKA, Y. NATSUME and M. TAKASU**, "Effect of Particles with Repulsive Interactions Enclosed in both Rigid Spherical Shells and Flexible Fluid Vesicles Studied by Monte Carlo Simulation," *Phys. Rev. E* **99**, 042418 (12 pages) (2019).

**I. ISHII, Y. OMINATO, A. KARASAWA, T. TAKAHASHI, M. MATSUO, K. SUZUKI and T. SUGAWARA**, "Morphological Changes of Kinetically Trapped Tubular Vesicles Driven by the Production of Synthetic Phospholipids in a Vesicular Membrane," *Chem. Lett.* **48**, 932-935 (2019).

B-3) 総説, 著書

夏目ゆうの, 村岡 梓, 「数物科学科における初学年の物理実験——数学, 情報, 物理の3コース制での取り組み」, *大学の物理教育* **25**, 91-95 (2019).

松尾宗征, 「人工細胞はシンギュラリティを越えられるか!? ——現代の錬金術で生命の創発に挑む」, *academist Journal*, <https://academist-cf.com/journal/?p=11629> (2019).

#### B-4) 招待講演

**Y. NATSUME**, “A study of crowding effect in a cell model using a statistical mechanics approach,” The 57<sup>th</sup> Annual Meeting of The Biophysical Society of Japan, Miyazaki (Japan), September 2019.

栗原顕輔, 「物理学および化学的原始細胞モデルの構築」, H30年度アストロバイオロジーセンター若手分野間連携ワークショップ, 三鷹, 2019年2月.

栗原顕輔, 「ペプチド合成系を内包する自己再生産分子集合体の構築」, 第19回優秀論文賞受賞講演会, 品川, 2019年9月.

**K. KURIHARA**, “Constructive biology approach to supramolecular artificial cell,” The 3<sup>rd</sup> UK-Japan Frontiers of Science Symposium (UK-Japan FoS 2019), Urayasu, Chiba (Japan), November 2019.

#### B-6) 受賞, 表彰

栗原顕輔, クリタ水・環境科学研究優秀賞 (2018).

松尾宗征, 愛知県わかしやち奨励賞 (2019).

#### B-7) 学会および社会的活動

その他

あいち科学技術教育推進協議会発表会「科学三昧 in あいち 2014」英語発表指導 (2014).

愛知教育大学付属岡崎中学校取材 (2015).

第6回CSJ 化学フェスタ 2016 ポスター審査 (2016).

朝日新聞「先端人」取材 (2016).

国際芸術祭「虹のキャラヴァンサライ・あいちトリエンナーレ 2016」(2016).

職場体験学習受入岡崎市立竜海中学校 (2018).

出前授業「中学生のためのサイエンスセミナー 化学で生命を創る!？」岡崎市立福岡中学校 (2018).

自然科学研究機構広報誌OKAZAKI 第57号取材 (2018).

職場体験学習受入岡崎市立翔南中学校 (2019年). (栗原顕輔, 夏目ゆうの, 松尾宗征)

#### B-8) 大学での講義, 客員

総合研究大学院大学, 「統合生命科学教育プログラム」, 2019年11月.

#### B-10) 競争的資金

科研費若手研究(A), 「表現型と遺伝子型が連携する人工細胞モデルの創成」, 栗原顕輔 (2017年–2021年).

科研費若手研究(B), 「交差触媒系を内包するベシクル型人工細胞の構築」, 栗原顕輔 (2015年–2017年).

クリタ水環境科学振興財団水を究める研究助成, 「分子システムから迫る細胞内の水の意義」, 栗原顕輔 (2018年–2019年).

油脂工業会館研究助成, 「ペプチド合成系を内包する自己再生産ベシクルの構築」, 栗原顕輔 (2018年–2019年).

自然科学研究機構アストロバイオロジーセンタープロジェクト研究, 「原始的なタンパク質を内包する原始細胞モデルの創成とその挙動解析」, 栗原顕輔 (2017年–2018年).

中部科学技術センター学術奨励研究助成, 「ドラッグデリバリーシステムを指向したオリゴペプチド内包リポソームの開発」, 栗原顕輔 (2016年–2017年).

クリタ水環境科学振興財団萌芽研究助成,「原始海洋に誕生した細胞モデルの研究」,栗原顕輔 (2016年–2017年).

花王芸術・科学財団化学・物理学分野助成,「化学的リボソームシステムを内包するジャイアントベシクルの創成」,栗原顕輔 (2016年–2017年).

自然科学研究機構アストロバイオロジーセンタープロジェクト研究,「リビッドワールド仮説に基づく原始細胞モデルの基礎研究」,栗原顕輔 (2016年–2017年)

クリタ水環境科学振興財団萌芽研究助成,「生命誕生における水の汚れの重要性」,栗原顕輔 (2015年–2016年).

自然科学研究機構新分野創成センター宇宙における生命研究分野プロジェクト,「生命材料物質の組み立て場としてみた原始細胞膜の基礎的研究」,栗原顕輔 (2015年–2016年).

日本科学協会笹川科学研究助成,「自己増殖するベシクル型人工細胞を用いた生命起源解明への挑戦」,栗原顕輔 (2015年–2016年).

豊秋奨学会海外渡航費助成,「内部で触媒システムを生成する人工細胞の構築」,栗原顕輔 (2015年).

野口研究所野口遵研究助成,「ドラッグデリバリーシステムを志向した自律構築型リボソームの開発」,栗原顕輔 (2014年–2016年).

積水化学自然に学ぶものづくり研究助成,「生物の細胞内液-液相分離に学ぶ自己組織化するソフトマテリアルの創製」,松尾宗征 (2019年–2020年).

中部科学技術センターみらい・学術助成,最優秀提案「新規ドラッグデリバリーシステムに応用可能な自己増殖するペプチド液滴の創製」,松尾宗征 (2019年–2020年).

#### C) 研究活動の課題と展望

本研究課題で用いた液滴型人工細胞は液-液相分離しており,その疎水性,親水性にかかわらず物質を取込む性質が認められた。このような液-液相分離を示す液滴は,原始細胞の進化過程において潜在的に各進化段階の物質も吸収,濃縮するため,数多く存在する生命起源仮説を否定することなく,各仮説の隔たりを埋めることができるミッシングリンクを提供できると期待される。

今後は触媒能を発現するRNAであるリボザイムを内包する液滴の形成と,その液滴の増殖を目標とし,より生命らしい機能を持つ液滴型人工細胞の構築を行う予定である。従来の生命起源に関する仮説では, RNA を生命起源とするRNAワールドが確立した後に, RNA とタンパク質様の物質との相互作用により生命の構築がなされて,情報と触媒作用機能を併せもつ生命システムが創発されることが考えられているが,今後の研究課題ではRNAを含む液滴内部でペプチドの合成が起こるため,相互作用が大きい初期段階でのカップリングが可能となるだろう。

## 倉橋拓也(助教)(2002年6月15日着任)

A-1) 専門領域：錯体化学，触媒化学

A-2) 研究課題：

- a) 酸素酸化反応の開発を目的とする酸素分子活性化の錯体化学研究
- b) 超微細気泡を反応場とするメタン光酸化触媒の開発

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 大気中の酸素分子は最も理想的な酸化剤であり，物質合成に加えて汚染物質の酸化分解等への応用が期待される。しかしながら酸素分子を酸化剤とする強力な酸化反応の例は極めて限られている。本年度は，酸素ガスを加圧して金属錯体触媒と反応させることで，酸素分子を末端酸化剤として活用することを検討した。気体を圧縮すると，断熱圧縮により加熱されて可燃物が存在するとそのまま燃焼する。そのため可燃物である有機基質や溶媒，金属錯体触媒を酸素ガス存在下で加圧するには大きな危険が伴う。そこで有機反応溶液を水溶液中に酸素ガスで分散させて，その結果生成するエマルジョン様溶液を加圧することを考案した。本年度は，この計画を実現するための装置開発に取り組んだ。
- b) メタンの酸化反応では，生成したメタノールがさらに酸化される過剰酸化が大きな問題となっている。本研究では，過剰酸化の問題に焦点を絞って検討する目的で，メタンとオゾンの等量反応を検討した。気相中ではメタンとオゾンガスは 100min 程度の時間軸で反応して，主として一酸化炭素と二酸化炭素を生成することが知られている。この反応を水溶液中のファインバブル中で行うことで，反応初期に生成するメタノール等を過剰酸化される前に抽出分離することを試みた。メタンとオゾンを等量混合可能な装置を新規に製作した。またメタンを定量することで，メタン酸化反応の進行を追跡する手法を確立した。

B-6) 受賞，表彰

**T. KURAHASHI and H. FUJII**, BCSJ Award Article (2012).

B-7) 学会および社会的活動

学会の組織委員等

日本化学会第 93 春季年会総務小委員会委員 (2014).

B-8) 大学での講義，客員

長崎県立大学看護栄養学部，クロスアポイントメント，2018年－.

B-10) 競争的資金

科研費基盤研究(C),「高原子価マンガンオキソ錯体の精密反応制御」, 倉橋拓也 (2011年–2015年).

内藤記念科学奨励金・研究助成,「コバルト錯体を助触媒とする酸素酸化反応の開発」, 倉橋拓也 (2015年–2017年).

科研費基盤研究(C),「低原子価金属オキソ錯体を鍵活性種とする酸素分子の活性化」, 倉橋拓也 (2015年–2018年).

科学技術振興機構さきがけ研究,「超微細気泡を反応場とするメタン光酸化触媒の開発」, 倉橋拓也 (2017年–2021年).

科研費基盤研究(C),「食品科学応用を目指したファインバブル活性酸素の基礎化学研究」, 倉橋拓也 (2019年–2022年).

## 生体分子情報研究部門

塚本 寿夫 (助教) (2014年2月1日着任)

A-1) 専門領域：光生物学, 生物物理学

A-2) 研究課題：

- a) 動物のオプシンのシグナル伝達特性を活用した新規光操作ツールの開発
- b) 哺乳動物カリウムイオンチャネルの環境依存的構造変化の解析
- c) アゲハチョウ尾端光受容機能を担うタンパク質の解明
- d) サンゴ幼生ではたらく光受容タンパク質の分光特性と遊泳行動との関連

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 動物のオプシンは光受容に伴い三量体 G タンパク質を活性化する, 光感受性 GPCR である。また, 三量体 G タンパク質によって機能制御される様々なイオンチャネルが神経細胞などに存在している。そこで, 様々な色の光で活性化されるオプシンをイオンチャネルと融合させたタンパク質 (群) を作製し, それらが実際に光依存的にチャネル機能を操作できることを電気生理学的解析から明らかにした。これらの融合タンパク質は, 光によって細胞機能を操作するツールとして有用であると考えられる。
- b) 2018年に, 特異なイオン選択性を示すカリウムチャネル TWIK-1 について, イオン環境を変えた際に, イオン選択性を生み出す選択フィルタ部位にどのような構造変化が生じるのかを赤外分光法を用いて解析した結果を報告した (Tsukamoto *et al.*, *J. Biol. Chem.*, 2018)。これに引き続き2019年には, TWIK-1 が外部環境を感知すると考えられる細胞外ドメインに部位特異的蛍光標識を導入し, 結晶構造解析からは不明であった, 透過するイオンの「入り口」を構成するアミノ酸残基がどのような配置になっているのかについて知見を得ることができた。
- c) 前年度までに, 総合研究大学院大学蟻川教授らとの共同研究から, アゲハチョウの生殖行動を制御する尾端光受容細胞に発現する光受容タンパク質候補を同定し, その遺伝子配列を明らかにしていた。そして2018年度にその遺伝子についてゲノム編集技術 (CRISPR/Cas9) を用いて破壊するために, アゲハチョウ受精卵にガイド RNA と Cas9 タンパク質をインジェクションしていた。2019年度は得られたゲノム編集個体を交配させて, 候補タンパク質の遺伝子機能を欠損した純系の確立に取り組んだ。その結果, 交配を進めると受精卵の孵化率が落ちるため, F1 系統での解析が必要であることがわかった。
- d) 前年度までに, 基礎生物学研究所上野教授・酒井博士との共同研究から, サンゴの幼生の遊泳行動が環境光の波長 (色) 変化によって制御されることがわかっていた。また酒井博士が同定したサンゴのオプシンのうち, 一つが紫外光を受容することを見出し, このことはサンゴ幼生が紫外線の弱い環境を好んで着底することと関連すると考えられた。今年度はサンゴの紫外光受容オプシンがどのようなメカニズムで紫外光を感知しているのかを解析し, 2番目の膜貫通ヘリックスに存在する一つの残基のはたらきで, 紫外光を感知できるようになっていることを見出した。

B-1) 学術論文

T. NAGATA, M. KOYANAGI, H. TSUKAMOTO, E. MUTT, G. F. X. SCHERTLER, X. DEUPI X and A. TERAOKA,  
“The Counterion-Retinylidene Schiff Base Interaction of an Invertebrate Rhodopsin Rearranges upon Light Activation,”  
*Commun. Biol.* **2**, 180 (9 pages) (2019).

B-4) 招待講演

塚本寿夫,「チャンネル機能の操作ツールとしての無脊椎動物光受容体」,生理研研究会「イオンチャンネルと生体膜のダイナミクス:構造生物学の先にあるもの」,吹田,2019年10月.

塚本寿夫,「“総力戦”としての光操作技術」,第57回日本生物物理学会年会,宮崎,2019年9月.

塚本寿夫,「無脊椎動物オプシンの物性を利用してイオンチャンネルを光操作する」,ISSPワークショップ「レチナルタンパク質の光機能発現の物理と化学」,柏,2019年9月.

B-6) 受賞,表彰

塚本寿夫,平成24年度日本生物物理学会中部支部講演会優秀発表者(2013).

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(2012).

学会誌編集委員

日本生物物理学会「生物物理」誌編集委員(2017-2018).

その他

日本学術振興会サマープログラム2015,グループディスカッション・ディスカッサー(2015).

出前授業「生き物の分子と進化」岡崎市立岩津中学校(2015).

B-8) 大学での講義,客員

奈良教育大学教育学部,「生物科学特別講義」,2019年8月16日-19日.

B-10) 競争的資金

ノバルティス科学振興財団研究奨励金,「部位特異的蛍光標識を用いたGタンパク質共役受容体の動的構造変化の解析」,塚本寿夫(2012年).

科研費若手研究(B),「哺乳動物が環境光を感知するためのメラノプシンの分子特性の解明」,塚本寿夫(2013年-2014年).

上原記念生命科学財団研究奨励金,「メラノプシンを用いたカルシウムシグナリングの光制御」,塚本寿夫(2015年).

科研費若手研究(B),「哺乳類カリウムチャンネルの環境依存的イオン透過制御メカニズムの解明」,塚本寿夫(2017年-2019年).

総合研究大学院大学学融合推進センター公募型研究事業「萌芽的共同研究」,「アゲハチョウの眼外紫外光受容タンパク質と生殖行動との連関」,塚本寿夫(2017年).

科学技術振興機構さきかけ研究,「内在受容体を利用した生命機能の新規光操作手法の開発」,塚本寿夫(2017年-2020年).

自然科学研究機構「ネットワーク型研究加速事業(国際)」生理研プロジェクト「機能タンパク質の構造と機能のダイナミクスと,それに基づく細胞・生体システム作動機構の研究拠点の形成」,塚本寿夫(分子研からの参画メンバーとして)(2019年-2021年).

