

理論分子科学第二研究部門

石崎 章仁（教授）（2016 年 4 月 1 日～2024 年 9 月 30 日）＊）

三輪 邦之（助教）

布能 謙（特任助教）

増田 道子（事務支援員）

A-1) 専門領域：理論物理化学

A-2) 研究課題：

a) 光・量子科学技術に基づく複雑分子系の観測と制御の理論研究

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 昨年度までの研究では、自発的パラメトリック下方変換によって生成される量子もつれ光子対の非古典相関を利用した時間分解分光の理論を構築してきた。しかし、一対のもつれ光子を分子系に照射して誘起される非線形光学応答は非常に弱く、検出が困難であると予想される。本年度は、この問題を解決する手段として、もつれ光子を用いた時間分解蛍光分光計測を理論的に検討した。提案する方法では、もつれ光子対の一方を色素分子に照射し、残りの一光子と分子からの蛍光光子を同時計数計測する。光子検出には位置検出型の単一光子検出カメラを用い、分光器と組み合わせることで二光子の時間情報と周波数情報を同時に取得し、分子系における時間分解スペクトルを得ることができる。この方法は、もつれ光子対のうち一方のみを分子に照射するため、現在の光子検出技術でも十分な信号強度が得られるという利点がある。また、本研究の量子分光法は非線形光学シグナルとして誘導放出の寄与のみを抽出できることを理論的に示した。この結果により、得られるスペクトルの解釈が大幅に簡略化でき、たとえば光合成光捕獲タンパク質などの複雑分子系におけるスペクトル解析を容易になる可能性がある。
- b) 三重項-三重項消滅（TTA）を利用したエネルギーアップコンバージョン（TTA-UC）は、太陽電池や発光ダイオードなどの光電子デバイスの性能向上に寄与することが期待され、産業技術への応用の観点から高い注目を集めている。特に、固体材料において高効率な TTA-UC を実現することは、これらのデバイスへの応用に向けた重要な課題の一つである。近年、固体中の分子配向や分子間の三重項励起子の移動レートが TTA-UC の効率に与える影響について活発な議論がなされている。特に、三重項励起子の移動に伴い、励起子間に働く交換相互作用の大きさや、励起子が位置する分子配向が変調する点に着目したモデルが提案され、高い TTA-UC 効率の説明が与えられている。しかし、TTA-UC 効率がモデル内のパラメータにどのように依存するかについては未解明な部分が多く、さらなる高効率化のためには詳細な解析が肝要である。本研究では、TTA-UC 効率が分子配向および三重項励起子の移動レートにどのように依存するのかを理論的に解析し、効率向上のための条件を明らかにすることを試みた。2つの三重項励起子が TTA 過程を介し高エネルギーの一重項励起子を形成する確率 η を計算した結果、以下の3点を明らかにした。(1) 三重項励起子が位置する分子同士がある程度離れ、2つの励起子間に働く交換相互作用が弱い場合、それらが位置する分子の相対的な配向が平行に近づくほど、 η が向上する。(2) 分子間を移動する2つの三重項励起子について、それらが位置する分子ペア同士において、分子の相対的な配向が揃っているほど、 η が向上する。(3) 三重項励起子の移動レートが遅く、励起子間に強い交換相互作用が働く分子ペアと弱い交換相互作用が働く分子ペアと

の間で三重項励起子ペアが移動するレートが遅いほど、 η が向上する。以上の成果から得られる知見は、TTA-UCのさらなる高効率化に向けた分子設計の指針の提示に貢献することが期待される。

B-1) 学術論文

K. FUNO and A. ISHIZAKI, “Dynamics of a Quantum System Interacting with White Non-Gaussian Baths: Poisson Noise Master Equation,” *Phys. Rev. Lett.* **132**(17), 170402 (2024). DOI: 10.1103/PhysRevLett.132.170402

K. MIWA, S. SAKAMOTO, K. FUNO and A. ISHIZAKI, “Coarse-Grained Description of Anharmonic Lattice Environments Affecting the Quantum Dynamics of Charge Carriers,” *Phys. Rev. Res.* **7**, 013323 (2025). DOI: 10.1103/PhysRevResearch.7.013323

E. KIM, D. LEE, S. SAKAMOTO, J.-Y. JO, M. VARGAS, A. ISHIZAKI, J. MINAGAWA and H. KIM, “Network Analysis with Quantum Dynamics Clarifies Why Photosystem II Exploits Both Chlorophyll *a* and *b*,” *Sci. Adv.* **11**, eads0327 (2025). DOI: 10.1126/sciadv.ads0327

B-4) 招待講演

A. ISHIZAKI and K. MIWA, “Control and enhancement of single-molecule electroluminescence through strong light-matter coupling,” Telluride Workshop on Strong Light-Matter Interactions, Telluride Intermediate School, Telluride, CO (USA), June 2024.

