

Annual Report 2020

北海道大学大学院理学研究院
化学部門

2021 年 7 月

北海道大学 大学院理学研究院 化学部門

Annual Report 2020 発刊にあたって

化学部門の2020年度（令和2年度）の活動をご報告いたします。

2020年度は、新型コロナウイルス感染症の影響が広がり、大学運営、部門運営も大きな影響を受けました。非常事態制限下では、大学として研究活動に厳しい制限がかかり、特に実験を主体とする研究室が多い化学部門は大きなダメージがありました。その中で化学部門の特徴の一つである計算化学は在宅での研究活動も可能なため比較的影響は少なく、前田理教授が拠点長を務める世界トップレベル研究拠点プログラム「化学反応創成研究拠点(ICReDD)」も計算化学を基盤としていることは不幸中の幸いと言えるのかもしれません。しかし、部門全体としての影響は大きく、一刻も早くこの状況が改善されることを祈るのみです。

教育活動も新型コロナの影響を大きく受けました。講義の開始が遅れ、全ての講義をオンラインでおこなうという、経験のないことに取り組まざるを得なくなりました。特に、2020年度部門長の村越敬教授、教務委員の鈴木孝紀教授のご尽力とともに、各部門メンバーの努力でなんとか切り抜けることができました。しかし、オンラインでおこなう実験実習はいくら工夫しても対面でおこなう実際の実験とは異質なものにならざるを得なかったのは残念です。さらに大学院入試の面接、年度末の卒論修論の発表会、学位論文説明会など全てオンラインになってしまいました。これらのイベントも、部門長を中心に多くの部門メンバーが協力して大きなトラブル無く終了する事ができました。ご協力頂いたすべてのメンバーに感謝いたします。

このような厳しい状況の中ではありますが、本年度は武次徹也教授を中心に新たな大学院プログラム、『スマート物質科学を拓くアンビシャスプログラム(Ambitious Program - Smart Materials Science: SMatS)』の立ち上げ準備が、大学の後押しをうけつつ行われてきました。このプログラムは、博士後期課程の学生を対象として、広義の物質科学に数理科学・計算科学・データ科学を融合させた実践的教育を提供し、物質科学分野にイノベーションを引き起こす人材の育成を目的としています。総合化学院、理学院、工学院、環境科学院、生命科学院、情報科学院と連携して進めるもので、2021年4月からスタートします。平成25年度から石森浩一郎教授をコーディネーターとして走っている博士教育課程リーディングプログラム『物質科学フロンティアを開拓する Ambitious リーダー育成プログラム(ALP)』とともに、優秀な国内外学生を集め、社会に資する人材育成につながるものと信じています。

さて、本年3月に錯体化学部門の加藤昌子教授が関西学院大学生命環境学部へ異動されました。先生の長年の部門の教育・研究におけるご尽力に感謝するとともに、新天地でのご活躍をお祈りいたします。

未だに、新型コロナ感染の行く先が見えない状況ですが、昨年度の貴重な経験を生かして、昨年度と同様化学部門のメンバーが一丸となって乗り切っていきたいと思います。

令和3年7月

北海道大学大学院理学研究院 化学部門

部門長 村上 洋太

目 次

物理化学研究室	1
量子化学研究室	6
理論化学研究室	14
構造化学研究室	21
液体化学研究室	26
物質化学研究室	29
錯体化学研究室	35
分析化学研究室	39
有機化学第一研究室	42
有機化学第二研究室	47
有機金属化学研究室	51
有機反応論研究室	56
生物化学研究室	60
生物有機化学研究室	63
触媒科学研究所	
物質変換研究部門	66
高分子機能研究部門	72
触媒理論研究部門	74
電子科学研究所	
光電子ナノ材料研究分野	78
データ数理研究分野	82
遺伝子病制御研究所	
分子生体防御分野	86
発生生物学分野	89
物質・材料研究機構 (NIMS)	
界面エネルギー変換材料化学研究室	92
超伝導材料化学研究室	97
光機能材料化学研究室	101
ナノ組織化材料化学研究室	109

物理化学研究室

(現教員)

教授 村越 敬

助教 福島知宏

助教 南本大穂

助教 李 笑璋

助教 周 睿風

(高等教育推進機構 ISP 助教)

(研究概要)

当研究室では、ナノからメゾスコピックのサイズ領域にある無機・有機複合材料を対象とし、物質に新しい機能を賦与・発現させる研究に取り組んでいます。

特に金属ナノ構造への光照射により誘起される自由電子の集団運動である局在表面プラズモンと電気化学をキーワードとして、金属ナノ構造の制御とその光電気化学特性の評価を行っています。例えば、金属ナノ構造二量体の電気化学溶解などの構造制御手法により、原子レベルでの間隙制御に伴った光の極限集約を可能とする金属ナノ構造の開発を行っています (Figure (a))。また、表面増強ラマン散乱などの手法を用いて、光と物質の相互作用の電気化学制御を行い、(Figure (b))、さらには金属ナノ構造を精密に構造化することにより電気化学発光系の構築などを行っています (Figure (c))。電極界面での発光イメージング解析による光圧補足分子の振る舞いの解析 (Figure (d))などを通じて、ナノ局所界面における分子挙動の異常性に関しても研究を進めています。

これらの知見を基に、化学エネルギーや光エネルギー、さらには熱や運動エネルギーを相互に自在変換することを可能とする新しい系の創出を進めています。

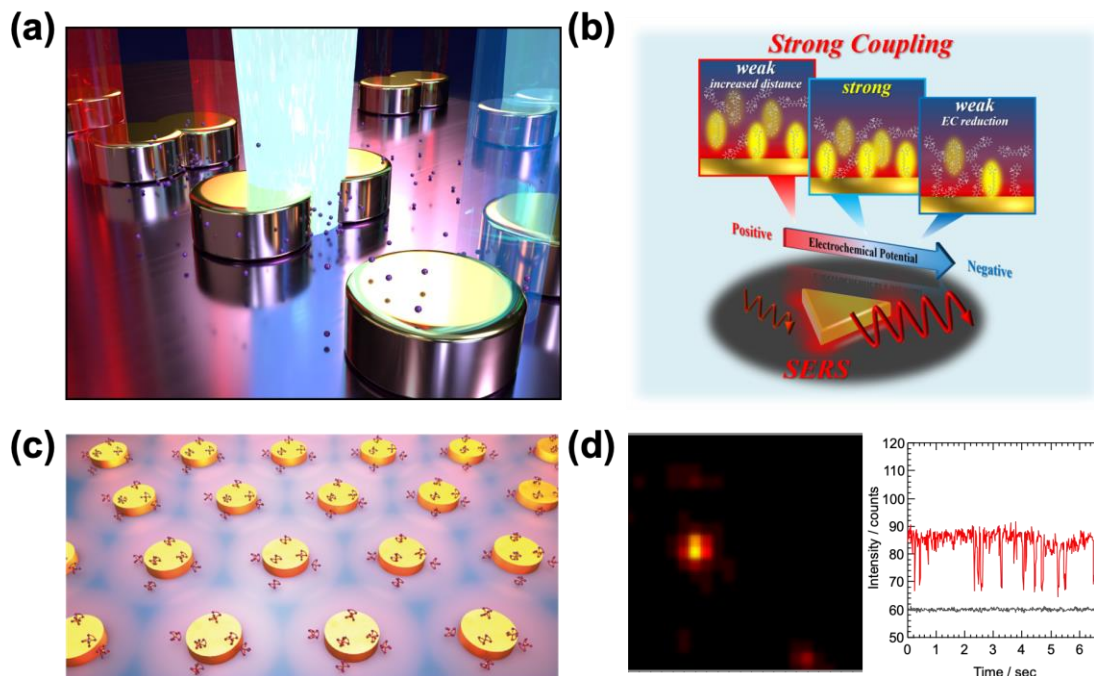


Figure (a) 電気化学手法による金属ナノ構造制御を通じた光の極限集約の概念図、(b) 光-物質相互作用の電気化学チューニング、(c) 金属格子構造における電気化学発光制御、(d) 光圧補足分子の発光イメージング。

A. 原著論文

1. Plasmonic Manipulation of DNA using a Combination of Optical and Thermophoretic Forces: Separation of Different-Sized DNA from Mixture Solution
T. Shoji, K. Itoh, J. Saitoh, N. Kitamura, T. Yoshii, K. Murakoshi, Y. Yamada, T. Yokoyama, H. Ishihara, Y. Tsuboi
Sci. Rep., 10, 3349, 1-10 (2020).
2. Potential Energy Shift of the Fermi Level at Plasmonic Structures for Light-Energy Conversion Determined by Graphene-Based Raman Measurements
H. Minamimoto, K. Yasuda, R. Zhou, X. Li, S. Yasuda, K. Murakoshi
J. Chem. Phys., 152, 124702(1-10) (2020).
3. Visualization of Molecular Trapping at Plasmonic Metal Nanostructure by Surface-Enhanced Raman Scattering Imaging
T. Fukushima, A. Miyauchi, N. Oyamada, H. Minamimoto, T. Motegi, K. Murakoshi
J. Nanophotonics, 14, 026001(1-11) (2020).
4. Active Intermediates in Plasmon-Induced Water Oxidation at Au Nanodimer Structures on a Single Crystal of TiO₂
K. Suzuki, X. Li, Y. Wang, F. Nagasawa, K. Murakoshi
ACS Energy Letters, 5, 1252-1259 (2020).
5. Plasmon-Induced Hydrogen Evolution Reaction on p-Type Semiconductor Electrode with Ag Nanodimer Structures
D. Sato, H. Minamimoto, K. Murakoshi
Chem. Lett., 49, 806-808 (2020).
6. Ultra-Fine Electrochemical Tuning of Hybridized Plasmon Modes for Ultimate Light Confinement
S. Oikawa, H. Minamimoto, A. Ohnuki, K. Murakoshi
Nanoscale, 12, 11593-11600 (2020).
7. Interfacial Structure Modulated Plasmon-Induced Water Oxidation on Strontium Titanate
X. Shi, X. Li, T. Toda, T. Oshikiri, K. Ueno, K. Suzuki, K. Murakoshi, H. Misawa
ACS Appl. Energy Mater., 3, 5675-5683 (2020).
8. Surface-Enhanced Raman Scattering Probe for Molecules Strongly Coupled with Localized Surface Plasmon under Electrochemical Potential Control
H. Minamimoto, F. Kato, K. Murakoshi
J. Raman Spectroscopy, 52, 2, 431-438 (2020)
9. Thermo-Plasmonic Trapping of Living Cyanobacteria on a Gold Nanopyramidal Dimer Array: Implications for Plasmonic Biochips
S. Naka, T. Shoji, S. Fujii, K. Ueno, Y. Wakisaka, K. Murakoshi, T. Mizoguchi, H. Tamiaki, Y. Tsuboi
ACS Appl. Nano Mater., 3, 10067-10072 (2020).

10. In-situ Monitoring of Electronic Structure in Modal Strong Coupling Electrode under Enhanced Plasmonic Water Oxidation
Y. Wang, H. Minamimoto, R. Zhou, K. Murakoshi
J. Phys. Chem. C, 125, 1754-1760 (2020).
11. Spatial Distribution of Active Sites for Plasmon-Induced Chemical Reactions Triggered by Well-Defined Plasmon Modes
H. Minamimoto, T. Toda, K. Murakoshi
Nanoscale, 13, 1784-1790 (2021).
12. Tuning Electrogenenerated Chemiluminescence Intensity Enhancement Using Hexagonal Lattice Arrays of Gold Nanodisks
T. Heiderscheit, S. Oikawa, S. Sanders, H. Minamimoto, E. Searles, C. Landes, K. Murakoshi, A. Manjavacas, S. Link
J. Phys. Chem. Lett., 12, 2516–2522 (2021).

B. 総説・解説・その他

1. Surface-enhanced Raman Scattering as the Probe for the Exotic Electronic Excitation induced by Localized Surface Plasmons
H. Minamimoto, K. Murakoshi
Current Opinion in Electrochemistry, 22, 186-194 (2020).

C. 著書

なし

D. 招待講演

1. 局所界面で進行する電気化学反応における電荷移動過程の解明と反応性制御の試み
南本大穂
関西電気化学研究会, 2020.7.30, Online.
2. Exotic Plasmonic Excitation of Electrons beyond The Normal Limit of Electrochemical Potential for Novel Photochemical Reactions
K. Murakoshi
ISE -71st Annual Meeting, 2020.8.31-9.4, Online.
3. Plasmonic Control of Molecule Diffusion at Electrified Interfaces in Solutions
N. Oyamada, H. Minamimoto, T. Fukushima, K. Murakoshi
第81回応用物理学会秋季学術講演会, 2020.9.8-9.11, Online.
4. 金属ナノ構造を利用した光イオン伝導の試み
福島知宏
新学術領域「蓄電固体界面科学」第2回若手勉強会, 2020.9.30, Online.

5. Extended Electrochemical Potential Range Induced by Plasmonic Electronic Excitation
K. Murakoshi
PRiME 2020 (ECS, ECSJ, & KECS Joint Meeting), 2020.10.4-10.9, Online.
6. 表面増強ラマン散乱分光計測を利用した物性機能開拓
村越 敬
2020 年度 日本分光学会北海道支部シンポジウム, 2021.1.15, Online.
7. 固液界面における室温光分子操作
村越 敬
新学術領域研究「光圧ナノ物質操作」第5回公開シンポジウム, 2021.1.19-1.20, Online.
8. カーボン電極特性の分子制御
福島知宏
第10回フラーレン・ナノチューブ・グラフェン学会若手研究会 2021.3.2, Online.
9. 分子励起子-二次元格子プラズモン強結合状態の電気化学的エネルギー状態制御
林 峻大
第42回光化学若手の会, 2021.6.11-6.12, Online.

E. 外部資金の取得状況

村越 敬

新学術領域研究「光圧によるナノ物質操作と秩序の創生」(分担):
「光圧を極める: 分子操作の極限化と光制御によるマクロ化」

特別推進研究(分担):

「ナノ共振器-プラズモン強結合を用いた高効率光反応システムの開拓とその学理解明」

福島知宏

若手研究(代表):

「振動準位変調によるプロトン伝導特性制御」

新学術領域研究「蓄電固体界面科学」(公募)(代表):

「イオンの自由度を制御する金属ナノ構造複合系の創出」

一般財団法人イオン工学振興財団研究助成(代表):

「金属ナノ構造による水分子集団特性の光機能化」

公益財団法人戸部眞紀財団研究助成(代表):

「金属ナノ構造を活用するプロトン伝導特性の多色光スイッチング」

南本大穂

新学術領域研究「光合成分子機構の学理解明と時空間制御による革新的光-物質変換系の創製」(公募)(代表):
「ナノ光局在場における高度光-物質変換系の創生」

F. 受賞関係

南本大穂

2021 年度電気化学会 進歩賞(佐野賞) (2021.3.23)

「ナノ界面構造制御による電気化学反応の高機能化」

林 峻大

2020 年 web 光化学討論会 光化学討論会優秀学生発表賞 (2020.9.23)

「Evaluation of Spatial Distribution of Strong Coupling System between Molecular Excitons and Surface Lattice Resonance Mode via Electrochemical Method」

本間瑞穂

ナノ学会第 19 回大会 若手優秀ポスター発表賞 (2021.5.21)

「Ni ナノ構造を用いた同位体選択的水素発生反応」

吉光創之

化学系学協会北海道支部 2021 年冬季研究発表会 優秀講演賞(口頭発表部門) (2021.2.1)

「光共振器中における水分子の振動構造制御」

量子化学研究室

(現教員)

教授 武次 徹也
 准教授 分島 亮
 准教授 小林 正人 (令和2年11月昇任)
 助教 岩佐 豪
 特任准教授 Andrey Lyalin
 特任助教 小野 ゆり子
 特任助教 齊田 謙一郎

(研究概要)

量子化学研究室では、計算機を用いた化学現象の解明を目指して研究を進めている。**(I) 第一原理ダイナミクス手法、(II) 反応経路解析手法、(III) 電子状態計算手法、(IV) 光物理化学計算手法**、といった、様々な計算・シミュレーション手法の開発を推進するとともに、これらを、**(A) 触媒反応、(B) 光反応、(C) 発光材料特性、(D) 生体分子**などの理解や設計に応用している。令和2年度の成果を一部紹介する。局在した光を用いた Raman 分光 (近接場 Raman) のための理論手法を、多重極ハミルトニアンと実時間 TDDFT に基づき開発し、ベンゼンの共鳴および非共鳴近接場 Raman スペクトル/イメージングに適用した (図 1)。光免疫療法薬剤 IR700 の光化学反応過程を解明し、近赤外 (NIR) 光が IR700 の軸配位子切断反応を直接引き起こすのではなく、ラジカルアニオン状態の生成にのみ利用されることを示した (図 2)。グローバル反応経路地図を古典的多次元尺度構成法により低次元座標空間に可視化し、その座標空間上に AIMD 計算による古典軌道をマッピングすることにより、化学反応の動的軌跡を反応経路地図に基づき解析する手法を開発した (図 3)。

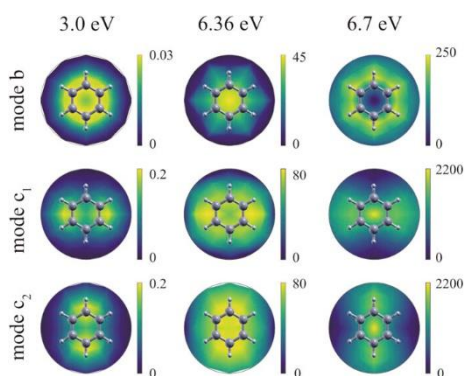


図1. ベンゼンの off- 及び on-resonance の近接場 Raman イメージングの計算

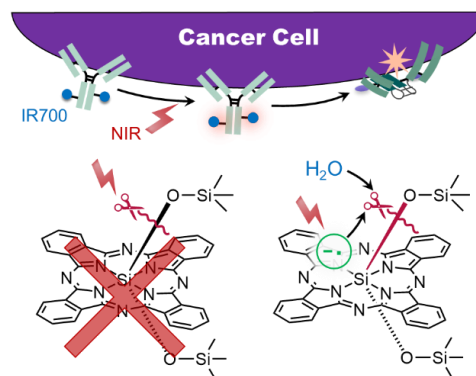


図2. 近赤外 (NIR) 光は IR700 ラジカルアニオン状態の生成にのみ使われる

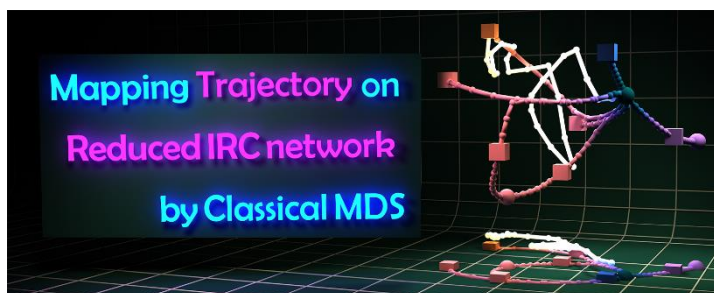


図3. 古典的多次元尺度構成法によるグローバル反応経路地図の低次元座標空間への可視化と AIMD 古典軌道のマッピング

A. 原著論文

1. Observations and theories of quantum effects in proton transfer electrode processes
K. Sakaushi, A. Lyalin, and T. Taketsugu
Curr. Opin. Electrochem., 19, 96-105 (2020).
2. Single-molecule resonance Raman effect in a plasmonic nanocavity
R. B. Jaculbia, H. Imada, K. Miwa, T. Iwasa, M. Takenaka, B. Yang, E. Kazuma, N. Hayazawa, T. Taketsugu, and Y. Kim
Nat. Nanotechnol., 15, 105-110 (2020).
3. Photo-Induced Pyramidal Inversion Behavior of Phosphines Involved with the Aggregation-Induced Emission (AIE) Behavior
T. Machida, T. Iwasa, T. Taketsugu, K. Sada, and K. Kokado
Chem. Eur. J., 26, 8028-8034 (2020).
4. Effect of O₂ adsorption on the termination of Li-O₂ batteries discharge
J. Li, M. Gao, S. Tong, C. Luo, H. Zhu, T. Taketsugu, K. Uosaki, and M. Wu
Electrochim. Acta, 340, 135977 (2020).
5. Chitosan, magnetite, silicon dioxide, and graphene oxide nanocomposites: Synthesis, characterization, efficiency as cisplatin drug delivery, and DFT calculations
A. S. Abdel-Bary, D. A. Tolan, M. Y. Nassar, T. Taketsugu and A. M. El-Nahas
Int. J. Biol. Macromol., 154, 621-633 (2020).
6. Trajectory on-the-fly molecular dynamics approach to tunneling splitting in the electronic excited state: A case of tropolone
Y. Ootani, A. Satoh, Y. Harabuchi, and T. Taketsugu
J. Comput. Chem., 41, 1549-1556 (2020).
7. Combined Computational Quantum Chemistry and Classical Electrodynamics Approach for Surface Enhanced Infrared Absorption Spectroscopy
M. Takenaka, T. Taketsugu, and T. Iwasa
J. Chem. Phys., 152, 164103 (2020).
8. A quantum chemical study of substituent effects on CN bond in aryl isocyanide molecules adsorbed on the Pt surface
B. Wang, M. Gao, K. Uosaki, and T. Taketsugu
Phys. Chem. Chem. Phys., 22, 12200-12208 (2020).
9. Theoretical and Experimental Studies on the Near-Infrared Photoreaction Mechanism of a Silicon Phthalocyanine Photoimmunotherapy Dye: Photoinduced Hydrolysis by Radical Anion Generation
M. Kobayashi, M. Harada, H. Takakura, K. Ando, Y. Goto, T. Tsuneda, M. Ogawa, and T. Taketsugu
ChemPlusChem, 85, 1959-1963 (2020).

10. Computational searches for crystal structures of dioxides of group 14 elements (CO₂, SiO₂, GeO₂) under ultrahigh pressure
H. Nabata, M. Takagi, K. Saita, and S. Maeda
RSC Adv., 10, 22156-22163 (2020).
11. Ammonia Combustion Properties of Copper Oxides-based Honeycomb and Granular Catalysts
S. Hinokuma, T. Iwasa, K. Araki, Y. Kawabata, S. Matsuki, T. Sato, Y. Kon, T. Taketsugu, K. Sato, and M. Machida
J. Jpn. Petrol. Inst., 63, 274-281 (2020).
12. Visualization of dynamics effect: projection of on-the-fly trajectories to the subspace spanned by the static reaction path network
T. Tsutsumi, Y. Ono, Z. Arai, and T. Taketsugu
J. Chem. Theory Comput., 16, 4029-4037 (2020). (Supplementary Cover Art)
13. Determining and Controlling Cu-Substitution Sites in Thiolate-Protected Gold-Based 25-Atom Alloy Nanoclusters
S. Hossain, D. Suzuki, T. Iwasa, R. Kaneko, T. Suzuki, S. Miyajima, Y. Iwamatsu, S. Pollitt, T. Kawawaki, N. Barrabés, G. Rupprechter, and Y. Negishi
J. Phys. Chem. C, 124, 22304-22313 (2020).
14. All-electron relativistic spin-orbit multireference computation to elucidate the ground state of CeH
Y. Kondo, Y. Goto, M. Kobayashi, T. Akama, T. Noro, and T. Taketsugu
Phys. Chem. Chem. Phys., 22, 27157-27162 (2020).
15. N₂O Decomposition Properties of Ru Catalysts Supported on Various Oxide Materials and SnO₂
S. Hinokuma, T. Iwasa, Y. Kon, T. Taketsugu, and K. Sato
Sci. Rep., 10, 21605 (2020).
16. Boron nitride for enhanced oxidative dehydrogenation of ethylbenzene
R. Han, J. Diao, S. Kumar, A. Lyalin, T. Taketsugu, G. Casillas, C. Richardson, F. Liu, C. W. Yoon, H. Liu, X. Sun, and Z. Huang
J. Energy Chem., 57, 477-484 (2021).
17. Geometric Analysis of Anharmonic Downward Distortion Following Paths
S. Ebisawa, T. Tsutsumi, and T. Taketsugu
J. Comput. Chem., 42, 27-39 (2021).
18. Effects of Support Materials and Ir Loading on Catalytic N₂O Decomposition Properties
S. Hinokuma, T. Iwasa, Y. Kon, T. Taketsugu, and K. Sato
Catal. Comm., 149, 106208 (2021).
19. Theoretical method for near-field Raman spectroscopy with multipolar Hamiltonian and real-time-TDDFT: Application to on- and off-resonance tip-enhanced Raman spectroscopy
M. Takenaka, T. Taketsugu, and T. Iwasa
J. Chem. Phys., 154, 024104 (2021).

20. Real-Time Probing of an Atmospheric Photochemical Reaction by Ultrashort Extreme Ultraviolet Pulses: Nitrous Acid Release from o-Nitrophenol
Y. Nitta, O. Schalk, H. Igarashi, S. Wada, T. Tsutsumi, K. Saita, T. Taketsugu, and T. Sekikawa
J. Phys. Chem. Lett., 12, 674–679 (2021).
21. Coordination geometrical effect on LMCT-depended energy transfer processes of luminescent Eu(III) complexes
P. P. Ferreira da Rosa, S. Miyazaki, H. Sakamoto, Y. Kitagawa, K. Miyata, T. Akama, M. Kobayashi, K. Fushimi, K. Onda, T. Taketsugu, and Y. Hasegawa
J. Phys. Chem. A, 125, 209–217 (2021).
22. Catalytic Activity of Gold Clusters Supported on h-BN/Au(111) Surface for Hydrogen Evolution Reaction
M. Gao, M. Nakahara, A. Lyalin, and T. Taketsugu
J. Phys. Chem. C (Virtual Special Issue, “Metal Clusters, Nanoparticles, and the Physical Chemistry of Catalysis”), 125, 1334–1344 (2021).
23. Energy-based automatic determination of buffer region in the divide-and-conquer second-order Møller-Plesset perturbation theory
T. Fujimori, M. Kobayashi, and T. Taketsugu
J. Comput. Chem., 40, 620–629 (2021).
24. Heterocyclic Ring-Opening of Nanographene on Au(111)
K. Sun, K. Sugawara, A. Lyalin, Y. Ishigaki, K. Uosaki, T. Taketsugu, T. Suzuki, and S. Kawai
Angew. Chem. Int. Ed., 60, 9427–9432 (2021).
25. Electronic Structure of [Ni(Salen)] Complex Studied by Core-Level Spectroscopies
G. Svirskiy, A. Generalov, N. Vinogradov, X. O. Brykalova, A. A. Vereshchagin, O. Levin, A. Lyalin, A. Preobrajenski and A. Vinogradov
Phys. Chem. Chem. Phys., 23, 11015–11027 (2021).

B. 総説・解説・その他

1. データ科学を活用した触媒反応の活性予測、活性因子の特定
小林正人
マテリアルステージ, Vol. 20 (1), pp. 42-48 (2020).
2. 多次元データ縮約法による動的反応経路の可視化
堤 拓朗
理論化学研究会誌「フロンティア」, Vol. 2 (1), pp. 21-22 (2020).
3. 注目の論文「ナノの光を使った化学反応：STM 探針先端のプラズモン場に光りを閉じ込める」
岩佐豪
月刊「化学」, Vol. 75 (10), pp. 60-61 (2020).

4. 反応経路の理論研究 - 電子状態理論と反応ダイナミクスをつなぐ概念
武次徹也
化学と工業, Vol. 74 (3), pp. 213-216 (2021).
5. 第一原理計算による近接場光と分子の相互作用
岩佐 豪
光学, Vol. 50 (3), pp. 120-126 (2021).
6. 計算科学×材料科学 「イメージ」と「リアル」をつなぐ化学者の力
前田 理、小野ゆり子、中西尚志、中田彩子
MANA 広報誌「CPNVERGENCE」, Vol. 28, pp. 2-5 (2021).

C. 著書

1. 化学反応
武次徹也、小林正人
化学便覧 基礎編 改訂6版「理論化学、計量化学、情報化学」(丸善出版), 17章 2.3 節, pp. 1276-1278 (2020).
2. 新電極触媒 BN/Au : 理論提案から実験実証へ
武次徹也、Andrey Lyalin
触媒劣化対策(技術情報協会), 第12章第6節, pp. 571-579 (2020).