## 錯体触媒研究部門

魚 住 泰 広 (教授) (2000年4月1日着任)

A-1) 専門領域：有機合成化学, 有機金属化学

A-2) 研究課題：

- a) 不均一反応メディア中での触媒反応システムの構築
- b) 自己集積型金属錯体触媒の設計・開発
- c) 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

- a) 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。
- b) 金属架橋高分子の自己集積触媒 (架橋構造と触媒機能のハイブリッド) を開発し, さらにマイクロ流路内の層流界面での自己集積錯体触媒膜の創製に成功した。前項で開発した高分子触媒をカラムカートリッジ化することで実用性に富む連続フロー反応システムを構築した。
- c) 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。
- d) 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。
- e) 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

B-1) 学術論文

**H. HU, A. OHNO, T. SATO, T. MASE, Y. UOZUMI and Y. M. A. YAMADA**, "Self-Assembled Polymeric Pyridine Copper Catalysts for Huisgen Cycloaddition with Alkynes and Acetylene Gas: Application in Synthesis of Tazobactam," *Org. Process. Res. Dev.* **23**, 493–498 (2019).

**G. HAMASAKA, H. TSUJI, M. EHARA and Y. UOZUMI**, "Mechanistic Insight into the Catalytic Hydrogenation of Nonactivated Aldehydes with a Hantzsch Ester in the Presence of a Series of Organoboranes: NMR and DFT Studies," *RSC Adv.* **9**, 10201–10210 (2019).

**T. OSAKO, R. KAISER, K. TORII and Y. UOZUMI**, "Aqueous Flow Hydroxycarbonylation of Aryl Halides Catalyzed by an Amphiphilic Polymer-Supported Palladium-Diphenylphosphine Catalyst," *Synlett* **30**, 961–966 (2019).

**S. YAN, S. PAN, T. OSAKO and Y. UOZUMI**, "Solvent-Free A(3) and KA(2) Coupling Reactions with mol ppm Level Loadings of a Polymer-Supported Copper(II)-Bipyridine Complex for Green Synthesis of Propargylamines," *ACS Sustainable Chem. Eng.* **7**, 9097–9102 (2019).

**H. OHTA, H. TOBAYASHI, A. KUROO, M. NAKATSUKA, H. KOBAYASHI, A. FUKUOKA, G. HAMASAKA, Y. UOZUMI, H. MURAYAMA, M. TOKUNAGA and M. HAYASHI**, “Surface Modification of a Supported Pt Catalyst Using Ionic Liquids for Selective Hydrodeoxygenation of Phenols into Arenes under Mild Conditions,” *Chem. –Eur. J.* **25**, 14762–14766 (2019).

**A. OHTAKA, M. KAWASE, A. USAMI, S. FUKUI, M. YAMASHITA, K. YAMAGUCHI, A. SAKON, T. SHIRAKI, S. NAGATA, Y. KIMURA, G. HAMASAKA, Y. UOZUMI, T. SHINAGAWA, O. SHIMOMURA and R. NOMURA**, “Mechanistic Study on Allylic Arylation in Water with Linear Polystyrene-Stabilized Pd and PdO Nanoparticles,” *ACS Omega* **4**, 15764–15771 (2019).

**S. ICHII, G. HAMASAKA and Y. UOZUMI**, “The Hiyama Cross-Coupling Reaction at Parts Per Million Levels of Pd: In Situ Formation of Highly Active Spirosilicates in Glycol Solvents,” *Chem. –Asian J.* **14**, 3850–3854 (2019).

**G. HAMASAKA, D. ROY, A. TAZAWA and Y. UOZUMI**, “Arylation of Terminal Alkynes by Aryl Iodides Catalyzed by a Parts-per-Million Loading of Palladium Acetate,” *ACS Catal.* **9**, 11640–11646 (2019).

B-3) 総説, 著書

**Y. UOZUMI and G. HAMASAKA**, “Ligand-Introduction Synthesis of NCN-Pincer Complexes and their Chemical Properties,” in *Pincer Compounds: Chemistry and Applications*, D. Morales-Morales, Ed., Elsevier (2019). ISBN: 978-0-12-812931-9

B-4) 招待講演

魚住泰広, 「化学合成プロセスを変革する超活性固定化触媒」, JST 戦略的創造研究推進事業新技術説明会～製造技術・情報・材料～, 東京, 2019年3月.

**Y. UOZUMI**, “Organic Transformations in Water with Amphiphilic Polymer-Supported Transition Metal Catalysts,” Ciclo de Conferencias del IQOG, Alicante (Spain), March, 2019.

**Y. UOZUMI**, “Organic molecular transformations in water with amphiphilic resin-supported platinum nanoparticles,” 4<sup>th</sup> Green Sustainable Conference 2019, Dresden (Germany), May 2019.

**Y. UOZUMI**, “Organic Reactions in Water with Amphiphilic Polymeric Transition Metal Catalysts,” Thieme Chemistry Workshop, Wuhan (China), June 2019.

**Y. UOZUMI**, “NCN Pincer Palladium Complexes: Their Preparation and Reacting Properties,” ICHAC 2019, Prag (Czech), July 2019.

魚住泰広, 「水中での有機分子変換を実現する高分子固定化触媒の開発」, 第124回触媒討論会, 長崎市, 2019年9月.

**Y. UOZUMI**, “Development of Polymer Supported Catalysts and Their Flow Application,” International Conference on Super Functional Catalysts (ICSFC), Awaji, November 2019.

B-5) 特許出願

特願 2019-031807, 「銀ナノ粒子樹脂複合体及び水素化触媒」, 魚住泰広, 大迫隆男 (自然科学研究機構), 2019年.

B-6) 受賞, 表彰

魚住泰広, 有機合成化学協会研究企画賞 (1992).

魚住泰広, 日本薬学会奨励賞 (1997).  
山田陽一, 日本薬学会奨励賞 (2005).  
魚住泰広, 第6回グリーン・サステイナブル・ケミストリー賞, 文部科学大臣賞 (2007).  
魚住泰広, 平成 18 年度日本化学会学術賞 (2007).  
山田陽一, 文部科学大臣表彰若手科学者賞 (2008).  
山田陽一, Thieme Chemistry Journal Award (2008).  
魚住泰広, 井上学術賞 (2010).  
浜坂 剛, 第1回名古屋大学石田賞 (2012).  
大迫隆男, 有機合成化学協会研究企画賞 (2013).  
魚住泰広, 文部科学大臣表彰科学技術賞 (2014).  
大迫隆男, 第4回自然科学研究機構若手研究者賞 (2015).  
大迫隆男, 第30回若い世代の特別講演会特別講演証 (2016).  
大迫隆男, Thieme Chemistry Journal Award (2017).  
浜坂 剛, 有機合成化学協会三菱ガス科学研究企画賞 (2017).  
浜坂 剛, 第32回若い世代の特別講演会特別講演証 (2018).

#### B-7) 学会および社会的活動

##### 学協会役員等

コンビナトリアル・ケミストリー研究会代表幹事 (1998–2009).  
有機合成化学協会支部幹事 (1998–).

##### 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–).  
4<sup>th</sup> International Symposium on C–H Activation, International Committee (2018).  
14<sup>th</sup> International Kyoto Conference on New Aspects of Organic Chemistry, Organizing Committee (2018).  
43<sup>rd</sup> International Conference on Coordination Chemistry, National Organizing Committee (2018).

##### 文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

日本学術振興会第116委員会委員 (1998–).  
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–).

##### 学会誌編集委員

日本化学会速報誌編集委員 (2001–2002).  
*SYNLETT* 誌アジア地区編集主幹 (2002–).  
*Tetrahedron Asymmetry* 誌アドバイザーボード (2002–2017).  
*SYNFACTS* 誌編集委員 (2005–).  
*ACS Combinatorial Science* 誌エディトリアルアドバイザーボード (2010–).  
*The Chemical Record* 編集委員 (2010–).

##### その他

科学技術振興機構CREST 研究「水中での精密分子変換を実現するナノ遷移金属触媒創製」 研究リーダー (2002–2007).

理化学研究所研究チームリーダー (2007–2017).

経済産業省グリーン・サステイナブルケミカルプロセス基盤技術開発プロジェクト 研究チームリーダー (2008–2012).

科学技術振興機構CREST 研究「反応媒体駆動原理の確立と革新的触媒プロセスの開発」 研究副リーダー (2011–2016).

科学技術振興機構ACCEL 研究「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」 研究代表 (2014–2019).

理化学研究所JST-ACCEL 研究ディレクター (2018–2019).

総合研究大学院大学物理科学研究科長 (2018–2020).

#### B-8) 大学での講義, 客員

中国三峡大学, 楚天学者教授, 2019年–.

#### B-9) 学位授与

Shen Guanshuo, 「The development of green catalysts for organic transformations」, 2019年9月, 博士(理学).

#### B-10) 競争的資金

科研費特定領域研究(計画研究: 研究項目番号A03), 「理想化学変換プロセスを実現する新しい水中機能性個体触媒の開発」, 魚住泰広 (2006年–2009年).

経済産業省・戦略的技術開発グリーンサステイナブルケミカルプロセス基盤技術開発, 「高機能不均一触媒の開発と環境調和型化学プロセスの研究開発」, 魚住泰広 (2009年–2012年).

科研費若手研究(B), 「水中分子変換を実現する高分子担持銅触媒の創製」, 大迫隆男 (2010年–2011年).

科学技術振興機構CREST 研究, 「反応媒体駆動原理の確立と革新的触媒プロセスの開発」, 魚住泰広 (2011年–2016年).

科研費新学術領域研究(研究領域提案型), 「触媒膜導入マイクロ流路反応デバイスの創製」, 魚住泰広 (2010年–2013年).

科研費挑戦的萌芽研究, 「ユビキタス金属ナノ粒子の触媒機能開発」, 魚住泰広 (2014年–2015年).

科研費若手研究(B), 「ポリマー担持ユビキタスメタル触媒による高環境調和型水中フロー酸素酸化工程の開発」, 大迫隆男 (2014年–2015年).

科学技術振興機構ACCEL 研究, 「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」, 魚住泰広 (2014年–2019年).

科研費新学術研究, 「高活性高分子触媒の創製と連続フローシステム化」, 魚住泰広 (2016年–).

科研費基盤研究(C), 「二酸化炭素を用いた有機分子変換の環境調和型高効率フロー反応化」, 大迫隆男 (2016年–2018年).

科学費若手研究(B), 「高活性NNC-ピンサー型錯体を活用した痕跡触媒量での有機分子変換工程開発」, 浜坂剛 (2017年–2018年).

科学技術進行機構ACCEL 研究, 「触媒開発に立脚した基幹化学プロセスの徹底的効率化」, 魚住泰広 (2012年–2019年).

科学技術進行機構A-STEP 研究, 「サリチル酸と誘導体の革新的連続フロープロセスの開発」, 松田仁史 (2019年–).

#### 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(5年間)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)。2019年度までは競争的研究資金の獲得も順調であり、大学院生ならびに博士研究員の確保も問題ない。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。なかでも最近で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を目指した研究開発を推進しつつある。加え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。

## 榎山 儀 恵 (准教授) (2014年6月1日着任)

### A-1) 専門領域：有機合成化学

### A-2) 研究課題：

- プロトンを触媒とする不斉骨格転位反応の開発
- ハロゲン結合を活用するキラル有機ルイス酸触媒の開発
- ヨウ化ペルフルオロアリアルを母骨格とするハロゲン結合供与体触媒の開発
- ハロゲン結合を活用する高分子触媒反応場の開発
- 三中心四電子ハロゲン結合を活用するヨードニウム錯体触媒の開発
- 多機能性材料開発に向けた全フッ素化リレン化合物の合成研究

### A-3) 研究活動の概略と主な成果

- キラルプレnstेटド酸触媒存在下、エン-アルジミンの触媒的不斉形式的1,3-転位反応に成功した。フェナンスリル基を有するキラルピナフチルリン酸を用いることで、良好なエナンチオ選択性が発現することを見出した。また、鈴木敏泰研究員との共同研究により、エナンチオ選択性の発現機構を検証した。
- ヨードニウムを活性中心とするキラル有機ルイス酸触媒の合成に成功し、その三次元構造を単結晶X線構造解析により明らかにした。
- 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。また、江原グループとの共同研究、岡山大自然生命科学研究所支援センターでのHOESY測定により、本反応の触媒作用機構を明らかにした。
- テトラフルオロヨードスチレンを機能性モノマーとして用い、ラジカル重合により、ハロゲン結合供与部位を有する高分子を合成した。合成した高分子とDMAPからDMAPプリント高分子触媒を調製し、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。
- 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アルヨードニウムトリヨージドの合成と単結晶X線回折に成功した。また、合成した錯体が、向山アルドール反応や細見-櫻井反応において、高い触媒活性を示すことを見出した。
- 多機能性材料の開発を目的として、全フッ素ハロゲン化ペリレン化合物の合成を実施した。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、メタ位をヨウ素置換した全フッ素ヨウ化ペリレンの合成に成功した。

### B-1) 学術論文

C. JONGWOHAN, Y. HONDA, T. SUZUKI, T. FUJINAMI, K. ADACHI and N. MOMIYAMA, "Brønsted Acid-Initiated Formal [1,3]-Rearrangement Dictated by  $\beta$ -Substituted Ene-Aldimines," *Org. Lett.* **21**, 4991–4995 (2019).

### B-3) 総説、著書

N. MOMIYAMA, "Noncovalent Interactions in the Design of Chiral Brønsted Acid Catalyst," in *Noncovalent Interactions in Catalysis*, K. T. Mahmudov, M. N. Kopylovich, M.-F. C. Guedes da Silva, A.-J. L. Pombeiro, Eds., The Royal Society of Chemistry, Chapter 10, pp. 209–231 (2019).

#### B-4) 招待講演

榎山儀恵, 「ハロゲン結合を基盤とする精密制御反応場の創成に向けて」, 新学術領域「精密制御反応場」第7回公開シンポジウム, 仙台, 2019年5月.

榎山儀恵, 「ハロゲン結合を活用する有機分子変換システム創成」, 名城大学農学部天然物有機化学研究室特別研究講演会, 名古屋, 2019年9月.

#### B-6) 受賞, 表彰

榎山儀恵, 大学女性協会第17回守田科学研究奨励賞 (2015).

榎山儀恵, 有機合成化学協会セントラル硝子研究企画賞平成26年度 (2014).

榎山儀恵, Thieme Chemistry Journals Award (2008).

榎山儀恵, Damon Runyon Cancer Research Foundation Post Doctoral Research Fellowship (2005).

榎山儀恵, Abbott Laboratories Graduate Fellowship (2005).

榎山儀恵, The Elizabeth R. Norton Prize for Excellence in Research in Chemistry (2003).

#### B-7) 学会および社会的活動

##### 学協会役員等

日本化学会東海支部代議員 (2015, 2016).

##### 学会の組織委員等

総研大アジア冬の学校主催 (2015, 2016).

分子研シンポジウム主催 (2017).

分子研オープンキャンパス主催 (2018).

##### 学会誌編集委員

日本化学会化学と工業編集委員 (2017, 2018, 2019).

##### その他

進路講演会愛知県立岡崎北高等学校 (2018).

出前授業愛知県立岡崎北高等学校 (2016, 2017, 2018, 2019).

職場体験学習受入岡崎市立南中学校 (2018), 岡崎市立葵中学校 (2019).

出前授業「中学生のためのサイエンスセミナー」岡崎市立翔南中学校 (2015).

#### B-9) 学位授与

Chanantida Jonwohan, 「Brønsted Acid-initiated Formal [1,3]-Rearrangement Reaction of  $\beta$ -Substituted Ene-Aldimines」, 2019年9月, 博士(理学).

#### B-10) 競争的資金

科研費新学術領域研究(研究領域提案型), 「ハロゲン結合を基盤とする有機分子触媒の高分子固定化とキラル反応場の創成」, 榎山儀恵 (2018年-2019年).

公益財団法人旭硝子財団 2018年度採択研究助成プログラム「第1分野」,「ハロゲン結合を活用する有機分子触媒高分子反応場の創成」, 榎山儀恵 (2018年–2019年).

公益財団法人永井科学技術財団平成 29年度研究奨励金,「鋳型重合による有機分子触媒反応場の創成」, 榎山儀恵 (2018年–2019年).

