

4-4 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）

甲田 信一（助教）

TANG, Zhiye（助教）

KUMAR, Shubham（特任研究員）

松田 定治（大学院生）

千葉 史朱香（事務支援員）

A-1) 専門領域：物理化学，理論化学

A-2) 研究課題：

- a) 生体機能ダイナミクスの理論研究：天然光合成系における効率的励起エネルギー移動
- b) 凝縮系ダイナミクスの理論研究：動的乱れが導く遅延ダイナミクスとイオン輸送
- c) 凝縮系ダイナミクスの理論研究：非平衡揺らぎが駆動する特異的拡散現象

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 生体機能ダイナミクスに関する研究として，高等植物の光化学系 II の光捕集アンテナ複合体 LHCII における励起エネルギー移動（EET）の解析を進めている。LHCII 中の EET の解明には，クロロフィル（Chl）分子の励起エネルギーやその揺らぎ（スペクトル密度）の知見が不可欠である。最近，我々は TDDFT 計算におけるパラメータの調整を行い，異なる誘電率をもつ複数の溶液中での Chl 分子の励起エネルギーを適切に記述することに成功した。さらに，これらの適切な電子状態計算の結果を再現する分子動力学（MD）計算における Chl 分子のパラメータの開発にも成功し，LHCII 中の Chl 分子の吸収スペクトルなどの実験結果を再現できることを確認した。さらに，LHCII 三量体の量子ダイナミクスを解析し，励起エネルギーの移動がどのような経路をどのような時間スケールで起こっているかが明らかになってきた。
- b) 凝縮系ダイナミクスに関する研究として，凝縮系物理学における長年の課題の一つである「温度低下のダイナミクスの遅延化」に対し，時間に依存する反応速度に基づく理論開発を進めてきた。とくに，「動的乱れ」の概念に基づき，過冷却液体における運動の遅延化に関する分子機構の解明を進めている。また，水のように，運動の遅延化の温度依存性が超アレニウス型からアレニウス型に変化する「fragile-strong 転移」も知られているおり，その起源の解明にも取り組んでいる。さらに，我々の理論と機械学習分子動力学を組み合わせ，無機ガラス固体電解質におけるイオン伝導性の解析を海外の共同研究者と行った。その結果，イオン伝導率の非単調な組成依存性の実験結果を再現するとともに，これまで予想されていたものとは異なる機構で Li^+ イオンのイオン伝導が起こっていることも明らかになってきた。
- c) 凝縮系ダイナミクスに関する研究として，拡散過程における揺らぎの影響に関する課題にも取り組んでいる。重水の発見以来ほぼ 1 世紀が経つが，水の同位体はほとんど同一の物理化学的特性をもつため，その分離は依然として非常に困難なままである。最近，動的なナノポアを持つソフト多孔性結晶では，従来にない高効率で同位体水の分離

が可能であることが示された。しかし、その分離機構の解明については全く進んでいない。そこで、我々は揺らぐエネルギー地形上での拡散現象を解析する理論モデルを開発し、エネルギー揺らぎと障壁越えダイナミクスの共鳴により、平衡系における質量に基づく拡散の違いを大きく上回る分離性能が実現されることを示した。我々の理論枠組みは、実験結果を再現するにとどまらず、その背後にある微視的起源の物理機構を解明し、選択的分離の理解の深化およびその予測を可能にした。その結果、本研究により、材料の固有の構造ゆらぎを調整するか外部刺激を加えることで輸送特性を設計できる動的多孔性材料の新たな設計原理を提案した。この研究と並行して、液体的およびガラス的な環境の間を切り替える二状態系における粒子拡散を記述する理論モデルを開発した。この理論モデルにより、不均一環境においては、均一な環境よりも拡散が増大することを理論・計算により示すとともに、不均一な媒体における粒子輸送の統一的理解に資する簡潔な枠組みを示した。