D. 招待講演

1. 反応経路に基づく動力学効果の考察：曲率・分岐・遷移
武次徹也
シンポジウム「化学反応経路探索のニューフロンティア 2020」, 2020.9.12, オンライン.
2. On-the-fly molecular dynamics approach to excited-state branching reaction
T. Taketsugu
The 6th Quantum Science (QS) symposium - The Main Symposium of ICCMSE2020 - Computational Chemistry and Computational Physics (ICNAAM 2020 Video Conference), 2020.9.17-9.23, Rhodes Sheraton, Greece (online).
3. 反応経路自動探索法を用いたクラスター触媒の理論研究
岩佐豪
IQCE 量子化学探索講演会 2020「量子化学で探る化学の最先端」, 2020.11.2, オンライン.
4. 演算子変換に基づく効率的で汎用的な時間発展法の開発：3項間漸化式法
赤間知子
第6回電子状態理論シンポジウム, 2020.11.14, オンライン.
5. Visualization of reaction path, global reaction route map, and on-the-fly trajectories

Tetsuya Taketsugu, Takuro Tsutsumi, and Yuriko Ono
New Horizons in Scientific Software: from Legacy Codes to Modular Environments (NHSS 2020), 2020.11.23-11.26, Jeju Island, Korea (online).

6. 双極子近似を超えた近接場光と分子の多重極相互作用と励起状態制御に向けて
岩佐豪
分子研研究会「ナノ空間で光が織りなす分子操作・化学反応制御の新展開」, 2020.12.5, オンライン.
7. 量子化学計算とデータ科学の併用による触媒・表面吸着系の解析と予測
小林正人
計算科学研究センター・ナノテクノロジープラットフォーム事業合同ワークショップ, 2021.1.12-1.13, オンライン.
8. 量子化学計算×インフォマティクスによる触媒・表面吸着系の解析
小林正人
岐阜大学人工知能センター講演会, 2021.1.22, オンライン.
9. Theoretical Modelling of a Single-Phase Borophene Layer on Metal Support
A. Lyalin and T. Taketsugu,
PCoMS シンポジウム&計算物質科学スーパーコンピュータ共用事業報告会 2020, 2021.2.16, online.
10. Visualization of reaction path and dynamical trajectory in reduced dimension
Tetsuya Taketsugu,
3rd ICRDD International Symposium, 2021.02.22-2.24, online.
11. 第一原理計算による近接場振動分光
岩佐豪
日本物理学会第76回年次大会(2021年), 2021.3.14, オンライン.
12. 次元縮約反応空間における on-the-fly 古典軌道解析
堤拓朗, 小野ゆり子, 荒井迅, 武次徹也
凝縮系の理論化学, 2021.3.26, オンライン.

E. 外部資金の取得状況 (2020.4-2021.3)

武次徹也

文部科学省・委託事業「元素戦略プロジェクト<研究拠点形成型>」(主任研究者)(代表 田中庸裕):

「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」

文部科学省・概算要求特別経費(代表):

「フォトエキサイトニクス研究拠点—光励起状態制御の予測の高度利用—」

科学技術振興機構・戦略的創造研究推進事業 CREST (主たる共同研究者)(代表 小川

美香子)：

「光を用いたヒト生体深部での分子制御」

小林正人

基盤研究 (C) (代表)：

「大規模複雑電子構造系の遷移状態・電子励起状態計算法の確立と生体反応への応用」

特定非営利活動法人 量子化学探索研究所 研究助成 (代表)：

「パーシステント・ホモロジーを用いたグローバル反応経路地図に対する記述子の開拓」

基盤研究 (B) (分担) (代表 志賀元紀)：

「情報科学・理論・実験の融合によるネットワークガラスの高次多体相関解析」

岩佐 豪

科学技術振興機構・戦略的創造研究推進事業さきがけ (代表)：

「近接場光による励起状態制御の理論」

基盤研究 (C) (代表)：

「近接場光が誘起する双極子近似を超えた光化学反応機構の解明」

新学術領域研究 (研究領域提案型) 「ソフトクリスタル」公募研究 (代表)：

「分子結晶の励起状態と発光機構」

特定非営利活動法人 量子化学探索研究所 研究助成 (代表)：

「配位子保護金属クラスターの構造・機能・反応特性の解明」

基盤研究 (C) (分担) (代表 日隈聡士)：

「新たな窒素固定反応の開発」

小野 ゆり子

ICReDD 融合研究スタートアップ (代表)：

「革新的遷移金属触媒設計に向けた反応経路地図活用スキームの確立」

赤間知子

特別研究員奨励費 (代表)：

「3 項間漸化式に基づく高速・高精度な電子状態動力学シミュレーション手法の開発と応用」

堤 拓朗

特別研究員奨励費 (代表)：

「第一原理分子動力学法の反応経路地図解析と励起ダイナミクスへの展開」

F. 受賞関係

武次徹也

北海道大学教育研究総長表彰（区分：研究）（2021.2.25）

「被引用 Top10%論文数の向上及び質の高い国際共著論文数の増加に対する顕著な貢献がある教員」

織田耕平

分子科学会オンライン討論会学生優秀講演賞（2020.11.2）

「Sudden 仮定に基づく on-the-fly 分子動力学計算：イオンビームガイド実験とグローバル反応経路地図の矛盾の解明」

日本化学会第 101 春季年会(2021) 学生講演賞（2021.5.6）

「反応経路に基づく理解を超えたイオン分子衝突の反応動力学」

長谷部匡敏

化学系学協会北海道支部 2021 年冬季研究発表会で優秀講演賞（口頭部門）（2021.2.1）

「反応性軌道エネルギー論に基づくグローバル反応経路地図の解析」

理論化学研究室

(現教員)

教授 前田 理

准教授 高橋 啓介

特任准教授 鈴木 机倫, 長田 裕也, 長谷川 太祐, 藤間 淳

助教 原渕 祐

特任 助教 宮里 一旗, Jiang, Julong

(研究概要)

理論化学研究室では、量子化学計算とマテリアルズインフォマティクスを駆使し、反応経路ネットワークに基づく反応・物性の系統的理解、反応経路自動探索による未知の化学反応予測、触媒インフォマティクスによる革新的触媒探索、実験・計算データと機械学習による新材料探索、機械学習による計測データの解析などに取り組んでいます。

令和2年度の成果を一部紹介します。ジフルオログリシン誘導体を合成ターゲットとし、量子化学的逆合成解析と呼ばれる第一原理からの化学反応設計法による化学反応発見を、世界で初めて実証しました(図1)。当研究室で開発された反応経路自動探索法を超高圧下での結晶構造相転移へと応用できるよう拡張し、100万気圧における14族酸化物の構造を系統的に予測しました(図2)。化学反応の動的経路分岐を自動的に見つけ出す新手法を開発し、ディールスアルダー反応において新奇な動的経路分岐を複数発見することに成功しました。(図3)。36540通りの組み合わせ(=触媒)から300通りの組み合わせを無作為に抽出し、それらのメタンの酸化カップリング反応における性能をハイスループット実験により評価することで、バイアスを含まない触媒ビッグデータを取得、このデータを機械学習によって分析することで触媒の設計指針をモデル化し、高性能触媒を80%の精度で予測することに成功しました(図4)。

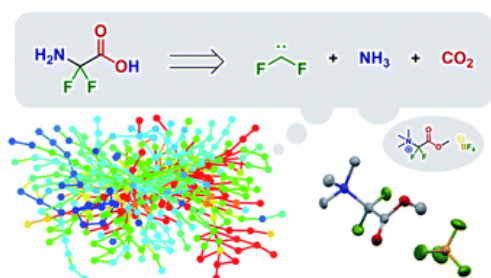


図1. 量子化学的逆合成解析による化学反応発見を世界で初めて実証し、ジフルオログリシン誘導体の合成に成功

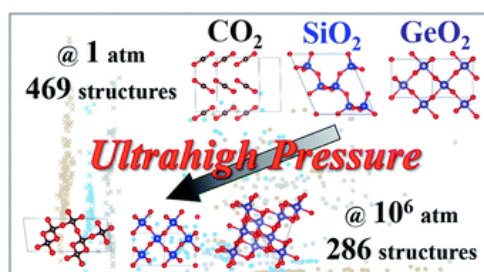


図2. 反応経路自動探索法を超高圧下での結晶構造相転移へ応用し、100万気圧における14族酸化物の構造を系統予測

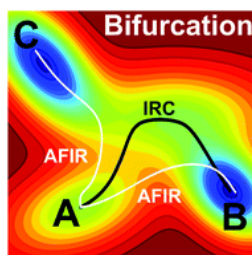


図3. 動的経路分岐の自動的な探索を実現

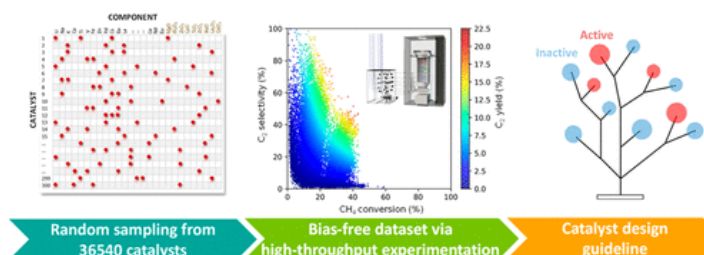


図4. ハイスループット実験と触媒インフォマティクスを駆使して前知見に依らないゼロからの触媒設計を実現

A. 原著論文

1. Trajectory on-the-fly molecular dynamics approach to tunneling splitting in the electronic excited state: A case of tropolone
Y. Ootani, A. Satoh, Y. Harabuchi, T. Taketsugu
J. Comput. Chem., **2020**, *41*, 1549-1556
2. Tuning the hydrogen storage properties of TiFe clusters via Zr substitution
V. Kumar, P. Kumar, S. Pati, P. Sharma, K. Takahashi
Energy Storage, **2020**, *2*, e157 (9 pages).
3. Catalyst Acquisition by Data Science (CADS): a web-based catalyst informatics platform for discovering catalysts
J. Fujima, Y. Tanaka, I. Miyazato, L. Takahashi, K. Takahashi
React. Chem. Eng., **2020**, *5*, 903-911.
4. Migrations and Catalytic Action of Water Molecules in the Ionized Formamide-(H₂O)₂
Y. Matsuda, Y. Hirano, S. Mizutani, D. Sakai, A. Fujii, S. Maeda, K. Ohno
J. Phys. Chem. A, **2020**, *124*, 2802-2807.
5. Computational Searches for Crystal Structures of Dioxides of Group 14 Elements (CO₂, SiO₂, GeO₂) under Ultrahigh Pressure.
H. Nabata, M. Takagi, K. Saita, S. Maeda
RSC Adv., **2020**, *10*, 22156-22163.
6. Ineffective OH-pinning of the Flipping Dynamics of a Spherical Guest within a Tight-fitting Tube
T. Matsuno, M. Someya, S. Sato, S. Maeda, H. Isobe
Angew. Chem. Int. Edit., **2020**, *59*, 14570-14576.
7. Discovery of a Synthesis Method for a Difluoroglycine Derivative based on a Path Generated by Quantum Chemical Calculations
T. Mita, Y. Harabuchi, S. Maeda
Chem. Sci., **2020**, *11*, 7569-7577.
8. AFIR Explorations of Transition States of Extended Unsaturated Systems: Automatic Location of Ambimodal Transition States
T. Ito, Y. Harabuchi, S. Maeda
Phys. Chem. Chem. Phys., **2020**, *22*, 13942-13950.
9. Transition of wide-band gap semiconductor h-BN(BN)/P heterostructure via single-atom-embedding
I. Miyazato, T. Hussian, K. Takahashi
J. Mater. Chem. C, **2020**, *8*, 9755-9762.
10. Palladium-Catalyzed C-H Iodination of Arenes by Means of Sulfinyl Directing Groups
H. Saito, K. Yamamoto, Y. Sumiya, K. Nogi, S. Maeda, H. Yorimitsu
Chem. Asian J., **2020**, *15*, 2442-2446.

11. Global Search for Crystal Structures of Carbon under High Pressure
M. Takagi, S. Maeda
Acs Omega, **2020**, 5, 18142-18147.
12. Multi-Dimensional Classification of Catalysts in Oxidative Coupling of Methane through Machine Learning and High-Throughput Data
K. Takahashi, L. Takahashi, T. N. Ngyuyen, A. Thakur, T. Taniike
J. Phys. Chem. Lett., **2020**, 11, 6819-6826.
13. Kinetic prediction of reverse intersystem crossing in organic donoracceptor molecules
N. Aizawa, Y. Harabuchi, S. Maeda, Y.-J. Pu
Nat. Commun., **2020**, 11, 3909 (6 pages).
14. Revisiting Machine Learning Predictions for Oxidative Coupling of Methane (OCM) based on Literature Data
S. Nishimura, J. Ohyama, T. Kinoshita, S.D.L. K. Takahashi
ChemCatChem, **2020**, 12, 5888-5892.
15. Asymmetric remote C-H borylation of aliphatic amides and esters with a modular iridium catalyst
R. L. Reyes, M. Sato, T. Iwai, K. Suzuki, S. Maeda, M. Sawamura
Science, **2020**, 369, 970-974.
16. Phonon transport probed at carbon nanotube yarn/sheet boundaries by ultrafast structural dynamics
M. Hada, K. Makino, H. Inoue, T. Hasegawa, H. Masuda, K. Shirasu, T. Nakagawa, T. Seki, J. Matsuo, T. Nishikawa, Y. Yamashita, S. Koshihara, V. Stolojan, S. R. P. Silva, J.-i. Fujita, Y. Hayashi, S. Maeda, M. Hase
Carbon, **2020**, 170, 165-173.
17. A theoretical study on the alkali metal carboxylate-promoted L-Lactide polymerization
C. Özen, T. Satoh, S. Maeda
J. Comput. Chem., **2020**, 41, 2197-2202
18. Chiral lanthanide lumino-glass for a circularly polarized light security device
Y. Kitagawa, S. Wada, M. D. J. Islam, K. Saita, M. Gon, K. Fushimi, K. Tanaka, S. Maeda, Y. Hasegawa
Commun. Chem., **2020**, 3, 119 (5 pages).
19. Direct Design of Active Catalysts for Low Temperature Oxidative Coupling of Methane via Machine Learning and Data Mining
J. Ohyama, T. Kinoshita, E. Funada, H. Yoshida, M. Machida, S. Nishimura, T. Uno, J. Fujima, I. Miyazato, L. Takahashi, K. Takahashi
Catal. Sci. Technol., **2021**, 11, 524-530.
20. Direct Design of Catalysts in Oxidative Coupling of Methane via High-Throughput Experiment and Deep Learning
K. Sugiyama, T. N. Ngyuyen, S. Nakanowatari, I. Miyazato, T. Taniike, K. Takahashi
ChemCatChem, **2021**, 13, 952-957.

21. Chemoselective Cleavage of Si-C(sp^3) Bonds in Unactivated Tetraalkylsilanes Using Iodine Tris(trifluoroacetate)
K. Matsuoka, N. Konami, M. Kojima, T. Mita, K. Suzuki, S. Maeda, T. Yoshino, S. Matsunaga
J. Am. Chem. Soc., **2021**, *143*, 103-108.
22. Representing Catalytic and Processing Space in Methane Oxidation Reaction via Multioutput Machine Learning
I. Miyazato, T. N. Ngyuyen, L. Takahashi, T. Taniike, K. Takahashi
J. Phys. Chem. Lett., **2021**, *12*, 808-814.
23. Representing the Methane Oxidation Reaction via Linking First-Principles Calculations and Experiment with Graph Theory
L. Takahashi, J. Ohyama, S. Nishimura, K. Takahashi
J. Phys. Chem. Lett., **2021**, *12*, 558-568.
24. Learning Catalyst Design Based on Bias-Free Data Set for Oxidative Coupling of Methane
T. N. Ngyuyen, S. Nakanowatari, T. T. P. Nhat, A. Thakur, L. Takahashi, K. Takahashi, T. Taniike
Acs Catalysis, **2021**, *11*, 1797-1809.
25. Substitution effect on the nonradiative decay and trans $\rightarrow$ cis photoisomerization route: a guideline to develop efficient cinnamate-based sunscreens
S. Kinoshita, Y. Harabuchi, Y. Inokuchi, S. Maeda, M. Ehara, K. Yamazaki, T. Ebata
Phys. Chem. Chem. Phys., **2021**, *23*, 834-845.
26. Combined Graph/Relational Database Management System for Calculated Chemical Reaction Pathway Data
T. Gimadiev, R. Nugmanov, D. Batyrshin, T. Madzhidov, S. Maeda, P. Sidorov, A. Varnek
J. Chem. Inf. Model., **2021**, *61*, 554-559.
27. Data science assisted investigation of catalytically active copper hydrate in zeolites for direct oxidation of methane to methanol using H₂O₂
J. Ohyama, A. Hirayama, N. Kondo, H. Yoshida, M. Machida, S. Nishimura, K. Hirai, I. Miyazato, K. Takahashi
Sci. Rep., **2021**, *11*, 2067 (10 pages).
28. Silane- and peroxide-free hydrogen atom transfer hydrogenation using ascorbic acid and cobalt-photoredox dual catalysis
Y. Kamei, Y. Seino, Y. Yamaguchi, T. Yoshino, S. Maeda, M. Kojima, S. Matsunaga
Nat. Commun., **2021**, *12*, 966 (9 pages).

B. 総説・解説・その他

1. Rate Constant Matrix Contraction Method for Systematic Analysis of Reaction Path Networks
Y. Sumiya, S. Maeda
Chem. Lett., **2020**, *49*, 553-564.

2. Artificial Force Induced Reaction Method for Systematic Elucidation of Mechanism and Selectivity in Organometallic Reactions.
M. Hatanaka, T. Yoshimura, S. Maeda
Top. Organomet. Chem., **2020**, 67, 57-80.

C. 著書

1. Paths of Chemical Reactions and Their Networks: From Geometry Optimization to Automated Search and Systematic Analysis.
Y. Sumiya, S. Maeda
in "Chemical Modelling: Volume 15 (RSC Specialist Periodical Reports)" ed. by M. Springborg and J.-O. Joswig, Royal Society of Chemistry, **2020**, pp.28-69.

D. 招待講演

1. 触媒インフォマティクス: 材料組成とプロセス条件を考慮した触媒設計
高橋啓介
JST-CRDS ワークショップ, 2020.7.29, オンライン
2. マテリアルズインフォマティクスを用いた材料設計の現状と展望
高橋啓介
第84回半導体集積回路技術シンポジウム, 2020.9.15-16, オンライン
3. 量子化学計算に基づく光反応の反応経路探索: 光機能性分子の反応機構解析
原 祐
長崎県工業技術センター技術研究会, 2020.10.08, オンライン
4. GRRM プログラムの新展開 2020
前田 理
IQCE 量子化学探索講演会 2020 「量子化学で探る化学の最先端」, 2020.11.2, オンライン
5. 触媒インフォマティクスによる触媒探索最前線
高橋啓介
Materials Research Meeting Forum 2020, 2020.12.8-9, オンライン
6. 材料・触媒インフォマティクス:材料組成とプロセス条件を考慮した材料・触媒設計
高橋啓介
Materials Research Meeting Forum 2020, 2020.12.8-9, オンライン
7. The Rise of Catalysts Informatics: Concepts and Applications
高橋啓介
第19回ナノテクノロジー総合シンポジウム, 2020.12.10, オンライン
8. Mechanistic studies on novel chemical reactions by AFIR

Cihan Özen

Joint Symposium of School of Science & WPI-ICReDD in Hokkaido University, 2020.12.10, オンライン

9. Introduction to ICReDD, and the development of AFIR method toward design and discovery of unexplored chemical reactions
前田 理
The 3rd ICReDD International Symposium, 2020.2.24, オンライン
10. The Rise of Materials Informatics: Design Functional Materials and Catalysts
高橋啓介
International Symposium on Materials Informatics 2020, 2021.2.26, オンライン
11. Catalysts Informatics: Data and Design
高橋啓介
Wtrlt: Data Management in Catalysis Research: The opportunities ahead, 2021.3.3, オンライン
12. Development of Systematic Search Method for Non Radiative Decay Pathways toward Designing Photofunctional Molecules, S02-1pm-03
原渕 祐
日本化学会第101 春季年会 (2021) , 2021.3.19-22, オンライン
13. 反応経路自動探索法の開発とその新展開
前田 理
30 年後の夢をかなえる理論化学 (日本化学会併催シンポジウム) , 2021.3.20, オンライン

E. 外部資金の取得状況 (2020.4-2021.3)

前田 理

日本学術振興会・世界トップレベル研究拠点プログラム (代表) :
「化学反応創成研究拠点 (ICReDD)」

科学技術振興機構・戦略的創造研究推進事業「ERATO」(代表) :
「前田化学反応創成知能プロジェクト」

科学技術振興機構・戦略的創造研究推進事業「CREST」(分担) :
「レドックスメカノケミストリーによる固体有機合成化学」

高橋 啓介

科学技術振興機構・戦略的創造研究推進事業「CREST」(代表)
「実験・計算・データ科学の統合によるメタン変換触媒の探索・発見と反応機構の解明・制御」

日本学術振興会・基盤研究 A (代表) :
「機械学習と第一原理計算を併用した新規機能性人工結晶の創出」

F. 受賞関係

長田 裕也

文部科学大臣表彰若手科学者賞 (2020.4.7)

「高分子主鎖の動的機能を活用する新規キラル材料の創出研究」

原 祐

理論化学会第 1 回奨励賞 (2020.5.15)

「分子の光応答を包括的に理解するための理論計算手法の開発と応用」

長田 裕也

Thieme Chemistry Journals Award (2020.12.14)

原 祐

日本化学会第 70 回 (2020 年度) 進歩賞 (2020.5.15)

「光機能性分子の設計に向けた無輻射失活経路探索法の開発」

赤羽 一平

理学部同窓会賞 (2021.3.23)

構 造 化 学 研 究 室

(現教員)

教 授 石森 浩一郎

准教授 内田 毅

助 教 齋尾 智英 (令和2年9月転出)

(研究概要)

構造化学研究室では、種々の分光学的手法を用いて生体関連物質、特に金属イオンを含むタンパク質や分子シャペロンの構造機能相関の分子機構の解明に関する研究を行っている。

金属イオンを含むタンパク質は生命維持に必要な多くの過程において重要な働きを担っており、その精妙な機能発現機構を人工的に制御、設計することは生命現象の分子論的理解だけではなく、タンパク質の機能に基づく新規創薬への応用やタンパク質を用いた新規な触媒反応系の開発等にもその指針を与える。現在、本研究室では、生体内の金属イオンの恒常性を維持するための制御機構と細胞内金属イオン動態の解析、酸素呼吸に必須な電子伝達タンパク質など重要な生体反応を担うタンパク質の構造と機能、病原菌における金属代謝機構とその制御、生体内における金属タンパク質の生成機構、生体膜モデル「ナノディスク」を用いた膜タンパク質の構造、機能解析、およびタンパク質分子の動的挙動や近年、タンパク質の新たな動的機能特性として注目されている細胞内での液-液相分離の分子機構とその制御など、さまざまな局面で機能しているタンパク質の機能について、極低温超高感度高分解能溶液NMR装置による多核多次元NMR測定や種々の励起波長によるレーザー共鳴ラマン分光システム、独自に開発した時分割測定可能な高圧分光システムなど多様な分光学的手法を応用することで、その分子機構の解明を試みている。

さらに、このようなタンパク質が細胞内で高度な機能を発揮するには、そのペプチド鎖の正常な折れたたみや細胞内の特定場所への輸送が必須であり、これらは分子シャペロンとよばれる一群のタンパク質により制御されている。この分子シャペロンは、基質となるタンパク質とのダイナミックな相互作用により機能することから、結晶構造解析では捉えられないタンパク質の動きが検出可能な常磁性プローブを用いた NMR 手法の開発とともに、それを活用した構造解析・ダイナミクス解析により、分子シャペロンの動的な作用機序解明を目指す。

以上のようなタンパク質の構造や機能発現の分子機構を、その制御過程の動的理解に基づき、人工的な制御を実現することで、難分解性化合物による環境汚染の浄化に貢献する酵素の高機能化設計やナノサイズの空孔を有するタンパク質によるマイクロ輸送システムへの展開など、高機能な新規タンパク質の設計と創製を目指している。



図 1. クライオプローブ装着
600MHz NMR



図 2. 共鳴ラマン測定装置

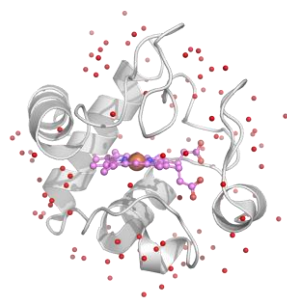


図 3. 電子伝達タンパク質シト
クロム c

A. 原著論文

1. A Single Mutation Converts Alr5027 from Cyanobacteria *Nostoc* Sp. PCC 7120 to a Heme-Binding Protein with Heme-Degrading Ability
N. Dojun, K. Muranishi, K. Ishimori, T. Uchida
J. Inorg. Biochem., Vol. 203, 110916 (2020).
2. Biophysical Research in Hokkaido University, Japan
T. Aizawa, M. Demura, K. Gohara, H. Haga, K. Ishimori, M. Kinjo, T. Komatsuzaki, K. Maenaka, M. Yao
Biophys. Rev. Vol. 12, 233-236 (2020).
3. Spectroscopic Characterization of Halorhodopsin Reconstituted into Nanodisks Using Native Lipids
A. Yamamoto, T. Tsukamoto, K. Suzuki, E. Hashimoto, Y. Kobashigawa, K. Shibasaki, T. Uchida, F. Inagaki, M. Demura, K. Ishimori
Biophys. J. Vol. 118, 2853-2865 (2020).
4. Osmotic Pressure Effects Identify Dehydration Upon Cytochrome *c*-Cytochrome *c* Oxidase Complex Formation Contributing to a Specific Electron Pathway Formation
W. Sato, S. Hitaoka, T. Uchida, K. Shinzawa-Itoh, K. Yoshizawa, S. Yoshikawa, K. Ishimori
Biochem. J. Vol. 477, 1565-1578 (2020).
5. Mechanistic Insights into Heme-Mediated Transcriptional Regulation via a Bacterial Manganese-Binding Iron Regulator, Iron Response Regulator (Irr)
D. Nam, Y. Matsumoto, T. Uchida, M.R. O'Brian, K. Ishimori
J. Biol. Chem. Vol. 295, 11316-11325 (2020).
6. Distance Distribution between Two Iodine Atoms Derived from Small-Angle X-ray Scattering Interferometry for Analyzing a Conformational Ensemble of Heavy Atom-Labeled Small Molecules.
Y. Taguchi, T. Saio, D. Kohda
J. Phys. Chem. Lett., Vol. 25, 5451-5456 (2020).
7. Dynamics of Proteins with Different Molecular Structures under Solution Condition.
R. Inoue, T. Oda, H. Nakagawa, T. Tominaga, T. Saio, Y. Kawakita, M. Shimizu, A. Okuda, K. Morishima, N. Sato, R. Urade, M. Sato, M. Sugiyama
Sci. Rep. Vol. 10, 21678 (10 pages) (2020).
8. Radical Transfer but not Heme Distal Residues Is Essential for pH Dependence of Dye-Decolorizing Activity of Peroxidase from *Vibrio cholerae*.
T. Uchida, I. Ohmura, S. Umetsu, K. Ishimori
J. Inorg. Biochem. Vol. 219, 111422 (8 pages) (2021).
9. Functional Cooperativity between the Trigger Factor Chaperone and the ClpXP Proteolytic Complex.
K. Rizzolo, A.Y.H. Yu, A. Ologbenla, S.R. Kim, H. Zhu, K. Ishimori, G. Thibault, E. Leung, Y.W.

Zhang, M. Teng, M. Haniszewski, N. Miah, S. Phanse, Z. Minic, S. Lee, J.D. Caballero, M. Babu, F.T.F. Tsai, T. Saio, W.A. Houry
Nat. Commun., Vol. 12, 281 (18 pages) (2021).

10. Deuteration Aiming for Neutron Scattering.
A. Okuda, R. Inoue, K. Morishima, T. Saio, Y. Yunoki, M. Yagi-Utsumi, H. Yagi, M. Shimizu, N. Sato, R. Urade, K. Kato, M. Sugiyama
Biophys. Physicobiol., Vol. 18, 16-27 (2021).
11. A Unique Leucine-Valine Adhesive Motif Supports Structure and Function of Protein Disulfide Isomerase P5 via Dimerization.
M. Okumura, S. Kanemura, M. Matsusaki, M. Kinoshita, T. Saio, D. Ito, C. Hirayama, H. Kumeta, M. Watabe, Y. Amagai, Y.H. Lee, S. Akiyama, K. Inaba
Structure, Vol. 29, 1-14 (2021).