アステラス病態代謝研究会平成 29年度研究助成金,「非金属錯体触媒による医薬品構成素子合成法の開発」, 榎山儀恵 (2017年–2018年).

鈴木謙三記念医科学応用研究財団平成 29年度調査研究助成,「ヨードニウム錯体触媒による抗悪性腫瘍薬スピロ環状ラク톤の環境調和合成法の開発」, 榎山儀恵 (2017年–2018年).

科研費基盤研究(C) (一般),「ホスフィン酸を活性中心とする新規キラルプレnstेटド酸触媒の開発」, 榎山儀恵 (2017年–2019年).

住友電工グループ社会貢献基金 2016年度学術・研究助成,「多点間水素結合相互作用を活用する高活性キラル分子性触媒の創製」, 榎山儀恵 (2016年–2017年).

住友財団 2016年度基礎科学研究助成,「異種酸性官能基複合型キラル分子性触媒による触媒的不斉連続反応の開発」, 榎山儀恵 (2016年–2017年).

公益財団法人豊秋奨学会平成 28年度研究助成,「異なる酸性官能基の隣接位導入による超高活性キラル分子性触媒の開発」, 榎山儀恵 (2016年–2017年).

大幸財団平成 28年度(第 26回)自然科学系学術研究助成,「異種酸性官能基複合型キラル分子性触媒の創製と精密合成反応の開発」, 榎山儀恵 (2016年–2017年).

2015年度内藤記念科学奨励金・研究助成,「ペルフルオロピナフチル誘導体の分子修飾に基づくキラルハロゲン結合供与体触媒の設計・開発」, 榎山儀恵 (2016年–2017年).

ノバルティス科学振興財団第 28回研究奨励金,「不斉 1, 3-アルキル移動反応の開発を基軸とする医薬品候補化合物の合成」, 榎山儀恵 (2015年–2016年).

平成 27年度徳山科学技術振興財団研究助成,「ハロゲン化ペルフルオロアールの創製と触媒機能創出」, 榎山儀恵 (2015年–2016年).

2015年度ヨウ素研究助成金,「キラルヨウ素結合供与体触媒の設計・開発を基盤とする不斉合成」, 榎山儀恵 (2015年–2016年).

科研費基盤研究(C),「有機分子アリル化剤の開発を基軸とする革新的不斉有機分子触媒反応の開拓」, 榎山儀恵 (2011年–2013年).

科研費若手研究(B),「ペルフルオロフェニル基の特性を利用した不斉有機酸触媒の開発とアリル化反応への応用」, 榎山儀恵 (2009年–2010年).

科研費特定領域研究「協奏機能触媒」,「 $\pi$ -アリル・0価鉄複合体—キラルプレnstेटド酸触媒による新規アリル化反応の開発」, 榎山儀恵 (2008年–2009年).

科研費若手研究(スタートアップ),「酵素模倣型キラル求核触媒の設計および不斉反応の探索」, 榎山儀恵 (2007年–2008年).

公益信託林女性自然科学者研究助成基金,「アゾール/グアニジン 2成分系キラル求核触媒の設計開発および不斉反応の探索」, 榎山儀恵 (2007年–2008年).

### C) 研究活動の課題と展望

地球上に生存する生命を特徴付ける性質のひとつがキラリティーである。ほとんど全ての生体系は、本来的にキララでありエナンチオマー的に純粋である。このことは、物質のキラリティーが至るところで私たちの日常に浸透している所以である。私たちの社会に欠かすことのできない物質・材料にキラリティーを組み入れること、それを可能にする一連の方法論を開発することは、次世代の純粋化学と応用化学の両面、そして材料科学において、極めて大きな意味をもつ。

当グループでは、キララ分子を供給する方法論の開拓とその確立を目指し、不斉分子触媒の設計・合成と触媒の不斉合成反応の開発を進めている。これまでに、不斉空間の構築ならびに不斉反応において「金属-配位子錯結合」よりも弱い相互作用である「水素結合」や「ハロゲン結合」の潜在的有用性を明らかにしつつある。2019年度は、従来困難であったいくつかの有機分子変換に成功し、国内の招待講演で発表した。また、学術誌への投稿に向けて、数報の準備を整えることができた。水素結合やハロゲン結合の「強さ」と「方向性」を利用する戦略を不斉分子触媒・不斉合成反応の開発において確立することを目標に、引き続き研究を遂行する。将来的には、機能性物質合成としてのキララ化学からキララ分子の振る舞いを明らかにするキララ分子科学への応用展開をめざしたい。

## 錯体物性研究部門

正岡重行(准教授)(2011年2月1日~2019年3月31日)\*)

A-1) 専門領域: 錯体化学

A-2) 研究課題:

- 鉄5核錯体への化学修飾による酸素発生過電圧の低減
- 近赤外光を駆動力とする光誘起プロトン共役電子移動反応の開発
- 段階的錯形成法を駆使した異種金属錯体の系統的合成

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- 当グループでこれまでに開発された高い酸素発生能を有する鉄5核錯体 (**Fe<sub>5</sub>-H**) に対し, 化学修飾を施し, より穏和な(低過電圧)条件で反応が進行する触媒の開発に取り組んだ。より具体的には, 金属錯体の構成要素である多座配位子に対し, 電子供与性のメチル (**Me**) 基或いは電子吸引性のプロモ (**Br**) 基を導入した新規鉄5核錯体(以下それぞれ **Fe<sub>5</sub>-Me** 及び **Fe<sub>5</sub>-Br** と呼称)を開発した。**Fe<sub>5</sub>-Me** においては, 置換基導入に伴い鉄イオンの電子密度が増大し, 錯体の酸化電位が **Fe<sub>5</sub>-H** と比較して低電位側にシフトした。それに伴い, 酸素発生の鍵中間体である4電子酸化種がより穏和な条件で生成し, その結果, 酸素発生過電圧が低減できることが見出された。**Fe<sub>5</sub>-Br** においては, 電子吸引性置換基の影響で錯体の酸化還元電位は **Fe<sub>5</sub>-H** よりも高電位側にシフトした。しかしながら, **Fe<sub>5</sub>-H** ならびに **Fe<sub>5</sub>-Me** においては4電子酸化体の生成が酸素発生に必須であったのに対し, **Fe<sub>5</sub>-Br** では3電子酸化体が **water-coupled electron transfer** を起こすことで酸素発生反応が進行し, 過電圧も小さくなることが明らかになった。すなわち, **Fe<sub>5</sub>-Br** においては, 高酸化状態を経由せずに触媒反応が進行することで, 反応の過電圧が低減された。以上本研究では, 過電圧を低減するための2つの戦略を提唱することに成功した。
- 光誘起型のプロトン共役電子移動は, 逆電子移動を抑制することができるため, 光-化学エネルギー変換を効率的に行うために重要な反応であると考えられている。本研究では, このような光誘起プロトン共役電子移動を近赤外光を用いて駆動することに初めて成功した。近赤外光は太陽光エネルギーの約半分を占めるエネルギー源であるためにその効率的利用を行うことは極めて重要な研究対象である。このような反応系を構築するために, ①近赤外光領域に強い吸収能を持ち, ②良好な電子移動能を示し, ③プロトン受容サイトを有する歪んだフタロシアニン化合物 (**1**) に着目した。**1**, トリエチルアミン, 水, アスコルビン酸ナトリウムを含む溶液に対し, 近赤外光を照射したところ, 光誘起プロトン共役電子移動反応が進行し, **1-H<sup>-•</sup>** が生成することが明らかになった。また得られた **1-H<sup>-•</sup>** の溶液を大気下に開放することで **1** へと可逆的に変換されることも示され, このサイクルは複数回繰り返すことが可能であった。すなわち, 本反応系は非常に高い安定性を持つことが判明した。また, 反応メカニズムに関しても, 過渡吸収分光測定ならびに速度論的同位体効果によって知見を得, 反応系中に含まれる種々の化合物が果たす役割についても明らかにした。
- 本研究では, 3,5-bis(2-pyridyl)pyrazole (**Hbpp**) と複数種類の金属イオンを段階的に錯形成することで様々な異種金属多核錯体を系統的かつ選択的に合成する手法の開発を目指し研究を行った。具体的な戦略は以下の通りである。まず, 第1段階として比較的配位子交換速度が遅い金属イオンと **Hbpp** 配位子との反応により単核錯体を合成する。そして得られた単核錯体を配位子交換速度が速い金属イオンと反応させる。その結果, 金属イオンのスクランプリ

ングが抑制され、望みの金属イオン配置を有する異種金属多核錯体のみが得られることとなる。第一の金属イオンとしては Ru イオンを選択した。

Ru イオンと 3,5-bis(2-pyridyl)pyrazole とを反応させたところ 2 種類の単核錯体, *fac*-[Ru(Hbpp)<sub>3</sub>]<sup>2+</sup> ならびに *mer*-[Ru(Hbpp)<sub>3</sub>]<sup>2+</sup> が得られた。そこで、それぞれの単核錯体と各種第一遷移金属イオンとの反応について検討した。その結果、*fac*-[Ru(Hbpp)<sub>3</sub>]<sup>2+</sup> を用いた場合には異種金属 5 核錯体が、*mer*-[Ru(Hbpp)<sub>3</sub>]<sup>2+</sup> を用いた場合には、異種金属 4 核錯体がそれぞれ得られることが明らかになった。得られた錯体の金属イオン配置については単結晶 X 線解析により明らかにし、段階的に錯形成が進行していることならびに錯形成中に金属イオンのスクランプリングが起きていないことが確認された。すなわち、多様な核数・金属イオン種を有する金属錯体を自在に合成するための手段が確立されたと言える。

#### B-1) 学術論文

**T. ENOMOTO, M. KONDO and S. MASAOKA**, “Proton-Coupled Electron Transfer Induced by Near-Infrared Light,” *Chem. –Asian J.* **14**, 2806–2809 (2019). (Selected as a Very Important Paper (VIP))

**R. KUWANO, M. YOKOGI, K. SAKAI, S. MASAOKA, T. MIURA and S. WON**, “Room-Temperature Benzylic Alkylation of Benzylic Carbonates: Improvement of Palladium Catalyst and Mechanistic Study,” *Org. Process Res. Dev.* **23**, 1568–1579 (2019).

**V. K. K. PRANEETH, M. KONDO, M. OKAMURA, T. AKAI, H. IZU and S. MASAOKA**, “Pentanuclear Iron Catalysts for Water Oxidation: Substituents Provide Two Routes to Control Onset Potentials,” *Chem. Sci.* **10**, 4628–4639 (2019).

**Y. LIWEI, Y. TAKAGI, T. NAKAMURA, T. SAKATA, T. URUGA, M. TADA, Y. IWASAWA, S. MASAOKA and T. YOKOYAMA**, “Operando Observation of Sulfur Species Poisoning Polymer Electrolyte Fuel Cell Studied by Near Ambient Pressure Hard X-Ray Photoelectron Spectroscopy,” *J. Phys. Chem. C* **123**, 603–611 (2019).

#### B-3) 総説, 著書

榎本孝文, 正岡重行, 「近赤外光を駆動力とする光誘起電子移動反応」, *化学と工業* **72(1)**, 25 (2019).

#### B-4) 招待講演

**S. MASAOKA**, “Development of Molecular Modules for Artificial Photosynthesis,” The 69<sup>th</sup> Conference of Japan Society of Coordination Chemistry, S4: Coordination Chemistry Unveiled in Homogeneous Solutions, Nagoya University, Nagoya, September 2019.

**S. MASAOKA**, “Development of Molecular Catalysts for Artificial Photosynthesis,” QSCC, Nagoya, September 2019.

**S. MASAOKA**, “Development of Molecular Catalysts for Artificial Photosynthesis,” Functional Molecules for Energy Conversion, Catalysis and Nanotechnology, HeKKSaGOn in Heidelberg, Heidelberg (Germany), September 2019.

正岡重行, 「5つの金属イオンが織り成す革新機能」, 関西学院大学, 三田, 2019年8月.

正岡重行, 「5つの金属イオンが織り成す革新機能」, 近畿大学総合理工学研究科, 東大阪, 2019年7月.

正岡重行, 「5つの金属イオンが織り成す触媒機能」, 第4回固体化学フォーラム, 岡崎, 2019年6月.

**S. MASAOKA**, “Development of Molecular Catalysts for Artificial Photosynthesis,” 15<sup>th</sup> International Symposium on Applied Bioinorganic Chemistry (ISABC15), Nara (Japan), June 2019.

正岡重行,「人工光合成への挑戦～植物に学ぶ触媒デザイン～」, 2019年度ゴールド・メダル賞記念講演会, 日本プレスセンター, 東京, 2019年5月.

正岡重行,「5つの金属イオンが織り成す革新機能」, 第29回平塚シンポジウム「元素の多様性と物質科学」, 神奈川大学湘南ひらつかキャンパス, 平塚, 2019年3月.

正岡重行,「金属錯体を触媒とする光化学的／電気化学的小分子変換」, 第16回ささかけ領域会議, 愛媛大学理学部大会議室, 松山, 2019年2月.

#### B-6) 受賞, 表彰

友田美紗, 第9回CSJ 化学フェスタ 2019 優秀ポスター発表賞 (2019).

伊豆 仁, 15<sup>th</sup> International Symposium on Applied Bioinorganic Chemistry (ISABC15), Elsevier Best Poster Prize (2019).

正岡重行, 第25回ゴールド・メダル賞 (2019).

S. K. LEE, 第1回SOKENDAI 賞 (2018).

P. CHINAPANG, 物理科学研究科学科長賞 (2018).

榎本孝文, 錯体化学若手研究会「錯体化学若手の会夏の学校 2018」優秀ポスター賞 (2018).

近藤美欧, 第7回自然科学研究機構若手研究者賞 (2018).

P. CHINAPANG, 日本化学会第98春季年会 (2018) 学生講演賞 (2018).

近藤美欧, 日本化学会第6回女性化学者奨励賞 (2018).

S. K. LEE, 4<sup>th</sup> Japan-Taiwan-Singapore-Hong Kong Quadrilateral Symposium on Coordination Chemistry, Chemistry Letters Young Award (2017).

伊豆 仁, 第50回酸化反応討論会ポスター賞 (2017).

P. CHINAPANG, 錯体化学会第67回討論会ポスター賞 (2017).

榎本孝文, 錯体化学若手研究会「錯体化学若手の会夏の学校 2017」優秀ポスター賞 (2017).

近藤美欧, 第19回守田科学研究奨励賞 (2017).

P. CHINAPANG, Energy & Environmental Science Outstanding Student Presentation Award (2017).

P. CHINAPANG, International Conference on Artificial Photosynthesis (ICARP2017), Excellent Poster Award (2017).

伊豆 仁, International Conference on Artificial Photosynthesis (ICARP2017), Excellent Poster Award (2017).

正岡重行, 平成28年度日本学術振興会賞 (2016).

岡村将也, 正岡重行, 近藤美欧, 第5回ネイチャー・インダストリー・アワード特別賞 (2016).

榎本孝文, Dalton Transactions Prize (2016).

榎本孝文, 錯体化学会第66回討論会ポスター賞 (2016).

榎本孝文, 日本化学会東海支部長賞 (2016).

S. K. LEE, The Winter School of Asian-Core Program, Poster Award (2016).

榎本孝文, 第27回配位化合物の光化学討論会ポスター賞 (2015).

榎本孝文, 2015年度総研大物理科学学生セミナー Adobe 賞 (2015).

榎本孝文, 伊豆 仁, 深津亜里紗, 2015年度総研大物理科学学生セミナー優秀発表賞 (2015).

深津亜里紗, International Conference on Artificial Photosynthesis (ICARP2014), Excellent Poster Award (2014).

伊豆 仁, 第4回CSJ 化学フェスタ 2014 優秀ポスター発表賞 (2014).

