

倉持 光（教授（兼任*））（2025 年 4 月 1 日～2026 年 3 月 31 日）

米田 勇祐（助教）
古賀 雅史（特任助教）
落合 奎介（大学院生）
神谷 美穂（事務支援員）

*大阪大学大学院基礎工学研究科

A-1) 専門領域：物理化学，超高速分光，非線形分光，超短パルス発生

A-2) 研究課題：

- a) 新規超高速非線形分光法の開発と応用
- b) 新規極短パルス光源の開発
- c) 先端的超高速分光による凝縮相複雑分子の電子・構造ダイナミクスの研究

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) コヒーレント多次元分光法は，凝縮系における超高速ダイナミクスを解明するための強力な手法である。なかでも二次元電子分光法は，不均一広がりを有する系のダイナミクスや，複数の発色団を含む分子系におけるエネルギー移動過程を詳細に追跡できるため，線形分光法や従来の過渡吸収分光法では得ることのできない相関情報を与える。一方で，従来の測定装置では観測可能な周波数帯域が限られており，広い周波数領域にわたる分子応答間の相関を，高い時間分解能で測定することは容易ではなかった。そこで我々は，音響光学素子に基づく高速パルス整形器を導入し，超広帯域コヒーレント多次元分光の基盤となるパルス整形技術の開発に取り組んだ。遅延時間掃引，位相反転，回転座標系における遅延時間掃引など，多次元分光の実現に不可欠な波形整形・位相変調技術の開発と実装を進め，これにより，広帯域かつ高時間分解能で分子の電子・振動応答の相関を計測するための実験基盤を構築した。
- b) 凝縮相における単純分子系の励起状態ダイナミクスや，DNA・タンパク質の紫外光応答を解明するうえで，紫外極短パルス光は重要なツールである。しかし，分散補償の困難から，空気中での発生はこれまで十分に開拓されてこなかった。本研究では，アクロマティック第二高調波発生によって発生させた紫外広帯域パルスを，Two-Dimensional Spectral Shearing Interferometry (2DSI) による群遅延評価を指標としてフーリエ限界まで圧縮する新規光学系を開発した。光線追跡シミュレーションに基づき，広帯域紫外パルスに含まれる大きな高次分散をプリズム対，および可変形鏡をフーリエ面に配置した 4-f パルス整形器を用いて補償し，スペクトル全域にわたって群遅延をほぼゼロに制御することに成功した。これにより，深紫外および近紫外領域において，フーリエ限界に迫る時間幅 ~ 3 fs の極短パルス光発生を実現し，凝縮相における高時間分解能紫外分光計測への足がかりを得た。
- c) 極短パルスを用いた時間分解分光では，電子基底状態および励起状態に誘起された核波束運動を観測することが可能であり，両状態のダイナミクスに関する有益な知見が得られる。最近我々は，光合成アンテナ複合体 Lhcp を対象として，サブ 10 fs の時間分解能を有する過渡吸収分光測定を行った。その結果，クロロフィルを選択的に励起した条件においても，カロテノイドの振動コヒーレンスが観測され，クロロフィルとカルボニルカロテノイドの間に弱い励起子の混成が存在することを示唆する知見が得られた。これらの結果は，カロテノイドが単なる補助色素ではなく，

集団的な励起状態の形成に寄与することを示しており、天然および人工の集光アンテナ系におけるコヒーレンスの解釈に新たな視点を与えるものである。

B-1) 学術論文

- Y. YONEDA, M. KOSUGI, J. MINAGAWA and H. KURAMOCHI**, “Upper-State-Assisted Uphill Energy Transfer in a Far-Red Light-Harvesting Antenna from an Antarctic Alga,” *J. Chem. Phys.* **164**(8), 085101 (2026). DOI: 10.1063/5.0310823
- L. LIU, H. KURAMOCHI, M. IWAMURA, K. NOZAKI and T. TAHARA**, “Localization of the Au–Au Bond Strength in the Triplet Excited State of the $[\text{Au}(\text{CN})_2]^-$ Oligomers Revealed by Ultrafast Time-Domain Raman Spectroscopy,” *Chem. Sci.* **17**(5), 2676–2684 (2026). DOI: 10.1039/D5SC05664K
- R. MATSUOKA, Y. YONEDA, H. KURAMOCHI, T. MIURA, T. IKOMA, M. SAIGO, T. EHARA, K. MIYATA, K. ONDA and T. KUSAMOTO**, “Spectroscopic Characterization of the Charge-Separated Zwitterionic State Responsible for the Excimer-Like Emission of a Luminescent Diradical,” *J. Am. Chem. Soc.* **148**(1), 1086–1095 (2026). DOI: 10.1021/jacs.5c17112
- K. HIRAMATSU, H. KURAMOCHI, S. TAKEUCHI and T. TAHARA**, “Time-Domain Raman Optical Activity Spectroscopy,” *Optica* **12**(12), 1981–1987 (2025). DOI: 10.1364/OPTICA.575503
- M. KOGA, D. H. KANG, Z. N. HEIM, N. HALDAR and D. M. NEUMARK**, “Extreme Ultraviolet Time-Resolved Photoelectron Spectrometer with an Ultrathin Liquid Flat Jet,” *Rev. Sci. Instrum.* **96**(7), 073002 (2025). DOI: 10.1063/5.0272226
- T. EHARA, Y. YONEDA, T. YOSHIDA, T. OGAWA, Y. KONISHI, T. ONO, A. MURANAKA, H. KURAMOCHI, K. MIYATA and K. ONDA**, “Dynamic Excited-State Localization Induced by Jahn-Teller Distortion Observed by Coherent Vibrational Spectroscopy,” *J. Am. Chem. Soc.* **147**(30), 26446–26455 (2025). DOI: 10.1021/jacs.5c06020
- S. TAHARA, R. KURIHARA, K. KOJIMA, H. KURAMOCHI, S. TAKEUCHI, Y. SUDO and T. TAHARA**, “Ultrafast Protein Dynamics Prior to Retinal Photoisomerization in Microbial Rhodopsins,” *J. Phys. Chem. Lett.* **16**(23), 5732–5738 (2025). DOI: 10.1021/acs.jpclett.5c00623
- Y. YONEDA, T. KONISHI, K. SUGA, S. SAITO and H. KURAMOCHI**, “Excited-State Aromatization Drives Nonequilibrium Planarization Dynamics,” *J. Am. Chem. Soc.* **147**(14), 12051–12060 (2025). DOI: 10.1021/jacs.4c18623