B. 総説・解説・その他

1. 金属センシング
石森浩一郎
生命金属ダイナミクス 第4章 第3節、株式会社エヌ・ティー・エス (2021)
2. Biological Phase Separation: Cell Biology Meets Biophysics.
T. Yoshizawa, R.S. Nozawa, T.Z. Jia, T. Saio, E. Mori
Biophys. Rev., Vol. 12, 519-539 (2020).
3. Solution NMR Spectroscopy for Investigation of Liquid-Liquid Phase Separation.
T. Saio, M. Okumura, Y.Ho. Lee
J. Korean Mag. Res. Soc., Vol. 24, 47-52 (2020).
4. 相分離生物学:相分離メカニズムのススメ 検出技術:天然変性タンパク質の構造生物学
小田隆, 齋尾智英
生物工学会誌, Vol. 98, 232-235 (2020).
5. 中性子溶液散乱-現在・過去・未来-
杉山正明, 井上倫太郎, 中川洋, 齋尾智英
波紋, Vol. 30, 16-25 (2020).

D. 招待講演

1. Structural and Functional Characterization of Heme-Regulated Proteins in Iron Metabolism
12th International Biometals Web-Symposium (Biometals 2020), 2020.7.6-10, on line
Koichiro Ishimori
2. On and Off between Molecular Chaperones and Clients: Appropriate Distance and Timing for Protein Folding

Tomohide Saio

21st Hokudai-RIES International Symposium, 2020.12.10-11, online.

3. シャペロンから理解する細胞内タンパク質の動態制御メカニズム
齋尾 智英
第93回日本生化学会大会, 2020/9/14-16, online.
4. Exploiting Paramagnetic Metal Ions for Protein Structural Study in Solution
齋尾 智英, 石森 浩一郎
第58回日本生物物理学会年会, 2020/9/16-18, online.
5. 常磁性金属と分子シャペロン
齋尾 智英
2020年度日本分光学会NMR分光部会 集中講義, 2020.10.19, online.

E. 外部資金の取得状況 (2020.4-2021.3)

石森 浩一郎

新学術領域研究 (研究領域提案型) (代表):

「生命金属動態を制御するシグナル伝達の分子機構」

新学術領域研究 (研究領域提案型) (分担):

「「生命金属科学」分野の創成による生体内金属動態の統合的研究」

挑戦的研究 (萌芽) (代表):

「ナノディスクを用いた膜結合金属蛋白質の集積配列による活性制御」

内田 毅

基盤研究(C) (代表):

「色素分解酵素 DyP を利用した環境汚染物質の分解・環境浄化システムの構築」

挑戦的研究 (萌芽) (分担):

「ナノディスクを用いた膜結合金属蛋白質の集積配列による活性制御」

齋尾 智英

JST 2020 創発的研究支援事業 (代表):

「分子シャペロンから理解する動的生命システム」

AMED 難治性疾患実用化研究事業 (代表):

「液-液相分離の制御と破綻に着目した筋萎縮性側索硬化症の分子機構解明」

国際共同研究強化(B) (代表):

「小胞体シャペロンによるフォールディング中間体の過渡的認識と制御の構造基盤」

新学術領域研究 (研究領域提案型) (代表):

「相分離を介したシグナル伝達制御の構造基盤」

基盤研究(C) (代表) :

「半特異的認識を介したシャペロンネットワークの構造基盤」

基盤研究(S) (分担) :

「新世代中性子構造生物学の開拓」

基盤研究(B) (分担) :

「生物学的相分離の制御機構」

公益財団法人中島記念国際交流財団 令和2年度日本人若手研究者研究助成金 (代表) :

「生体内での液-液相分離操作を目指した光応答シャペロンの創成」

公益財団法人 旭硝子財団 (代表) :

「細胞内における液-液相分離の光操作技術の開発」

川越 聡一郎

特別研究員奨励費 (代表) :

「常磁性 NMR と Cryo-EM により明らかにする分子シャペロン複合体の協働機構」

液体化学研究室

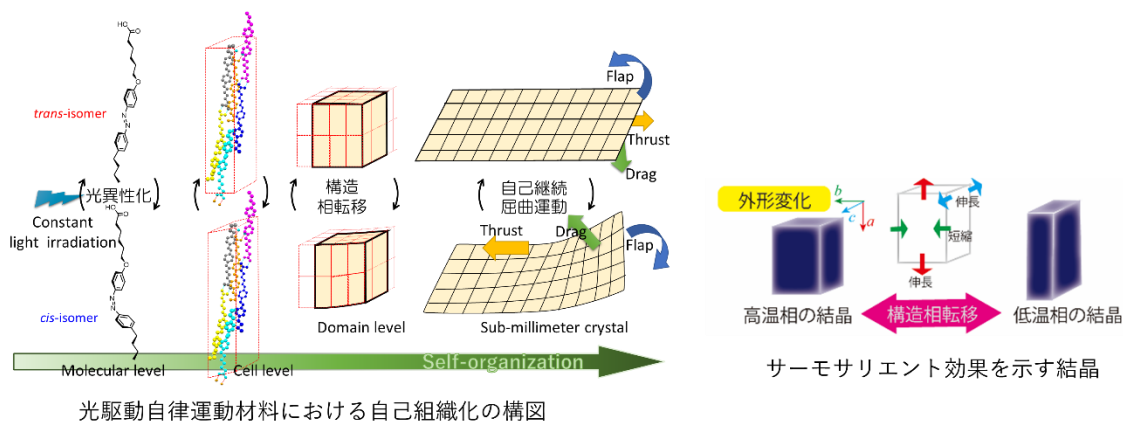
(旧教員)

准教授 原田 潤 (令和3年4月より 構造化学研究室 准教授)
 助教 景山 義之 (令和3年4月より 構造化学研究室 助教)
 助教 高橋 幸裕 (令和3年4月より 物理化学研究室 助教)

(研究概要)

プロトン伝導、ゲスト分子の結晶閉じ込めと相変化、核磁気共鳴法を用いた分子運動の解析、巨視的な分子集合体の自律運動の実現と機構の解明について研究をしています。加えて、機能性結晶の開発研究も行っています。結晶を構成する分子の設計や、その組み合わせを検討するとともに、結晶中での分子配列・分子運動・分子間相互作用の設計・制御や、結晶界面での電荷移動や分子の移動に注目して研究を進めています。

巨視的な分子集合体の自律運動の研究では、両親媒性のアゾベンゼン誘導体を含む結晶が、青色光照射下の非平衡定常状態で自己継続的に屈曲を繰り返す現象の、解析と機能向上を進めています。2020年度は、水中を自律遊泳する現象について、そこに介在する力の解析を、化学と数理物理学との学際的視点から進めました。加えて、外部情報によって、結晶の自己継続的な運動を変調させることにも成功しています。さらに、化学反応を利用した、マイクロメートルの微粒子を輸送する自律液晶マシンの創出にも、新たに成功しました。これら自律的な力学挙動を示す分子システムの創出により、人工的に合成した分子を組み立てて創出した「水中で働く自律分子ロボット」の実現が、現実的な化学の研究テーマになりつつあります。加えて、水中での分子ダイナミクスを核磁気共鳴法で計測する研究も進めています。



有機結晶には温度変化によって異方的な外形変化を伴う構造相転移を示す結晶があります。その中でも特に顕著な外形変化を示す結晶は、サーモサリエント結晶とよべれます。これまで、この効果は電気的あるいは磁気的な機能を持たない有機結晶について報告され、その形状変化をアクチュエーターとして応用する提案がなされてきました。これに対し、我々は、強誘電相転移を示す電荷移動錯体の結晶のサーモサリエント効果を新たに見出しました。電荷移動錯体は、エレクトロニクスに利用可能な様々な機能を発現する物質群であるため、今後電磁気的な機能と機械的な機能が協調して発現する分子材料の開発も可能になると考えています。

また、これまでに、分子運動によって機能発現する柔粘性/強誘電性イオン結晶という新しいタイプの機能性分子結晶を開発しています。この材料は、従来の分子性強誘電体とは異なり、多結晶を固めたペレットやフィルムでも強誘電性を示します。2020年度は、この柔粘性/強誘電性イオン結晶の開発をさらに進めています。

A. 原著論文

1. Electric and Thermosensitive Properties of a Charge-Transfer Complex Exhibiting a Minor Valence Instability Transition
Y. Takahashi, T. Kondo, S. Yokokura, M. Takehisa, J. Harada, T. Inabe, M. M. Matsushita and K. Awaga
Cryst. Growth Des., Vol. 20, 4758-4763 (2020).
2. Light-driven flipping of azobenzene assemblies — sparse crystal structures and responsive behavior to polarized light
Y. Kageyama, T. Ikegami, S. Satonaga, K. Obara, H. Sato, and S. Takeda
Chem. Eur. J., Vol.26, 10759–10768 (2020).

B. 総説・解説・その他

1. Plastic/ferroelectric molecular crystals: Ferroelectric performance in bulk polycrystalline forms
J. Harada
APL Mater., Vol. 9, 020901 (2021).
2. Light-Powered Self-Sustainable Macroscopic Motion for the Active Locomotion of Materials
Y. Kageyama
Symmetry, Vol.12, 1688 (2020).

C. 著書

1. Interplay of photoisomerization and phase transition events provide a working supramolecular motor
Y. Kageyama,
Chapter 28 in *Photosynthetic Responses in Molecules and Molecular Aggregates*, H. Miyasaka, K. Matsuda, J. Abe, and T. Kawai (Eds), Springer, pp. 449–463 (2020).

D. 招待講演

1. 分子の触媒的な動的挙動が協奏する分子集合体のしなやかな自発運動と自律運動
景山義之
第 80 回分析化学討論会, 2020.5. 札幌. (要旨集にて発表)

E. 外部資金の取得状況 (2020.4–2021.3)

原田 潤

基盤研究(A) (代表) :

「分子性強誘電体のイノベーション：柔粘性結晶を利用した高性能焦電・圧電材料の開発」

村田製作所 共同研究（代表）：
「柔粘性結晶とアプリケーションに関する研究」

景山 義之
新学術領域研究（分担）：
「発動分子素子の階層化による自己秩序機能の創出」

新学術領域研究（代表）：
「光異性化分子の「動き」がつくる分子集合体の「動き」を数理モデルから解き明かす」

高橋 幸裕
基盤研究(C)（代表）：
「有機ヘテロ接合界面で生じる電荷移動現象と機能性」

物質化学研究室

(現教員)

教授 佐田 和己

准教授 角五 彰

特任助教 Arif Md. Rashedul Kabir

(研究概要)

当研究室では、「分子間・階層間相互作用をナノメートルからセンチメートルのスケールで制御した新規高機能性複合材料の創製とその機能発現機構の解明」を目指して研究を進めています。

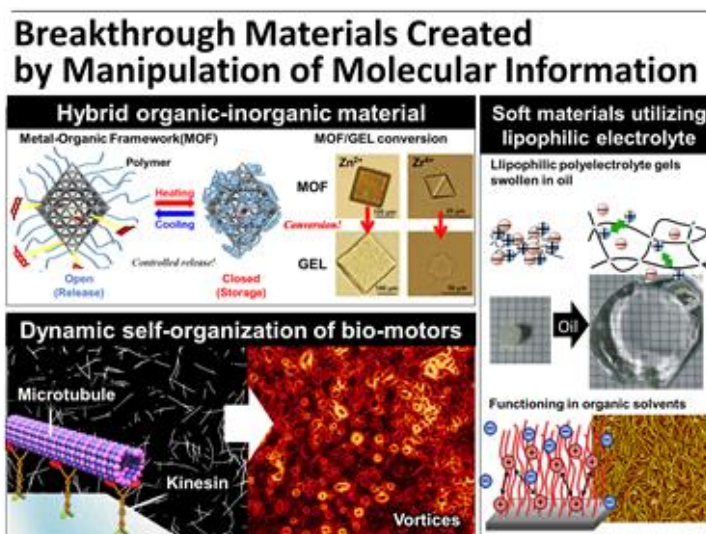
物質の“機能”はそれを構成する成分（原子・分子・分子集合体）とナノメートルからセンチメートルに至るまでのそれぞれのサイズ（階層）における構造によって制御されています。またその構成成分間の結合は地球の環境下（1気圧、298K）において複雑に分化しており、それらを自在に制御することで、複雑な混合物の構造・機能をデザインするための手法の確立が求められています。

当研究室では、このような立場から、分子間の引力・斥力を巧みに利用して、有機低分子・金属錯体・高分子・無機ナノ粒子・タンパク質などの様々な物質群を構成成分として、それらの混合物から作られる新奇な構造体や新しい機能の発現に取り組んできました。具体的には、親油性のかさ高いイオン対を導入したイオン性高分子が、低極性媒質中で高分子電解質として振る舞うことを実証し、その架橋ゲルが様々な低極性有機溶媒中で大きく膨潤し、自重の数百倍の溶媒を吸収できる材料であることを世界で初めて見出しました。イオン対の解離による静電斥力を利用した超分子化学へと展開を広げています。

また、ナノサイズの細孔をもつ有機結晶や配位高分子の分子設計や様々なナノ材料との複合化を検討しています。具体的には、クリック反応を使った配位高分子の事後修飾や、有機層状結晶を巧みに利用した複数の有機物の混合物から得られる多成分混晶の形成、あるいはそれを用いた有機分子“平均化演算”などへ展開しています。

さらに、アクチン/ミオシン系や微小管/キネシン系などの生体分子モーターに着目し、生体システムのような高度な階層構造に基づく機能性材料の構築を目指しています。具体的には、分子モータータンパク質の受動的・能動的自己組織化、あるいは温度勾配や濃度勾配を利用した自己組織化の時空間制御に関して検討を行い、生体環境に近い条件で駆動する高効率な運動素子への展開を試みています。

様々な物質群の無限の組み合わせのなかから、新しい機能・構造をつくり、新現象を目指した研究を進めることにより、ボトムアップアプローチとして、将来的には機能性部位の階層構造を制御し、分子デバイスや光エネルギー変換などの機能を追求し、さらに化学エネルギーを運動エネルギーへと相互変換できるシステムの構築につながると考えています。



A. 原著論文

1. Flavin Mimetics: Synthesis and Photophysical Properties
D.-M. Rasadean, T. Machida, K. Sada, C. R. Pudney, G. D. Pantos
Tetrahedron, vol. 82, 131925 (2021).
2. Triple Thermoresponsiveness of a TADDOL-Based Homopolymer through the Formation of Supramolecular Complexes with Chiral Guest Molecules at Variable Ratios
M. Naya, K. Kokado, K. Sada
ACS Appl. Polym. Mater., vol. 2, 4415-4424 (2020).
3. Metal-organic framework tethering pH- and thermo-responsive polymer for ON-OFF controlled release of guest molecules
S. Nagata, K. Kokado, K. Sada
CrystEngComm, Vol. 22 (6), 1106-1111 (2020).
4. Supramolecularly Designed Thermoresponsive Polymers in Different Polymer Backbones
M. Naya, K. Kokado, K. B. Landenberger, S. Kanaoka, S. Aoshima, K. Sada
Macromol. Chem. Phys., Vol. 221 (5), 1900455 (2020).
5. Photo-Induced Pyramidal Inversion Behavior of Phosphines Involved with the Aggregation-Induced Emission (AIE) Behavior
T. Machida, T. Iwasa, T. Taketsugu, K. Sada, K. Kokado
Chem. Eur. J., vol. 26, 8028-8034 (2020).
6. Controlling the length of self-assembled microtubes through mechanical stress-induced scission.
A. M. R. Kabir, K. Sada, and A. Kakugo.
Chemical Communications, Vol. 57, 468-471 (2021).
7. Modeling a microtubule filaments mesh structure from confocal microscopy imaging
Y. Ueno, K. Matsuda, K. Kato, A. Kuzuya, A. Kakugo, A. Konagaya
Micromachines, Vol. 11, 844 (2020).
8. Tensegrity representation presenting the mechanical properties of microtubule objects in a haptic virtual reality environment using unified particle objects model of and springs and anchors”
A. Pramudwiatmoko, G. Gutmann, Y. Ueno, A. Kakugo, M. Yamamura, A. Konagaya
Chem-Bio Informatics Journal, Vol. 20, 19-43 (2020).
9. Magnetic Force-Induced Alignment of Microtubules by Encapsulation of CoPt Nanoparticles Using a Tau-Derived Peptide
H. Inaba, M. Yamada, Mst. R. Rashid, A. M. R. Kabir, A. Kakugo, K. Sada, K. Matsuura
Nano Letters, Vol. 20, 5251-5258 (2020).
10. Photo-regulated trajectories of gliding microtubules conjugated with DNA
M Akter, J. J. Keya, A. M. R. Kabir, H. Asanuma, K. Murayama, K. Sada, A. Kakugo,
Chemical Communications, Vol. 56, 7953-7956 (2020).

11. Cyclic Tau-derived peptides for stabilization of microtubules H. Inaba, M. Nagata, K. J. Miyake, A. M. R. Kabir, A. Kakugo, K. Sada, K. Matsuura,
Polymer Journal, Vol. 52, 1143–115 (2020).
12. Mechanical Stimulation-Induced Unidirectional Organization of Gliding Microtubules in Confined Microwells
D. Inoue, A. M. R. Kabir, K. Tokuraku, K. Sada, A. Kakugo,
Advanced Materials Interfaces, Vol. 7, 1902013, (2020).
13. Radial Alignment of Microtubules through Tubulin Polymerization in an Evaporating Droplet
J.J. Keya, H. Kudoh, A. M. R. Kabir, D. Inoue, N. Miyamoto, T. Tani, A. Kakugo, K. Shikinaka,
Plos One, 15(4), e0231352, 10.1371/journal.pone.0231352 (2020).
14. Comparison of the microtubules stabilized with anti-cancer drugs cevipabulin and paclitaxel
S. R. Nasrin, T. Ishihara, A. M. R. Kabir, A. Konagaya, K. Sada, A. Kakugo,
Polymer Journal, Vol. 52, 969–976, (2020).
15. Regulation of biomolecular motor-driven cargo transport by microtubules under mechanical stress
S. R. Nasrin, Tanjina Afrin, A. M. R. Kabir, Daisuke Inoue, Takayuki Torisawa, Kazuhiro Oiwa, K. Sada, A. Kakugo,
ACS Applied Bio Materials, Vol. 3 (4), pp. 1875-1883, (2020).
16. Breaking of buckled microtubules is mediated by kinesins
A. M. R. Kabir, K. Sada, A. Kakugo,
Biochemical and Biophysical Research Communications, Vol. 524 (1), pp. 249-254, (2020).
17. Effect of Microtubule Immobilization by Glutaraldehyde on Kinesin-Driven Cargo Transportation
S. R. Nasrin, A. M. R. Kabir, K. Sada, A. Kakugo
Polymer Journal, Vol. 52, 655–660 (2020).
18. Controlling the kinetics of interaction between microtubules and kinesins over a wide temperature range using the deep-sea osmolyte trimethylamine N-oxide
T. Munmun, A. M. R. Kabir, Y. Katsumoto, K. Sada, A. Kakugo,
Chemical Communications, Vol. 56 (8), 1187-1190, (2020).
19. Complete, rapid and reversible regulation of the motility of a nano-biomolecular machine using an osmolyte trimethylamine-N-oxide.
T. Munmun, A. M. R. Kabir, K. Sada, A. Kakugo
Sensors and Actuators B: Chemical, Vol. 304, 127231 (2020).

B. 総説・解説・その他

1. A new approach to explore the mechanoresponsiveness of microtubules and its application in studying dynamic soft interfaces.
A. M. R. Kabir, A. Kakugo
Polymer Journal, Vol. 53, 299-308 (2021).

2. 群れる発動分子システム 群れることで機能を創発する分子システムの構築
角五彰
化学と工業, Vol. 73, 460-462, 2020.
3. Molecular swarm robots: recent progress and future challenges
A. M. R. Kabir, D. Inoue, A. Kakugo
Science and Technology of Advanced Materials, Vol. 21, 323-332, 2020.
4. Synchronous operation of biomolecular engines
J. J. Keya, A. M. R. Kabir, A. Kakugo
Biophysical Reviews, Vol. 12, 401-409, 2020.
5. 生体分子モーターと DNA オリガミによる 分子人工筋肉の開発
松田健人、アリフ ムハンマド ラセドゥル コビル、佐田和己、葛谷明紀、角五彰
BIO INDUSTRY、シーエムシー出版, Vol. 3(13), 323-328, 2020.

C. 著書

なし

D. 招待講演

1. 格子状に配列したモノマーの三次元重合としての 結晶架橋
佐田 和己
第 69 回高分子学会年次大会 2020 年 5 月 28 日 福岡国際会議場 (中止)
2. Swarming of a molecular machine for exploiting emergent functions
A. Kakugo
Scientific Meetings in King Faisal University, Nov.12, 2020 Online
3. Emergent function of molecular swarm robot
A. Kakugo
14th International Symposium on Polymer Physics (PP' 2020) June 14-18, Chongqing, China
(Postponed)
4. Synchronous operation of bio-molecular engines
A. Kakugo
2020 World Conference of Protein Society (WCPS) July 6-10, 2020, in Sapporo, Japan (Cancel)
5. Applications of ATP-fueled molecular swarm robots
International Conference on Manipulation Automation and Robotics at Small Scales (MARSS), A. Kakugo
July 13-17, 2020, in Toronto, Canada (Postponed)
6. What the ATP-fueled molecular swarm robot be used for?

- A. Kakugo
Intelligent droplets, marbles and vesicles, March, 5-6, 2020, University of the West of England, Bristol, UK
7. Bio-molecular robots for sustainable development
A. Kakugo
International Conference on Recent Advances in Chemistry (ICRAC 2020). Feb. 7-8, 2020 in Dhaka, Bangladesh
8. 群れることで機能創発する分子システム
A. Kakugo
CSJ 化学フェスタ 2020, 2020 年 10 月 20 - 22 日・オンライン
9. 生体分子機械の集団運動制御
A. Kakugo
新学術領域合同シンポジウム—ソフトロボット学と発動分子科学の境界 2020 年 11 月 4 日・オンライン
10. Synchronous operation of bio-molecular engines
A. Kakugo
第 20 回日本蛋白質科学会年会 2020 年 7 月 7-9 日・札幌・札幌コンベンションセンター（中止）
11. ロボット&ナノ - 極微の世界の協働性
A. Kakugo
第 67 回応用物理学会春季学術講演会ランチョンセミナー2020 年 3 月 12 日・東京・上智大学（中止）

E. 外部資金の取得状況（2020.4-2021.3）

佐田 和己

新学術領域研究（公募）（代表）
「刺激応答性高分子ハイブリッドによるオンデマンド触媒の開発」

角五 彰

新学術領域（研究領域提案型）（代表）
「発動分子素子の階層化による自己秩序機能の創出」

基盤研究（A）（代表）
「生体分子機械による革新的動力システムの合理設計」

国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構（NEDO）（代表）
「AI と VR を活用した分子ロボット共創環境の研究開発」

生体医歯工学共同研究拠点共同研究プロジェクト（代表）
「アクティブマターを用いた革新的物質輸送システムの開発」

Arif. Md. Rashedul Kabir

公益財団法人ヒロセ財団（研究助成事業）

「微小管関連タンパク質による微小管の機械的性質の調節に関する研究」

公益財団法人ヒロセ財団（研究助成事業）

「生体分子モーターの熱安定性を向上させる深海生物由来の浸透圧調節物質の役割に関する研究」

Grant-in-Aid for Scientific Research (Transformative Research Areas (A) (co-investigator)

Theme: Development of molecular actuation systems for a minimal artificial brain.

F. 受賞関係

Jakia Janat Keya

第16回日本生物物理学会若手奨励賞（2020.9.24）

Autonomous molecular swarm robots realized by sequential transfer of DNA signal

錯体化学研究室

(現教員)

教授 加藤 昌子

准教授 小林 厚志

助教 吉田 将己

助教 孫 宇 (高等教育推進機構 ISP 助教)

(研究概要)

錯体化学研究室では、特異な発光性および光機能性を持つ金属錯体の開発と探求を行っている。特に、配位結合による構造デザインとともに、金属間相互作用、 $\pi\pi$ 相互作用、疎水性相互作用、水素結合等の分子間相互作用を自在に制御することによって、多様でフレキシブルなナノ構造を形成する金属錯体の創製に取り組んでいる。これに基づき、研究を「ソフトクリスタル」へと展開している。最近では、白金(II)錯体上の置換基の嵩高さに金属間相互作用を精密制御することで青色から赤色までの幅広い発光色制御に成功したり(図1)、液液界面上における白金(II)錯体結晶の金属間相互作用や細孔構造の制御に成功した(図2)。また次世代発光材料として注目を集めている発光性銅(I)錯体では、無溶媒の固相反応で容易に強発光性錯体を合成する方法を開拓している(図3)。また、近年のエネルギー問題に対する有効なアプローチとして、光エネルギー変換系の構築を指向し、メゾスコピック領域における機能性錯体分子の自己集積化研究や無機半導体ナノクラスターとの融合研究も推進中である(図4)。

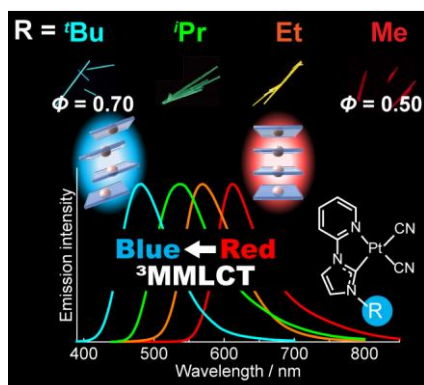


図1. 置換基による白金(II)錯体の幅広い発光色制御

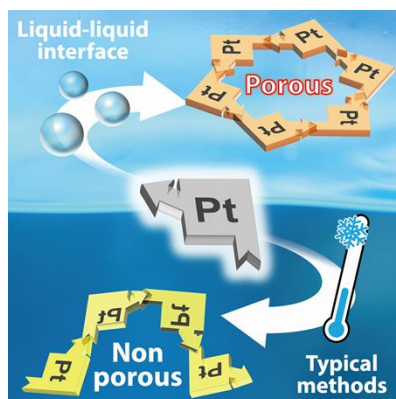


図2. 液液界面を用いた白金(II)錯体の結晶構造制御



図3. 強発光性銅(I)錯体の完全無溶媒加熱合成

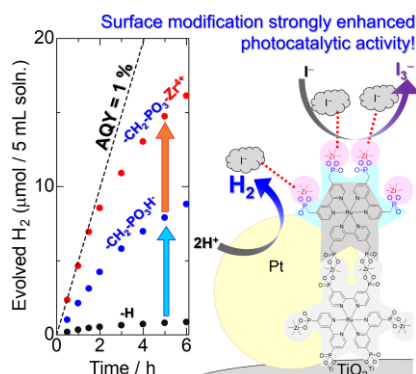


図4. Ru(II)光増感剤を多層化した光触媒ナノ粒子による高活性光水素発生反応

A. 原著論文

1. Delocalization of Excited State and Emission Spectrum of Platinum(II) Bipyridine Complex in Crystal: Periodic QM/MM Study
M. Nakagaki, S. Aono, M. Kato, S. Sakaki
J. Phys. Chem. C, Vol. 124, 10453–10461 (2020).
2. Photosensitizing Ruthenium(II)-Dye Multilayers: Photoinduced Charge Separation and Back Electron Transfer Suppression
N. Yoshimura, A. Kobayashi, W. Genno, T. Okubo, M. Yoshida, M. Kato
Sustainable Energy & Fuels, Vol. 4, 3450–3457 (2020).
3. Luminescent Ionic Liquid Formed from a Melted Rhenium(V) Cluster
J. Yanagisawa, T. Hiraoka, F. Kobayashi, D. Saito, M. Yoshida, M. Kato, F. Takeiri, G. Kobayashi, M. Ohba, L. F. Lindoy, R. Ohtani, S. Hayami
Chem. Commun., Vol. 56, 7957–7960 (2020).
4. Quantitative Thermal Synthesis of Cu(I) Coordination Polymers That Exhibit Thermally Activated Delayed Fluorescence
A. Kobayashi, T. Ehara, M. Yoshida, M. Kato
Inorg. Chem., Vol. 59, 9511–9520 (2020).
5. Intense Red-Blue Luminescence Based on Superfine Control of Metal-Metal Interactions for Self-Assembled Platinum(II) Complexes
D. Saito, T. Ogawa, M. Yoshida, J. Takayama, S. Hiura, A. Murayama, A. Kobayashi, M. Kato
Angew. Chem. Int. Ed., Vol. 59, 18723–18730 (2020).
6. Liquid-liquid Interface-promoted Formation of a Porous Molecular Crystal Based on a Luminescent Platinum(II) Complex
M. Kimura, M. Yoshida, S. Fujii, A. Miura, K. Ueno, Y. Shigeta, A. Kobayashi, M. Kato
Chem. Commun., Vol. 56, 12989–12992 (2020).
7. Enhancement of Photocatalytic Activity for Hydrogen Production by Surface Modification of Pt-TiO₂ Nanoparticles with a Double Layer of Photosensitizers
N. Yoshimura, A. Kobayashi, M. Yoshida, M. Kato
Chem. Eur. J., Vol. 26, 16939–16946 (2020).
8. Vapochromic Luminescence of a Spin-coated Copper(I) Complex Thin Film by the Direct Coordination of Vapour Molecules
S. Kondo, N. Yoshimura, M. Yoshida, A. Kobayashi, M. Kato
Dalton Trans., Vol. 49, 16946–16953 (2020).
9. Cooperative Phenomenon of Vapochromism and Proton Conduction of Luminescent Pt(II) Complexes for the Visualisation of Proton Conductivity
A. Kobayashi, S. Imada, D. Wang, Y. Nagao, M. Yoshida, M. Kato
Faraday Discuss., Vol. 225, 184–196 (2021).