伊東貴宏, CrystEngComm Poster Prize (2014).  
伊東貴宏, 錯体化学会第 64 回討論会ポスター賞(2014).  
岡村将也, 錯体化学会第 63 回討論会学生講演賞 (2013).  
中村 豪, 平成 25 年度 (第 4 回) 総合研究大学院大学学長賞 (2013).  
吉田将己, 第 2 回 CSJ 化学フェスタ 2012 優秀ポスター賞 (2012).  
中村 豪, 第 2 回 CSJ 化学フェスタ 2012 優秀ポスター賞 (2012).  
岡村将也, 第 2 回 CSJ 化学フェスタ 2012 優秀ポスター賞 (2012).  
村瀬雅和, 第 2 回 CSJ 化学フェスタ 2012 優秀ポスター賞 (2012).  
近藤美欧, 第 5 回資生堂女性研究者サイエンスグラント (2012).  
正岡重行, 若い世代の特別講演会特別講演証 (2011).  
正岡重行, 第 53 回錯体化学討論会ポスター賞 (2003).  
正岡重行, 日本化学会第 83 回春季年会学生講演賞 (2003).

#### B-7) 学会および社会的活動

##### 学協会役員等

日本化学会東海支部役員候補者選考委員会委員 (2018–2019).  
日本化学会東海支部代議員 (2017–2019).  
錯体化学会副事務局長 (2015–2019).  
錯体化学会理事 (2015–2017).  
錯体化学会ホームページ委員 (2013–2019).  
錯体化学会若手部会九州支部世話人 (2006–2010).  
錯体化学会若手部会事務局 (2006).

##### 学会の組織委員等

分子研研究会「錯体化学を基盤とした階層構造制御と機能発現」所内対応 (2019).  
分子研研究会「刺激と応答——金属錯体は何を結ぶか」所内対応 (2018).  
分子研研究会「Cutting-Edge Researches in Coordination Chemistry and Photochemistry」主催 (2017).  
アジア連携分子研研究会「日中合同若手学際シンポジウム～配位化学を基盤とした次世代複合材料」主催 (2017).  
分子研研究会「触媒反応であるタンパク質反応を分子科学的観点から捉える」所内対応 (2017).  
分子研研究会「金属錯体の情報制御と機能運動」主催 (2017).  
分子研研究会「金属錯体の非対称配位圏設計と異方集積化が拓く新物質創成科学」所内対応 (2016).  
日本化学会 CSJ 化学フェスタ実行委員 (2013–2016).  
総研大アジア冬の学校 2013 主催 (2013).  
錯体化学若手の会夏の学校 2008 主催 (2008).  
分子情報科学若手セミナー主催 (2006).

##### 学会誌編集委員

*Scientific Reports*, Nature Publishing Group, Editorial Board (2015–).  
日本化学会「化学と工業」編集委員 (2013–2017).

B-8) 大学での講義, 客員

関西学院大学大学院理工学研究科, 集中講義「化学特殊講義 XIII」, 2019年8月.

B-9) 学位授与

榎本孝文, 「Development of Photochemical Systems Based on Photoinduced Electron Transfer」, 2019年3月, 博士(理学).

B-10) 競争的資金

科研費基盤研究(A), 「多核クラスター錯体を用いた小分子変換のための学理創出」, 正岡重行 (2019年–2023年).

第50回(2019年度)三菱財団自然科学研究一般助成, 「金属錯体を触媒とするC1化合物の多電子酸化還元」, 正岡重行 (2019年–2020年).

科研費新学術領域研究(公募研究), 「多核金属錯体への高次非対称性の導入による電子・プロトン移動能の精密制御」, 近藤美欧 (2019年–2020年).

科研費新学術領域研究(計画研究), 「光化学的刺激/電気化学的刺激による金属錯体触媒のオンデマンド活性化」, 正岡重行 (2017年–2021年).

科研費新学術領域研究(公募研究), 「アシンメトリック金属イオン集積に立脚した新奇機能性分子群の創製」, 近藤美欧 (2017年–2018年).

科研費挑戦的研究(萌芽), 「結晶性ホストへの戦略的機能統合による革新的触媒システムの構築」, 近藤美欧 (2017年–2019年).  
徳山科学技術振興財団研究助成, 「多核異種金属錯体のオンデマンド合成による高効率な二酸化炭素還元触媒系の創出」, 近藤美欧 (2016年–2017年).

科研費基盤研究(B), 「クラスター錯体によるエネルギーキャリアのテーラーメイド合成」, 正岡重行 (2016年–2018年).

科研費研究活動スタート支援, 「多核錯体への柔軟なプロトン移動能の導入と水の酸化反応への影響」, 岡村将也 (2016年–2017年).

科研費新学術領域研究(公募研究), 「鉄五核触媒の分子構造制御に基づく低過電圧酸素発生」, 正岡重行 (2015年–2016年).

科研費若手研究(A), 「反応性超分子フレームワーク: 反応場の構築と反応の可視化」, 近藤美欧 (2015年–2018年).

自然科学研究機構若手研究者による分野間連携研究プロジェクト, 「光合成モジュールの人為的再構成によるサイボーグ植物の創出」, 正岡重行 (2015年).

自然科学研究機構新分野創成センター宇宙における生命研究分野プロジェクト, 「低温度星まわりの生命居住可能惑星において起こり得る光合成反応の分子科学的考察」, 正岡重行 (2015年).

科研費挑戦的萌芽研究, 「異種金属多核錯体による革新的電気化学物質変換」, 正岡重行 (2014年–2016年).

自然科学研究機構若手研究者による分野間連携研究プロジェクト, 「酸素発生型光合成への挑戦: 機構理解と新機能創出」, 正岡重行 (2014年).

科研費若手研究(A), 「配位不飽和な自己集合性多核錯体を触媒とする多電子酸化還元反応」, 正岡重行 (2013年–2015年).

科研費新学術領域研究(公募研究), 「水の酸化の超高効率化を目指した超分子錯体触媒の創製」, 正岡重行 (2013年–2014年).

自然科学研究機構若手研究者による分野間連携研究プロジェクト, 「酸素発生型光合成への挑戦: 機構理解と新機能創出」, 正岡重行 (2013年).

科学技術振興機構先導的物質変換領域, 「超分子クラスター触媒による水を電子源としたCO<sub>2</sub>還元反応系の構築」, 近藤美欧 (2012年–2017年).

科研費挑戦的萌芽研究,「二次元反応場への金属錯体集積と水を基質とする革新的多電子物質変換」, 正岡重行 (2012年-2013年).

科研費若手研究(B),「高効率触媒界面の構築を目指した錯体プラットフォームの開発」, 近藤美欧 (2012年-2013年).

第5回資生堂女性研究者サイエンスグラント,「界面電子移動プログラミングによる水の完全光分解系の構築」, 近藤美欧 (2012年-2013年).

学融合推進センター公募研究事業事業枠③女性研究者支援,「界面電子移動反応を利用した水の完全光分解システムの創成」, 近藤美欧 (2012年).

科学技術振興機構さきがけ研究「光エネルギーと物質変換」領域,「水の可視光完全分解を可能にする高活性酸素発生触媒の創製」, 正岡重行 (2009年-2012年).

科研費若手研究(B),「水の分解反応に対する非貴金属系高活性金属錯体触媒の創製」, 正岡重行 (2009年-2010年).

科学技術振興機構重点地域研究開発推進プログラム「シーズ発掘試験A (発掘型)」,「有機-無機複合型超高活性酸素発生錯体触媒の創製」, 正岡重行 (2009年).

九州大学教育研究プログラム・研究拠点形成プロジェクト,「混合原子価2核錯体を用いた量子セルオートマトン材料の開発」, 正岡重行 (2009年).

(財)鉄鋼業環境保全技術開発基金第29回環境助成研究,「鉄-硫黄系金属錯体を用いた安価高活性水素発生触媒の創成」, 正岡重行 (2008年-2009年).

#### B-11) 産学連携

JXTG エネルギー (株),「五核鉄錯体を利用した酸素酸化反応」, 近藤美欧 (2019年).

#### C) 研究活動の課題と展望

我々の研究グループでは、太陽光エネルギーを貯蔵可能な化学エネルギーに変換できる次世代科学技術「人工光合成」の達成に向けて、主に金属錯体を対象とした基礎研究を進めている。2019年は、a) 鉄5核錯体への化学修飾による酸素発生過電圧の低減、b) 近赤外光を駆動力とする光誘起プロトン共役電子移動反応の開発、c) 段階的錯形成法を駆使した異種金属錯体の系統的合成に関する研究を並行して実施し、それぞれ重要な知見を得た。今後は、a) に関しては、反応の低過電圧化を利用した光駆動型酸素発生反応系の開発に取り組みたいと考えている。b) では、近赤外光を駆動力とする新たな反応の開発に向けて研究を展開し、近赤外光を利用した物質変換系の構築を目指す予定である。c) では、得られた異種金属多核錯体の物性を精査し、新たな機能性分子の創出を目指したい。以上の研究を推進し、錯体型人工光合成システムの創出に向けた学術基盤の確立へと繋げていく所存である。

\*) 2019年4月1日大阪大学大学院工学研究科教授

## 草 本 哲 郎 (准教授) (2019 年 1 月 1 日着任)

### A-1) 専門領域：分子物性化学

### A-2) 研究課題：

- 発光性ラジカルの物質開発と多重項に基づく発光機能の創出
- 外部刺激を用いた開殻電子系分子の電子状態制御と新奇物性開拓
- ラジカル集積体における構造-物性相関に基づく新機能創出

### A-3) 研究活動の概略と主な成果

- 高い光安定性を有する発光ラジカル PyBTM を 10wt% ドープした分子結晶は、4.2 K において磁場に応答する発光スペクトルを示す。その背景にはラジカルモノマー励起状態とラジカルエキシマー励起状態を関係づける“ラジカルペア”が関わっていることを見出している。本研究では、磁場効果のメカニズムの更なる理解を目指し、磁場印加時に発光スペクトルに加えて発光寿命がどのように変化するか、を調べた。その結果、発光寿命が磁場に応答する成分と応答しない成分が共存していることを見出した。これらの結果を速度方程式ならびに量子シミュレーションにより解析した結果、①基底状態におけるスピン状態分布の変化（静的磁場効果）、②励起状態にあるラジカルペアにおける磁場誘起項間交差（動的磁場効果）、ならびに③ラジカルモノマーとラジカルペア間における可逆なエキシトンのやりとり、の3点が磁場効果発現の鍵要因となる、という知見を得ることができた。
- 電子アクセプター性を有する発光ラジカル PyBTM と電子ドナー性骨格であるトリフェニルアミンが共役した新しいラジカル TPA-R を開発した。TPA-R は近赤外領域 ( $\lambda_{\max} = 910 \text{ nm}$ ) において電荷移動励起状態に由来する発光を示すことを明らかにした。電気化学的光学スペクトル測定ならびに DFT 法による電子状態計算により、TPA-R では SOMO と HOMO のエネルギー準位が逆転した non-Aufbau な特異電子状態が実現していることを見出した。興味深いことに、酸性条件下にて生成する TPA-RH<sup>+</sup> (プロトン付加体) も TPA-R と同様 SOMO-HOMO 逆転した電子状態を有している。さらに過剰量の酸存在下では、基底状態においてトリフェニルアミン部位からラジカル部位への分子内電子移動が起こり新たなラジカル [TPA]<sup>•+</sup>-RH が生成することを見出した。
- ピリジル基を二つ有するラジカル bisPyTM と銅イオンからなる一次元鎖錯体では、銅イオン回りの配位環境における Jahn-Teller (JT) 歪みの方向が、温度により徐々に変化することを明らかにした。この歪みに伴い銅イオンに配位している hfac 配位子の  $\pi$  共役構造も変化する。興味深いことに、100 K 付近において銅イオンの JT 軸の方向が変化する。この軸方向変化に連動して銅イオン上の不対電子スピン密度の配向が変化した結果、100 K 以下の低温領域では、銅イオンとラジカルの不対電子スピン間に働く強磁性相互作用 ( $J/k_B = 46 \text{ K}$ ) が高温領域のそれ ( $J/k_B = 11 \text{ K}$ ) よりも増大することを明らかにした。本系は、JT 歪み、 $\pi$  共役の自由度、磁気特性が協奏することで温度に応答するユニークな物性を示す系であることが分かった。加えて、bisPyTM の異性体として芳香環上の窒素の置換位置が異なる新しいラジカルの開発に成功し、これが銅イオンとの錯形成反応により一次元鎖錯体を構築することを見出した。

### B-1) 学術論文

**S. KIMURA, H. UCHIDA, T. KUSAMOTO and H. NISHIHARA**, “One-Dimensional Magnetic Chain Composed of Cu<sup>II</sup> and Polychlorinated Dipyridylphenylmethyl Radical: Temperature-Dependent Jahn-Teller Distortion Correlated to  $\pi$ -Conjugation and Magnetic Properties,” *Dalton Trans.* **48**, 7090–7093 (2019). (*Selected as a HOT article*)

**A. TANUSHI, S. KIMURA, T. KUSAMOTO, M. TOMINAGA, Y. KITAGAWA, M. NAKANO and H. NISHIHARA**, “NIR Emission and Acid-Induced Intramolecular Electron Transfer Derived from a SOMO–HOMO Converted Non-Aufbau Electronic Structure,” *J. Phys. Chem. C* **123**, 4417–4423 (2019).

**K. KATO, S. KIMURA, T. KUSAMOTO, H. NISHIHARA and Y. TEKI**, “Luminescent Radical-Excimer: Excited-State Dynamics of Luminescent Radicals in Doped Host Crystals,” *Angew. Chem., Int. Ed.* **58**, 2606–2611 (2019). (*Selected as a HOT paper*)

**T. USUI, Z. LIU, H. IGARASHI, Y. SASAKI, Y. SHIRAMATA, H. YAMADA, K. OHARA, T. KUSAMOTO and T. WAKIHARA**, “Identifying the Factors Governing the Early-Stage Degradation of Cu-Chabazite Zeolite for NH<sub>3</sub>-SCR,” *ACS Omega* **4**, 3653–3659 (2019).

**H. OKADA, H. UENO, Y. TAKABAYASHI, T. NAKAGAWA, M. VRANKIĆ, J. ARVANITIDIS, T. KUSAMOTO, K. PRASSIDES and Y. MATSUO**, “Chemical Reduction of Li<sup>+</sup>@C<sub>60</sub> by Decamethylferrocene to Produce Neutral Li<sup>+</sup>@C<sub>60</sub><sup>•-</sup>,” *Carbon* **153**, 467–471 (2019).

B-3) 総説, 著書

**T. KUSAMOTO and H. NISHIHARA**, “Zero-, One- and Two-Dimensional Bis(dithiolato)metal Complexes with Unique Physical and Chemical Properties,” *Coord. Chem. Rev.* **380**, 419–439 (2019).

B-4) 招待講演

草本哲郎, 「安定有機ラジカルが示す発光機能」, 有機EL 討論会第 29 回例会, 岡崎コンファレンスセンター, 岡崎, 2019 年 11 月.

草本哲郎, 「ラジカルが示すユニークな機能: 電気, 磁気, そして発光特性」, 自然科学研究機構事務局会議室, 東京, 2019 年 11 月.

草本哲郎, 「安定ラジカルを基とする発光機能創出」, 第 4 回有機若手ワークショップ, 京都大学理学研究科セミナーハウス, 京都, 2019 年 11 月.

**T. KUSAMOTO**, “Luminescence and Structure-Magnetism Correlation of Open-Shell Metal Complexes,” 7<sup>th</sup> Asian Conference on Coordination Chemistry (ACCC7), Putra World Trade Centre, Kuala Lumpur (Malaysia), October 2019.