B-3) 総説, 著書

米田勇祐, 「フェムト秒二次元分光による光化学反応の分析」, *ぶんせき*, **7**, 187 (2025).

B-4) 招待講演

- 倉持 光, 「先端的超高速・非線形分光で迫る凝縮相分子ダイナミクス」, 第46回光化学若手の会, 札幌, 2025年6月.
- Y. YONEDA and H. KURAMOCHI**, “Unraveling Ultrafast Chemical Reaction Dynamics of Condensed-Phase Complex Molecules through Vibrational Coherence,” The 22nd International Conference on Time-Resolved Vibrational Spectroscopy (TRVS2025), Shiga (Japan), May 2025.
- H. KURAMOCHI**, “Visualizing excitonic and primary structural dynamics in photoactive proteins by ultrafast coherent vibrational spectroscopy,” Telluride meeting “Protein dynamics,” Telluride (USA), July 2025.

H. KURAMOCHI, “Mapping ultrafast chemical reaction dynamics in complex molecular systems via vibrational coherence,” Kobe Seminar on Quantum Biology and Technology, Kobe (Japan), October 2025.

Y. YONEDA and H. KURAMOCHI, “Unraveling ultrafast chemical reaction dynamics of condensed-phase complex molecules using few-cycle pulses,” The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies 2025 (Pacifichem 2025), “Ultrafast Chemical Dynamics,” Honolulu, Hawaii (USA), December 2025.

Y. YONEDA and H. KURAMOCHI, “Mapping ultrafast chemical reaction dynamics through vibrational coherence,” Pacifichem 2025, “Recent Advances in Coherent Multidimensional Spectroscopy,” Honolulu, Hawaii (USA), December 2025.

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

分子科学会運営委員 (2024–2026).

学会の組織委員等

第 22 回時間分解振動分光学国際会議 運営委員 (2022–2025).

文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

文部科学省研究振興局学術調査官 (2023–2025).

B-8) 大学等での講義, 客員

理化学研究所, 客員研究員, 2022 年 5 月–2027 年 3 月.

B-10) 競争的資金

科学技術振興機構創発的研究支援事業 (受託研究), 「室温・溶液中における単一分子の極限時間分解分光」, 倉持 光 (2021 年度–2027 年度).

科研費基盤研究(A), 「単一分子超高速分光による動的な生体光エネルギー変換機構の探究」 (代表者: 倉持 光), 米田 勇祐 (研究分担者) (2024 年度–2026 年度).

科研費基盤研究(B), 「新規多次元振動分光による反応ポテンシャル特異点の探究」, 米田 勇祐 (2024 年度–2026 年度).

科研費学術変革領域研究(A) (公募班), 「新規超高速多次元分光による光応答性タンパク質の不均一性と反応初期過程の統合的理解」, 倉持 光 (2025 年度–2026 年度).

科研費基盤研究(S), 「新奇分子研究が切り拓くロドプシン科学のフロンティア」 (代表者: 井上圭一), 倉持 光 (研究分担者) (2025 年度–2029 年度).

C) 研究活動の課題と展望

我々は先端的な超高速分光法を駆使し, 凝縮相における複雑分子系の機能・構造・ダイナミクスの解明に取り組んでいる。特に分子研においては, 極短パルス光を用いた独自の超高速コヒーレント振動分光の材料系への応用を進めるとともに, その多次元振動分光への発展や, 新規方法論開発を支える極短パルス光源の開発に取り組んできた。さらに, 従来のアンサンブル測定では捉えられない自発的揺らぎが, 巨大生体分子の電子状態, 構造, 反応ダイナミクスにどのような影響を及ぼすかを明らかにするため, 単一分子計測に基づく新しい蛍光相関分光法の開発も進めてきた。これらの研究はなお端緒にあるものの, 今後はその応用をさらに展開し, 凝縮相ダイナミクス研究に新たな研究潮流を切り拓きたい。