B. 総説・解説・その他

1. ソフトクリスタル：高秩序で柔軟な応答系としての集積発光性白金(II)錯体
加藤 昌子
日本結晶学会誌, Vol. 63, 2-7 (2021).

D. 招待講演

1. 光機能性クロミック金属錯体化学最前線
加藤 昌子
錯体化学会第70回討論会, 2020/9/28-30, オンライン開催.
2. 光機能性クロミック金属錯体化学最前線
加藤 昌子
近畿化学協会機能性色素部会第102例会：外部刺激応答性色素の最新動向, 2021.1.25, オンライン開催.
3. Developments of Vapochromic Pt(II) Complexes for Visualization of Invisible Chemicals and Macroscopic Phenomena
A. Kobayashi
錯体化学会第70回討論会, 2020/9/28-30, オンライン開催.
4. 刺激応答性金属錯体に対する合目的な設計指針の確立と開拓
吉田 将己
日本化学会第101春季年会, 2021/3/19-22, オンライン開催.

E. 外部資金の取得状況（2020.4-2021.3）

加藤 昌子

新学術領域研究（代表）：

「ソフトクリスタル：高秩序で柔軟な応答系の学理と光機能」

新学術領域研究（代表）：

「発光性スマートソフトクリスタルの環境応答制御と機能化」

小林 厚志

新学術領域研究（公募）（代表）：

「多階層型光電荷分離膜を有する水分解色素増感光電気化学セルの構築」

吉田 将己

若手研究（代表）：

「ガス分子により駆動される金属錯体薄膜の革新的磁気特性変換」

F. 受賞関係

加藤 昌子

令和 2 年度科学技術分野の文部科学大臣表彰 科学技術賞 (2020.4)
「環境感応型クロミック金属錯体の開発と光機能に関する研究」

令和 2 年度錯体化学会賞 (2020.9)
「光機能性クロミック金属錯体化学の創成」

小林 厚志

Outstanding Reviewers for Dalton Transactions in 2019 (2020.4)

Appreciating Reviewers for Inorganic Chemistry in 2019 (2020.9)

Outstanding Reviewers for Inorganic Chemistry Frontiers in 2020 (2021.3)

吉田 将己

日本化学会第 101 春季年会 若い世代の特別講演 (2021.3)
「刺激応答性金属錯体に対する合目的な設計指針の確立と開拓」

分析化学研究室

(現教員)

教授 上野 貢生
准教授 三浦 篤志
助教 藤井 翔
助教 今枝 佳祐 (2020.9 着任)

(研究概要)

分析化学研究室では、光とナノ物質／分子系との相互作用について明らかにするとともに、分析化学システムへの応用を目的として研究を行っている。ナノ構造の光物性は、構造体のサイズ・形状や構造間距離に強く依存する。しかしながら、従来の化学的な方法により合成したナノ構造体を基板上に敷き詰める方法では、構造間距離に強く依存する共鳴現象の本質を明らかにすることはできない。当研究室では、プラズモン共鳴を示す金属やグラフェン・カルコゲナイド等のナノ構造体を対象として、高度微細加工技術によりシングルナノメートルの分解能で精緻に作製する方法を開拓し、ナノ構造間あるいはナノ構造／分子間における相互作用の物理・化学的描像を各種分光計測法やフェムト秒時間分解計測により明らかにすることを目的として研究を進めている。特に、制御されたナノ構造体の光物性と分析化学研究への展開（新しい化学計測法の開発）について関心を持って取り組んでいる。

本年度は、遷移金属ダイカルコゲナイド層状化合物上に金ナノ構造を精緻に作製する技術を明らかにし、化学センサーにとって重要な高感度発光検出に関する学理を明らかにする上で重要な知見を得た。これまで、電子線リソグラフィや原子層堆積法を用いて高精度な金属ナノ構造の作製や金属ナノ構造と発光分子間の距離を厳密に制御して蛍光増強現象を定量的に測定できることを明らかにしてきた。しかし、発光分子の配置の制御が困難であったため、まだ詳細なメカニズムについては明らかになっていない。そこで、本研究では、直接遷移型の発光を示す単層の遷移金属ダイカルコゲナイド (WSe_2) 上に Fig. 1(a) に示すようなナノギャップ金 2 量体構造 (Au/WSe_2) を作製し、分子の配置に左右されない発光増強の定量的な測定系を構築した。 Au/WSe_2 の消光スペクトルを測定したところ、プラズモン共鳴と励起子の吸収ピークが重なったときにスペクトルが凹み、電磁的相互作用が誘起されていることが明らかになった。しかし、励起子に金属ナノ構造が直接接しているため、励起エネルギー移動消光により WSe_2 の発光スペクトル強度が著しく減少し、金からの発光が観測された。一方、励起子と金ナノ構造間に原子層堆積装置を用いてアルミナ層を 0.5 nm 堆積させたところ、電磁的相互作用が弱まるとともに、励起エネルギー移動消光が抑制され、Fig. 1(b) に示すように発光強度が 8 倍増大して、ほぼ最大の発光量子収率が得られることを明らかにした。

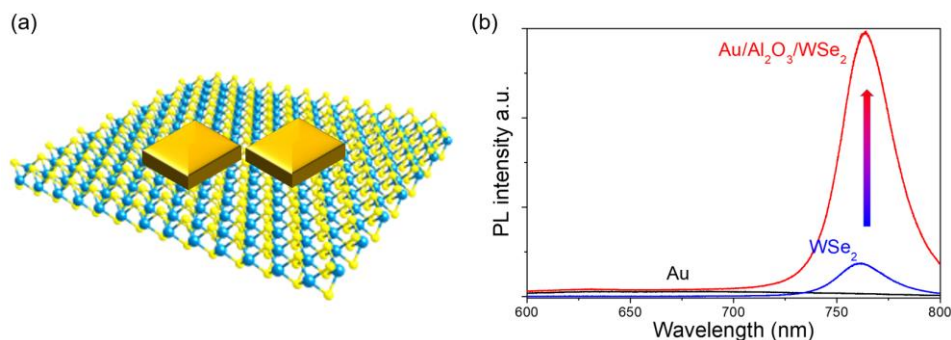


Fig. 1. (a) ナノギャップ金 2 量体構造／遷移金属ダイカルコゲナイド積層構造の略図, (b) $\text{Au}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{WSe}_2$ 構造と WSe_2 の発光スペクトル (励起波長: 532 nm).

A. 原著論文

1. Correlation between near-field enhancement and dephasing time in plasmonic dimers
Y. Li, Q. Sun, S. Zu, X. Shi, Y. Liu, X. Hu, K. Ueno, Q. Gong, H. Misawa, *Phys. Rev. Lett.*, **124**, 16, 163901-1-6 (2020).
2. Interfacial structure-modulated plasmon-induced water oxidation on strontium titanate
X. Shi, X. Li, T. Toda, T. Oshikiri, K. Ueno, K. Suzuki, K. Murakoshi, H. Misawa, *ACS Appl. Energy Mater.*, **3**, 6, 5675-5683 (2020).
3. Liquid-liquid interface-promoted formation of a porous molecular crystal based on a luminescent platinum(II) complex
M. Kimura, M. Yoshida, S. Fujii, A. Miura, K. Ueno, Y. Shigeta, A. Kobayashi, M. Kato, *Chem. Commun.*, **56**, 12989-12992 (2020).
4. Thermo-plasmonic trapping of living cyanobacteria on a gold nanopyramidal dimer array: implications for plasmonic biochips
S. Naka, T. Shoji, S. Fujii, K. Ueno, Y. Wakisaka, K. Murakoshi, Kei; T. Mizoguchi, H. Tamiaki, Y. Tsuboi, *ACS Appl. Nano Mater.*, **3**, 10, 10067-10072 (2020).
5. Plasmon-induced electron injection into the large negative potential conduction band of Ga₂O₃ for coupling with water oxidation
Y. Wang, X. Shi, T. Oshikiri, S. Zu, K. Ueno, H. Misawa, *Nanoscale*, **12**, 22674-22679 (2020).
6. Dumbbell-shaped 2,2'-bipyridines: controlled metal monochelation and application to Ni-catalyzed cross-couplings
Y. Kim, T. Iwai, S. Fujii, K. Ueno, M. Sawamura, *Chem. Eur. J.*, **27**, 7, 2289-2293 (2021).
7. Hot-carrier separation induced by the electric field of a p-n junction between titanium dioxide and nickel oxide
K. Nakamura, T. Oshikiri, K. Ueno, H. Ohta, H. Misawa, *Chem. Lett.*, **50**, 2, 374-377 (2021).
8. Coupled plasmonic systems: controlling the plasmon dynamics and spectral modulations for molecular detections
Y. Kitajima, H. Sakamoto, K. Ueno, *Nanoscale*, **13**, 5187-5201 (2021).

C. 著書

1. Modulations of electronic states in plasmonic strong coupling systems and their application to photochemical reaction fields
K. Ueno, *Photosynthetic Responses in Molecules and Molecular Aggregates*, Chapter 8, 135-146, H. Miyasaka, K. Matsuda, J. Abe, T. Kawai, Ed., Springer Nature, (2020).

D. 招待講演

1. 可視・赤外プラズモンによる蛍光やラマン散乱信号の制御
上野貢生, 第18回プラズモニク化学(オンライン)シンポジウム, Web開催, 7月 (2020).
2. 準ダークプラズモン共鳴モードを利用した表面増強ラマン散乱分光
上野貢生, 2019年度 日本分光学会北海道支部シンポジウム, Web開催, 1月 (2021).
3. 光を蓄えるプラズモンナノ材料の化学
上野貢生, 徳島大学ポストLEDフォトンクス研究所研究会, Web開催, 3月 (2021).
4. 金属ナノ構造による光の貯蔵と表面化学反応
上野貢生, 表面真空学会東北・北海道支部市民講座, Web開催, 3月 (2021).

E. 外部資金の取得状況 (2020.4-2021.3)

上野 貢生

科学研究費補助金 基盤研究B (代表):
「プラズモン誘起化学反応における時間効果の解明と光反応場の創製」

科学研究費補助金 新学術領域研究 (研究領域提案型) (代表):
「結合系プラズモニクナノ構造による光圧の時空間制御」

科学研究費補助金 特別推進研究 (分担):
「ナノ共振器-プラズモン強結合を用いた高効率光反応システムの開拓とその学理解明」

三浦 篤志

挑戦的研究 (萌芽) (代表):
「レーザーと微小空間界面を駆使したタンパク質のリアルタイム結晶化」

藤井 翔

科学研究費補助金 若手研究 (代表):
「レーザー誘起衝撃波を用いたメカノクロミック発光錯体の機械特性解析」

今枝 佳祐

科学研究費補助金 若手研究 (代表):
「貴金属ナノ粒子におけるプラズモン時空間挙動の直接観測とその光制御手法の確立」

科学研究費補助金 基盤研究B (分担):
「光場操作によるナノ物質の光励起状態とエネルギー伝達の制御」

有機化学第一研究室

(現教員)

教授 鈴木 孝紀

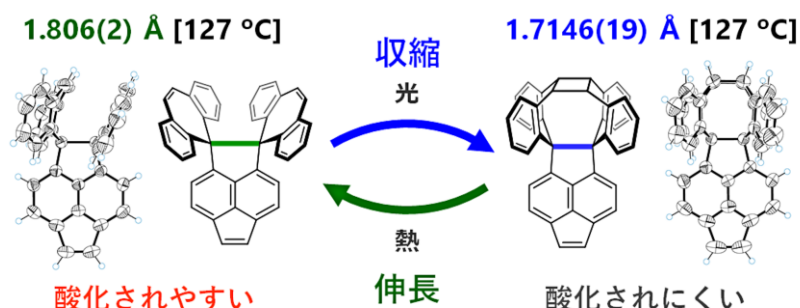
助教 上遠野 亮

助教 石垣 侑祐

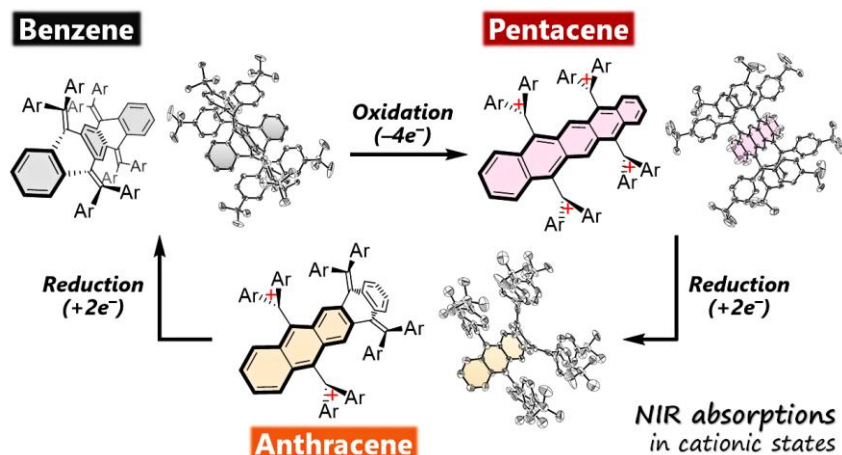
(研究概要)

構造有機化学は、近未来の機能性有機化合物創製を可能とする ThinkTank の役を担う、魅力ある研究分野です。有機化学第一研究室では、ポテンシャルの高いこの分野に於いて、新たな研究カテゴリーの提案や常識を覆す特性を示す化合物群の創製を行い、次世代材料化学の潮流を作り出すことを目標としています。

現在の主要な研究テーマとして、「世界一長い炭素-炭素結合」、「呼べば答える応答性分子：多重出入力による高機能化」、「安定な開殻種を与える新規な窒素複素環化合物」、「テレフタルアミドを基盤とするキラル化学」などに取り組んでいます。



分子内コアーシェルの構造に基づいて設計したジヒドロピラシレン誘導体において、標準結合長 (1.54 Å) より 17% も長い炭素-炭素単結合 [1.806(2) Å] (『超結合』) が存在することをこれまでに実証した (Chem 2018, 4, 795.)。そこで本研究では、伸長した弱い結合が、外部刺激に対して柔軟に変化すると考え、スチルベン骨格の光応答性に着目した。その結果、分子内[2+2]光環化と熱開環が可逆的に進行し、結合の伸縮過程の観測に成功した。これにより、本来剛直な共有結合の『柔軟性』が示された (Angew. Chem. Int. Ed. 2020, 59, 22252.)。



アントラキノジメタン誘導体が電子授受に際して可逆なエレクトロクロミズムを示すことを以前報告した (Bull. Chem. Soc. Jpn. 2019, 92, 1211.)。本研究では、二電子酸化により中央にアントラセン骨格が形成することに着目し、アセン骨格の一挙構築とレドックス制御を目的に、拡張したビスキノジメタン誘導体について調査した。その結果、四電子酸化によりペンタセン骨格が一挙に構築する一方、段階的な還元によりアントラセン誘導体を経由する特異なレドックス挙動に基づくアセン構造制御が可能なることを明らかにした。 (J. Am. Chem. Soc. 2021, 143, 3306.)。

A. 原著論文

1. Switching of Redox Properties Triggered by a Thermal Equilibrium between Closed-Shell Folded and Open-Shell Twisted Species
Y. Ishigaki, T. Hashimoto, K. Sugawara, S. Suzuki, T. Suzuki
Angew. Chem. Int. Ed., Vol. 59, 6581-6584 (2020).
2. H₂S-activatable near-infrared afterglow luminescent probes for sensitive molecular imaging in vivo
L. Wu, Y. Ishigaki, Y. Hu, K. Sugimoto, W. Zeng, T. Harimoto, Y. Sun, J. He, T. Suzuki, X. Jiang, H.-Y. Chen, D. Ye
Nat. Commun., Vol. 11, 446 (2020).
3. Hexaarylbutadiene: A Versatile Scaffold with Tunable Redox Properties towards Organic Near-Infrared Electrochromic Material
Y. Ishigaki, T. Harimoto, K. Sugimoto, L. Wu, W. Zeng, D. Ye, T. Suzuki
Chem. Asian J., Vol. 15, 1147-1155 (2020).
4. A novel condensed heterocyclic quinone with a dibenzofuranobisthiadiazole skeleton
K. Sugawara, W. Nojo, Y. Ishigaki, J. Ohkanda, T. Suzuki
Heterocycles, Vol. 101, 99-103 (2020).
5. Identification of synthetic inhibitors for the DNA binding of intrinsically disordered circadian clock transcription factors
Y. Hosoya, W. Nojo, I. Kii, T. Suzuki, M. Imanishi, J. Ohkanda
Chem. Commun., Vol. 56, 11203-11206 (2020).
6. Flexible C–C Bonds: Reversible Expansion, Contraction, Formation, and Scission of Extremely Elongated Single Bonds
T. Shimajiri, T. Suzuki, Y. Ishigaki
Angew. Chem. Int. Ed., Vol. 59, 22252-22257 (2020).
7. Molecular Recognition by Chalcogen Bond: Selective Charge - transfer Crystal Formation of Dimethylnaphthalene with Selenadiazolotetracyanonaphthoquinodimethane
Y. Ishigaki, K. Asai, H.-P. Jacquot de Rouville, T. Shimajiri, V. Heitz, H. Fujii-Shinomiya, T. Suzuki
Eur. J. Org. Chem., 990-997 (2021).
8. A hydrogen-bonded organic framework based on redox-active tri(dithiolylidene)cyclohexanetrione
K. I. Shivakumar, S. Noro, Y. Yamaguchi, Y. Ishigaki, A. Saeki, K. Takahashi, T. Nakamura, I. Hisaki
Chem. Commun., Vol. 57, 1157-1160 (2021).
9. Heterocyclic Ring-Opening of Nanographene on Au(111)
K. Sun, K. Sugawara, A. Lyalin, Y. Ishigaki, K. Uosaki, T. Taketsugu, T. Suzuki, S. Kawai
Angew. Chem. Int. Ed., Vol. 60, 29427-9432 (2021).

10. Hysteretic Three-State Redox Interconversion among Zigzag Bisquinodimethanes with Non-fused Benzene Rings and Twisted Tetra-/Dications with [5]/[3]Acenes Exhibiting Near-Infrared Absorptions
Y. Ishigaki, T. Harimoto, K. Sugawara, T. Suzuki
J. Am. Chem. Soc., Vol. 143, 3306-3311 (2021).
11. Chalcogen Bond versus Weak Hydrogen Bond: Changing Contributions in Determining the Crystal Packing of [1,2,5]Chalcogenadiazole-Fused Tetracyanonaphthoquinodimethanes
Y. Ishigaki, K. Asai, T. Shimajiri, T. Akutagawa, T. Fukushima, T. Suzuki
Org. Mater., Vol. 3, 90-96 (2021).
12. [1,2,5]Chalcogenadiazole-fused Dicyanonaphthoquinodiimines: Larger Contribution from Chalcogen Bond than Weak Hydrogen Bond in Determining Crystal Structures
Y. Ishigaki, K. Asai, T. Shimajiri, T. Suzuki
Chem. Lett., Vol. 50, 1184-1187 (2021).

B. 総説・解説・その他

1. 9,9'-Bi(Xanthene)-Type Hexaphenylethane Derivatives as Advanced Organic Electrochromic Systems
T. Suzuki, Y. Ishigaki, M. Takata, J. Nishida, T. Fukushima
Heterocycles, Vol. 102, 419-450 (2021).
2. Expandability of the Covalent Bond : A New Facet Discovered in Extremely Long Csp³-Csp³ Single Bonds
Y. Ishigaki, Y. Uchimura, T. Shimajiri, T. Suzuki
Bull. Chem. Soc. Jpn., Vol. 94, 1385-1393 (2021).
3. Redox-active and Highly Strained Hydrocarbons: Control of HOMO Levels Based on Flexibility of Covalent Bonds
Y. Ishigaki
J. Synth. Org. Chem. Jpn., Vol. 79, 290-299 (2021).

D. 招待講演

1. 移動電子数を制御した有機酸化還元系の機能開拓：分子ジャンクションからバイオイメージングまで
鈴木孝紀
名古屋大学 卓越大学院プログラム GTR セミナー, 2020.7.31,オンライン
2. 近赤外エレクトロクロミック物質を利用した硫化水素活性化型バイオプローブの構築と光線力学療法
鈴木孝紀

北海道大学理学部化学同窓会つぼセミナー,2020.9.25, オンライン

3. 光による分子構造制御と新奇応答機能
石垣侑祐
第7回"光"機到来！Q コロキウム, 2020.10.16, オンライン
2. Highly Strained Compounds: Switchable Redox Properties and Flexible C–C bonds
Yusuke Ishigaki
Joint Symposium of School of Science & WPI-ICReDD in Hokkaido Univ., 2021.12.10, Web

E. 外部資金の取得状況（2020.4–2021.3）

鈴木孝紀

基盤研究（B）（代表）：

「単一有機分子 n ビットメモリ及び抵抗可変型分子ワイヤの提案とそのプロトタイプ
の創成」

挑戦的研究（萌芽）（代表）：

「有機エレクトロクロミック物質の新展開：近赤外光スイッチによるバイオイメー
ジング」

上遠野亮

基盤研究（C）（代表）：

「拡大 PAM(フェニルアセチレンマクロサイクル)を足場とするキラリティ創出」

石垣侑祐

若手研究（代表）：

「七員環構造を鍵とする高歪化合物の創出と特異な構造に基づく応答機能」

公益財団法人 ノバルティス研究奨励金（代表）：

「硫化水素で活性化される近赤外色素プローブの開発:バイオイメーjingと医療へ
の応用」

公益財団法人 豊田理研スカラー（代表）：

「分子構造スイッチングに基づく革新的応答系の開発」

公益財団法人 服部報公会（令和2年度工学研究奨励援助金）（代表）：

「特異な構造変化を示す超混雑エチレン類の開発とその応用」

F. 受賞関係

林裕貴

The 11th CSE International Autumn School & The 8th ALP International Symposium, Poster
Presentation Award（2020.11.5）

「Completely selective oxidation enabled by photo- and thermal isomerization of highly strained

hydrocarbons」

第 32 回万有札幌シンポジウム Best Poster 賞 (2020.12.12)

「"光／熱" 駆動型分子スイッチの構築：酸化特性の ON／OFF 制御による選択的酸化の実現」

橋本拓実

第 10 回 CSJ 化学フェスタ 2020 優秀ポスター発表賞 (2020.11.27)

「テトラチエニルアントラキノジメタン誘導体の熱平衡に基づく酸化特性スイッチング」

石垣侑祐

有機合成化学協会 DIC 研究企画賞 (2020.12.3)

「酸化還元反応を利用した平面 π 共役系分子の新規構築法の開発」

第 6 回北大・部局横断シンポジウム ベストプレゼンテーション賞 (2020.10.19)

「世界一長い炭素－炭素単結合への挑戦と分子構造の外部刺激制御」

有機化学第二研究室

(現教員)

教授 谷野 主持
准教授 鈴木 孝洋
助教 池内 和忠

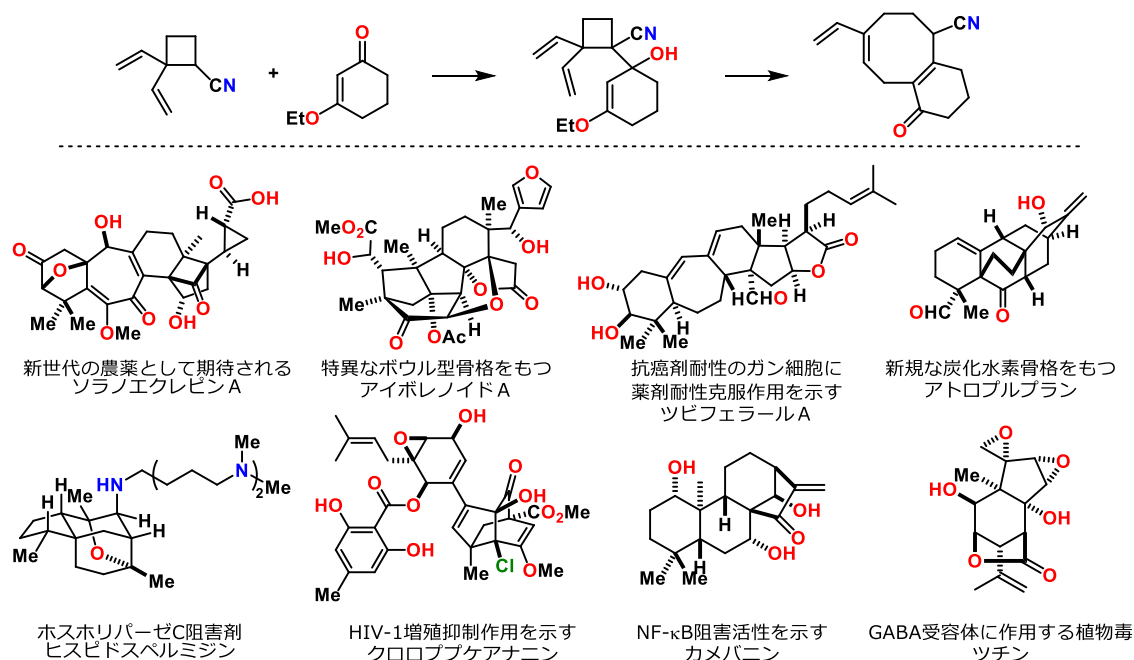
(研究概要)

自然界の微生物や動植物が産生する有機化合物(天然物)から、数多くの重要な医薬品やそのリード化合物が見出されてきた。古くは、キナの樹皮からマラリアの特効薬であるキニーネが、またカビの培養液から抗生物質のペニシリンが発見されている。放線菌から単離された天然物を元に開発されたイベルメクチンが、寄生虫の特効薬としてアフリカの人びとを救い、発見者である大村博士のノーベル賞受賞につながったことは、記憶に新しい。

天然物を人工的に合成する研究は、限られた天然資源の保護に加え、分子構造を部分的に改変して優れた医薬品を開発するために不可欠である。市販の単純な構造を持つ原料から出発して、天然物の分子構造を組み立てるためには、様々な変換反応を連続的に適用する「多段階合成」が必要となる。複雑な構造を持つ天然物には、数十工程の多段階合成を要するものや、合成法さえ見出されていないものがあり、この理由から医薬としての実用化に至らない例も少なくない。これらの問題を解決するために、有機合成化学のさらなる進化・発展が求められている。また、その波及効果は医薬品に留まらず、農薬や香料から色素・液晶などの機能性分子、プラスチックなどの高分子まで広範囲に及ぶ。

有機化学第二研究室では、複雑な構造を持つ天然物の合成法を革新する有機合成方法論や分子変換法の開拓を目指してきた。様々な金属元素やヘテロ元素の特性を活かした高選択的変換反応や合成試薬を開発すると共に、それらを鍵とする合成スキームを設計し、生物活性天然物や生物毒、生体関連物質などの合成研究を行っている。現在の主な研究テーマとして、「有機ケイ素、有機ホウ素、および有機イオウ反応剤を用いる高立体選択的合成反応」、「ニトリル誘導体を利用する炭素-炭素結合形成法」、「転位反応に基づく炭素環構築法」、「連続的分子内環化反応による多環性骨格構築法」、「複雑なカゴ型多環性骨格を持つ天然物の全合成研究」などを手がけている。

転位反応を用いる8員環骨格構築法



A. 原著論文

1. Development of a 1,3a,6a-Triazapentalene Derivative as a Compact and Thiol-specific Fluorescent Labeling Reagent
A. Nakayama, A. Otani, T. Inokuma, D. Tsuji, H. Mukaiyama, A. Nakayama, K. Itoh, A. Otaka, K. Tanino, and K. Namba
Commun. Chem., Vol. 3, Article number: 6 (2020).
2. *p*-Methylbenzyl 2,2,2-trichloroacetimidate: Simple Preparation and Application to Alcohol Protection
K. Ikeuchi, K. Murasawa, T. Arai, and H. Yamada
Chem. Lett., Vol. 49, No. 9, 1034-1037 (2020).
3. Formal Total Synthesis of Atropurpuran
T. Suzuki, T. Koyama, K. Nakanishi, S. Kobayashi, and K. Tanino
J. Org. Chem., Vol. 85, No. 15, 10125-10135 (2020).
4. Synthesis of an Ellagitannin Component, the Macaranoyl Group with a tetra-*ortho*-Substituted Diaryl Ether Structure
H. Hashimoto, T. Ishimoto, H. Konishi, T. Hirokane, S. Wakamori, K. Ikeuchi, and H. Yamada
Org. Lett., Vol. 22, No. 17, 6729-6733 (2020).
5. Hatching Stimulation Activity of Steroidal Glycoalkaloids toward the Potato Cyst Nematode, *Globodera rostochiensis*
K. Shimizu, A. Kushida, R. Akiyama, H. J. Lee, Y. Okamura, Y. Masuda, I. Sakata, K. Tanino, S. Matsukida, T. Inoue, Y. Sugimoto, and M. Mizutani
Plant Biotechnol., Vol. 37, No. 3, 319-325 (2020).
6. Chemical Synthesis of Brasilicardins
F. Yoshimura, R. Itoh, M. Torizuka, G. Mori, and K. Tanino
J. Synth. Org. Chem., Jpn., Vol. 78, No. 11, 1085-1093 (2020).
7. Total Synthesis of Mallotusin
K. Yamashita, Y. Kume, S. Ashibe, C. A. D. Puspita, K. Tanigawa, N. Michihata, S. Wakamori, K. Ikeuchi, and H. Yamada
Chem. Eur. J., Vol. 26, No. 69, 16408-16421 (2020).
8. The Hatching-stimulation Activity of Solanoeclipin A toward the Eggs of *Globodera* (Tylenchida: Heteroderidae) Species
I. Sakata, A. Kushida, and K. Tanino
Appl. Entomol. Zool., Vol. 56, No. 1, 51-57 (2021).
9. β -Selective Glycosylation using Axial-rich and 2-O-Rhamnosylated Glucosyl Donors Controlled by the Protecting Pattern of the Second Sugar
M. Bando, Y. Kawasaki, O. Nagata, Y. Okada, D. Ikuta, K. Ikeuchi, and H. Yamada
Chem. Pharm. Bull., Vol. 69, No. 1, 124-140 (2021).