草本哲郎, 「錯体化学を基とする開殻電子系分子の光機能創出」, 錯体化学会第 69 回討論会, 名古屋大学東山キャンパス, 愛知, 名古屋, 2019 年 9 月.

**T. KUSAMOTO**, “Magnetoluminescence in photostable radicals,” Spin Chemistry Meeting 2019, Courtyard by Marriott West Pushkin Hotel, St. Petersburg (Russia), August 2019.

**T. KUSAMOTO**, “Photostable Organic Radicals with Unique Photofunctions,” 17<sup>th</sup> Japan-Korea Symposium on Molecular Science, Hotel Sunroute Plaza Nagoya, Nagoya (Japan), July 2019.

**T. KUSAMOTO**, “Magnetoluminescence in photostable radicals,” 9<sup>th</sup> Pacific Symposium on Radical Chemistry (PSRC-9), Asilomar Conference Grounds, California (U.S.A.), June 2019.

草本哲郎, 「開殻π電子系が拓く発光・磁気特性」, 第 4 回固体化学フォーラム研究会, 岡崎コンファレンスセンター, 岡崎, 2019 年 6 月.

## B-6) 受賞, 表彰

草本哲郎, 錯体化学会研究奨励賞 (2019).

木村 舜, 日本化学会第 99 回春季年会学生講演賞 (2019).

木村 舜, Spin Chemistry Meeting 2019 Best Poster Award (2019)

草本哲郎, 第 5 回分子科学討論会 優秀講演賞 (2011).

草本哲郎, International School & Symposium on Multifunctional Molecule-based Materials (ISSMMM), first poster award in Chemistry (2011).

草本哲郎, 東京大学大学院理学系研究科研究奨励賞 (2010).

草本哲郎, 日本化学会第 88 春季年会学生講演賞 (2008).

草本哲郎, BCSJ Award (2006).

## B-7) 学会および社会的活動

### 学協会役員等

日本化学会東海支部代議員 (2019-).

錯体化学会副事務局長 (2019-).

錯体化学会ホームページ委員 (2019-).

錯体化学若手の会 中部・東海支部世話人 (2019-).

錯体化学会 将来計画委員会委員 (2017-).

錯体化学若手の会 事務局会計 (2017).

錯体化学若手の会 事務局代表 (2016).

錯体化学若手の会 関東支部世話人 (2012-2018).

### 学会の組織委員等

錯体化学会第 69 回討論会実行委員 (2019).

The 1<sup>st</sup> Asian Conference on Molecular Magnetism (ACMM2020) 組織委員 (2019).

43<sup>rd</sup> International Conference on Coordination Chemistry (ICCC 2018) セッション S3 主催 (2018).

錯体化学会第 67 回討論会シンポジウム S3 主催 (2017).

### その他

第 25 回錯体化学若手の会中部・東海支部勉強会主催 (2019).

錯体化学若手の会関東支部後期勉強会 2018 主催 (2018).

錯体化学若手の会関東支部前期勉強会 2018 主催 (2018).

錯体化学若手の会関東支部後期勉強会 2017 主催 (2017).

錯体化学若手の会関東支部前期勉強会 2017 主催 (2017).

錯体化学若手の会関東支部後期勉強会 2016 主催 (2016).

錯体化学若手の会関東支部前期勉強会 2016 主催 (2016).

錯体化学若手の会関東支部後期勉強会 2015 主催 (2015).

錯体化学若手の会関東支部前期勉強会 2015 主催 (2015).

錯体化学若手の会関東支部後期勉強会 2014 主催 (2014).

錯体化学若手の会関東支部前期勉強会 2014主催 (2014).  
錯体化学若手の会夏の学校 2014主催 (2014).  
錯体化学若手の会関東支部後期勉強会 2013主催 (2013).  
錯体化学若手の会関東支部前期勉強会 2013主催 (2013).  
錯体化学若手の会関東支部後期勉強会 2012主催 (2012).

#### B-8) 大学での講義, 客員

名城大学理工学部, 非常勤講師, 「錯体化学」, 2019年度後期.  
総合研究大学院大学物理科学研究科, 「機能物性化学」, 2019年5月-6月

#### B-10) 競争的資金

科研費挑戦的研究(萌芽), 「単層ヘテロスピリノハニカムナノシートの創製」, 草本哲郎 (2019年-2020年).  
加藤科学振興会研究助成, 「高効率発光を実現する革新的なラジカル分子材料の創出」, 草本哲郎 (2019年).  
池谷科学技術振興財団研究助成, 「グラフェン様ハニカムスピン配置を有する分子性二次元物質「ラジカルナノシート」の創製」, 草本哲郎 (2018年-2019年).  
科研費若手研究(A), 「発光開殻分子の異方的集積と光・電気・磁気機能の創出」, 草本哲郎 (2017年-2019年).  
科研費挑戦的萌芽研究, 「二重項発光の特長解明: ラジカルは高エネルギー効率なELデバイスを実現できるか?」, 草本哲郎 (2016年-2018年).  
イオン工学振興財団研究助成, 「金属ジチオレン錯体のイオン性結晶を基盤とする量子スピン液体の実現」, 草本哲郎 (2016年).  
松籟科学技術振興財団研究助成, 「ナノスケールフォトスピントロニクスを指向した有機ラジカルナノシートの創製」, 草本哲郎 (2015年).  
小笠原科学技術振興財団研究助成, 「ナノスケールフォトスピントロニクスを指向した二次元ポリマー物質「ラジカルナノシート」の創製と革新機能の創出」, 草本哲郎 (2015年).  
村田学術振興財団研究助成, 「ラジカル分子の二重項励起状態に基づく革新発光機能の増強」, 草本哲郎 (2014年).  
科研費若手研究(B), 「光スイッチング分子性導体」, 草本哲郎 (2012年-2015年).

#### 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、通常の閉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) ラジカルの発光寿命の磁場効果、(b) 化学刺激応答性ドナーアクセプター型発光ラジカルの合成と機能、(c) ヘテロスピン一次元鎖錯体の構造-物性相関に基づく新機能開拓、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)については新開発した発光ラジカルの発光の磁場効果を調べ、これまでの研究結果と比較することで、ラジカルの発光の磁場効果における「普遍性」と「非普遍性: 分子特有のパラメータ」を明らかにし、磁場効果発現メカニズムの全容解明に繋げる。(b) および(c) では、「ラジカルならではの発光特性」を実現することを目標に、新しい発光ラジカルならびにラジカル異方集積体の物質開発を進める。

## 6-8 特別研究部門

藤 田 誠 (卓越教授) (2018年4月1日着任)

A-1) 専門領域：錯体化学, 有機化学

A-2) 研究課題：

- a) 中空錯体に包接したタンパク質の科学
- b) 結晶スポンジ法と合成生物学を組み合わせた超速物質探索

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 我々は、配位結合駆動の自己集合により形成される中空錯体に、タンパク質を閉じ込める独自技術を開発した。現在、この技術を基盤とした、タンパク質関連技術の構築を推進している。具体的には、タンパク質の安定化、機能の向上や改変、更にはタンパク質の種類によらない結晶化手法の開発などを行っており、化学の分野のみならず生化学や構造生物学の分野に波及する研究を展開している。
- b) 近年、合成生物学的な技術を用いることで、新規天然由来化合物を迅速に取得することが可能になりつつある。こうした発展により、創薬シード化合物などの有用化合物の探索が容易になることが期待されている。しかし、取得した新規化合物を創薬の現場などで利用していくにあたっては、その化学構造を決定する必要がある。現状では、この構造決定の段階に、多くの時間と労力がかかることが問題となっている。そこで、我々が開発した構造決定技術である“結晶スポンジ法”を用いることで、この問題を解決し、新規化合物の探索と利用を大幅に加速することを狙っている。実際に、合成生物学的手法を駆使して見出だした新規化合物の内、NMR や MS だけでは構造決定困難な化合物を中心に構造決定に取り組み、解析に成功している。

B-1) 学術論文

**T. SAWADA, Y. INOMATA, K. SHIMOKAWA and M. FUJITA**, “A Metal-Peptide Capsule by Multiple Ring Threading,” *Nat. Commun.* **10**, 5687 (8 pages) (2019).

**Z. POWERS, A. SCHARF, A. CHENG, F. YANG, M. HIMMELBAUER, T. MITSUHASHI, L. BARRA, Y. TANIGUCHI, T. KIKUCHI, M. FUJITA, I. ABE and J. A. PORCO Jr.**, “Biomimetic Synthesis of Meroterpenoids by Dearomatization-Driven Polycyclization,” *Angew. Chem., Int. Ed.* **58**, 16141–16146 (2019).

**S. HOSHINO, T. MITSUHASHI, T. KIKUCHI, C. P. WONG, H. MORITA, T. AWAKAWA, M. FUJITA and I. ABE**, “Structural Elucidation of Tenebrathin: Cytotoxic C-5-Substituted  $\gamma$ -Pyrone with a Nitroaryl Side Chain from *Streptoalloteichus tenebrarius*,” *Org. Lett.* **21**, 6519–6522 (2019).

**B. CHRIST, C. XU, M. XU, F.-S. LI, N. WADA, A. J. MITCHELL, X.-L. HAN, M.-L. WEN, M. FUJITA and J.-K. WENG**, “Repeated Evolution of Cytochrome P450-Mediated Spiroketal Steroid Biosynthesis in Plants,” *Nat. Commun.* **10**, 3206 (11 pages) (2019).

**W. CULLEN, H. TAKEZAWA and M. FUJITA**, “Demethylenation of Cyclopropanes via Photo-Induced Guest-to-Host Electron Transfer in a  $M_6L_4$  Cage,” *Angew. Chem., Int. Ed.* **58**, 9171–9173 (2019).

**H. TAKEZAWA, T. KANDA, H. NANJO and M. FUJITA**, “Site-Selective Functionalization of Linear Diterpenoids through U-Shaped Folding in a Confined Artificial Cavity,” *J. Am. Chem. Soc.* **141**, 5112–5115 (2019).

**T. SAWADA, A. SAITO, K. TAMIYA, K. SHIMOKAWA, Y. HISADA and M. FUJITA**, “Metal–Peptide Rings form Highly Entangled Topologically Inequivalent Frameworks with the Same Ring- and Crossing-Numbers,” *Nat. Commun.* **10**, 921 (7 pages) (2019).

**Y. TACHI, S. SATO, M. YONEYA, M. FUJITA and Y. OKAMOTO**, “Two Polyhedral Frameworks of an  $M_{12}L_{24}$  Spherical Complex Revealed by Replica-Exchange Molecular Dynamics Simulations,” *Chem. Phys. Lett.* **714**, 185–189 (2019).

B-3) 総説, 著書

和田直樹, 藤田 誠, 「結晶スポンジ法による天然化合物の構造決定」, *ファルマシア* **55**, 668–670 (2019).

B-4) 招待講演

**M. FUJITA**, “Coordination Self-Assembly: From Origins to the Latest Advances,” XXXVII Biennial Of Chemistry, Donostia-San Sebastian (Spain), May 2019.

**M. FUJITA**, “Self-Assembly of Archimedean/non-Archimedean Solids Under Mathematical Restriction,” ISMSC2019, Lecce (Italy), June 2019.

**M. FUJITA**, “Coordination Self-Assembly: From the Origins to the Latest Advances,” Seminar, University of South Florida, Tampa (U.S.A.), April 2019.

**M. FUJITA**, “Coordination Self-Assembly: From the Origins to the Latest Advances,” Raymond Siedle Lecture, University of Indianapolis, Indianapolis (U.S.A.), April 2019.

**M. FUJITA**, “Crystalline Sponge Method for Synthetic and Natural Product Studies,” Inorganic Seminar, Indiana University, Bloomington (U.S.A.), April 2019.

**M. FUJITA**, “Coordination Self-Assembly: From Origins to the Latest Advances,” The 30<sup>th</sup> Anniversary Today-Unistra Symposium, Strasbourg (France), May 2019.

**M. FUJITA**, “Coordination Self-Assembly: From the Origins to the Latest Advances,” Padova (Italy), May 2019.

**M. FUJITA**, “Coordination Self-Assembly: From the Origins to the Latest Advances,” Siegfried Huenig Lectureship at Wuerzburg, Wuerzburg (Germany), June 2019.

**M. FUJITA**, “Coordination Self-Assembly: From the Origins to the Latest Advances,” seminar hosted by Prof. Ivan Huc, Munich (Germany), June 2019.

**M. FUJITA**, “Coordination Self-Assembly for Nanostructure Construction,” Nanjing Symposium, Nanjing (China), June 2019.

**M. FUJITA**, “Crystalline Sponge Method: Applications to Natural Product Chemistry and Drug Discovery,” SIMM, Shenzhen (China), September 2019.

B-6) 受賞, 表彰

藤田 誠, 有機合成化学奨励賞 (1994).

藤田 誠, ルイパスツール大学(仏)客員教授 (1999).

藤田 誠, 日本化学会 学術賞 (2000).  
藤田 誠, 東京テクノフォーラム ゴールドメダル賞 (読売新聞)(2001).  
藤田 誠, 日本IBM 科学賞 (2001).  
藤田 誠, ルイパスツール大学 (仏) 客員教授 (2002).  
藤田 誠, 名古屋シルバーメダル (2003).  
藤田 誠, Earl L. Muettterties Memorial Lecturers (UC Berkeley)(2003).  
藤田 誠, アイザット・クリステンセン賞 (2004).  
藤田 誠, G.W.Wheland Award (シカゴ大学 Lectureship 賞)(2006).  
藤田 誠, 中国人民大学化学系名誉教授 (2007).  
藤田 誠, 文部科学大臣表彰 科学技術賞 (研究部門)(2009).  
藤田 誠, 江崎玲於奈賞 (2010).  
藤田 誠, 錯体化学会賞 (2010).  
藤田 誠, H. C. Brown Lecturer (Purdue 大学) (2011).  
藤田 誠, 3M Lectureship Award (British Columbia 大学) (2011).  
藤田 誠, トムソン・ロイター 第3回リサーチフロントアワード (2012).  
藤田 誠, Kharasch Lecturers (シカゴ大学) (2012).  
藤田 誠, Abbott Lecturer (イリノイ大学) (2012).  
藤田 誠, 日本化学会賞 (2013).  
藤田 誠, Arthur C. Cope Scholar Award (アメリカ化学会賞)(2013).  
藤田 誠, Merck-Karl Pfister Visiting Professorship (MIT Lectureship 賞)(2013).  
藤田 誠, ISNSCE 2014 Nanoprize (2014).  
藤田 誠, 紫綬褒章 (2014).  
藤田 誠, Fred Basolo Medal (ノースウエスタン大学)(2014).  
藤田 誠, John Osborn Lecturer (ストラスブール大学)(2015).  
藤田 誠, ウルフ賞化学部門 (2018).  
藤田 誠, 千葉大学特別栄誉教授 (2018).  
藤田 誠, 廈門大学 Lujiaxi レクチャーシップ (2018).  
藤田 誠, 恩賜賞・日本学士院賞 (2019).  
藤田 誠, 東京大学卓越教授 (2019).

#### B-7) 学会および社会的活動

##### 学協会役員等

日本化学会論説委員 (2019- ).  
錯体化学会国際交流委員 (2013- ).  
錯体化学会理事 (2015- ), ホームページ委員 (2013- ).  
錯体化学会若手部会九州支部世話人 (2006-2010), 事務局 (2006).

学会の組織委員等

第43回錯体化学国際会議組織委員会(会期：2018年7月29日-8月4日)副委員長(2018).

学会誌編集委員

*Chemical Science* 誌, Editorial Board (2018-).

*Acc. Chem. Soc.* 誌, Editorial Board (2018-).

*Bull. Chem. Soc. Jpn.* 誌, Honorary Editorial Board (2018).

#### B-10) 競争的資金

科学技術振興機構ACCEL 研究,「自己組織化技術に立脚した革新分子構造解析」, 藤田 誠 (2014年-2019年).