A. ISHIZAKI and K. MIWA, “Quantum dynamics of photoexcited electronic systems coupled to anharmonic oscillator environments,” Telluride Workshop on Strong Light-Matter Interactions, Telluride Intermediate School, Telluride, CO (USA), June 2024.

石崎章仁, 「量子性と環境揺らぎが織りなす分子物質機能」, 第1回スピシンフォニー化学研究会, 京都大学桂キャンパス, 京都府京都市, 2024年6月.

A. ISHIZAKI and Y. FUJIIHAHI, “Potential of time-resolved optical spectroscopy with quantum entangled photons,” Coherent Multidimensional Spectroscopy 2024, National STEM Learning Centre, University of York, York (UK), June 2024.

石崎章仁, 「私の海外修行」, 日本学術振興会特別研究員-DC フレンドシップミーティング 2024 in Kyoto, 京都国際会議館, 京都府京都市, 2024年6月.

石崎章仁, 「Network analyses with quantum dynamic calculations on energy flow in the photosystem II supercomplex」, 第107回KPSIセミナー, 量子科学技術研究開発機構 関西光量子科学研究所, 京都府木津市, 2024年8月.

Y. FUJIIHAHI and A. ISHIZAKI, “Theory of time-resolved optical spectroscopy with quantum entangled photons,” Quantum Innovation 2024: International Symposium on Quantum Science, Technology and Innovation, Sora City Conference Center, Chiyoda-ku, Tokyo (Japan), October 2024.

A. ISHIZAKI, “Exploring the dynamics in molecular systems with quantum science/technology,” New Theoretical and Computational Perspectives for the Quantum Technology of Molecular Systems, Graduate Center, City University of New York, New York, NY (USA), February 2025.

A. ISHIZAKI, “Exploring the dynamics in molecular systems with quantum science/technology,” Les Houches School of Physics Workshop on Quantum Dynamics and Spectroscopy of Functional Molecular Materials and Biological Photosystems, Les Houches (France), March 2025. (スケジュールの都合によりキャンセル。)

石崎章仁,「量子効果の維持と崩壊が織りなす光捕集・エネルギー変換ダイナミクス」,日本化学会第 105 春季年会「エキシトン操作の新展開と展望」,関西大学千里山キャンパス,大阪府吹田市,2025 年 3 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 学術委員会委員 (2019–2024).

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協議会委員 (2022–2024).

学会誌編集委員

日本物理学会会誌編集委員 (2023–2025).

B-8) 大学等での講義, 客員

総合研究大学院大学先端学術院分子科学コース,「基礎物理化学 2」,2024 年 7 月.

B-10) 競争的資金

科研費基盤研究(B),「量子分子計測と動力学解析の理論基盤」,石崎章仁 (2021 年度–2024 年度).

科研費若手研究,「単一分子接合系における光・電子・スピンの超高速ダイナミクスに関する理論的研究」,三輪邦之 (2021 年度–2024 年度).

文部科学省光・量子飛躍フラッグシッププログラム (Q-LEAP),「Flagship プロジェクト:量子生命技術の創製と医学・生命科学の革新」(代表:馬場嘉信),「量子論的生命現象の解明・模倣」,石崎章仁 (研究分担者) (2020 年度–2024 年度).

C) 研究活動の課題と展望

生体及び有機物質系における励起子及び電荷移動などの動力学過程は,周囲の溶媒,タンパク質,分子の核運動等の影響を受けることによって多様かつ頑健な機能を生み出しており,その全容を明晰に理解することは物理学の最も魅力的な問題の一つである。このような複雑な相互作用により生ずる非自明な機能を理解するためには,各動力学過程における様々な要素の適切な理論的取り扱いが必要である。我々は,量子散逸系のダイナミクス理論を用い,または新たに発展させ,複雑な分子系における物理現象の本質的かつ簡明な理解を得ることを目指している。また同時に,最新の量子科学技術を適用することで,従来技術と比較してより詳細な分子系の情報を得ることが可能な手法の開発に向けて研究を進めている。

*) 2024 年 10 月 1 日東京大学大学院理学系研究科教授