10. Synthetic Studies on Cyclocitrinol: Construction of the ABC Ring System Based on Epoxy-Nitrile Cyclization
K. Sato and K. Tanino
Synlett, Vol. 32, No. 7, 674-678 (2021).
11. Glycosylation by the Alkyne Activation of the 2-*O*-Substituted Propargyl Group in a β -Phenylthioglucoside with a 5S_1 Conformation
K. Ikeuchi, S. Matsumoto, D. Ikuta, and H. Yamada
Synlett, Vol. 32, No. 8, 817-821 (2021).
12. Development of a Mugineic Acid Family Phytosiderophore Analog as an Iron Fertilizer
M. Suzuki, A. Urabe, S. Sasaki, R. Tsugawa, S. Nishio, H. Mukaiyama, Y. Murata, H. Masuda, M. S. Aung, A. Mera, M. Takeuchi, K. Fukushima, M. Kanaki, K. Kobayashi, Y. Chiba, B. B. Shrestha, H. Nakanishi, T. Watanabe, A. Nakayama, H. Fujino, T. Kobayashi, K. Tanino, N. K. Nishizawa, and K. Namba
Nat. Commun., Vol.12, Article number: 1558 (2021).

D. 招待講演

1. 卒業研究の呪縛：転位反応と全合成
谷野圭持
第10回ケムステVシンポ「天然物フィロソフィ」, 2020.10.29, オンライン.

E. 外部資金の取得状況（2020.4–2021.3）

谷野 圭持

基盤研究（B）（代表）：

「炭素小員環化合物とヘテロ原子の複合利用による高次構造天然物の合成」

革新的技術開発・緊急展開事業（分担）：

「ジャガイモシロシストセンチュウ等に対する革新的な新規作用機構の線虫剤開発」

次世代がん医療創生研究事業（分担）：

「ピロリ菌感染微小環境が誘導する発がんシグナルとその遮断による胃がんの制圧」

雪印種苗（株）共同研究（分担）：

「発根促進作用を示す生理活性物質の作用メカニズムの解明」

鈴木 孝洋

基盤研究（C）（代表）：

「一段階多重環構築戦略による高次構造天然物イリシモニン A への革新的アプローチ」

池内 和忠

若手研究（代表）：

「植物毒ツチン及び新規類縁体の短工程合成」

公益財団法人秋山記念生命科学振興財団奨励助成金（代表）：

「橋頭位に酸素または窒素官能基を有するビスクロ[2.2.1]ヘプタン化合物の創出」

F. 受賞関係

岸 惇一郎

第 64 回香料・テルペンおよび精油化学に関する討論会ベストプレゼンテーション賞
(2020.10.29)

「ジビニルシクロプロパン転位を基盤とした多環性アルカロイドの全合成研究」

有機金属化学研究室

(現教員)

教授 澤村 正也 (化学反応創成研究拠点兼任)

准教授 清水 洋平 (化学反応創成研究拠点兼任)

助教 増田 侑亮 (2021 年 2 月着任、化学反応創成研究拠点兼任)

助教 Fernando Arteaga Arteaga (高等教育推進機構 ISP 助教)

特任助教 東田 皓介 (化学反応創成研究拠点)

特任助教 Ronald Lazo Reyes (化学反応創成研究拠点)

(前教員)

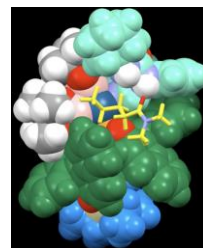
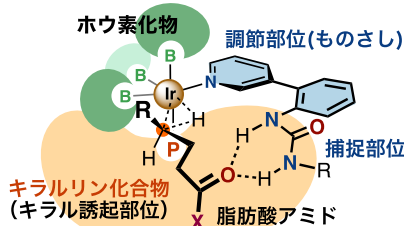
助教 岩井 智弘 (2020 年 10 月転出・現 東京大学総合文化研究科 講師)

(研究概要)

理想の化学反応を実現する有機合成触媒をエレガントに生み出したい。この夢を実現するために、化学修飾固体表面や分子集合体による多機能空間など、分子を超えたところにあるはずの、まだ誰も見たことのない新領域を求めて研究しています。

【不活性メチレン C-H 結合のイリジウム触媒不斉ホウ素化：論文 7】

キラルモノホスファイト配位子、イリジウム、レセプター配位子が自発的に集積して生成する分子触媒を用いることで、脂肪酸誘導体の γ 位 C-H 結合の高エナンチオ選択的ホウ素化反応に成功した。人工力誘起反応 (AFIR) 法を用いた理論計算から、触媒が形成する奥深い反応ポケットに反応基質が取り込まれ、触媒-基質間に働く複数の非共有結合性相互作用によって γ 位選択性とエナンチオ選択性が発現することを示した。



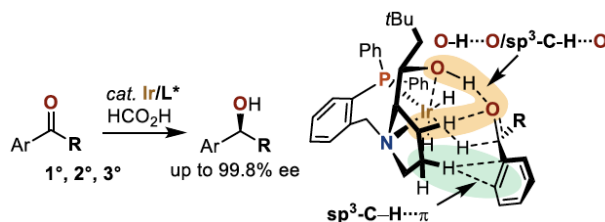
【ポリスチレン架橋ホスフィン配位子を用いる触媒反応：論文 4】

モノキレート配位特性を有するポリスチレン架橋ビスホスフィン PS-DPPBz を配位子としたイリジウム触媒を用いて含窒素複素環化合物の可逆的脱水素/水素化反応を開発した。脱水素化反応時に水素捕捉剤の添加を必要とせず、類似の均一系触媒と比較して顕著に高い触媒活性を示した。



【キラルプロリノール-ホスフィン-イリジウム触媒による高立体選択的反応：論文 5】

キラルプロリノール-ホスフィン-イリジウム触媒によるケトンの高エナンチオ選択的還元反応を開発した。第3級アルキル基などの極めて高い置換基を持つアルキル (アリアル) ケトンにも適用できることが顕著な特徴である。理論計算と実験の双方から配位子とケトンの $\text{OH}\cdots\text{O}$ 、 $\text{sp}^3\text{-CH}\cdots\text{O}$ の2点水素結合に加えて、 $\text{sp}^3\text{-CH}\cdots\pi$ 相互作用が立体選択性の発現に重要であることを示した。



A. 原著論文

1. Asymmetric Synthesis of α -Aminoboronates via Rhodium-Catalyzed Enantioselective C(sp³)-H Borylation
R. L. Reyes, M. Sato, T. Iwai, and M. Sawamura
J. Am. Chem. Soc. Vol. 142, 589–597 (2020).
2. Copper-Catalyzed Enantioselective Conjugate Reduction of α,β -Unsaturated Esters with Phenol-Carbene Chiral Ligand
S. Mimura, S. Mizushima, Y. Shimizu, and M. Sawamura
Beilstein J. Org. Chem. Vol. 16, 537–543 (2020).
3. Polystyrene-Supported PPh₃ in Macroporous Monolith: Effect of Cross-Linking Degree on Coordination Mode and Catalytic Activity in Pd-Catalyzed C-C Cross-Coupling of Aryl Chlorides
H. Matsumoto, Y. Hoshino, T. Iwai, M. Sawamura, and Y. Miura
ChemCatChem Vol. 12, 4034–4037 (2020).
4. Ir-Catalyzed Reversible Acceptorless Dehydrogenation/Hydrogenation of *N*-Substituted and Unsubstituted Heterocycles Enabled by a Polymer-Cross-Linking Bisphosphine
D. Zhang, T. Iwai, and M. Sawamura
Org. Lett. Vol. 22, 5240–5245 (2020).
5. Iridium-Catalyzed Enantioselective Transfer Hydrogenation of Ketones Controlled by Alcohol Hydrogen-Bonding and sp³-C-H Noncovalent Interactions
H. Murayama, Y. Heike, K. Higashida, Y. Shimizu, N. Yodsin, Y. Wongnongwa, S. Jungsuttiwong, S. Mori, and M. Sawamura
Adv. Synth. Catal. Vol. 362, 4655–4661 (2020).
6. Polystyrene-Cross-Linking Triphenylphosphine on Porous Monolith: Enhanced Catalytic Activity for Aryl Chloride Cross-Coupling in Biphasic Flow
H. Matsumoto, Y. Hoshino, T. Iwai, M. Sawamura, and Y. Miura
Ind. Eng. Chem. Res. Vol. 59, 15179–15187 (2020).
7. Asymmetric remote C-H borylation of aliphatic amides and esters with a modular iridium catalyst
R. L. Reyes, M. Sato, T. Iwai, K. Suzuki, S. Maeda, and M. Sawamura
Science Vol. 369, 970–974 (2020).
8. Convenient Synthesis of Binary and Fused Pyrazole Ring Systems: Accredited by Molecular Modeling and Biological Evaluation
E. A. Ghaith, H. H. Zoorob, M. E. Ibrahim, M. Sawamura, and W. S. Hamama
ChemistrySelect Vol. 5, 14917–14923 (2020).
9. Dumbbell-Shaped 2,2'-Bipyridines: Controlled Metal Monochelation and Application to Ni-Catalyzed Cross-Couplings
Y. Kim, T. Iwai, S. Fujii, K. Ueno, and M. Sawamura
Chem. Eur. J. Vol. 27, 2289–2293 (2021).

10. Synthesis of 2-Hydroxy-2-pyridinone Derivatives and Evaluation of Their Antioxidant/Anticancer Activities
W. S. Hamama, E. A. Ghaith, M. E. Ibrahim, M. Sawamura, and H. H. Zoorob
ChemistrySelect Vol. 6, 1430–1439 (2021).
11. Phosphinylation of Non-activated Aryl Fluorides through Nucleophilic Aromatic Substitution at the Boundary of Concerted and Stepwise Mechanisms
Z. You, K. Higashida, T. Iwai, and M. Sawamura
Angew. Chem. Int. Ed. Vol. 90, 5778–5782 (2021).
12. Use of Imidazo[1,5-a]pyridin-3-ylidene as a Platform for Metal-Imidazole Cooperative Catalysis: Silver-Catalyzed Cyclization of Alkyne-Tethered Carboxylic Acids
V. K. Rawat, K. Higashida, M. Sawamura
Adv. Synth. Cat. Vol. 363, 1631–1637 (2021).

B. 総説・解説・その他

1. Dinaphtho[2,1-d:1',2'-f][1,3,2]dioxaphosphin, 4-[[*(1R)*-2'-[(triisopropylsilyl)oxy][1,1'-binaphthalen]-2-yl]oxy]-, (*11bR*)-(9CI)
R. L. Reyes, and M. Sawamura
Encyclopedia of Reagents for Organic Synthesis (2020). DOI: onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1002/047084289X.rm02326.
2. Construction of Medium-Sized Rings by Gold Catalysis
R. L. Reyes, T. Iwai, and M. Sawamura
Chem. Rev. in press (DOI: 10.1021/acs.chemrev.0c00793)
3. The Scope of 3-Acetyl-4-hydroxy-6-methyl-2H-pyran-2-one (DHA)
E. A. Ghaith, H. H. Zoorob, M. E. Ibrahim, M. Sawamura, and W. S. Hamama
Curr. Org. Chem., Vol. 24, 1459–1490 (2021).
4. Copper-Catalyzed Reactions of Alkylboranes
H. Ohmiya, and M. Sawamura
Bull. Chem. Soc. Jpn. Vol. 94, 197–203 (2021).
5. 遠隔 C-H 結合の活性化
澤村正也
現代化学, 2 月号, No. 599, 42–47 (2021).
6. An Introductory Overview of C–H Bond Activation/Functionalization Chemistry with Focus on Catalytic C(sp³)–H Bond Borylation
R. L. Reyes, and M. Sawamura
KIMIKA Vol. 31, 70–109 (2021).

D. 招待講演

1. Carboxylic Acid-Selective α -Functionalization Enabled by Boron Activator
Yohei Shimizu
The 11th CSE Autumn School & The 8th ALP International Symposium, 2020.11.4-5, Sapporo (Online).
2. Strategic Construction of Molecular Complexity via Asymmetric Remote C - H Borylation: Building Structural Diversity from Common Feedstock Chemicals
Ronald L. Reyes, Miyu Sato, Tomohiro Iwai, Kimichi Suzuki, Satoshi Maeda, Masaya Sawamura
Joint Symposium of School of Science & WPI-ICReDD in Hokkaido University, 2020.12.20, Sapporo (Online).
3. 果てしない配位子づくりの面白さ
澤村 正也
金沢大学先駆けプロジェクト2020セミナー／第2回大宮研究室－武田薬品バーチャルシンポジウム, 2020.12.14, 金沢市 (Online).
4. Chemoselective α -Functionalization of Carboxylic Acids
Yohei Shimizu
2020 Dalian University of Technology-Overseas Partner Universities Series Online Exchange Conference, 2021.1.6–9, Dalian, China (Online).

E. 外部資金の取得状況（2020.4–2021.3）

澤村 正也

基盤研究（A）（代表）：

「配位子設計を基盤とするC-H結合不斉変換反応の開発」

挑戦的研究 萌芽（代表）：

「不斉 C-H ホウ素化を基盤とするボロペプチド化学の開拓」

東ソー・ファインケム株式会社共同研究（代表）：

「ポリマー型新規触媒を利用した研究」

出光興産株式会社共同研究（代表）：

「 α -オレフィンの選択多量化反応」

清水 洋平

若手研究（代表）：

「触媒的カルボン酸 α 位ラジカル生成法の開発」

基盤研究（B）（代表）：

「ラジカル生成を鍵としたカルボン酸修飾反応の開発」

新学術領域研究（代表）：

「ホウ素触媒－光触媒のハイブリッド触媒系が拓く化学選択的ドミノ型反応の開発と応用」

豊田理研スカラー（代表）：

「光学活性フッ素化アミノ酸の迅速合成法の開発」

岩井 智弘

若手研究（A）（代表）：

「第一周期遷移金属の高度利用のための触媒設計と高難度分子変換反応の開発」

新学術領域研究（代表）：

「固体－分子ハイブリッド触媒による電子移動反応の開発」

上原記念生命科学財団研究奨励金（代表）：

「不斉CH ホウ素化触媒による光学活性ホウ素化合物の合成」

岩谷科学技術研究助成（代表）：

「脱水素化-水素化触媒による精密有機合成と水素貯蔵」

東田 皓介

若手研究（代表）：

「リグニンの変換を志向した機能性二核錯体触媒によるC-O結合変換反応の開発」

Ronald Lazo Reyes

若手研究（代表）：

「Asymmetric Borylation of Remote C(sp³)-H Bonds for the Construction of Compounds with Three-Dimensional Structural Diversity」

張 徳良

特別研究員奨励費（代表）：

「ヘテロ環 C(sp³)-H 活性化に基づく新規触媒反応の開発」

F. 受賞関係

岩井 智弘

有機合成化学奨励賞 (2021.2.17)

「固体および分子の空間特性を活かした遷移金属錯体触媒の設計」

有機反応論研究室

(現教員)

教授 及川 英秋

准教授 南 篤志

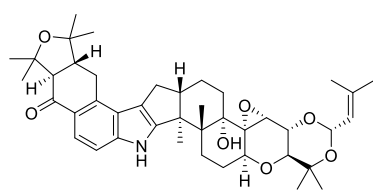
助教 尾崎 太郎

(研究概要)

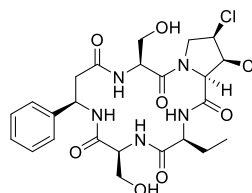
天然には多種多様な二次代謝産物が存在するが、その複雑な構造がいかにして合成されるか(生合成)を検討し、新規酵素反応を追い求めている。更に、これら生合成酵素の反応機構を解き明かし、有機合成に堪えるような触媒を作り出すことを目指している。

複雑な骨格を有する天然物の骨格構築機構の解明と酵素的全合成

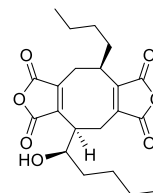
有機反応論研究室では糸状菌が生産する生物活性物質の生合成研究を進めてきた。2020 年度は、これまでに取り組んできたインドールテルペン生合成の集大成として、**lolitrem B** の生合成に取り組んだ。本化合物の左端にある特徴的な 5/6 縮環構造は、ジプレニル中間体がエポキシアルコールを経由した **P450** による多段階反応で形成されることを見出した。そして合成化学や計算化学の研究者と共同で、この中間体がラジカル経由で環化する経路を提唱した (*ACIE*, **2020**)。また、糸状菌に特有の新規酸化酵素ファミリーと考えられる **DUF3328** 蛋白質 (Pfam ID: PF11807) が関与する **cyclochlorotine** の生合成研究に取り組み、3 種の **DUF3328** 系酵素が非活性部位のハロゲン化や水酸化などペプチドの修飾反応に関わることを明らかにした (*OL*, **2021**)。これにより **DUF3328** が酸化的エーテル環化以外にも、より多様な機能を持つ酵素群であることを提唱し、解析を進めている。糸状菌の天然物遺伝子クラスター (**BGC**) のうち最も多数を占めるポリケタイド (**PK**) **BGC** の産物のケミカルスペースは、大きな関心事である。それを探る研究例はほとんどなく、**PK** の中でも比較的少数ながら、糸状菌に広く分布する **PKS-NRPS (hybrid)** について網羅的なバイオインフォマティクス解析を実施した。その結果 **hybrid** の進化系統樹解析による分類は、**hybrid** 由来の天然物の分類と同義なことを見出した。つまり **hybrid** と周辺遺伝子からなる **BGC** が丸ごと進化して生物活性物質のファミリーを形成すること、そしてそのファミリーの数は 30 程度であり、予想を大きく下回り、比較的小さいことを初めて指摘することに成功した (*Sci. Rep.* **2020**)。また、国際共同研究により、**chalomoracin** 生合成において分子間 **Diels-Alder** 反応を触媒する酵素など新規酵素を発見した (*Nat. Chem.*, **2020** ; *Nat. Catal.*, **2020**)。



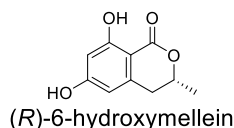
lolitrem B



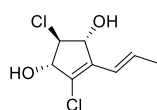
cyclochlorotine



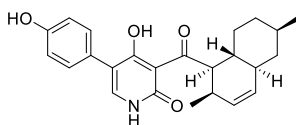
zopfiellin



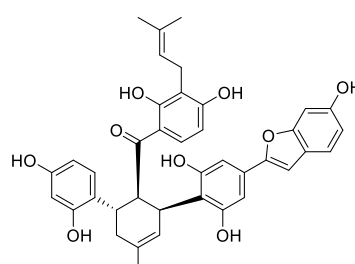
(R)-6-hydroxymellein



cyclohelminthol IV



didymellamide B



chalomoracin

A. 原著論文

1. Biosynthetic Machinery of 6-Hydroxymellein Derivatives Leading to Cyclohelminthols and Palmaenones
T. Ugai, A. Minami, S. Tanaka, T. Ozaki, C. Liu, H. Shigemori, M. Hashimoto, and H. Oikawa
ChemBioChem. Vol. 21, 360-367 (2020).
2. Oxidative Ring Contraction by a Multifunctional Dioxygenase Generates the Core Cycloocatadiene in the Biosynthesis of Fungal Dimeric Anhydride Zopfiellin
T. Shiina, T. Ozaki, Y. Matsu, S. Nagamine, C. Liu, M. Hashimoto, A. Minami, and H. Oikawa
Org. Lett., Vol. 22, 1997-2001 (2020).
3. FAD-dependent enzyme-catalysed intermolecular [4+2] cycloaddition in natural product biosynthesis
L. Gao, C. Su, X. Du, R. Wang, S. Chen, Y. Zhou, C. Liu, X. Liu, R. Tian, L. Zhang, K. Xie, S. Chen, Q. Guo, L. Guo, Y. Hano, M. Shimazaki, A. Minami, H. Oikawa, N. Huang, K. N. Houk, L. Huang, J. Dai and X. Lei
Nat. Chem., Vol. 12, 620–628 (2020).
4. Predicting the chemical space of fungal polyketides by phylogeny-based bioinformatics analysis of polyketide synthase-nonribosomal peptide synthetase and its modification enzymes
A. Minami, T. Ugai, T. Ozaki and H. Oikawa
Sci. Rep., Vol. 10, 13556 (2020).
5. Biosynthesis of Indole Diterpene Lolitrems: Radical-Induced Cyclization of an Epoxyalcohol Affording a Characteristic Lolitremane Skeleton
Y. Jiang, T. Ozaki, M. Harada, T. Miyasaka, H. Sato, K. Miyamoto, J. Kanazawa, C. Liu, J. Maruyama, M. Adachi, A. Nakazaki, T. Nishikawa, M. Uchiyama, A. Minami and H. Oikawa
Angew. Chem. Int. Ed., Vol. 59, 17996-18002 (2020).
6. Fungal-derived Brevianamide assembly by a stereoselective semi-pinacolase
Y. Ye, L. Du, X. Zhang, S. A. Newmister, M. McCauley, J. V. Alegre-Requena, W. Zhang, S. Mu, A. Minami, A. E. Fraley, M. L. Adrover-Castellano, N. A. Carney, V. V. Shende, F. Qi, H. Oikawa, H. Kato, S. Tsukamoto, R. S. Paton, R. M. Williams, D. H. Sherman and S. Li
Nat. Catal., Vol. 3, 497–506 (2020).
7. Biosynthesis of Cyclochlorotine: Identification of the Genes Involved in Oxidative Transformations and Intramolecular *O,N*-Transacylation
Y. Jiang, T. Ozaki, C. W. Liu, Y. Igarashi, Y. Ye, S. Tang, T. Ye, J. Maruyama, A. Minami and H. Oikawa
Org. Lett., Vol. 23, 2616–2620 (2021).

B. 総説・解説・その他

1. 糸状菌由来生物活性天然物の全生合成
南 篤志, 尾崎 太郎, 及川 英秋
ファインケミカル, Vol.49, No.3, 19-24 (2020) .
2. Total Synthesis of Alkaloids Using Both Chemical and Biochemical Methods
R. Tanifuji, A. Minami, H. Oguri, and H. Oikawa
Nat. Prod. Rep., Vol. 37, 1098-1121 (2020).
3. Heterologous production of fungal natural products: Reconstitution of biosynthetic gene clusters in model host *Aspergillus oryzae*
H. Oikawa
Proc. Jpn. Acad. Ser. B Phys. Biol. Sci., Vol. 96, 420-430 (2020).
4. Reconstitution of Biosynthetic Machinery of Fungal Natural Products in Heterologous Hosts
H. Oikawa
Biosci. Biotechnol. Biochem., Vol. 84, 433-444 (2020).
5. 担子菌未利用生合成遺伝子を活用した有用物質生産法の開発
南 篤志, 尾崎 太郎, 及川 英秋
ファインケミカル, Vol.50, No.4, 25-32 (2021) .

C. 著書

1. Biosynthesis of Indole Diterpenes
C. Liu, A. Minami, T. Ozaki, and H. Oikawa
Comprehensive Natural Products III: Chemistry and Biology, H.-W. Liu and T. Begley, Ed., Elsevier, Vol. 2, 446-466 (2020).
2. Sesterterpene Biosynthesis: Cyclization Mechanisms and Oxidative Modifications
A. Minami, T. Ozaki, C. Liu, and H. Oikawa
Comprehensive Natural Products III: Chemistry and Biology, H.-W. Liu and T. Begley, Ed., Elsevier, Vol. 1, 553-576 (2020).

D. 招待講演

1. 糸状菌天然物の網羅的生産法の開発への挑戦：きのこ由来の天然物も合成可能か？
及川 英秋
高分子学会北海道支部 35th Summer University in Hokkaido, 2020.8.28, 札幌（Web 開催） .
2. 生合成反応に見出される特異な変換反応：酸化反応を中心に
及川 英秋
東京大学 農学生命科学研究科 特別講演会, 2020.11.25, 東京.