日本医療研究開発機構創薬基盤推進研究事業,「結晶スポンジ法を活用する超速天然物ライブラリ構築と活性スクリーニング」, 藤田 誠 (2018年-2023年).

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-2024年).

#### C) 研究活動の課題と展望

我々のグループでは、自己組織化によって全く新しい空間を構築し、その前人未踏の空間における化学を探求することを基本に、研究活動を続けていく。特に、①タンパク質の空間的捕捉に立脚したタンパク質関連技術の開発、および、②結晶スポンジ法と合成生物学の掛け合わせによる新規化合物の探索・構造決定には、今後も精力的に取り組む予定である。①は、今後の発展次第では、タンパク質の利用・解析方法を大きく変革し、生化学・構造生物学の世界をはじめ、広範な領域にパラダイムシフトを起こす可能性を秘めた技術であると考えている。②においては、結晶スポンジ法を利用することで、新規化合物の発見を大幅に高速化すると同時に、様々な化合物を解析していくことを通じて、結晶スポンジ法の技術自体も更に向上させることを目指す。

## 6-9 社会連携研究部門

### 平等拓範（特任教授）（2019年4月1日着任）\*

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。特に近年のマイクロ固体フォトリニクス [マイクロチップ Nd:YVO<sub>4</sub> 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:LiNbO<sub>3</sub>（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，新たなフォトリ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，YVO<sub>4</sub> 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  $\mu\text{m}$ ），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  $\mu\text{m}$  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リニクスで実証した。アト秒発生に重要な中赤外 OPCPA では，

LA-PPMgLN を用い波長 2.1  $\mu\text{m}$  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

**S. W. JOLLY, N. H. MATLIS, F. AHR, V. LEROUX, T. EICHNER, A.-L. CALENDRON, H. ISHIZUKI, T. TAIRA, F. X. KÄRTNER and A. R. MAIER**, “Spectral Phase Control of Interfering Chirped Pulses for High-Energy Narrowband Terahertz Generation,” *Nat. Commun.* **10**, 2591 (8 pages) (2019).

**T. KAWASAKI, V. YAHIA and T. TAIRA**, “100 Hz Operation in the 10 PW/sr-cm<sup>2</sup> Class Nd:YAG Micro-MOPA,” *Opt. Express* **27**, 19555–19561 (2019).

川崎泰介, **V. YAHIA**, 平等拓範, 「100Hz 繰り返し 100mJ 高輝度マイクロ MOPA (Master Oscillator Power Amplifier)」, *レーザー研究* **47**, 221–224 (2019).

佐藤庸一, 平等拓範, 「非等方性結晶の透明セラミックス化」, *レーザー研究* **47**, 442–447 (2019).

**L. ZHENG, A. KAUSAS and T. TAIRA**, “>30 MW Peak Power From Distributed Face Cooling Tiny Integrated Laser,” *Opt. Express* **27**, 30217–30224 (2019).

**H. H. LIM and T. TAIRA**, “High Peak Power Nd:YAG/Cr:YAG Ceramic Microchip Laser with Unstable Resonator,” *Opt. Express* **27**, 31307–31315 (2019).

#### B-2) 国際会議のプロシーディングス

**N. H. MATLIS, S. W. JOLLY, F. AHR, V. LEROUX, T. EICHNER, A.-L. CALENDRON, K. RAVI, H. ISHIZUKI, T. TAIRA, A. R. MAIER and F. X. KAERTNER**, “Demonstration of 0.6mJ Multicycle THz Pulses via Chirp-and-Delay Down Conversion of Broadband Lasers with Precise Spectral Phase Tuning and Large PPLN,” *2018 43<sup>rd</sup> International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz 2018)*, Tu-A2-1b- 4 (2018).

**L. ZHENG and T. TAIRA**, “Surface Activated Bonding (SAB) Based Sub-Nanosecond Distributed Face Cooling (DFC) Handheld Laser,” *OSA Topical Meeting on Advanced Solid-State Lasers (ASSL)*, ATu5A.5 (2018).

**T. KAWASAKI, V. YAHIA and T. TAIRA**, “100Hz Operation in the PW/sr/cm<sup>2</sup> Class Micro-MOPA,” *OSA Topical Meeting on Advanced Solid-State Lasers (ASSL)*, ATu5A.6 (2018).

**H. H. LIM and T. TAIRA**, “14 MW Doughnut Beam Nd:YAG/Cr:YAG Ceramic Microchip Laser with Unstable Cavity,” *OSA Topical Meeting on Advanced Solid-State Lasers (ASSL)*, ATh2A.8 (2018).

**Y. SATO and T. TAIRA**, “Suppression of the Secondary Phase at Grain Boundaries in Yb:FAP Anisotropic Laser Ceramics,” *OSA Topical Meeting on Advanced Solid-State Lasers (ASSL)*, ATh3A.3 (2018).

**H. ISHIZUKI and T. TAIRA**, “Study on QPM Quartz for Intense-Laser Pumped 266 nm Generation,” *OSA Topical Meeting on Advanced Solid-State Lasers (ASSL)*, ATh4A.7 (2018).

- V. YAHIA and T. TAIRA**, “Theoretical and Experimental Study of Gain Aperture Device for Ubiquitous High Power Lasers,” *14<sup>th</sup> Laser Ceramics Symposium (LCS2018)*, P1-C-27K (2018).
- T. KAWASAKI, V. YAHIA and T. TAIRA**, “100Hz Repetition Rate and the PW/sr/cm<sup>2</sup> Class Micro-MOPA,” *14<sup>th</sup> Laser Ceramics Symposium (LCS2018)*, P1-C-27L (2018).
- L. ZHENG, A. KAUSAS and T. TAIRA**, “>30MW, Sub-Ns Tiny Integrated Laser for Robot Arm,” *14<sup>th</sup> Laser Ceramics Symposium (LCS2018)*, P1-C-27M (2018).
- H. H. LIM and T. TAIRA**, “High Peak-Power Doughnut-Mode Monolithic Nd:YAG/Cr:YAG Ceramic Microchip Laser,” *14<sup>th</sup> Laser Ceramics Symposium (LCS2018)*, P1-C-27N (2018).
- Y. SATO and T. TAIRA**, “Study of the Secondary Phase in Transparent Anisotropic Yb:FAP Ceramics,” *14<sup>th</sup> Laser Ceramics Symposium (LCS2018)*, P2-C-29C (2018).
- H. ISHIZUKI and T. TAIRA**, “Study on QPM-Structured Quartz by Sub-Nanosecond Microchip Laser Pumping,” *14<sup>th</sup> Laser Ceramics Symposium (LCS2018)*, P2-C-29E (2018).
- T. KAWASAKI, V. YAHIA and T. TAIRA**, “100 Hz Repetition Rate, >2 PW/sr-cm<sup>2</sup> Highly Brightness Micro-MOPA within the Paper Size A3,” *LASE, SPIE Photonics West 2019*, 10899-31 (2019).
- N. MATLIS and T. TAIRA**, “THz Acceleration for Compact electron & X-Ray Sources,” *6<sup>th</sup> Banff Meeting on Structural Dynamics* (2019).
- N. H. MATLIS, D. ZHANG, A. FALLAHI, M. FAKHARI, H. CANKAYA, A.-L. CALENDRON, F. AHR, K. RAVI, S. JOLLY, V. LEROUX, T. EICHNER, H. ISHIZUKI, T. TAIRA, A. R. MAIER and F. X. KAERTNER**, “THz-Based Acceleration for Compact Electron and X-Ray Sources,” *French-German Thz Conference 2019 (FGTC 2019)*, S05-6 (2019).
- V. YAHIA and T. TAIRA**, “Gain Aperture Study in High-Gain Conditions for High-Energy Micro-MOPA,” *The 7<sup>th</sup> Laser Ignition and Giant-microphtonics Conference (LIC 2019), OPIC 2019*, LIC3-02 (2019).
- T. KAWASAKI, V. YAHIA and T. TAIRA**, “100 Hz Repetition Rate, 190 mJ and 10 PW/sr/cm<sup>2</sup> Class Micro-MOPA,” *The 7<sup>th</sup> Laser Ignition and Giant-microphtonics Conference (LIC 2019), OPIC 2019*, LIC3-03 (2019).
- A. KAUSAS, L. ZHENG and T. TAIRA**, “Tiny Integrated Laser for Robot Arm Mounting,” *The 7<sup>th</sup> Laser Ignition and Giant-microphtonics Conference (LIC 2019), OPIC 2019*, LIC6-02 (2019).
- R. MIYAGAWA, S. YOSHIKAWA, H. H. LIM, T. TAIRA and O. ERYU**, “Dependence of Pulse-Width and Pulse-Number on LIPSS Formation by Ultra-Short Pulse Laser Irradiation,” *The 7<sup>th</sup> Laser Ignition and Giant-microphtonics Conference (LIC 2019), OPIC 2019*, LIC6-04 (2019).
- H. ISHIZUKI and T. TAIRA**, “QPM-Structured Quartz for Intense-Laser Pumped 266 nm Generation,” *The 7<sup>th</sup> Laser Ignition and Giant-microphtonics Conference (LIC 2019), OPIC 2019*, LICp-08 (2019).
- Y. SATO and T. TAIRA**, “Saturable Absorption in Cr<sup>4+</sup> YAG Ceramics,” *The 7<sup>th</sup> Laser Ignition and Giant-microphtonics Conference (LIC 2019), OPIC 2019*, LICp-09 (2019).
- A. KAUSAS, L. ZHENG and T. TAIRA**, “Tiny Integrated Laser by Room Temperature Surface Activated Bonding,” *6<sup>th</sup> International Workshop on Low Temperature Bonding for 3D Integration (LTB-3D)*, 220-06 (2019).
- H. H. LIM, T. TAIRA, H. OHBA and K. TAMURA**, “Fiber Microchip Laser Induced Breakdown Spectroscopy (FM-LIBS) as Alternative for Fiber Optic (FO) LIBS,” *International Topical Workshop on Fukushima Decommissioning Research (FDR2019)*, FDR2019-1109 (2019).

**K. TAMURA, H. OHBA, M. SAEKI, T. TAGUCHI, H. H. LIM, T. TAIRA, A. TAGAWA and I. WAKAIDA**, “Radiation Dose Rate Effects of Microchip-Laser Induced Breakdown Spectroscopy for Remote Analysis of Severe Accident Reactor,” *3<sup>rd</sup> Asian Symposium on Laser Induced Breakdown Spectroscopy (ASLIBS2019)*, P-35 (2019).

**F. CASSOURET, A. KAUSAS, G. AKA, P. LOISEAU and T. TAIRA**, “High Efficiency Third Harmonic Generation at 355 nm in CBF (Ca<sub>5</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>F) Single Crystal Using Micro-MOPA,” *OSA Topical Meeting on Advanced Solid-State Lasers (ASSL)*, AW1A.3 (2019).

**H. ISHIZUKI and T. TAIRA**, “Polarity Inversion of Crystal Quartz Using a QPM Stamp,” *OSA Topical Meeting on Advanced Solid-State Lasers (ASSL)*, AW1A.5 (2019).

**H. H. LIM, T. TAIRA, H. OHBA and K. TAMURA**, “Second Harmonic Generation Under High Dose-Rate Gamma Ray Irradiation,” *OSA Topical Meeting on Advanced Solid-State Lasers (ASSL)*, JW2A.22 (2019).

**T. KAWASAKI, V. YAHIA and T. TAIRA**, “Study of Microchip Laser Pulse Shaping Under Amplification,” *OSA Topical Meeting on Advanced Solid-State Lasers (ASSL)*, JW2A.24 (2019).

**V. YAHIA and T. TAIRA**, “Study of Gain Aperture Under High Pump Power for the Development of High-Brightness Ultra-Compact MOPA,” *OSA Topical Meeting on Advanced Solid-State Lasers (ASSL)*, JTh3A.11 (2019).

**Y. SANO, Y. SAKINO, K. MASAKI, T. SANO and T. TAIRA**, “Laser Peening with 10 mJ Class Pulse Energy and Its Application to Life Extension of Infrastructure,” *SPIE Photonics Asia 2019*, 11183-23 (2019).

B-3) 総説, 著書

平等拓範, 「内燃機関におけるレーザ着火——ジャイアントマイクロフォトンニクスの可能性——」, *静電気学会誌* **42**, 262–268 (2018).

佐野雄二, 「研究総括の役割 (ImPACT)」, 特別寄稿, *応用物理* **88**, 539–541 (2019).

**Y. SATO and T. TAIRA**, “Report on OPIC2019 the 7<sup>th</sup> Laser Ignition and Giant-Microphtonics Conference 2019 (LIC2019),” *The Review of Laser Engineering* **47**, 650–651 (2019).

B-4) 招待講演

平等拓範, 「ジャイアントマイクロフォトンニクスによるバイオ・イメージングの可能性」, 日本学術振興会, 第158委員会・185委員会 2018年度合同研究会, 浜松, 2018年10月.

平等拓範, 「Conference Report ASSL2018」, 光産業技術振興協会, 第3回光材料・応用技術研究会, 米原, 2018年11月.

**T. TAIRA**, “Micro Domain and Boundary Control for Ubiquitous Power Laser,” *Ceramic and Crystal Materials for Optics and Photonics, Materials Science & Technology 2018 (MS&T18)*, Ohio (U.S.A.), October 2018.

**T. TAIRA**, “Giant Micro-Photonics,” 14<sup>th</sup> Laser Ceramics Symposium (LCS2018), Okazaki (Japan), November 2018.

平等拓範, 「マイクロドメイン制御によるユビキタスパワーレーザー: バイオ, 加工から粒子加速まで」, 先端融合研究環極みプロジェクトキックオフシンポジウム, 神戸, 2019年1月.

平等拓範, 「自動車・移動体へのレーザー応用最前線」, レーザー学会学術講演会第39回年次大会, 東京, 2019年1月.

鄭 麗和, 平等拓範, 「レーザー材料の常温接合」, レーザー学会学術講演会 39回年次大会, 東京, 2019年1月.

佐藤庸一, 平等拓範, 「マイクロドメインの量子状態評価を基にした異方性レーザーセラミックスの設計」, レーザー学会学術講演会 39回年次大会, 東京, 2019年1月.

平等拓範,「20mJ 超を達成した手のひらサイズのサブナノ秒マイクロチップレーザー」, ImPACT 佐野 PM プログラム「ユビキタス・パワーレーザーによる安全・安心・長寿社会の実現」最終シンポジウム成果報告会, 東京, 2019年 2月.

**T. TAIRA**, “Giant Micro-Photonics Toward Tiny Integrated Power Laser,” SPIE Optics + Optoelectronics 2019, Prague (Czech), April 2019.

**T. TAIRA**, “Opening Remarks,” The 7<sup>th</sup> Laser Ignition and Giant-microphtonics Conference (LIC 2019), OPIC 2019, Yokohama (Japan), April 2019.

**H. H. LIM and T. TAIRA**, “Mechanism of Pulse-Width Scaling Law of Laser Induced Breakdown Threshold in Air,” The 7<sup>th</sup> Laser Ignition and Giant-microphtonics Conference (LIC 2019), OPIC 2019, Yokohama (Japan), April 2019.

**I. WAKAIDA, H. OHBA, K. TAMURA, K. AKAOKA, M. OBA, M. MIYABE, H. H. LIM and T. TAIRA**, “Non-Separation, Direct and In Situ Remote Analysis for Surveillance and Characterization of Nuclear Debris in Decommissioning of Fukushima Daiichi Nuclear Power Station by Fiber-Optic Laser Induced Breakdown Spectroscopy,” The 7<sup>th</sup> Laser Ignition and Giant-microphtonics Conference (LIC 2019), OPIC 2019, Yokohama (Japan), April 2019.