B-1) 学術論文

- A. KONDO, K. J. FUJIMOTO, S.-I. KODA, S. SAITO and T. YANAI**, “Osimertinib’s Proton-Catalyzed, Pseudoconcerted EGFR Inhibition Guides Next-Generation Inhibitor Design,” *J. Chem. Inf. Model.* **66(2)**, 1203–1213 (2026). DOI: 10.1021/acs.jcim.5c02787
- S. KUMAR, Z. TANG and S. SAITO**, “Dynamic Slowdown and Spatial Correlations in Viscous Silica Melt: Perspectives from Dynamic Disorder,” *J. Chem. Phys.* **164(2)**, 024503 (2026). DOI: 10.1063/5.0305680
- F. PERAKIS, T. KAWASAKI and S. SAITO**, “Enhanced Particle Diffusion in Fluctuating Binary Environments,” *Phys. Rev. Res.* **8(1)**, L012015 (2026). DOI: 10.1103/1rmr-11yb
- T. KATO and S. SAITO**, “Proof of the Density Variation Equation Conjectured for Exact Density Functional Theory,” *J. Phys. Soc. Jpn.* **94(11)**, 115002 (2025). DOI: 10.7566/JPSJ.94.115002
- S. SENDO, K. J. FUJIMOTO, T. MIYASHITA, S. SAITO and T. YANAI**, “Assessment of the Time Correlation Function-Based Approach for Absorption Spectrum Calculations Using Time-Dependent Density Functional Theory and Molecular Dynamics Simulations,” *J. Chem. Phys.* **163(13)**, 134116 (2025). DOI: 10.1063/5.0281605
- B. KANG, J. YU, S. SAITO, J. JANG and B. J. SUNG**, “Non-Monotonic Ion Conductivity in Lithium-Aluminum-Chloride Glass Solid-State Electrolytes Explained by Cascading Hopping,” *Adv. Sci.* **12(35)**, e09205 (2025). DOI: 10.1002/advs.202509205
- G. R. KHAN, S. SAITO and S. DASCHAKRABORTY**, “Faster Diffusion of Water along Carbon Nanotubes near the Wall,” *J. Phys. Chem. B* **129(26)**, 6561–6573 (2025). DOI: 10.1021/acs.jpcc.5c02233
- T. KATO and S. SAITO**, “A Rigorous Expression of the Hohenberg–Kohn Universal Energy Functional Based on the Analysis of the Spatial Scaling Property of the Kohn–Sham Potential,” *J. Phys. Soc. Jpn.* **94(7)**, 074303 (2025). DOI: 10.7566/JPSJ.94.074303
- Y. FURUIKE, Y. ONOUE, S. SAITO, T. MORI and S. AKIYAMA**, “The Priming Phosphorylation of KaiC Is Activated by the Release of Its Autokinase Autoinhibition,” *PNAS Nexus* **4(5)**, pgaf136 (2025). DOI: 10.1093/pnasnexus/pgaf136
- S.-I. KODA and S. SAITO**, “Correlated Flat-Bottom Elastic Network Model for Improved Bond Rearrangement in Reaction Paths,” *J. Chem. Theory Comput.* **21(7)**, 3513–3522 (2025). DOI: 10.1021/acs.jctc.4c01549

B-3) 総説, 著書

甲田信一, 「変分的反応経路最適化法に基づく高効率の遷移状態探索および尤もらしい反応経路生成」, アンサンブル, **27(1)**, 27–34 (2025).

B-4) 招待講演

斉藤真司, 「揺らぎが引き起こすダイナミクス」, テラバイオワークショップ 2025, 京都府木津川市, 2025 年 9 月.

S. SAITO, “Fluctuation-Driven Emergent Dynamics in Condensed-Phases: Thermodynamic Anomalies and Dynamic Slowdown,” Kyoto (Japan), March 2026.

S. SAITO, “Fluctuation-Driven Emergent Dynamics in Condensed-Phases: Thermodynamic Anomalies and Dynamic Slowdown,” MCBR2025, Hyderabad 2(India), December 2025.

S.-I. KODA, “Alternative tools for double-ended transition state search,” Telluride Science Workshop 2025 “Computational Materials Chemistry,” Telluride, Colorado (USA), July 2025.