E. 外部資金の取得状況 (2020.4-2021.3)

及川 英秋

基盤研究 (B) (代表) :

「担子菌の未利用生合成遺伝子を活用した有用物質生産法の開発」

南 篤志

基盤研究 (B) (代表) :

「遺伝子重複をキーワードとした天然物構造多様性獲得機構の解明」

新学術領域研究 (代表) :

「ポリケタイド関連化合物の生合成系リデザインによる新規生体機能分子の創製」

尾崎 太郎

新学術領域研究 (代表) :

「植物病原菌が生産するペプチド系化合物の構造多様性創出機構の解析」

基盤研究 (C) (代表) :

「糸状菌が生産する酸無水物多量体の構造多様性創出に関する研究」

F. 受賞関係

山本 真太郎

日本農芸化学会北海道支部優秀発表賞 (2020.12.13)

「コレステロール生合成阻害剤 phomoidride B の生合成研究」

生 物 化 学 研 究 室

(現教員)

教 授 坂口 和靖

准教授 鎌田 瑠泉

(研究概要)

生命科学における生物化学の最も重要なテーマのひとつは、『"化学反応"の集積がいかにして"生命"となりうるか』の解明にあり、この鍵となるものが『極めて多様なタンパク質の特異的な認識に基づく機能の厳密な制御』である。生物化学研究室では、これらを解明することを目指して、細胞周期制御因子として最も重要な癌抑制タンパク質 p53、p53 誘導性 Ser/Thr ホスファターゼ PPM1D および PPM1 ファミリーホスファターゼをターゲットとして研究を推進している。また、リボソーム関連生体物質についても研究を進めている。

【癌抑制タンパク質 p53】

癌抑制タンパク質 p53 は、放射線・紫外線・発癌物質によって引き起こされる DNA 損傷などの遺伝毒性ストレスによる細胞の周期停止およびアポトーシス誘導において中心的な役割を果たしている。p53 はホモ四量体を形成しており、この四量体形成は p53 癌抑制機能に必須である (図 1)。

当研究室では、p53 進化過程における四量体形成ドメインの安定性変化と転写活性の相関解析、他のファミリーとのヘテロ多量体形成、翻訳後修飾による多量体形成制御機構の解明を実施している。また、飢餓ストレス応答における p53 の機能解明やシングルセル転写活性解析による細胞応答多様性について研究を進めている。

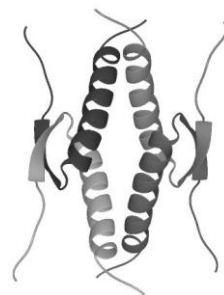


図 1 p53 四量体形成ドメイン

【PPM1 ホスファターゼファミリー】

タンパク質のリン酸化は、生体内シグナル伝達において中心的役割を果たしている。ストレス応答性 PPM1 ホスファターゼの異常は、癌を含む様々な疾患と関連することが報告されており、特に p53 誘導性ホスファターゼ PPM1D の異常が多くの癌で報告されている (図 2)。当研究室では、新規 PPM1D 阻害剤を開発している。この PPM1D 阻害剤は *in vitro* および *in vivo* で極めて有効に作用することから、PPM1D を標的とした抗癌剤のリード化合物および PPM1D の機能解析における強力な分子ツールとして有効である。

また当研究室では、PPM1D が好中球や脂肪細胞の細胞分化および分化後の細胞固有の機能を制御していることを明らかにしている。さらには、PPM1D が好中球サブセットの分極化に関与していることを見出している。また、PPM1D の結合タンパク質解析および核小体形成における PPM1D の新規機能の解析を進めており、PPM1D が RNA スプライシングに関与している可能性を見出している。これまで好中球分化過程において PPM1D を抑制した際にスプライシングが変化する遺伝子を同定しており、それら遺伝子の好中球分化および好中球サブセット分極化における機能解析を進めている。

さらに、PPM1 ファミリーの基質認識機構の解明および PPM1 ファミリーにおける新規な特異的基質同定法の開発および機能調節因子の探索を実施している。

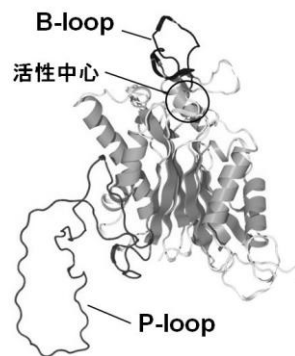


図 2 PPM1D 触媒ドメインのモデリング構造

A. 原著論文

1. Metal-dependent Ser/Thr protein phosphatase PPM family: Evolution, structures, diseases and inhibitors.
R. Kamada, F. Kudoh, S. Ito, I. Tani, J.I.B. Janairo, J.G. Omichinski, and K. Sakaguchi
Pharmacol. Ther., Vol. 215, 107622 (2020).

D. 招待講演

1. Anti-Antibiotic Peptide Derived from Putative ORF in *E.coli* rRNA
Kazuyasu Sakaguchi
18th Akabori Conference, 2021.3.8-9, Online.
2. Ser/Thr ホスファターゼ PPM1D の新規機能の解明
鎌田 瑠泉
第60回生物物理学会若手夏の勉強会, 2020.8.24-26, オンライン開催
3. 好中球サブタイプ多様化における Ser/Thr ホスファターゼ PPM1D の機能解明
鎌田 瑠泉、工藤 風樹、重信 秀治、坂口 和靖
第93回日本生化学会大会, 2020.9.14-16, オンライン開催
4. 好中球分化・多様化における p53 誘導性ホスファターゼ PPM1D の機能解明
鎌田 瑠泉
第6回北海道大学部局横断シンポジウム, 2020.10.19, オンライン開催.
5. 好中球多様性における Ser/Thr ホスファターゼ PPM1D の機能解明 (Role of Ser/Thr phosphatase PPM1D in neutrophil heterogeneity)
鎌田 瑠泉、工藤 風樹、坂口 和靖
第43回日本分子生物学会年会, 2020.12.2-4, オンライン開催.

E. 外部資金の取得状況 (2020.4-2021.3)

坂口 和靖

自然科学研究機構基礎生物学研究所 統合ゲノミクス共同利用研究 (代表):
「p53 誘導性プロテインホスファターゼ PPM1D およびそのファミリーの機能解析」

挑戦的研究 (萌芽) (代表):
「細菌リボソーム RNA にコードされ生存危機ストレスにより翻訳される防御ポリペプチド」

基盤研究 (B) (代表):
「癌抑制タンパク質 p53 の一過的機能停止制御を介した新規ゲノム編集法の開発」

鎌田 瑠泉

北海道大学令和2年度若手研究加速事業（代表）：

挑戦的研究（萌芽）（分担）：

「細菌リボソーム RNA にコードされ生存危機ストレスにより翻訳される防御ポリペプチド」

基盤研究（B）（分担）：

「癌抑制タンパク質 p53 の一過的機能停止制御を介した新規ゲノム編集法の開発」

F. 受賞関係

鎌田 瑠泉

第14回プロテインホスファターゼ国際カンファレンス

Best Presentation Award (2020.12.11)

「Ser/Thr phosphatase PPM1D regulates neutrophil differentiation and heterogeneity」

谷 愛海

第14回プロテインホスファターゼ国際カンファレンス

PhD Student Poster Award (2020.12.11)

「Control of nucleolar formation via phosphorylation of nucleolar protein nucleophosmin」

第57回ペプチド討論会 Excellent Poster Presentation Award (2020.11.11)

「Control of nucleolar formation via nucleolar protein nucleophosmin by PPM1D phosphatase」

坂口 周弥

化学系学協会北海道支部 2021 年冬季研究発表会 優秀講演賞(2021.1.17)

「p53 ファミリーの四量体構造とヘテロ多量体の脊椎動物における進化」

宇野 早映

第14回プロテインホスファターゼ国際カンファレンス

MSc Student Poster Award (2020.12.11)

「Functions of Ser/Thr phosphatase PPM1D on Adipocyte Differentiation and lipid droplet formation」

第57回ペプチド討論会 Excellent Poster Presentation Award (2020.11.11)

「Effects of Ser/Thr phosphatase PPM1D on adipocyte differentiation and lipid droplet formation」

塚本 敏生

第6回北海道大学部局横断シンポジウム ベストポスター賞(2020.10.19)

「Ser/Thr ホスファターゼ PPM1D の好中球分化および機能制御」

生 物 有 機 化 学 研 究 室

(現教員)

教 授 村上 洋太
特任教授 高橋 正行 (2020 年 11 月昇任)
特任講師 高畑 信也 (2020 年 12 月昇任)
特任助教 佐藤 勇太 (2020 年 4 月着任)

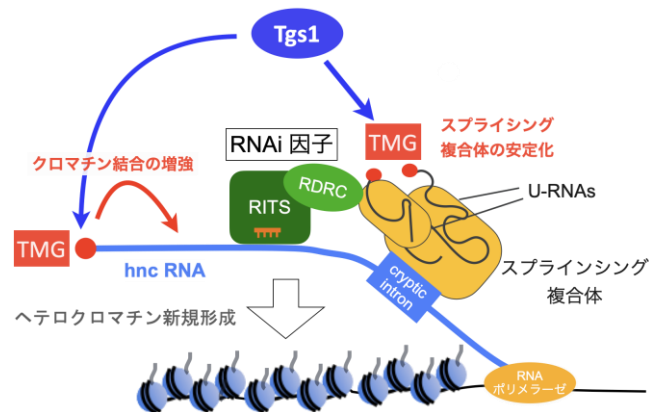
(研究概要)

細胞内でおこる生命現象は核酸やタンパク質などの生体機能分子の複雑な相互作用ネットワークにより担われている。我々はその相互作用ネットワークを分子レベルで理解したいと考え、いくつかの生命現象に着目して解析を進めている。

【ヘテロクロマチンの形成と機能制御】 ヘテロクロマチン構造は DNA とヒストンを初めとするタンパク質からなる高度に凝縮した構造で、遺伝情報発現の抑制や染色体の維持にかかわる重要な高次クロマチン構造である。我々はモデル生物である分裂酵母を用いてヘテロクロマチン形成、維持の解析を進めている。分裂酵母は RNA interference (RNAi) 機構に依存したヘテロクロマチン形成をおこなうが、この機構ではヘテロクロマチンから転写される non-coding RNA (hncRNA) がクロマチン上に残り RNAi 因子集合のプラットフォームとして機能する。我々は mRNA の 5' 末端に存在する 5-methyl guanosine CAP 構造をさらにメチル化し tri-methyl guanosine CAP (TMG-cap) を作るよく保存された酵素 (Tgs1) が RNAi 依存ヘテロクロマチン形成、特に新規ヘテロクロマチン形成に寄与することを見いだした。Tgs1 はスプライシング複合体の構成因子である sn-RNA の TMG-cap 修飾に必須であることが知られている。ncRNA はスプライシング効率の低い intron をもち、その上に形成されるスプライシング複合体が一部 RNAi 因子を hncRNA 上に集合させる。Tgs1 による sn-RNA の TMG-cap は hncRNA 上のスプライシング複合体を安定化することでヘテロクロマチン形成に寄与することが示唆された。さらに、一部 hncRNA が Tgs1 による TMG-cap 修飾を受けること、この修飾がその hncRNA のクロマチン局在に必要であることを明らかにした (下図)。これらの結果は未解明な点が多かった Tgs1/TMG-cap の細胞内機能に光をあてるとともに、RNA 動態制御の研究分野にも寄与するものである。

【細胞形態の変化と維持の分子機構】 多細胞生物を構成する個々の細胞は、それぞれ特有の形態を持ち、その形態を変化させることで運動し、また、変化した形態を維持することで機能している。我々は、細胞形態の変化と維持に重要な役割を果たしているアクチン細胞骨格内に含まれるミオシン II の役割に注目し研究を進めてきた。最近、細胞間のコミュニケーションが線維芽細胞の形態や運動に及ぼす影響についても興味を広げ、研究を開始している。

Tgs1/TMG-capのヘテロクロマチン形成での機能



A. 原著論文

1. Epigenetic regulation affects gene amplification in *Drosophila* development
H. Kohzaki, M. Asano, Y. Murakami, and A. Mazo
Front. Biosci. (Landmark Ed), Vol. 25, 632–645 (2020).
2. Nonmuscle myosin IIA and IIB differently suppress microtubule growth to stabilize cell morphology
Y. Sato, K. Kamijo, M. Tsutsumi, Y. Murakami, and M. Takahashi
J. Biochem., Vol. 167, 25–39 (2020).
3. Isoform-dependent subcellular localization of LMTK1A and LMTK1B and their roles in axon outgrowth and spine formation
R. Wei, A. Sugiyama, Y. Sato, M. Nozumi, H. Nishino, M. Takahashi, T. Saito, K. Ando, M. Fukuda, M. Tomomura, M. Igarashi, and S-i. Hisanaga
J. Biochem., Vol. 168, 23–32 (2020).
4. Trimethylguanosine synthase 1 (Tgs1) is involved in Swi6/HP1-independent siRNA production and establishment of heterochromatin in fission yeast
H. Yu, M. Tsuchida, M. Ando, T. Hashizaki, A. Shimada, S. Takahata, and M. Murakami Y
Genes Cells, Vol. 26, 203–218 (2021).
5. Construction and characterization of a zinc-inducible gene expression vector in fission yeast
S. Takahata, T. Asanuma, M. Mori, and Y. Murakami
Yeast, Vol. 38, 251–261 (2021).
6. What factors determine the number of nonmuscle myosin II in the sarcomeric unit of stress fibers?
T. Saito, W. Huang, T. S. Matsui, M. Kuragano, M. Takahashi, and S. Deguchi
Biomech. Model. Mechanobiol., Vol. 20, 155–166 (2021).
7. Mechanosensitive myosin II but not cofilin primarily contributes to cyclic cell stretch-induced selective disassembly of actin stress fibers
W. Huang, T. S. Matsui, T. Saito, M. Kuragano, M. Takahashi, T. Kawahara, M. Sato, and S. Deguchi
Am. J. Physiol. Cell Physiol., Vol. 320, C1153–C1163 (2021).
8. Phosphorylation of GAP-43 T172 is a molecular marker of growing axons in a wide range of mammals including primates
M. Okada, Y. Kawagoe, Y. Sato, M. Nozumi, Y. Ishikawa, A. Tamada, H. Yamazaki, Y. Sekino, Y. Kanemura, Y. Shinmyo, H. Kawasaki, N. Kaneko, K. Sawamoto, Y. Fujii, and M. Igarashi
Mol. Brain, Vol. 14, 66 (2021).

B. 総説・解説・その他

1. Unprogrammed epigenetic variation mediated by stochastic formation of ectopic heterochromatin
M. Sorida and Y. Murakami
Curr. Genet., Vol. 66, 319–325 (2020).
2. H3K9me 非依存的にサイレンシングを制御する HP1/Swi6
高畑 信也、月井 一輝、飯田 達朗
Med. Sci. Digest., Vol. 46 898–900 (2020).

E. 外部資金の取得状況（2020.4–2021.3）

村上 洋太

基盤研究（A）（代表）：

「転写速度制御を介した統合的遺伝子発現制御機構の解明」

新学術領域研究（研究領域提案型）（代表）：

「ヒストン修飾 Eraser による抑制的エピゲノムの維持・変動制御機構の解明」

高橋 正行

基盤研究（C）（代表）：

「正常線維芽細胞の強固な方向持続的遊走を可能にする分子基盤」

触媒科学研究所 物質変換研究部門

(現教員)

教授 福岡 淳
准教授 中島 清隆
助教 小林 広和
助教 シュロトリ アビジット

(研究概要)

我々は、固体触媒の分子設計と天然資源有効利用のための触媒反応開発に取り組んでいる。2020年度の主な成果を下記に示す。

【木質および海洋バイオマスから基幹化学品の原料を創生する研究】

木質の主成分であるセルロースを加水分解すると、グルコースが得られる。グルコースを脱水すると5-ヒドロキシメチルフurfural(HMF)となり、これを選択的に酸化すれば、様々なポリマーの原料として利用できる。我々は、1,3-プロパンジオールをHMFのアルデヒド基の保護に用いる戦略を取り、高収率で部分酸化生成物を合成することに成功した。

また、カニやエビなど甲殻類の殻に含まれるキチンは、N-アセチルグルコサミン(NAG)が多数繋がった高分子であるため、窒素を含む特徴を生かした化学品合成が期待される。NAGを分子内脱水すると、3-アセトアミド-5-アセチルフuran(3A5AF)という含窒素芳香族基材として注目されている化合物が得られる(図1)。しかし、本反応にはこれまで大量のホウ素化合物、溶解度の低い塩、そして特殊な反応系が必要とされ、実験室レベルですら追試や生成物精製が困難であった。そのため、3A5AFを原料に用いた用途開発は全くと言っていいほど進んでいない。

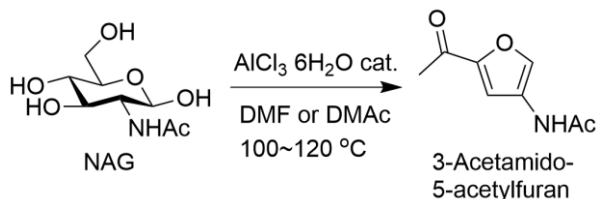


図1 NAGの脱水による3A5AF合成

そこで、我々は実施が容易な触媒反応法の検討を行った。その結果、 $\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ を触媒に用いて、DMFないしはDMAcを溶媒に用いてヒーターで加熱するという非常に簡便な3A5AF合成法の開発に成功した。スケールアップをしても生成物収率は低下せず、カラムクロマトグラフィーにより容易に3A5AFを単離できた。

【シリカ担持白金-ルテニウム触媒の酸化活性を利用した青果物鮮度保持触媒の開発】

冷蔵庫や大型の食品貯蔵庫内で放出されるエチレンは、野菜や果物の熟成を進める作用をもつため、定常的かつ効率的な除去が求められている。我々は、シリカ担持白金触媒や白金-ルテニウム触媒が、低温でのエチレンの酸化除去において優れた能力を有することを見出し、これらの触媒の野菜貯蔵庫での試験を進めている。

そのほかに、メタンの部分酸化触媒系の開発に取り組んでいる。本研究では、 $\text{Ru-Rh}/\text{Al}_2\text{O}_3$ 触媒が CO 、 H_2 合成反応に対して高い活性を示すことを見出した。反応機構を調べたところ、フォルメート中間体を経由した CO 生成が示唆された。従来の触媒はいずれも完全酸化を起こし、 CO_2 と H_2O を経由した改質反応により CO と H_2 を生成するため、これは特筆すべき結果である。また、資源としての CO_2 の変換反応に取り組んでいる。我々は、Rhをドーブした In_2O_3 触媒がメタノール合成反応に対して、現時点において世界最高レベルの活性を示すことを見出した。Rh原子の隣に酸素空孔が生成した後、ここに CO_2 が吸着し、活性化される機構を提案した。



図2 シリカ担持白金ナノ粒子によるエチレンの低温酸化除去

A. 原著論文

1. Effect of ionic liquid on sugar-aromatic separation selectivity by metal-organic framework NU-1000 in aqueous solution
M. Yabushita, G. Papa, P. Li, A. Fukuoka, O. K. Farha, B. A. Simmons, A. Katz
Fuel Proc. Technol., Vol. 197, 106189 (6 pages) (2020).
2. Lewis Acid and Base Catalysis of YNbO_4 Toward Aqueous-Phase Conversion of Hexose and Triose Sugars to Lactic Acid in Water
M. Kim, S. Ronchetti, B. Onida, N. Ichikuni, A. Fukuoka, H. Kato, K. Nakajima
ChemCatChem, Vol. 12, 350-359 (2020).
3. Amorphization and Semi-Dry Conversion of Crystalline Cellulose to Oligosaccharides by Impregnated Phosphoric Acid
J. Hirayama, H. Kobayashi, A. Fukuoka
Bull. Chem. Soc. Jpn., Vol. 93, 273-278 (2020).
4. Selective hydrogenation of 5-hydroxymethylfurfural and its acetal with 1,3-propanediol to 2,5-bis(hydroxymethyl)furan using supported rhenium-promoted nickel catalysts in water
J. J. Wiesfeld, M. Kim, K. Nakajima, E. J. M. Hensen
Green Chem., Vol. 22, 1229-1238 (2020).
5. Unique Catalysis of Nickel Phosphide Nanoparticles to Promote the Selective Transformation of Biofuranic Aldehydes into Diketones in Water
S. Fujita, K. Nakajima, J. Yamasaki, T. Mizugaki, K. Jitsukawa, T. Mitsudome
ACS Catal., Vol. 10, 4261-4267 (2020).
6. Nano vs bulk rutile $\text{TiO}_2\text{:N,F}$ in Z-scheme overall water splitting under visible light
A. Miyoshi, K. Kato, T. Yokoi, J. J. Wiesfeld, K. Nakajima, A. Yamakata, K. Maeda
J. Mater. Chem. A, Vol. 8, 11996-12002 (2020).
7. Selective Separation of Biomass-derived Sugars and Aromatics with Aromatic Domains of Metal-organic Frameworks and Surface-modified Silica
M. Yabushita, A. Fukuoka
J. Jpn. Petrol. Inst., Vol. 63, 163-171 (2020).
8. Metal cation-exchanged zeolites with the location, state, and size of metal species controlled
R. Osuga, B. Saikhantsetseg, S. Yasuda, R. Manabe, H. Shima, S. Tsutsuminai, A. Fukuoka, H. Kobayashi, T. Yokoi
Chem. Commun., Vol. 56, 5913-5916 (2020).
9. Facile Preparation of 3-Acetamido-5-acetylfuran from N-Acetyl-D-glucosamine Using Commercially Available Aluminum Salts
D. Padovan, H. Kobayashi, A. Fukuoka
ChemSusChem, Vol. 13, 3594-3598 (2020).
10. Unraveling the hydrolysis of β -1,4-glycosidic bond in cello-oligosaccharides over carbon

catalysts

P. Chen, A. Shrotri, A. Fukuoka

Catal. Sci. Technol., Vol. 10, 4593-4601 (2020).

11. Zeolite-supported ultra-small nickel as catalyst for selective oxidation of methane to syngas
S. Yasuda, R. Osuga, Y. Kunitake, K. Kato, A. Fukuoka, H. Kobayashi, M. Gao, J. Hasegawa, R. Manabe, H. Shima, S. Tsutsuminai, T. Yokoi
Commun. Chem., Vol. 3, 129 (8 pages) (2020).
12. Structure and Activity of Activated Carbon Functionalized with Maleic Anhydride by Diels-Alder Reaction
L. Mahardiani, A. Shrotri, H. Kobayashi, A. Fukuoka
Catal. Today, Vol. 357, 409-415 (2020).
13. Effect of Lewis acid on catalytic dehydration of a chitin-derived sugar alcohol
T. Sagawa, H. Kobayashi, A. Fukuoka
Mol. Catal., Vol. 498, 111282 (7 pages) (2020).
14. Water-Resistant Pt Sites in Hydrophobic Mesopores Effective for Low-Temperature Ethylene Oxidation
S. S. Satter, J. Hirayama, H. Kobayashi, K. Nakajima, A. Fukuoka
ACS Catal., Vol. 10, 13257-13268 (2020).
15. Controllable Factors of Supported Ir Complex Catalysis for Aromatic C–H Borylation
K. Maeda, Y. Uemura, W.-J. Chun, S. S. Satter, K. Nakajima, Y. Manaka, K. Motokura
ACS Catal., Vol. 10, 14552-14559 (2020).
16. Rh promoted indium oxide as highly active catalyst for CO₂ hydrogenation to methanol
N. H. MD. Dostagir, C. B. Thompson, H. Kobayashi, A. M. Karim, A. Fukuoka, A. Shrotri
Catal. Sci. Technol., Vol. 10, 8196-8202 (2020).
17. Air-Stable and Reusable Cobalt Phosphide Nanoalloy Catalyst for Selective Hydrogenation of Furfural Derivatives
H. Ishikawa, M. Sheng, A. Nakata, K. Nakajima, S. Yamazoe, J. Yamasaki, S. Yamaguchi, T. Mizugaki, T. Mitsudome
ACS Catal., Vol. 11, 14552-14559 (2021).
18. On the Electronic Structure Origin of Mechanochemically Induced Selectivity in Acid-Catalyzed Chitin Hydrolysis
D. De Chavez, H. Kobayashi, A. Fukuoka, J. Hasegawa
J. Phys. Chem. A, Vol. 125, 187-197 (2021).
19. Ni₂P Nanoalloy as an Air-Stable and Versatile Hydrogenation Catalyst in Water: P-Alloying Strategy for Designing Smart Catalysts
S. Fujita, S. Yamaguchi, J. Yamasaki, K. Nakajima, S. Yamazoe, T. Mizugaki, T. Mitsudome
Chem. Eur. J., Vol. 27, 4439-4446 (2021).

20. Partial Oxidation of Methane to Syngas via Formate Intermediate Found for a Ruthenium-Rhenium Bimetallic Catalyst
L. Li, N. H. MD Dostagir, A. Shrotri, A. Fukuoka, H. Kobayashi
ACS Catal., Vol. 11, 3782-3789 (2021).
21. Silica supported Sn catalysts with tetrahedral Sn sites for selective isomerization of glucose to fructose
Y. N. Palai, A. Shrotri, M. Asakawa, A. Fukuoka
Catal. Today, Vol. 365, 241-248 (2021).
22. Air-stable and reusable nickel phosphide nanoparticle catalyst for the highly selective hydrogenation of D-glucose to D-sorbitol
S. Yamaguchi, S. Fujita, K. Nakajima, S. Yamazoe, J. Yamasaki, T. Mizugaki, T. Mitsudome
Green Chem., Vol. 23, 2010-2016 (2021).
23. Single-Crystal Cobalt Phosphide Nanorods as a High-Performance Catalyst for Reductive Amination of Carbonyl Compounds
M. Sheng, S. Fujita, S. Yamaguchi, J. Yamasaki, K. Nakajima, S. Yamazoe, T. Mizugaki, T. Mitsudome
JACS Au, Vol. 1, 501-507 (2021).
24. Support-Boosted Nickel Phosphide Nanoalloy Catalysis in the Selective Hydrogenation of Maltose to Maltitol
S. Yamaguchi, S. Fujita, K. Nakajima, S. Yamazoe, J. Yamasaki, T. Mizugaki, T. Mitsudome
ACS Sustainable Chem. Eng., Vol. 9, 6347-6354 (2021).
25. Reduction and Agglomeration of Supported Metal Clusters Induced by High-Flux X-ray Absorption Spectroscopy Measurements
M. Albrahim, C. Thompson, D. Leshchev, A. Shrotri, R. R. Unocic, J. Hong, A. S. Hoffman, M. J. Meloni, R. C. Runnebaum, S. R. Bare, E. Stavitski, A. M. Karim
J. Phys. Chem. C, Vol. 20, 11048-11057 (2021).

B. 総説・解説・その他

1. ゼオライト担持金属触媒によるメタンの酸化的改質反応
小林広和, 加藤寿也, 福岡淳
触媒, Vol. 62, 363-368 (2020).
2. Synthesis of cello-oligosaccharides by depolymerization of cellulose: A review
P. Chen, A. Shrotri, A. Fukuoka
Appl. Catal. A: Gen., Vol. 621, 118177 (8 pages) (2021).

C. 著書

1. Catalytic Conversion of Lignocellulosic Biomass: Application of Heterogeneous and

Homogeneous Catalysts to Process Biomass into Value-Added Compounds

J. Wiesfeld, E. J. M. Hensen, K. Nakajima (分担執筆)

Advanced Heterogeneous Catalysts Volume 1: Applications at the Nano-Scale, Chapter 5, pp. 151-182, ACS Symposium Series, American Chemical Society (2020).

2. メタンの酸化的改質に資するゼオライト担持金属触媒
小林広和, 福岡淳 (分担執筆)
触媒の劣化対策, 長寿命化, pp. 299-305, 技術情報協会 (2020).

D. 招待講演

1. 触媒法によるキチンの解重合と含窒素化合物合成
小林広和
第126回触媒討論会, 2020.9.17, オンライン.
2. プラチナ触媒が北海道の流通・保存システムにパラダイムシフトを起こす～野菜の鮮度保持の超長期化に挑む産学連携～
福岡淳
産学官連携研究会 HoPE10 月例会, 2020.10.7, 札幌.
3. 触媒法によるバイオマスからの再生可能化学品の合成
小林広和, 福岡淳
第6回北大・部局横断シンポジウム, 2020.10.19, オンライン.
4. 固体触媒による鮮度保持・生物活性物質合成技術
福岡淳
第30回記念万有福岡シンポジウム, 2020.10.24, オンライン.
5. 触媒によるセルロース・キチンの解重合と生成物利用
小林広和
産業技術総合研究所第7回食・触コンソーシアムワークショップ, 2020.11.2, オンライン.
6. 触媒法によるキチンの解重合と含窒素化合物合成
小林広和
触媒学会・触媒工業協会交流サロン, 2020.12.11, オンライン.
7. 弱酸点を持つ炭素によるセルロースの加水分解
小林広和
第1回固体酸塩基点の作用と設計研究会セミナー/GSC セミナー, 2020.12.23, オンライン.
8. 炭素触媒によるセルロースの変換
福岡淳
炭素材料学会1月セミナー SDGs に貢献する炭素触媒化学の最前線, 2021.1.29, オンライン.
9. フードロス削減に向けて – プラチナ触媒による青果物の鮮度保持 –

福岡 淳

北海道大学・日立北大ラボ 第2回フォーラム Society5.0 北海道の未来, 2021.2.16, オンライン.

10. プラチナ触媒を用いた青果物の鮮度保持技術

福岡 淳, 森 武士

フードロス削減コンソーシアム第1回フォーラム, 2021.3.19, 札幌.