**T. TAIRA and H. ISHIZUKI**, “High Average Power Ultrafast Lasers: Large Aperture Quasi-Phase Matched Nonlinear Devices,” CLEO 2019, San Jose (U.S.A.), May 2019.

**H. H. LIM and T. TAIRA**, “High Brightness Microchip Lasers and Applications,” Proceedings of 18<sup>th</sup> Advanced Lasers and Their Applications (ALTA 2019), Jeju (Korea), May 2019.

**T. TAIRA**, “Dramatical Improvement of Surface Damage Threshold in Laser Ceramics,” International Conference on Pacific Rim Laser Damage & Thin Film Physics and Applications (SPIE-PLD/TFPA 2019), Qingdao (China), May 2019.

**T. TAIRA**, “Giant Micro-Photonics: Tiny Integrated High-Brightness Laser,” 8<sup>th</sup> International Symposium on Optical Materials (IS-OM8), Wroclaw (Poland), June 2019.

平等拓範,「マイクロチップ小型集積パワーレーザの開発」, 第 91 回レーザ加工学会講演会, 大阪, 2019年 6月.

**T. TAIRA**, “Micro Solid-State Photonics from Laser Ceramics Toward Tiny Integrated Laser,” 8<sup>th</sup> Applied Optics and Photonics China (AOPC 2019), Beijing (China), July 2019.

**T. TAIRA**, “Tiny Integrated Lasers Based on Micro Solid-State Photonics,” 7<sup>th</sup> IAPLE Annual Conference (IAPLE 2019), Hokkaido (Japan), July 2019.

**T. TAIRA**, “Micro Solid-State Photonics for High Power Laser Ceramics,” 15<sup>th</sup> Laser Ceramics Symposium (LCS2019), Zakopane (Poland), September 2019.

#### B-5) 特許出願

特願 2019-023641,「レーザ加工装置及びレーザ加工方法」, 平等拓範, 鄭 麗和, 林 桓弘, 佐野雄二(自然科学研究機構), 2019年.

特願 2018-173008,「光発振器」, 平等拓範, 林 桓弘(自然科学研究機構), 2018年.

特願 2019-113115,「光学素子の製造方法及び光学素子」, 平等拓範, カウシャス アルヴィダス, 鄭 麗和(自然科学研究機構), 2019年.

特願 2019-064157,「レーザ点火装置, 宇宙用エンジン及び航空用エンジン」, 平等拓範 (IHI (株), IHI エアロスペース (株), 自然科学研究機構), 2019年.

特願 2019-160502,「水晶光学素子及びその製造方法」, 石月秀貴, 平等拓範(自然科学研究機構), 2019年.

特願 2019-170783, 「レーザ装置及びパルス幅変更方法」, 平等拓範, 川崎泰介, ヤヒア ヴァンサン(自然科学研究機構), 2019年.

#### B-6) 受賞, 表彰

斎川次郎, 応用物理学会北陸支部発表奨励賞 (1998).

平等拓範, 第 23 回(社)レーザー学会業績賞(論文賞)(1999).

平等拓範, 第 1 回(財)みやぎ科学技術振興基金研究奨励賞 (1999).

平等拓範, 他, 第 51 回(社)日本金属学会金属組織写真奨励賞 (2001).

庄司一郎, 第 11 回(2001 年秋季)応用物理学会講演奨励賞 (2001).

平等拓範, 他, (社)日本ファインセラミックス協会技術振興賞 (2002).

平等拓範, 文部科学省文部科学大臣賞(第 30 回研究功績者) (2004).

**N. PAVEL**, The ROMANIAN ACADEMY Awards, The “Constantin Miculescu” Prize (2004).

斎川次郎, 佐藤庸一, 池末明生, 平等拓範, 第 29 回(社)レーザー学会業績賞(進歩賞)(2005).

秋山 順, 愛知県若手研究者奨励事業第 2 回「わかしゃち奨励賞(優秀賞)」(2008).

平等拓範, 第 24 回光産業技術振興協会櫻井健二郎氏記念賞 (2008).

秋山 順, 浅野秀文, 岩井一彦, 浅井滋生, 日本金属学会第 56 回論文賞 (2008).

秋山 順, 第 26 回(2009 年春季)応用物理学会講演奨励賞 (2009).

栗村 直, 平等拓範, 谷口浩一, 三菱電線工業(株)平成 21 年度発明考案表彰(アメリカ特許 7106496 号「波長変換用, 光演算用素子」他) (2010).

平等拓範, 米国光学学会(OSA)フェロー (2010).

常包正樹, 猪原孝之, 安藤彰浩, 木戸直樹, 金原賢治, 平等拓範, 第 34 回(社)レーザー学会業績賞(論文賞)オリジナル部門 (2010).

平等拓範, 米国電気電子学会(IEEE)シニア・メンバー (2011).

平等拓範, 国際光工学会(SPIE)フェロー (2012).

石月秀貴, 平等拓範, 第 37 回(社)レーザー学会業績賞(進歩賞) (2013).

平等拓範, 米国電気電子学会(IEEE)フェロー (2014).

**T. GOTO, R. MORIMOTO, J. PRITCHARD, N. PAVEL, T. YOSHIMOTO, H. TAKAGI, Y. NAKAMURA, P. B. LIM, M. MINA, T. TAIRA and M. INOUE**, MORIS2015 Best Poster Award, 147<sup>th</sup> Committee on Amorphous and Nano-Crystalline Materials, Japan Society for the Promotion of Science (2015).

平等拓範, (公財)レーザー技術総合研究所泰山賞レーザー進歩賞 (2017).

**Y. SATO**, The 6<sup>th</sup> Laser Ignition Conference 2018 (LIC'18), The Best Poster Presentation (2018).

**V. YAHIA**, The 6<sup>th</sup> Laser Ignition Conference 2018 (LIC'18), The Best Poster Presentation (2018).

**T. TAIRA**, The International Academy of Photonics & Laser Engineering (IAPLE) フェロー (2018).

平等拓範, (社)レーザー学会フェロー (2019).

#### B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

レーザー学会レーザー素子機能性向上に関する専門委員会幹事 (1997-1999).

レーザー学会研究会委員 (1999-).

電気学会高機能全固体レーザーと産業応用調査専門委員会幹事 (1998-2002).

レーザー学会レーザー用先端光学材料に関する専門委員会委員 (2000-2002).

光産業技術振興協会光材料・応用技術研究会幹事 (2004-).

レーザー学会評議員 (2005-).

レーザー学会「マイクロ固体フォトニクス」専門委員会主査 (2006-2009).

米国光学学会 Optical Society of America (OSA) 非線形光学テクニカル・グループ議長 (2008-2012).

応用物理学会日本光学会レーザーディスプレイ技術研究グループ顧問 (2008-2012), 実行委員 (2012-).

財団法人光産業技術振興協会多元技術融合光プロセス研究会幹事 (2009-2018).

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 (2009-2011).

レーザー学会「マイクロ固体フォトニクスの新展開」専門委員会主査 (2009-2012).

米国光学学会 The Optical Society (OSA) フェロー (2010-).

科学技術交流財団「ジャイアントマイクロフォトニクスII」研究会座長 (2011-2013).

レーザー学会「マイクロ固体フォトニクス」技術専門委員会主査 (2012-2018).

国際光工学会 The International Society for Optical Engineering (SPIE) (米国) フェロー (2012-).

科学技術交流財団「ジャイアントマイクロフォトニクスIII」研究会座長 (2013-2015).

米国光学学会 The Optical Society (OSA) 評議員 (Council, Board of Meeting) (2014-).

米国電気電子学会 The Institute of Electrical and Electronics Engineers (IEEE) フェロー (2014-).

科学技術交流財団「ジャイアントマイクロフォトニクスIV」研究会座長 (2015-2017).

米国光学学会 The Optical Society (OSA), Charles Hard Townes Award 表彰委員会委員 (Award Committee) (2015-2016).

日本燃焼学会「レーザー点火研究分科会」研究委員会研究分科会主査 (2016).

7<sup>th</sup> EPS (欧州物理学会) —QEOD Europhoton Conference, Research in Laser Science and Applications Prize 2016 国際会議審査員 (2016).

第24回国際光学委員会総会 (ICO-24), Nonlinear Optics カテゴリチェア (2016-2017).

レーザー学会「ユビキタス・パワーレーザー」技術専門委員会主査 (日本, 大阪府)(2018-2021).

科学技術交流財団「マイクロ固体フォトニクス」研究会座長 (日本, 豊田市)(2018-2020).

#### 学会の組織委員等

OSA, Advanced Solid-State Photonics (ASSP 2008) 国際会議プログラム委員会共同議長 (2007-2008).

OSA, Nonlinear Optics (NLO 2009) 国際会議プログラム委員会共同議長 (2008-2009).

CLEO/PacificRim 2009 国際会議分科委員会共同議長 (2008-2009).

OSA, Advanced Solid-State Photonics (ASSP 2009) 国際会議プログラム委員会共同統括議長 (2008-2009).

OSA, Nonlinear Optics (NLO 2011) 国際会議プログラム委員会共同統括議長 (2010-2011).

1<sup>st</sup> Laser Ignition Conference (LIC'13) 国際会議プログラム委員会共同統括議長 (2012-2015).

LASERS 2001 国際会議プログラム委員 (2001).

レーザー学会学術講演会プログラム委員 (2001, 2004, 2006).

CLEO/PacificRim 2005 国際会議プログラム委員 (2004-2005).

OSA, Advanced Solid-State Photonics 国際会議プログラム委員 (2005-2010).

23<sup>rd</sup> International Laser Radar Conference 国際会議実行委員 (2005–2006).  
Int. Conf. “Micro- to Nano-Photonics—ROMOPT 2006” プログラム委員 (2005–2006).  
CLEO, Nonlinear Optics Application 国際会議分科委員 (2006–2009).  
OSA, Nonlinear Optics 国際会議プログラム委員 (2006–2011).  
3<sup>rd</sup> Laser Ceramics Symposium: International Symposium on Transparent Ceramics for photonic applications 国際会議諮問委員 (2006–2007).  
APLS 2008 国際会議プログラム委員 (2007–2008).  
3<sup>rd</sup> EPS Europhoton Conference on Solid-State and Fiber Coherent Light Sources 国際会議分科委員 (2007–2008).  
レーザー学会学術講演会第 28 回年次大会実行委員会委員 (2007).  
レーザー・光波・マイクロ波国際会議 2008 (ILLMC2008) 国際学会諮問委員 (2008).  
International Workshop on Holographic Memories (IWHM) 2008 プログラム委員会委員 (2008).  
OECC2008 「CLEO Focus: Frontiers in Photonics」プログラム分科委員会委員 (2008).  
4<sup>th</sup> Laser Ceramics Symposium: International Symposium on Transparent Ceramics for Laser 国際会議諮問委員 (2008).  
Int. Conf. “Micro- to Nano-Photonics II—ROMOPT 2009” プログラム委員 (2008–2009).  
レーザー学会学術講演会第 30 回年次大会実行委員会委員 (2009).  
4<sup>th</sup> Europhoton Conference on “Solid-State, Fiber and Waveguide Coherent Light Sources” 国際会議分科委員 (2009–2010).  
International Workshop on Holographic Memories & Display (IWHM&D2010) 国際会議プログラム委員会委員 (2010).  
Lasers and Their Applications Symposium, Photonics Global Conference 2010 国際会議テクニカル・プログラム委員会委員 (2010).  
EQEC 2011, Fundamentals of Nonlinear Optics 国際会議分科委員 (2010–2011).  
Advances in Optical Materials (AIOM 2011) 国際会議プログラム委員会委員 (2010–2011).  
CLEO 2011: Science & Innovations 2: Solid-State, Liquid and Gas Lasers 国際会議諮問委員 (2010–2011).  
IQEC/CLEO Pacific Rim 2011, Ultrafast Optics and Photonics 国際会議分科委員会諮問委員 (2010–2011).  
Laser Ceramics Symposium (7<sup>th</sup> LCS): International Symposium on Transparent Ceramics for Photonic Applications 国際会議国際諮問委員 (2011).  
Pacific Rim Laser Damage Symposium—Optical Materials for High Power Lasers 国際委員会委員 (2011).  
Advances in Optical Materials (AIOM 2012) 国際会議プログラム委員会委員 (2011–2012).  
4<sup>th</sup> International Conference on “Smart Materials, Structures and Systems” (CIMTEC 2012), Symposium F “Smart & Adaptive Optics” 国際会議国際諮問委員 (2011–2012).  
Optics & Photonics International Congress 2012 (OPIC2012), Advanced Laser & Photon Source (ALPS’ 12) 国際会議実行委員会およびプログラム委員会委員 (2011–2012).  
5<sup>th</sup> EPS Europhoton Conference on “Solid-State and Fiber and Waveguide Coherent Light Sources” 国際会議分科委員 (2011–2012).  
Laser Damage of SPIE プログラム委員 (2011–2012).  
レーザー学会学術講演会第 32 回年次大会プログラム委員 (2011–2012).  
Int. Conf. “Micro- to Nano-Photonics III —ROMOPTO 2012” 国際会議プログラム委員 (2011–2012).  
レーザー学会レーザーの農業応用専門委員会委員 (2012–2014).

APLS 2012国際会議プログラム委員 (2012).  
レーザー学会諮問員 (2012–2015).  
レーザー学会レーザー照明・ディスプレイ専門委員会委員 (2012–2015).  
CLEO 2013: Science & Innovations O2: Solid-State, Liquid, Gas, and High-Intensity Lasers 国際会議諮問委員 (2012–2013).  
レーザー学会レーザー衝撃科学の基礎と応用専門委員会委員 (2012–2015).  
Optics & Photonics International Congress 2013 (OPIC2013) 国際会議組織委員会委員 (2012–2013).  
International Workshop on Holography and related technologies 2012 (IWH 2012) 国際会議プログラム委員会委員 (2012).  
8<sup>th</sup> Laser Ceramics Symposium (LCS): International Symposium on Transparent Ceramics for Photonic Applications 国際会議プログラム委員会委員 (2012).  
SPIE/SIOM Pacific Rim Laser Damage 2013 国際会議国際委員会委員 (2012–2013).  
CLEO-PR 2013 国際会議プログラム委員会委員 (2012–2013).  
Materials Committee, Advanced Solid State Lasers (ASSL) 2013 国際会議プログラム委員会委員 (2012–2013).  
International Workshop on Holography and Related Technologies 2013 (IWH 2013) 国際会議プログラム委員会委員 (2013).  
Optics & Photonics International Congress 2014 (OPIC2014) 国際会議組織委員会委員 (2013–2014).  
9<sup>th</sup> Laser Ceramics Symposium (LCS): International Symposium on Transparent Ceramics for Photonic Applications 国際会議諮問委員 (2013).  
SPIE Photonics Europe 2014 —Laser Sources and Applications (EPE11) 国際会議委員会共同議長 (2013–2014).  
応用物理学学会学術講演会プログラム編集委員会委員 (2013–2014).  
Materials Committee, Advanced Solid State Lasers (ASSL) 2014 国際会議プログラム委員会委員 (2013–2014).  
Optics & Photonics International Congress 2015 (OPIC2015) 国際会議組織委員会委員 (2014–2015).  
10<sup>th</sup> Laser Ceramics Symposium (LCS2014): International Symposium on Transparent Ceramics for Photonic Applications 国際会議諮問委員 (2014).  
2<sup>nd</sup> Laser Ignition Conference (LIC' 14) 国際会議プログラム委員会統括議長 (2013–2014).  
3<sup>rd</sup> Pacific-rim Laser Damage (PLD' 14) 国際会議プログラム委員会委員 (2013–2014).  
3<sup>rd</sup> Laser Ignition Conference (LIC' 15) 国際会議プログラム委員会統括議長 (2014–2015).  
SPIE Photonics West 2015—Components and Packaging for Laser Systems (Conference 9346) 国際会議プログラム委員会委員 (2014–2015).  
SPIE/SIOM Pacific Rim Laser Damage 2015 国際会議国際委員会委員 (2015).  
The 11<sup>th</sup> Pacific Rim Conference of Ceramic Societies (PacRim-11), III. NANOTECHNOLOGY AND STRUCTURAL CERAMICS, Symposium 16—Transparent Ceramics 幹事 (2015).  
Materials Committee, Advanced Solid State Lasers (ASSL) 2015 国際会議プログラム委員会委員 (2015).  
Nonlinear Optics (NLO) 2015 国際会議諮問委員 (2015).  
SPIE Photonics West 2016—Components and Packaging for Laser Systems II (Conference LA105) 国際会議プログラム委員会委員 (2015–2016).  
レーザー学会学術講演会第36回年次大会プログラム委員 (担当: B. レーザー装置主査) (2015–2016).  
Optics & Photonics International Congress 2016 (OPIC2016) 国際会議組織委員会委員 (2015–2016).  
4<sup>th</sup> Laser Ignition Conference (LIC' 16) 国際会議統括議長 (2015–2016).