S. SAITO, “Unveiling molecular mechanisms of dynamic slowdown in supercooled liquids,” 2025 GSRC symposium on Chemical dynamics in materials and living systems, Seoul (Korea), May 2025.

S. SAITO, “Unveiling the Role of Dynamic Disorder in the Slowing Down of Supercooled Water Dynamics,” APATCC11, Kobe (Japan), April 2025.

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

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

Time-Resolved Vibrational Spectroscopy (TRVS2025) 組織委員 (2022–2025).

学会誌編集委員

日本化学会速報誌編集委員会委員 (2022–).

その他

森野基金運営委員会委員 (2020–).

計算物質科学協議会運営委員会委員 (2020–).

B-10) 競争的資金

科研費基盤研究(A), 「高等植物の光捕集アンテナタンパク質における効率的励起エネルギー移動の理論研究」, 斉藤真司 (2021 年度–2025 年度).

科研費挑戦的研究(開拓), 「凝縮系反応・構造力学における動的乱れの解明に向けた理論・計算手法の開拓」, 斉藤真司 (2023 年度–2026 年度).

科研費若手研究, 「シアノバクテリア時計タンパク質振動子の出力分子機構の理論的解明」, 甲田信一 (2022 年度–2025 年度).

B-11) 産学連携

共同研究, (株) ダイセル, 「木質バイオマスの溶解シミュレーションに関わる共同研究」, 斉藤真司 (2022年度-).

C) 研究活動の課題と展望

我々は、生体分子系の機能および凝縮系のダイナミクスに関する理論研究を進めている。これらの研究に関する展望は、以下の通りである。

生体機能に関するダイナミクスについては、高等植物のLHCIIにおける励起エネルギー移動(EET)の分子機構の解明を進める。EETの分子論的解明には、LHCII系の個々のChl分子の電子状態とダイナミクスを適切に記述することが不可欠である。我々は、これらの物理量を適切に記述するための方法論を開発し、膜中に存在するLHCIIにおけるEETダイナミクスの解析を可能にした。今後は、LHCII内の不均一な環境下でのChl分子のEETを解析し、LHCIIにおける高速なEETダイナミクスを分子レベルで理解することを目指す。とくに、LHCIIにおけるEETとこれまでに行ってきたFMOタンパク質のEETを比較し、天然光合成系におけるEETの理解を一層深めたい。さらに、バクテリアと高等植物という異なる進化段階におけるEETの普遍性と特異性を明らかにしたい。

凝縮系ダイナミクスに関する研究として、構造変化や反応・拡散過程がどのように進行するかについて、研究を進める。構造変化ダイナミクスに関しては、(過冷却)液体における運動の遅延化の分子機構の解明を目指す。液体状態からガラス状態に向かう構造緩和の時間や粘性率の温度依存性に基づき、全ての液体はアレニウス則に従う「strong液体」と、温度低下とともに緩和時間や粘性率が急激に増加し超アレニウス性を示す「fragile液体」に大別される。温度低下に伴う液体の運動の遅延化は一見ありふれた現象に思えるが、その分子論的理解は依然として十分ではない。そこで今後、異なるfragilityをもつ液体における運動の遅延化がどのように起こるのかについて、より体系的な理解を目指す。

また、拡散過程に関して、簡便な理論モデルに基づき、構造揺らぎが引き起こす非平衡揺らぎにより、静的状態では見られない同位体間での顕著な拡散特性の違いを明らかにした。今後は、この理論モデルの分子論的・定量的な検討を進めるとともに、さらなる拡散特性・分離機能の開拓に向けた理論的基盤の構築を図る。揺らぐ環境下では、動的乱れや共鳴活性化などにより、反応や構造変化・拡散ダイナミクスが興味深い様相を示す。そこで、これまで物理化学的な研究が進んでこなかった新たな視点からのアプローチとして、今後は、イオンチャネルの高速イオン透過がどのような機構によって実現されているのかなどの解明をも目指す。