E. 外部資金の取得状況 (2020.4-2021.3)

福岡 淳

北海道大学ロバスト, 農林水産工学研究プログラム (分担):

「稚内層珪質頁岩担持プラチナ触媒の作製と常温鮮度保持装置の大型・量産化に関する研究」

センター・オブ・イノベーションプログラム, 北海道大学 COI「食と健康の達人」(分担):

「保存技術による品質良い農産物および加工食品の創出」

ノーステック財団・イノベーション創出研究支援事業, 発展・橋渡し研究補助金 (代表):

「プラチナ触媒による青果物鮮度保持の貯蔵庫での検証」

中島 清隆

科学技術振興機構・未来社会創造事業, 「地球規模課題である低炭素社会の実現」領域 (代表):

「液相反応分離プロセスによるフラン誘導体の高効率合成」

科学研究費補助金・国際共同研究加速基金(国際共同研究強化(B)) (代表):

「材料科学および理論科学の融合による高性能なバイオマス変換用固体触媒の創生」

科学研究費補助金・学術変革領域研究(A) (分担):

「エマージェント物性を生み出す超秩序構造の創出」

小林 広和

科学研究費補助金・基盤研究 (B) (代表):

「固体触媒による含窒素バイオマスリファイナリー」

シュロトリ アビジット

日立北大ラボ第2回産学共同研究 (代表):

「Catalytic synthesis of human milk oligosaccharides from sugars」

F. 受賞関係

福岡 淳

第45回井上春成賞「青果物鮮度保持用プラチナ触媒の開発」(2020.9.16)

触媒科学研究所 高分子機能科学研究室

(現教員)

教授 中野 環

准教授 宋 志毅

助教 坂東 正佳

(研究概要)

当研究室では、構造制御された高分子および超分子を合成し、先端材料として応用することを目指しています。重合触媒およびモノマー構造の設計により、らせん高分子、 π -スタック型高分子、ハイパーブランチ型高分子などの分子構造および高次構造を制御しています。加えて、液晶などの分子間構造制御法も開発しています。これらにより、光機能、電子機能、キラル機能、触媒機能等の高度な機能を発現する新物質・材料の創成を目指します。

最近当研究室で初めて π スタック型構造をビニルポリマーに対して制御することに成功しています。 π スタック型ポリマーの特異な立体構造に基づいて、このポリマーは興味深い光・電子物性を示すことを見出しました(図1)。光電子物性は主鎖共役系高分子にのみ特異的なものと考えられていましたが、本研究によってビニルポリマーの構造制御によってより優れた材料が開発できることを明らかとしました。

加えて、円偏光を用いたらせん合成にも成功しています。この手法により、キラルな試薬を用いることなく、光のキラリティーのみに基づいてポリフルオレン類等に可逆に左右のらせんを誘起することが可能です(図2)。この原理に基づいて、ポリマーだけでなく機能性有機化合物にキラル配位子などを用いずに光学活性を付与する研究を行っています。

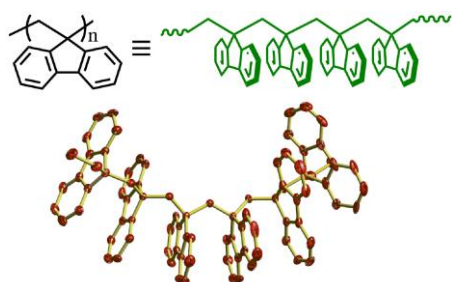


Fig. 1. Synthesis and structure of π -stacked polydibenzofulvene.

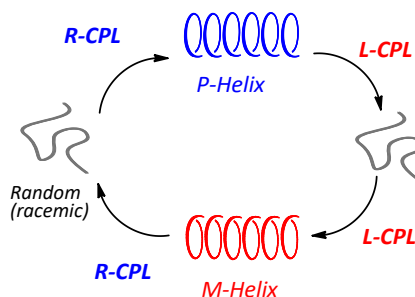


Fig. 2. Helix induction to polymer chain using circularly polarized light.

A. 原著論文

1. Blue circularly polarized luminescent amorphous molecules with single-handed propeller chirality induced by circularly polarized light irradiation. Zhang, Z.; Harada, T.; Pietropaolo, A.; Wang, Y.; Wang, Y.; Hu, X.; He, X.; Chen, H.; Song, Z.; Bando, M.; Nakano, T., *Chem Commun (Camb)* **2021**, 57 (14), 1794-1797.
2. Pd Nanoparticles-Loaded Vinyl Polymer Gels: Preparation, Structure and Catalysis. Elbayoumy, E.; Wang, Y.; Rahman, J.; Trombini, C.; Bando, M.; Song, Z.; Diab, M. A.; Mohamed, F. S.; Naga, N.; Nakano, T., *Catalysts* **2021**, 11 (1), 137.
3. Optically Active Polymers with Cationic Units Connected through Neutral Spacers: Helical Conformation and Chirality Transfer to External Molecules. Wang, Y.; Zavrashvili, N.; Wang, Y.; Pietropaolo, A.; Song, Z.; Bando, M.; Katsarava, R.; Nakano, T., *Macromolecules* **2020**, 53 (22), 9916-9928.
4. Effect of L-Menthol Chain-end on the Optical Rotation, Chirality, Tacticity and Thermal Properties of Polystyrene Prepared by ATRP and Polyvinylacetates Prepared by RAFT Polymerization: A Molecular Weight Dependence Study. Vishwakarma, S.; Kumari, A.; Mitra, K.; Singh, S.; Song, Z.; Bando, M.; Nakano, T.; Gupta, S. K. S.; Ray, B., *Materials Today Communications* **2020**, 101705.
5. Learning how planarization can affect dichroic patterns in polyfluorenes. Pietropaolo, A.; Nakano, T., *Chirality* **2020**, 1-6.
6. Chirality analysis of helical polymers. Nakano, T.; Pietropaolo, A.; Kamata, M., *Chem. Teach. Int.* **2020**, 3 (1), 67-76.

D. 招待講演

1. Optically Active Polymers Composed of Chiral/Achiral Cationic Units Connected through Neutral Spacers: Helical Conformation and Chirality Transfer to External Molecule
Yuting Wang, Nino Zavrashvili, Yue Wang, Adriana Pietropaolo, Zhiyi Song, Masayoshi Bando, Ramaz Katsarava, and Tamaki Nakano
Molecular Chirality Asia 2020, Waseda University, Tokyo, Japan (on-line meeting) (2020/10/31).
2. Controlling Macromolecular Helix: Toward Well-defined Polymeric Materials with Useful Properties
Tamaki Nakano
International Symposium on Circularly Polarized Luminescence and the Related Phenomena, 2019.11.28
Special Lecture at National '111' Center for Cellular Regulation and Molecular Pharmaceutics Hubei University of Technology, Wuhan, Hubei, 430068, China (on-line meeting) (2020/11/17).

E. 外部資金の取得状況 (2020.4-2021.3)

中野 環

科学技術振興機構 研究成果展開事業研究成果最適展開支援プログラム (A-STEP)
(代表): 「ハイパーブランチ型ポリウレタンを配位子とする高分子触媒の開発」

触媒科学研究所 触媒理論研究室

(現教員)

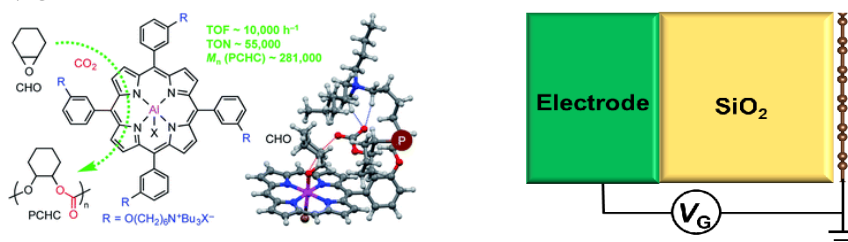
教授 長谷川 淳也

准教授 飯田 健二

助教 高 敏

(研究概要)

電子状態, 分子構造, 動力学など多面的な複雑性に由来する触媒原理を明らかにするために, 複雑な電子構造を高い精度で記述する電子理論, 複雑な構造を持つ分子系を計算するための QM/MM 法, 化学反応の動態を明らかにする AIMD 法, 熱的な分子構造揺らぎを考慮する統計力学的解析手法などの開発と触媒反応への応用に取り組んでいる. 2020 年度の主な成果は以下のとおりである.



【Pt 表面に吸着した分子に対する置換基の効果の NBO 解析について】

周期境界条件を用いた表面計算に自然軌道解析法を応用し, Pt 表面が担持したアリアルイソシアニド分子の分子振動及び電子状態に与える影響を明らかにした. アリアルイソシアニド分子の NC 結合強度は置換基だけではなく, 表面と分子間の π 逆供与と σ 供与にも影響をうけること, NBO 解析結果から NC 伸縮振動傾向を予測できることを示した.

【二官能性ポルフィリン触媒による二酸化炭素とエポキシドの共重合反応機構に関する研究】

岡山大, 東京大と標記の反応機構に関する共同研究を実施した. 触媒構造について, (i)ポルフィリン配位子における Al^{3+} イオンが, 求核攻撃を受けた後の不安定なエポキシド単量体アニオンを安定化すること, (ii)四級アンモニウムを含む置換基は, 二酸化炭素とカップリングした後のアニオン種を静電的に安定化でき, 金属中心からの脱離を促進すること, (iii)副反応である環状カーボネート生成はエネルギー的に不利となること等が DFT 計算によって示された.

【Mg(II) アリルオキシド触媒によるエステル交換反応機構に関する理論的研究】

標記課題について名古屋大と共同研究を実施した. 基質の水酸基からアリルオキシド配位子がプロトンを引き抜く過程とアクリル酸メチルへの求核攻撃が協奏的に起きることで, 基質の求核性が高まり活性化障壁が低下することが示された.

【液体インジウムによるメタン脱水素カップリングの触媒機構に関する理論的研究】

DFT 計算と第一原理 MD 計算を用いて, 同反応のメカニズムを研究した. 気液界面の第一原理 MD 計算と blue-moon アンサンブル法によって各反応素過程の活性化エネルギーを計算した. 律速段階はメタンの C-H 解離であり, 水素原子はインジウム液体中に容易に溶け込むことが観察された. 従って, 界面における水素原子濃度が低下することで, C-H 再結合の頻度が抑制されて, メタンカップリングが促進されると考えられる.

【電圧の印加による電子物性変化のメカニズム】

電圧の印加にともなう電子の流入と電極電場の両者を取り込んで電子物性を計算する独自の理論的手法を用いて, 有機分子(F_4TCNQ)がグラフェンに吸着した系を対象として, 電圧の印加による電子密度変化を解析した. 電極電場によって F_4TCNQ /グラフェン界面の電荷分布が決まることが明らかになった.

A. 原著論文

1. Synthesis of silyl formates, formamides, and aldehydes via solvent-free organocatalytic hydrosilylation of CO₂
T. Murata, M. Hiyoshi, M. Ratanasak, J. Hasegawa, T. Ema,
Chem. Commun., 56, 5783-5786, (2020)
2. Quantum chemical study of substituent effects on CN bond in aryl isocyanide molecules adsorbed on the Pt surface
B. Wang, M. Gao, K. Uosaki, T. Taketsugu,
Phys. Chem. Chem. Phys., 22, 12200-12208, (2020)
3. Aluminum porphyrins with quaternary ammonium halides as catalysts for copolymerization of cyclohexene oxide and CO₂: Metal–ligand cooperative catalysis [Selected as Back Cover]
J. Deng, M. Ratanasak, Y. Sako, H. Tokuda, C. Maeda, J. Hasegawa, K. Nozaki, T. Ema,
Chem. Sci., 11, 5669-5675, (2020)
4. A Systematic Study on the Absorption Features of Interstellar Ices in Presence of Impurities
P. Gorai, M. Sil, A. Das, B. Sivaraman, S. K. Chakrabarti, S. Ioppolo, C. Puzzarini, Z. Kanuchova, A. Dawes, M. Mendolicchio, G. Mancini, V. Barone, N. Nakatani, T. Shimonishi, N. J. Mason,
ACS Earth Space Chem., 4, 920-946, (2020)
5. Delocalization Effect Promoted the Indoor Air Purification via Unlocking Directly Ring-open Pathway of Toluene
W. Qu, P. Wang, M. Gao, J. Hasegawa, Z. Shen, Q. Wang, R. Li, D. Zhang,
Environ. Sci. Technol., 54, 9693-9701, (2020)
6. Electric Field Effect on Graphene/Organic Interface under Bias Voltage
K. Iida,
Chem. Lett., 49, 1117-1120, (2020)
7. Zeolite-supported ultra-small nickel as catalyst for selective oxidation of methane to syngas
S. Yasuda, R. Osuga, Y. Kunitake, K. Kato, A. Fukuoka, H. Kobayashi, M. Gao, J. Hasegawa, R. Manabe, H. Shima, S. Tsutsuminai, T. Yokoi,
Commun. Chem., 3, 129, (2020)
8. Self-Assembled Multilayer Iron(0) Nanoparticle Catalyst for Ligand-Free Carbon–Carbon/Carbon–Nitrogen Bond-Forming Reactions
T. Akiyama, Y. Wada, M. Yamada, Y. Shio, T. Honma, S. Shimoda, K. Tsuruta, Y. Tamenori, H. Haneoka, T. Suzuki, K. Harada, H. Tsurugi, K. Mashima, J. Hasegawa, Y. Sato, M. Arisawa,
Org. Lett., 22, 7244-7249, (2020)
9. Spin - inversion mechanisms in O₂ binding to a model heme compound: A perspective from nonadiabatic wave packet calculations [Selected as Cover Image]
K. Saito, Y. Watabe, T. Miyazaki, T. Takayanagi, J. Hasegawa,
J. Comput. Chem., 41, 2527-2537, (2020)
10. Extending Nudged Elastic Band Method to Reaction Pathways Involving Multiple Spin States
L. Zhao, K. Watanabe, N. Nakatani, A. Nakayama, X. Xu, J. Hasegawa,
J. Chem. Phys., 153, 134114, (2020)

11. Mechanistic Study on Deoxydehydration and Hydrogenation of Methyl Glycosides to Dideoxy Sugars over ReOx-Pd/CeO₂ catalyst
J. Cao, M. Tamura, R. Hosaka, A. Nakayama, J. Hasegawa, Y. Nakagawa, K. Tomishige,
ACS Catal., 10, 12040-12051, (2020)
12. Catalytic Mechanism of Liquid-Metal Indium for Direct Dehydrogenative Conversion of Methane to Higher Hydrocarbons
Y. Nishikawa, Y. Ohtsuka, H. Ogihara, R. Rattanawan, M. Gao, A. Nakayama, J. Hasegawa, I. Yamanaka,
ACS Omega, 5, 28158-28167, (2020)
13. Increase in CO₂ reduction rate via optical near-field effect
T. Yatsui, Y. Nakamura, Y. Suzuki, T. Morimoto, Y. Kato, M. Yamamoto, T. Yoshida, W. Kurashige,
N. Shimizu, Y. Negishi, K. Iida, K. Nobusada,
J. Nanophotonics, 14, 046011, (2020)
14. Chemoselective Transesterification of Methyl (Meth)acrylates Catalyzed by Sodium(I) or Magnesium(II) Aryloxides [Press Released]
J. Ng, H. Arima, T. Mochizuki, K. Toh, K. Matsui, M. Ratanasak, J. Hasegawa, M. Hatano, K. Ishihara,
ACS Catal., 11, 199-207, (2021)
15. On the Electronic Structure Origin of Mechanochemically Induced Selectivity in Acid Catalyzed Chitin Hydrolysis [Selected as Supplementary Cover]
D. P. De Chavez, H. Kobayashi, A. Fukuoka, J. Hasegawa,
J. Phys. Chem. A, 125, 187-197, (2021)
16. Tuning Transition Electric and Magnetic Dipole Moments: [7]Helicenes Showing Intense Circularly Polarized Luminescence
H. Kubo, T. Hirose, T. Nakashima, T. Kawai, J. Hasegawa, K. Matsuda,
J. Phys. Chem. Lett., 12, 686-695, (2021)
17. Catalytic Activity of Gold Clusters Supported on h-BN/Au(111) Surface for Hydrogen Evolution Reaction
M. Gao, M. Nakahara, A. Lyalin, T. Taketsugu,
J. Phys. Chem. C, 125, 1334-1344, (2021)
18. Mechanism of the Asymmetric Dehydrative Allylative Cyclization of Alcohols to Cyclic Ethers Catalyzed by a CpRu Complex of the Chiral Picolinic Acid-Type Ligand, Cl-Naph-PyCOOH: Is a π -Allyl Intermediate Present?
Y. Suzuki, S. Iwase, M. Ratanasak, J. Hasegawa, S. Tanaka, M. Kitamura,
Bull. Chem. Soc. Jpn., 94, 440-450, (2021)

B. 総説・解説・その他

1. ナノ界面系の光や電圧に対する応答の理論研究
飯田健二,
Mol. Sci., Vol. 14, A0110 (2020).

D. 招待講演

1. ナノ物質系の界面の光や電圧に対する応答の理論計算研究
飯田健二
京都大学福井謙一記念研究センターオンラインシンポジウム, 2021 年 1 月 25 日
オンライン開催

2. Catalyst Informatics Cooperation among Institutes in Japan
J. Hasegawa
e-ASIA Joint Research Program Online Workshop on Materials Informatics, Jan. 13-14, 2021.
Online Conference,
3. Theoretical investigation on catalytic activity of metal clusters
M. Gao
The International Symposium on Advanced Catalyst Design and Molecular Catalysis, Aug. 31-
Sept. 4, 2020
Xi'an, China (Online Conference)
4. ナノ界面系の光や電圧に対する応答機構の理論的研究
飯田健二
第433回触媒科学研究所コロキウム, 2020年3月4日
北海道大学 触媒科学研究所, 北海道

E. 外部資金の取得状況 (2020.4-2021.3)

長谷川 淳也

基盤研究 (B) (代表) :

「力学刺激環境を取り扱う理論化学計算手法の開発と新しい反応コンセプトの構築」

科学技術振興機構・戦略的創造研究推進事業 CREST (主たる共同研究者) :

「計算化学と迅速評価法によるメタン活性化触媒物質インフォマティクス構築」

飯田 健二

若手研究 (代表) :

「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」

京大化研国際共同利用・共同研究 (代表) :

「プラズモニク合金ナノ粒子を設計するための理論的指針の構築」

基盤研究(B) (分担) :

「可視プラズモニクスの新展開：第2世代材料の学理構築」

基盤研究(B) (分担) :

「原子精度で制御された高濃度異元素ドーパ金属クラスターの創製」

挑戦的研究(萌芽) (分担) :

「ナノフォトニック集光体による近赤外光異性化の実証と応用」

高 敏

基盤研究 C (代表) :

「金属ナノ粒子の触媒活性見えた目判別に向けた遷移状態の情報化学的研究」

F. 受賞関係

飯田 健二

2020年度プラズモニク化学研究会「次世代プラズモニク化学への挑戦」

《最優秀講演賞》(2021.3.5)

「プラズモニクエネルギー変換の原子レベルの制御に向けた第一原理計算研究」

電子科学研究所 光電子ナノ材料研究分野

(現教員)

教授 西井 準治
教授 松尾 保孝
准教授 小野 円佳
助教 藤岡 正弥
助教 Melbert Jeem

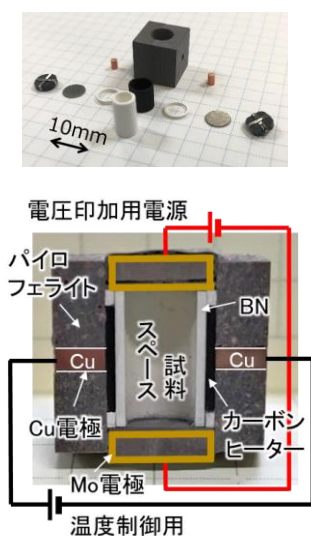
(研究概要)

当研究室では、電子、フォノン、フォトン、イオンの輸送現象に着目し、以下の無機材料の開発に取り組んでいます。

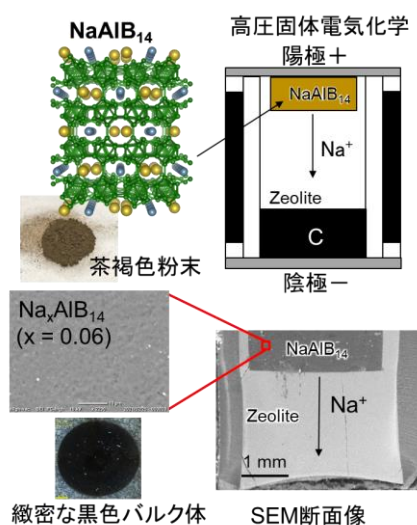
独自に開発した「高圧固体電気化学法」は、様々なセラミック材料に対して、数百℃、数 GPa の環境下で数十 V の電圧を印加することができます。この方法を用いれば、これまでの常圧条件下では得ることができない新物質が見出される可能性があります。最近では、熱電変換材料として期待される NaAlB_{14} へのキャリアドーピングに取り組んでいます。このような材料合成を進めるためには、高温高圧下での化学反応を的確に理解し、発現する機能を予測することが重要です。当研究室では、高圧固体電気化学処理による材料の電子状態密度の変化を第一原理計算によって予測し、処理条件の最適化と機能の向上を目指しています。

一方、高い超伝導転移温度が期待される水素化物の合成に着手しました。これまでに LaH_{10} などの水素化物が報告されていますが、その合成には、水素固溶度が高くなる高圧下での合成が求められます。当研究室では、水素封止能力が高い NaCl カプセルを用いた高圧合成法を開発し、 1000°C 、4 GPa で水素封止率 80%を達成するとともに、 Mg_3MnH_7 の合成に成功しました。今後は、この方法を用いた新規水素化物の合成と高い超伝導転移温度の実現を目指します。

その他、常圧水素雰囲気下での電気化学的手法によって、固体中へのアルカリイオンの導入、アルカリイオンをプロトンに置換するためのプロセスの構築などに取り組んでいます。この手法を用いて、カルコゲナイド化合物への金属イオンのインターカレーションや、リン酸塩ガラス中のアルカリイオンのプロトンへの置換などが可能となり、超伝導特性やプロトン伝導特性の発現について報告しています。また、情報通信用光ファイバの超低損失化を目的とした超高压下でのシリカガラスの構造制御や、人工光合成を目的とした光照射による ZnO ナノロッドの水中合成などにも取り組んでいます。



高圧固体電気化学処理に用いる試料セル



NaAlB_{14} へのキャリアドーピング

A. 原著論文

1. Understanding the effect of oxide components on proton mobility in phosphate glasses using a statistical analysis approach, T. Omata, I. Suzuki, A. Sharma, T. Ishiyama, J. Nishii, T. Yamashita and H. Kawazoe, *RSC Advances*, 11, 3012-3019, 2021.
2. Tuning the Mechanical Toughness of the Metal - nanoparticle - implanted Glass: the Effect of Nanoparticle Growth Conditions, M. Ono, S. Miyasaka, Y. Takato, S. Urata and Y. Hayashi, *Journal of the American Ceramics Society*, 00, 1-13, 2021.
3. Understanding the molar volume of alkali-alkaline earth-silicate glasses via Voronoi polyhedra analysis, Y. Yang, H. Tokunaga, M. Ono, K. Hayashi and J.C. Mauro, *Scripta Materialia*, 166, 1-5, 2020.
4. Synthesis of yellow persistent phosphor garnet by mixed fuel solution combustion synthesis and its characteristic, T. Gotoh, M. Jeem, L. Zhang, N. Okinaka and S. Watanabe, *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 142, 109436, 2020.
5. Thermal stability and proton conductivity of densely proton injected phosphate glasses containing rare-earth elements, A. Miyazaki, T. Kinoshita, T. Tatebayashi, T. Fang, Y. Ren, T. Ishiyama, T. Yamaguchi, T. Omata, M. Fujioka, H. Kaiju, G. Zhao and J. Nishii, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 541, 120064(1-7), 2020.
6. Understanding thermal expansion of pressurized silica glass using topological pruning of ring structures, Y. Yang, H. Tokunaga, K. Hayashi, M. Ono and J.C. Mauro, *Journal of the American Ceramic Society*, 2020, 1-14, 2020.
7. Topological pruning enables ultra-low Rayleigh scattering in pressure-quenched silica glass, Y. Yang, O. Homma, S. Urata, M. Ono and J.C. Mauro, *npj Computational Materials*, 6, 2020.
8. Discovery of Ag_xTaS₂ superconductor with stage-3 structure, Z. Khurelbaatar, M. Fujioka, T. Shibuya, S. Demura, S. Adachi, Y. Takano, M. Jeem, M. Ono, H. Kaiju and J. Nishii, *2D Materials*, 8, 015007 (1-10), 2020.
9. Strategy for Finely Aligned Gold Nanorod Arrays Using Polymer Brushes as a Template, S. Nakamura, H. Mitomo, Y. Sekizawa, T. Higuchi, Y. Matsuo, H. Jinnai, K. Ijro, *Langmuir*, 36, 3590-3599, 2020.
10. Micro-liquid enclosure array and its semi-automated assembling system for x-ray free-electron laser diffractive imaging of samples in solution, T. Kimura, A. Suzuki, Y. Yang, Y. Niida, A. Nishioka, M. Takei, J. Wei, H. Mitomo, Y. Matsuo, K. Niikura, K. Ijro, K. Tono, M. Yabashi, T. Ishikawa, T. Oshima, Y. Bessho, Y. Joti, and Y. Nishino, *Review of Scientific Instruments* 91, 083706, 2020.
11. Site-Selective Wettability Control of Honeycomb Films by UV-O₃-Assisted Sol-Gel Coating, H. Yabu, J. Matsui, Y. Matsuo, *Langmuir*, 36, 12023-12029, 2020.

12. Hierarchical growth of Au nanograss with intense built-in hotspots for plasmonic applications, YL. Shi, Q. Li, Y. Zhang, GQ. Wang, Y. Matsuo, XG. Liang, T. Takarada, K. Ijro, M. Maeda, Journal of Materials Chemistry C, 8, 16073-16082, 2020.
13. Highly Porous Magnesium Silicide Honeycombs Prepared by Magnesium Vapor Annealing of Silica-Coated Polymer Honeycomb Films toward Ultralightweight Thermoelectric Materials, H. Yabu, Y. Matsuo, T. Yamada, H. Maeda, J. Matsui, Chemistry of Materials, 32, 10176-10183, 2020.

B. 総説・解説・その他

- 1 小野 円佳 「低損失ファイバーレーザーに向けたシリカガラスの空隙制御」 レーザー研究 48(7) 339 - 343 (2020).

D. 招待講演

国際学会

1. M. Ono, "Void-Engineering in Silica Glass for Fibers with Ultralow Optical Scattering Loss", ECOC, 2020 年 12 月 9 日.
2. M. Ono, "Pressure Control of Fluctuation in Glass", Glass Meeting 2020, 2020 年 12 月 8 日.
3. M. Ono, "Mechanical toughness of the metal-nanoparticle-implanted glass, its mechanical strength and the dependence on the preparation conditions", Virtual Glass Summit 2020, 2020 年 8 月 4 日.

国内学会

1. 藤岡 正弥、岩崎 秀、フレルバータル ザガルツェム、小峰 啓史、森戸 春彦、メルバート ジェーム、小野 円佳、西井 準治：「イオンの拡散制御による新規物質開発」，第 81 回応用物理学会秋季学術講演会、オンライン、2020 年 9 月.
2. 藤岡 正弥：「プロトンの電気化学的拡散を利用した新規超伝導物質探索」，応用物理学会超伝導分科会，低温工学・超電導学会（材料研究会）合同研究会、オンライン、2020 年 11 月.
3. M. Jeem, M. Fujioka, M. Ono, S. Watanabe, J. Nishii：「Low-temperature cathodoluminescence study of patterned ZnO nanorods fabricated by submerged photo-synthesis」，公益社団法人日本顕微鏡学会第 63 回シンポジウム.