SPIE Photonics Europe 2016—Laser Sources and Applications (EPE111) 国際会議委員会共同議長 (2015–2016).  
Nonlinear Optics (NLO) 2017 国際会議諮問委員 (2015–2017).  
SPIE/SIOM Pacific-Rim Laser Damage (PLD'16) 国際会議国際委員会委員 (2015–2016).  
SPIE/SIOM Pacific Rim Laser Damage 2017 (PLD2017) 国際会議国際委員会委員 (2016–2017).  
SPIE Photonics West 2016—Components and Packaging for Laser Systems II (Conference LA105) 国際会議プログラム委員会委員 (2016–2017).  
Materials Committee, Advanced Solid State Lasers (ASSL) 2016 国際会議プログラム委員会委員 (2016).  
12<sup>th</sup> Laser Ceramics Symposium (LCS2016): International Symposium on Transparent Ceramics for Photonic Applications 国際会議プログラム委員会委員 (2016).  
Optics & Photonics International Congress 2017 (OPIC2017) 国際会議組織委員会委員 (2016–2017).  
The 6<sup>th</sup> Laser Display and Lighting Conference (LDC2017) 国際会議プログラム委員会委員 (2016–2017).  
Advanced Lasers & Photon Sources (APLS'17) 国際会議プログラム委員会委員 (2016–2017).  
5<sup>th</sup> Laser Ignition Conference (LIC'17) 国際会議プログラム委員会議長 (2016–2017).  
米国光学会 (OSA) Advanced Solid State Lasers (ASSL) 2017 国際会議統括議長 (2016–2017).  
Pacific Rim Laser Damage 2018 (PLD2018) 国際会議国際委員会委員 (2016–2017).  
Optics & Photonics International Congress 2018 (OPIC2018), Advanced Laser & Photon Source (ALPS2018), 国際会議プログラム委員会委員 (2017–2018).  
Optics & Photonics International Congress 2018 (OPIC2018) 国際会議組織委員会委員 (2017–2018).  
The 13<sup>th</sup> Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology (PACRIM 13) 組織委員会委員 (2017–2019).  
レーザー学会学術講演会第 38 回年次大会プログラム委員 (主査) (2017–2018).  
First International Conference on Optics, Photonics and Lasers (OPAL'2018) 国際会議プログラム委員会委員 (2017–2018).  
Mid-Infrared Coherent Sources 2018 (MICS 2018) テクニカル・プログラム委員会委員 (2017–2018).  
SPIE 8<sup>th</sup> Applied Optics and Photonics China (AOPC 2019), Conf1: Advanced Laser Materials and Laser Technology 国際会議委員会共同議長 (中国, 北京) (2018–2019).  
Optics & Photonics International Congress 2019 (OPIC2019) 国際会議組織委員会委員 (日本, 横浜) (2018–2019.6).  
The 8<sup>th</sup> Pacific Rim Laser Damage (SPIE-PLD2019) 国際会議テクニカルプログラム委員会委員 (中国, 青島) (2018–2019).  
Advanced Solid State Laser Conference (ASSL'19), Materials 国際会議プログラム委員会委員 (オーストリア, ウィーン) (2018–2019).  
SPIE Photonics West 2019, -Components and Packaging for Laser Systems V (Conference 10899) 国際会議プログラム委員会委員 (米国, サンフランシスコ) (2018–2019).  
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) (2020–2023).  
Mid-Infrared Coherent Sources (MICS) 2020, テクニカル・プログラム委員会委員 (チェコ, プラハ) (2019–2020).  
Pacific Rim Laser Damage 2020 (PLD2020), 国際会議国際委員会委員 (日本, 横浜) (2019–2020).  
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政策研究所科学技術動向研究センター専門調査員 (2006–).  
日本学術振興会特別研究員等審査会専門委員及び国際事業委員会書面審査員 (2008–2010).  
日本学術振興会光エレクトロニクス第 130 委員会委員 (2007–), 幹事 (2008–).

日本学術振興会科学研究費委員会専門委員 (2011–2013, 2015–2018).

日本学術振興会生体ひかりイメージング技術と応用第 185 委員会委員 (2011–2017).

新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO) 評価委員 (2005–2006), 技術委員 (2011–2020), 事前書面審査 (2013–2018).

大阪大学光科学センター可視光半導体レーザー応用コンソーシアム応用課題検討専門委員会委員 (2014–2016).

科学技術振興機構革新的研究開発推進プログラム (ImPACT) 評価協力者 (2015–2017).

日本学術振興会接合界面創成技術第 191 委員会委員 (2017–).

学会誌編集委員

*Journal of Optical Materials*, ELSEVIER, 編集委員会委員 (2010–2013).

*Journal of Optical Materials Express*, The Optical Society (OSA), シニア編集委員会委員 (2010–2016).

*Fibers* (<http://www.mdpi.com/journal/fibers>, ISSN 2079-6439), MDPI, 編集委員会委員 (2012–2013).

*IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics (JSTQE) on Solid-State Lasers*, The Primary Guest Editor for this issue (2013–2015).

Nonlinear Optics (NLO) 2015 Feature Issue, *Opt. Mater. Express* **6**, 466–468 (2016), ゲスト編集委員 (2015–2016).

Advanced Solid State Lasers (ASSL) 2015 Feature Issue, *Opt. Express* **24**, 5674–5682 (2016), ゲスト編集委員 (2015–2016).

2016 Advanced Solid State Lasers (ASSL), Joint Feature Issue in *Opt. Express* and *Opt. Mater. Express*, ゲスト編集委員 (2017).

その他

愛知県産業労働部愛知県若手奨励賞審査員 (2007–2010).

日本原子力研究開発機構研究系職員採用試験研究業績評価委員会委員 (2008–2011).

日本原子力研究開発機構任期付研究員研究業績評価委員会委員 (2011–2016).

出前授業「レーザー研究の最先端と可能性」岡崎市立東海中学校 (2018).

## B-10) 競争的資金

科学技術振興機構産学共同シーズイノベーション化事業, 育成ステージ, 「車載型マイクロレザ点火エンジンの低燃費・高出力特性の実証研究」, 研究リーダー, 平等拓範 (シーズ育成プロデューサー (株)日本自動車部品総合研究所) (2008年–2011年).

科研費基盤研究(B), 「小型可搬な広帯域波長可変中赤外レーザーの開発研究」, 平等拓範 (2009年–2011年).

科学技術振興機構先端計測分析技術・機器開発プログラム (機器開発タイプ), 「次世代質量イメージングのためのUVマイクロチップレーザーを用いた計測システムの開発」, 平等拓範 (2010年–2013年).

科研費基盤研究(C), 「超短パルス発生への適用を目指した傾斜型擬似位相整合デバイスの研究」, 石月秀貴 (2010年–2012年).

科学技術交流財団平成 24 年度共同研究推進事業, 「エンジン点火用高輝度マイクロチップレーザー」, 研究統括者 平等拓範 (2012年–2013年).

科研費基盤研究(C), 「大口径広帯域擬似位相整合デバイスを用いた高出力超短パルス発生の研究」, 石月秀貴 (2013年–2015年).

科学技術振興機構先端計測分析技術・機器開発プログラム (実証・実用化タイプ), 「次世代質量イメージング用UVマイクロチップレーザー」の実用実証化」, 平等拓範 (2013年–2015年).

NEDO 戦略的省エネルギー技術革新プログラム, 「高性能ジャイアントパルスマイクロチップレーザー (GP-MCL) の開発」, 再委託 (研究代表 リコー, デンソー) (2013年–2017年).

革新的研究開発推進プログラム (ImPACT) 「ユビキタス・パワーレーザーによる安全・安心・長寿社会の実現(佐野 PM)」, 「マイクロチップレーザーの開発」, 平等拓範 (2014年-2018年).

科研費基盤研究 (A), 「マイクロ固体フォトニクスによる次世代レーザー点火・燃焼計測」, 平等拓範 (2015年-2017年).

文部科学省平成 28年度技術試験研究委託事業, 「先進的光計測技術を駆使した炉内デブリ組成遠隔その場分析法の高度化研究」, 再委託 (研究代表原子力機構廃炉国際共同研究センター若井田育夫), 平等拓範 (2016年-2018年).

科学技術振興機構 CREST 研究, 「ホログラム光刺激による神経回路再編の人為的創出」, 再委託 (研究代表神戸大学和氣弘明), 平等拓範 (2017年-2022年).

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」, 再委託 (研究代表公益財団法人高輝度光科学研究センター熊谷教孝), 平等拓範 (2017年-2026年).

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」 (② a.10KHz 赤外 OPCPA 光源の開発), 再委託 (東京大学), 平等拓範 (2018年-2019年).

#### B-11) 産学連携

(株) コンボン研究所, 「マイクロ固体フォトニクスの基礎研究」, 平等拓範 (2019年).

(株) 村田製作所, 「水晶波長変換デバイスの研究」, 平等拓範 (2019年).

(株) 豊田中央研究所, 「マイクロチップレーザーを活用した材料加工技術の開発」, 平等拓範 (2019年).

#### 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、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。

\*) 2018年10月1日理化学研究所放射光科学研究センターグループディレクター

## 6-10 研究施設等

### 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) ORION（Okazaki Research Institutes Organization Network）2017の構築及び運用を通して，内部ユーザ及び端末の事前登録による認証基盤や，端末のネットワークへの自動接続制御，所外者（ゲスト）に対する認証ネットワークの開発・構築，運用等を行ってきた。この他にも，ネットワーク運用負荷の低減，システム可用性の向上及びセキュリティ向上を配慮した安定的なネットワーク運用が行えるようにした。昨年度より，岡崎3機関 CSIRT チームリーダーに指名され，CSIRT 構築の検討と実際の構築・運用を行なっている。CSIRT 構築検討を通して，現在運用中の ORION2017 では高度化する情報セキュリティへの対応及び情報セキュリティ運用担当者の負担が軽減出来ないことがあらわになり，その対策として次期 ORION までのつなぎとなる情報セキュリティ強化策の策定及び実施を行なった。主な対策は，情報セキュリティ専任担当者の新規雇用及びログ解析基盤の強化等である。これによりログ集約を更に進め自動解析による業務フローの自動化などの対象範囲の拡大が出来る環境を整えることが出来た。
- b) 昨年度に行なわれた機構情報セキュリティポリシーの改訂による処理すべきログ量の増加に対応する新システムの設計と構築を行なった。これにより，解析すべきセキュリティ機器やネットワーク機器，サーバ等の増加に対応しつつ，現実的な処理時間内でそのデータを解析するシステムの整備が行えた。これにより，特にサイバーセキュリティの業務フローの自動化推進が期待できる。

B-4) 招待講演

大野人侍，「本番環境に必要なストレージシステム」，(株)DDN Tintri 事業部「Tintricity 2019」，東京，2019年5月。

C) 研究活動の課題と展望

ソフトウェアを用いたネットワーク及びサイバーセキュリティの自動制御及びログ解析等によるネットワーク及びサイバーセキュリティの自動最適化の連携を推し進めるとともに，近年急激にその重要性及び業務量が増した情報セキュリティへの対応を進める事が喫緊の課題となっている。システム化は単純な自動化だけではなく，人間による判断を意図的に挿入するなど出来なければならない。

しかしながら，ネットワーク運用の複雑性や情報セキュリティ業務過多などの状況を考慮し，過度に運用者への負担にならないよう，更に言えば，負担軽減につながるようなシステムで無ければならず，これら新たに加わった視点への対応も考える

必要がある。ログ解析基盤等、現在運用を進めているシステムに関しても技術面だけではなく、既存業務フローとの適合を考慮すると共に、情報セキュリティポリシーへの適合の自動確認等、運用面での考慮を行なったシステム開発を行なっていく必要がある。

更に、2022年4月から運用開始となる予定の次期ORIONに関して新たな認証基盤の構築が必要となり、その研究と実験的実装を行っていく必要がある。

## 技術課及び安全衛生管理室

### B-1) 学術論文

**J. R. HARRIES, H. IWAYAMA, S. KUMA, M. IIZAWA, N. SUZUKI, Y. AZUMA, I. INOUE, S. OWADA, T. TOGASHI, K. TONO, M. YABASHI and E. SHIGEMASA**, “Superfluorescence, Free-Induction Decay, and Four-Wave Mixing: Propagation of Free-Electron Laser Pulses through a Dense Sample of Helium Ions,” *Phys. Rev. Lett.* **121**, 263201 (6 pages) (2018).

**Y. HIKOSAKA and E. SHIGEMASA**, “Metastability of Carbonyl Sulfide Dications Studied by Multi-Electron–Ion Coincidence Spectroscopy,” *Int. J. Mass Spectrom.* **439**, 13–18 (2019).

**Y. IE, Y. OKAMOTO, T. INOUE, S. TONE, T. SEO, Y. HONDA, S. TANAKA, S. K. LEE, T. OHTO, R. YAMADA, H. TADA and Y. ASO**, “Highly Planar and Completely Insulated Oligothiophenes: Effects of  $\pi$ -Conjugation on Hopping Charge Transport,” *J. Phys. Chem. Lett.* **10**, 3197 (8 pages) (2019).

**J. MORIMOTO, Y. FUKUDA, D. KURODA, T. WATANABE, F. YOSHIDA, M. ASADA, T. NAKAMURA, A. SENOO, S. NAGATOISHI, K. TSUMOTO and S. SANDO**, “A Peptoid with Extended Shape in Water,” *J. Am. Chem. Soc.* **141**, 14612 (12 pages) (2019).

**M. NAGASAKA, H. YUZAWA, N. TAKADA, M. AOYAMA, E. RÜHL and N. KOSUGI**, “Laminar Flow in Microfluidics Investigated by Spatially-Resolved Soft X-Ray Absorption and Infrared Spectroscopy,” *J. Chem. Phys.* **151**, 114201 (7 pages) (2019).

**H. YAMANE, F. MATSUI, T. UEBA, T. HORIGOME, S. MAKITA, K. TANAKA, S. KERA and N. KOSUGI**, “Acceptance-Cone-Tunable Electron Spectrometer for Highly-Efficient Constant Energy Mapping,” *Rev. Sci. Instrum.* **90**, 093102 (7 pages) (2019).

**G. KAWAGUCHI, A. A. BARDIN, M. SUDA, M. URUICHI and H. M. YAMAMOTO**, “An Ambipolar Superconducting Field-Effect Transistor Operating above Liquid Helium Temperature,” *Adv. Mater.* **31**, 1805715 (6 pages) (2019).

### B-8) 大学での講義, 客員

繁政英治, 新潟大学大学院自然環境科学科, 自然環境科学集中講義「原子分子物理学I」, 2019年10月3日–4日, 10月21日–22日.

岡野泰彬, 中部大学非常勤講師, 「力学」, 2019年春期, 「基礎電磁気学」, 2019年秋期.