E. 外部資金の取得状況（2020.4-2021.3）

西井 準治

基盤研究（B）（代表）：

「超高密度プロトン含有リン酸塩ガラスのプロトン移動の科学と高速プロトン伝導性の実現、2020～2022 年度」

挑戦的萌芽研究（代表）：

「新奇イオン放出現象を利用した全固体イオンガンの創製、2019～2020 年度」

特別研究員奨励費（代表）：
「ナノ構造光デバイスの創製、2019～2020 年度」

小野 円佳
学術変革領域研究（A）（分担）：
「社会実装に向けた超秩序構造物質ライブラリーに基づく合成プロセス開発、2020-2024 年度」

藤岡 正弥
挑戦的萌芽研究（代表）：
「電圧印加型プロトン充填材料の探索による水素貯蔵イノベーション、2018～2020 年度」

基盤研究（B）（代表）：
「高濃度水素化物の創製に向けた革新的反応場の構築、2019～2020 年度」

イオン工学助成金（代表）：
「プロトン駆動イオン導入法によるイオンの放出現象の応用展開、2019～2020 年度」

CREST（主たる共同研究者）：
「新規結晶の大規模探索に基づく革新的機能材料の開発、2019～2024 年度」

松尾 保孝
基盤研究（C）（代表）：
「ナノ構造を用いた光増強ソフトイオン化法による大気中有機ナノ粒子の直接質量分析、2019-2021 年度」

基盤研究（C）（分担）：
「近距離 Casimir 力の起源となる表面プラズモン振動モードの EELS 解析と力評価、2018-2020 年度」

Melbert Jeem
若手研究（代表）：
「水中結晶光合成による金属酸化物ナノロッドの創製とメカニズム解明、2020～2022 年度」

基盤研究(A)（分担）：
「ガルバニック水中結晶光合成の学理構築に基づく機能性 3 次元ヘテロナノ構造体創製、2020～2023 年度」

電子科学研究所 データ数理研究分野

(現教員)

教授 小松崎 民樹
 助教 水野 雄太
 特任助教 James N. Taylor
 特任助教 田畑 公次
 特任助教 Mikhail Tsitsvero

(研究概要)

当研究室は、化学反応や生体分子の構造転移などの状態変化における「偶然と必然」、「統計性と選択性」の根本原理を解明するとともに、計測されるデータに照らし合わせながら複雑システムの階層性、情報伝達における分子作用機序を究める実践型理論化学の創出に挑戦しています。

今年度の化学科卒業研究において、近藤僚哉さんはInformation Bottleneck法を用いて非アルコール性脂肪性肝疾患（NAFLD）のラマン分光画像のデータ解析を行い、肝組織内の空間的な化学的組成の不均一性と肝疾患の関係について研究を進めました（図1）。図1中で緑色の部分は空間的に均一な部分であり、これはNAFLDの中でも最も病態が悪化したNASHと呼ばれる状態にある組織に多く見られることが分かりました。同じく卒業研究生の田中綾一さんは、部分Kabschアルゴリズムと主成分分析を用いた化学反応動力学系の自由度削減法について研究しました。図2は、51自由度からなる化学反応系において、本手法を用いて抽出された反応記述に重要な自由度の空間にマッピングした、反応経路（IRC）に沿ったエネルギープロファイルです。IRCに沿った分子構造を部分Kabschアルゴリズムにより並進・回転させて各分子構造の五員環の位置を合わせた後に主成分分析を行うことで、反応過程において大きく変化する自由度を抽出できました。さらに、反応経路（IRC）に沿ったポテンシャルエネルギー関数が、この抽出された2-3自由度の関数として記述できることも分かりました。この反応系は遷移状態理論などの統計的反応論では説明できない反応として知られており、本次元削減法により低次元化した近似モデル系に対して動力的解析を行っていく予定です。

今年度は他にも、新概念コンピューティング（イジング計算機、量子コンピュータ）アルゴリズムとその化学反応ネットワーク解析への応用、ラマン分光イメージングデータから細胞の癌・非癌を同定する分子データ科学、アルファ基のアルゴリズムで使われているバンディットアルゴリズムを用いたラマン分光計測の情報計測的迅速化技術の開発、リーダー・フォロアー細胞仮説に対する情報理論的因果推論手法の検討など、化学・生命・数理・情報にまたがる分野融合的研究を推進し、成果を上げました。

当研究室は、スタッフ含めて、日本人11名、アメリカ人2名、フランス人1名、ロシア人1名、バングラデッシュ人5名と多国籍色豊かで、化学と異分野の高度融合を実践しています。

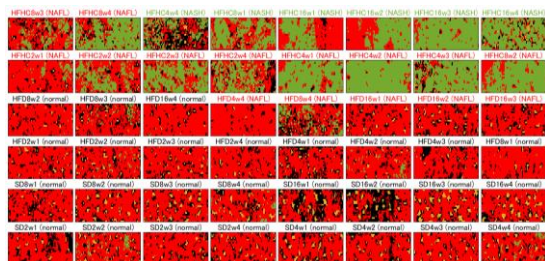


図1 非アルコール性脂肪性肝疾患（NAFLD）モデルラットの肝組織のラマン分光画像を、ラマンスペクトルの空間的不均一性を指標に Information Bottleneck 法でクラスタリングした結果

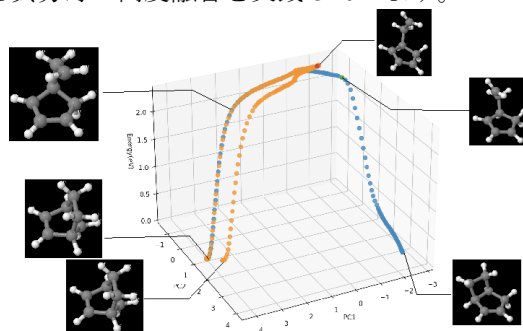


図2 主成分分析により抽出された反応記述に重要な自由度の空間上のエネルギープロファイル

A. 原著論文

1. STATICA: A 512-Spin 0.25M-Weight Full-Digital Annealing Processor with a Near-Memory All-Spin Updates-at-Once Architecture for Combinatorial Optimization with Complete Spin-Spin Interactions
K. Yamamoto, K. Ando, N. Mertig, T. Takemoto, M. Yamaoka, H. Teramoto, A. Sakai, S. Takamaeda-Yamazaki, and M. Motomura
2020 IEEE International Solid- State Circuits Conference - (ISSCC), San Francisco, CA, USA, April 13 (2020)
2. Biophysical Research in Hokkaido University, Japan
T. Aizawa, M. Demura, K. Gohara, H. Haga, K. Ishimori, M. Kinjo, T. Komatsuzaki, K. Maenaka, and M. Yao
Biophysical Reviews **12**(2), pp.233-236 (2020)
3. Inferring domain of interactions among particles from ensemble of trajectories
U. S. Basak, S. Sattari, K. Horikawa, and T. Komatsuzaki
Phys. Rev. E **102**(1), pp. 012404-1- 012404-9 (2020)
4. Dependence of DNA length on binding affinity between TrpR and trpO of DNA
N. Shimamoto, M. Toda, S. Nara, T. Komatsuzaki, K. Kamagata, T. Kinebuchi, and J. Tomizawa
Scientific Reports **10**(15624), (2020)
5. Editorial
M. Arai, T. Komatsuzaki, and H. Nakamura
Biophysics and Physicobiology **17**, pp.155-155 (2020)
6. Erratum: Inferring domain of interactions among particles from ensemble of trajectories
U. S. Basak, S. Sattari, K. Horikawa, and T. Komatsuzaki
Physical Review E **102**(124040), pp. 069902-1- 069902-3 (2020)
7. An information-theoretic approach to infer the underlying interaction domain among elements from finite length trajectories in a noisy environment
U. S. Basak, S. Sattari, M. M. Hossain, K. Horikawa, and T. Komatsuzaki
J. Chem. Phys. **154**, pp.034901-1-034901-12 (2021)
8. Minor-embedding heuristics for large-scale annealing processors with sparse hardware graphs of up to 102,400 nodes
Y. Sugie, Y. Yoshida, N. Mertig, T. Takemoto, H. Teramoto, A. Nakamura, I. Takigawa, S. Minato, M. Yamaoka, and T. Komatsuzaki
Soft Computing Online, (2021)

B. 総説・解説・その他

該当なし

C. 著書

該当なし

D. 招待講演

1. Geometrical aspect of chemical reaction dynamics in thermally fluctuating environments and Future Directions
T. Komatsuzaki*
Chaos Indicators, Phase Space and Chemical Reaction Dynamics, University of Bristol, UK (2020-5)

E. 外部資金の取得状況（2020.4–2021.3）

小松崎 民樹

新学術領域研究「シンギュラリティ生物学」（計画班代表）：
「細胞集団とシンギュラリティ細胞のデータ駆動型数理解析技術の開発」
基盤研究（B）（代表）：
「生命動態システムに対する分子データ科学の構築」
特別研究員奨励費（受入）：
「1細胞ラマン分光イメージングのための情報計測技術」
科学技術振興機構・戦略的創造研究推進事業「CREST」（代表）：
「一細胞ラマン計測と情報科学の融合による細胞診断の迅速解析技術の開発」
科学技術振興機構・戦略的創造研究推進事業「CREST」（協力）：
「数学に依拠する精度保証等の安全・安心を担保する最適化問題の研究」
共同研究（日立・産業創出部門）（代表）：
「数理モデルとハードウェアアルゴリズムに基づく社会応用」

田畑公次

若手研究（B）（代表）：
「確率的腕バンディット設定における効率的な良腕識別手法の開発とその応用」

寺本央

基盤研究(B)（分担）
「偏微分方程式による一元的幾何学的特徴評価を基軸とした一貫通貫型最適設計製造法」
基盤研究(C)（代表）
「包括的グレイナー基底系を用いた特異点分類の自動化」

水野雄太

科学技術振興機構・戦略的創造研究推進事業「さきがけ」（代表）：
「離散的化学反応論のための量子計算技術」

若手研究（代表）：

「相空間幾何学に基づく動力学的反応経路図の自動作成法の開発」

F. 受賞関連

近藤僚哉

化学系学協会北海道支部 2021 年冬季研究発表会 優秀講演賞（ウェブポスター発表部門）

機械学習を用いた化学的不均一性 の情報を含むラマン顕微鏡画像中のスペクトルの分類

2021 年 1 月

田中綾一

化学系学協会北海道支部 2021 年冬季研究発表会 優秀講演賞（ウェブポスター発表部門）

AFIR 法を用いた化学反応における動的効果の研究：1,3-シグマトロピー転移の類似反応を例に

2021 年 1 月

寺本央

日本機械学会賞

幾何学的特徴量に対する偏微分方程式系に基づく幾何学的特徴制約付きトポロジー最適化（積層造形における幾何学的特異点を考慮したオーバーハング制約法）

2021 年 3 月

遺伝子病制御研究所 分子生体防御分野

(現教員)

教授 高岡 晃教
講師 佐藤 精一
助教 山田 大翔

(研究概要)

分子生体防御分野は理学部および総合化学院の協力講座となっており、基礎医学とくに免疫学と化学との橋渡しの役割の実現を目指しています。さらに医学部からの大学院生も積極的に受け入れており、研究所をはじめ、多種にわたる部門と連携を図りながら研究と教育両面において世界に発信できる、かつ社会貢献につながるサイエンスを追究しています。

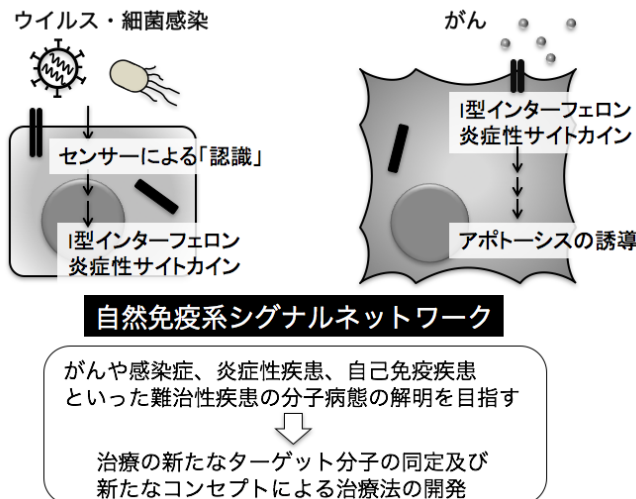
人類の歴史は、様々な微生物との格闘の歴史であったといっても過言ではないほど、このような小さな生き物は大きな影響を我々の生命や生活に与えてきました。顕微鏡の発見とともに、感染症が病原微生物によって引き起こされるものであることが明らかになったのも、つい 100 年ほど前のことであります。現在においても、人と微生物との攻防戦は未だに収束を迎えておりません。実際、近年にみられる麻疹/インフルエンザの流行や、SARS などの新興ウイルスの出現が報告されているなど、病原微生物をコントロールするには至っていません。そのため感染症制御の問題は、社会的に必要性の高い重要な研究課題であると認識しております。当研究室では、このような問題に対して分子レベルでアプローチすることを進めております。

最近の研究から我々生体は、病原微生物を排除する巧妙な防御システムを備えていることが明らかとなってきました。病原体の感染が様々な疾患の病態増悪因子であることはいまでもありません。また、もう一つの大きな問題としてがんの克服があります。がん細胞の出現に対しても類似の生体防御システムが関与していることが示されております。

当研究室では、生体の恒常性を乱す外因的あるいは内因的なストレス、具体的には、感染やがんに着目し、これらに対する生体防御システムの細胞応答について分子レベルでの解析を行っています。我々はこの生体防御の最も初めのプロセスと考えられる『認識機構』に着目し、新たな認識受容体の探索を行い、その下流のシグナル伝達経路の解析を進めることで、感染症や自己免疫疾患、癌といった難治性疾患の分子病態の解明、さらには治療への分子基盤の発見を目指したいと考えております。

感染とがん ⇄ 生体防御系

感染やがんに対する生体防御システムにおいて
とくに「自然免疫系シグナルネットワーク」の解析



A. 原著論文

1. Regulation of an adaptor protein STING by Hsp90 β to enhance innate immune responses against microbial infections.
Sato S., Li K., Sakurai N., Hashizume M., Baidya S., Nonaka H., Noguchi K., Ishikawa K., Obuse C., Takaoka A.
Cell Immunol., 356, 104188, (2020).
2. MicroRNA-30e-5p has an Integrated Role in the Regulation of the Innate Immune Response during Virus Infection and Systemic Lupus Erythematosus.
Mishra R., Bhattacharya S., Rawat B.S., Kumar A., Kumar A., Niraj K., Chande A., Gandhi P., Khetan D., Aggarwal A., Sato S., Tailor P., Takaoka A., Kumar H.
iScience, 23, 101322-101339, (2020).

D. 招待講演

1. Nucleic acid sensing for inducing innate immune responses in the host defense system against viral infection and cancer
Akinori Takaoka
Seminar in Boehringer Ingelheim, 2020.9.28. German (Web)

E. 外部資金の取得状況（2020.4–2021.3）

高岡 晃教

挑戦的研究（開拓）（代表）：

「自然免疫シグナルの新経路を介したがん細胞選択的な細胞死誘導の分子機構の解明」

肝炎等克服実用化研究事業 B型肝炎創薬実用化等研究事業（厚生労働省、AMED）（分担）：

「Nucleotide analogue 製剤のサイトカイン誘導を利用して B型肝炎のドラッグフリーを目指す治療法の開発および創薬に関する研究」

肝炎等克服実用化研究事業 B型肝炎創薬実用化等研究事業（厚生労働省、AMED）（分担）：

「実用化に向けた B型肝炎新規治療薬の探索及び最適化」 田中班

杏林製薬（寄附金）：

「自然免疫を負に制御する生体内因子に関する研究」

（株）浅井ゲルマニウム研究所（寄附金）

佐藤 精一

基盤研究（C）（代表）：

「新規 STING 結合タンパク質による抗腫瘍免疫システムの獲得メカニズムの解明」

公益財団法人住友財団 研究助成金（代表）：
「温度遺伝学で探求する非対称分裂メカニクス」

公益財団法人東レ科学振興会 研究助成金（代表）：
「細胞極性の欠損を理解して制御する」

一般財団法人北海道 B 型肝炎オレンジ基金 研究助成金（代表）：
「受精卵に細胞極性を誘導する分子メカニズムの全容を解明する」

公益信託成茂動物科学振興基金 研究助成金（代表）：
「受精卵に細胞極性を誘導する分子メカニズムの全容を解明する」

群馬大学生体調節研究所「内分泌・代謝学共同研究拠点」共同研究（代表）：
「線虫 *C. elegans* を用いた老化・代謝変化に応答した極性輸送機構の解析」

山田 大翔

若手研究 (代表) :

「ヒトサイトメガロウイルス感染に対する新規自然免疫シグナル調節機構の解析」

遺伝子病制御研究所 発生生理学分野

(現教員)

教授 茂木 文夫
助教 西村 有香子

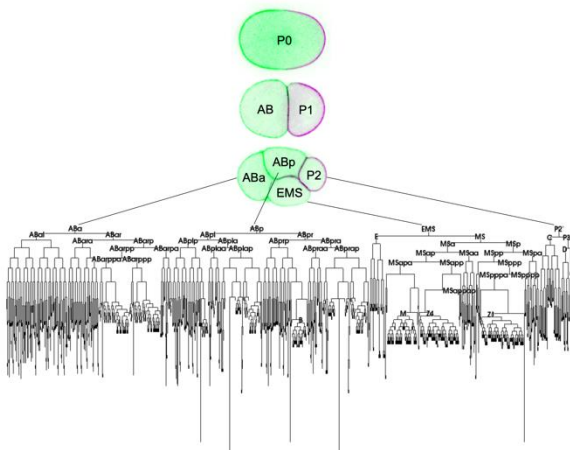
(研究概要)

カラダの中にある細胞は、たった一つの細胞「受精卵」からつくられます。受精卵はまず、細胞内における空間パターンを「対称：シンメトリー」から「非対称：アシンメトリー」に変換することで、受精卵が行う細胞分裂・分化・組織形成などの生命現象に空間的な偏りを生み出します。受精卵が最初に経験するドラマティックな変化である「細胞内空間パターンの制御：細胞極性」は、とても神秘的な生命現象であり、未だに多くの未解決な課題が残されています。

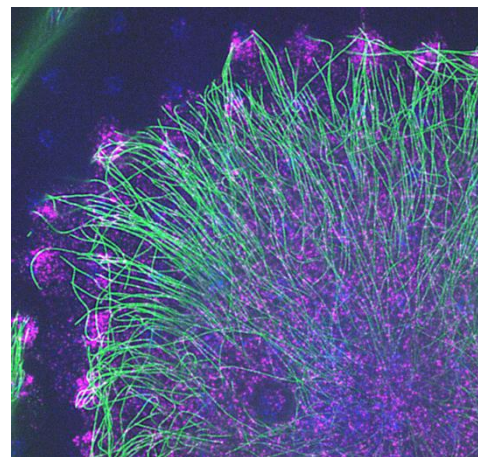
私達のグループは、生き物の空間パターンを司るメカニズム、特に細胞を「対称から非対称へ誘導する仕組み」と細胞の「非対称パターンを決める仕組み」、を明らかにしようとしています。*C. elegans* という線虫と哺乳動物の培養細胞をモデル系として使い、生きたままの細胞が増殖・分化して組織をつくる過程を詳しく観察することから、「細胞極性の成り立ち」を理解していきます。細胞と組織の非対称パターンを制御する遺伝子を同定し、その遺伝子産物・タンパク質の相互作用と細胞内ダイナミクスを調べることで、以下4つの疑問を解き明かしていきます。

1. 対称性の破れ： 細胞を「対称から非対称に」誘導するシグナル
2. 非対称パターンニング： 細胞の「非対称パターン」をコードする情報
3. 体細胞か生殖細胞か： 「細胞運命」を二者択一する仕組み
4. 組織の恒常性： 「組織構造の形成と維持」を司るメカニズム

モデル生物を使って細胞極性を決める仕組みを理解することで、受精卵が細胞分裂を介して色々な細胞種をつくる仕組み、分化した細胞が集団として組織構造をつくる仕組み、成体が組織構造を維持する仕組みなどが明らかになります。これらの基礎研究から得られる知見は、ヒトにおける様々な疾患の発症過程を理解してその予防策を考える礎となると期待されています。ヒトで細胞極性が異常になると、組織構造の破綻のみならず、癌化・神経変性・幹細胞不足などの疾患を引き起こすことから、細胞極性の研究は先天性疾患に対する医学的アプローチの基礎となることは間違いありません。私達はこれらの研究を通して、細胞生物学・発生生物学・分子生物学にコンピュータサイエンス・細胞組織工学・医学の視点を融合させた新しい研究領域を確立することを目指します。



線虫 *C. elegans* の胚発生と非対称パターン化



繊維芽細胞の微小管(緑)と接着班構造(紫)

A. 原著論文

1. Aurora-A breaks symmetry in contractile actomyosin networks independently of its role in centrosome maturation
P. Zhao, X. Teng, N. Tantirimudalige, M. Nishikawa, T. Wohland, Y. Toyama, and F. Motegi.*
Developmental Cell, 48, 631-645 (2019).

B. 総説・解説・その他

1. Mechanochemical Control of Symmetry Breaking in the *Caenorhabditis elegans* Zygote.
W.J. Gan and F. Motegi.*
Frontiers in Cell and Developmental Biology. 8, 619869- (2021).
2. Novel approaches to link apicobasal polarity to cell fate specification.
F. Motegi*, N. Plachta, and V. Viasnoff.
Current Opinion in Cell Biology. 62, 78-85 (2020).

C. 招待講演

1. Binary choice between asymmetric and symmetric mode of cell division is defined by the balance of PAR polarity proteins.
Fumio Motegi
Japanese Society of Developmental Biologists, Online Trial Meeting 2020, 2020.9.24-25, Online.
2. Mechanical control of symmetry breaking in *C. elegans* zygotes.
Fumio Motegi
MBI annual Symposium, From Molecules to Organs: Mechanobiology of Morphogenesis.
2020.10.28-29, Online.
3. Mechano-Chemical Control of Symmetry Breaking in *C. elegans* zygotes.
Fumio Motegi
The 15th International Symposium of the Institute Network for Biomedical Sciences. Cutting Edge of Biomedical and Metabolic Sciences, 2020.11.5-6, Online.

D. 外部資金の取得状況 (2020.4-2021.3)

茂木 文夫

公益財団法人上原記念生命科学財団 研究助成金 (代表) :
「細胞極性の欠損による疾患発症を理解して抑制する」

公益財団法人アステラス病態代謝研究会 研究助成金 (代表) :
「PAR-1/4 が誘導する細胞-組織極性の制御機構」

物質・材料研究機構 界面エネルギー変換材料化学研究室

(現教員)

客員教授 野口 秀典

客員教授 岡本 章玄

(研究概要)

界面エネルギー変換材料化学研究室では、電子移動が主役を演じる固体/溶液/生体界面で化学反応を主な対象として、電極触媒、二次電池関連電極反応、および生体機能に着目した触媒材料の開発、ならびに電気細菌そのものを電極触媒とした固液界面エネルギー変換反応に関する基礎的研究を行っています。このような不均一反応や生体反応は、気相や溶液中でのいわゆる均一反応に比べると、理解はまだまだ不十分です。その大きな原因は、不均一反応の舞台である固体表面、生体表面（特に溶液中）の構造や電子状態を制御・観察する手段が限られていることにあります。

具体的には、電子移動が主役を演じる固体/溶液/生体界面での化学反応を主な対象として、表面構造を原子・分子レベルで制御した新規エネルギー変換材料の構築、およびこれら表面の構造・電子状態の高分解能（原子・分子レベル）測定法の開発、反応の高時間分解能（ナノ秒～フェムト秒）追跡などの研究を通して、得られた成果を基盤とする固体表面の分子 nm スケールでの構造制御と機能発現を目的に研究を行っています。さらに、細胞外電子移動、生細胞代謝制御、有価物質の微生物による生産、生細胞の環境予測機構などの解明を行い、電気化学のみならず分子生物学、微生物学を基礎とする微生物を利用した高効率なエネルギー変換システム開発等に関する研究を並行して展開しています。

最近の成果として以下の2つがあげられます。リチウム空気電池の電極近傍における溶媒和構造を Raman 分光法により決定を行い（図 1A）、高濃度電解質を用いることで電池のサイクル特性向上につながるリチウム塩の電極界面濃度の増加がその要因であることを明らかにしました。（図 1B）。また、低温で培養することで発電細菌表面の細胞膜組成の生合成を変化させ、電子伝達酵素における電子伝達中心配列の構造を制御、単位タンパク質あたりの電子フラックスを 16 倍まで増加させることに成功、脂質膜組成によって電子移動速度を制御できることを初めて示しました（図 2）。

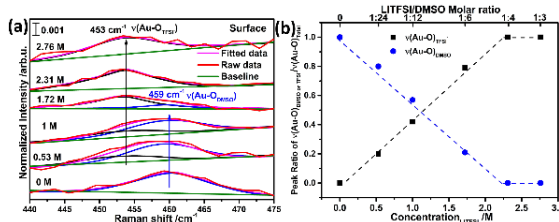


図 1A(a) 金表面での LITFSI-DMSO 電解質のラマンスペクトル。(b) LITFSI 濃度の関数としての $\nu(\text{Au-O})$ 全体の合計に対する $\nu(\text{Au-O}_{\text{DMSO}})$ と $\nu(\text{Au-O}_{\text{TFSI}})$ の比率の変化。

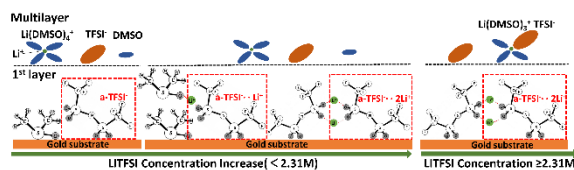


図 1B 各濃度における高電解質/金電極界面でのモデル図

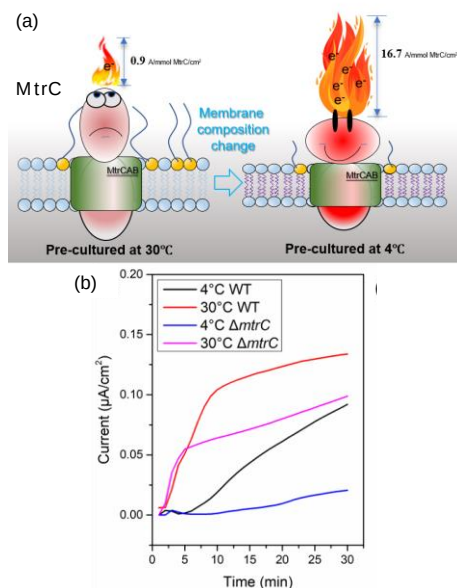


図 2 (a) 脂質膜組成が変化することで、電子移動速度が 16 倍変化する外膜シトクロム酵素 (MtrC)。(b)電流生成細菌の野生株と MtrC 欠損株の電流生成時間プロファイル。変異株との差分によって単位酵素あたりの電子フラックスを計算できる。

A. 原著論文

野口 秀典

1. “Electrochemical Growth of Very Long (~80 μm) Crystalline Li_2O_2 Nanowires on Single-Layer Graphene Covered Gold and Their Growth Mechanism”
K. Tomita, H. Noguchi, K. Uosaki
J. Am. Chem. Soc., Vol 142, 19502-19509 (2020).
2. “Effect of Electrolyte Concentration on the Solvation Structure of Gold/LITFSI–DMSO Solution Interface”
L. Wang, K. Uosaki, H. Noguchi
J. Phys. Chem. C, Vol 124, 12381-12389 (2020).
3. “Investigation of the effects of Pt/Pd composition and PVP content on the activity of Pt/Pd core-shell catalysts”
K. Matsumoto, M. Hiyoshi, T. Iijima, H. Noguchi, K. Uosaki.
Electrochem. Commun., Vol 115, 106736 (2020).
4. “In Situ Spectroscopy Study of Oxygen Reduction Reaction Intermediates at the Pt/Acid Interface: Surface-Enhanced Infrared Absorbance Spectroscopy”
S. Kukunuri, H. Noguchi
J. Phys. Chem. C, Vol 124, 7267-7273 (2020).
5. “Effects of HF on the Lithiation Behavior of the Silicon Anode in LiPF₆ Organic Electrolyte Solution”
H. Lin, H. Noguchi, K. Uosaki
ACS Omega, Vol 5, 2081-2087 (2020).

岡本 章玄

1. “Synechococcus and Other Bloom-Forming Cyanobacteria Exhibit Unique Redox Signatures”
Y. Tokunou, R. V. Lemos, S. Tsujimura, A. Okamoto, P. Ledezma, S. Freguia
ChemElectroChem, 8 2, 360-364 (2020)
2. “Single-Cell Mass Spectroscopic Analysis for Quantifying Active Metabolic Pathway Heterogeneity in a Bacterial Population on an Electrode”
J. Saito, X. Deng, A. Okamoto
Analytical chemistry, 92 23, 15616-15623 (2020)
3. “Outer membrane compositions enhance the rate of extracellular electron transport via cell-surface MtrC protein in *Shewanella oneidensis* MR-1”
X. Long, A. Okamoto
Bioresource Technology, 320, Part A, 124290 (2020)
4. “Enhancement of cell growth by uncoupling extracellular electron uptake and oxidative stress production in sediment sulfate-reducing bacteria”
X. Deng, J. Saito, A. Kaksonen, A. Okamoto
Environment International, 144, 106006 (2020)

5. “Extracellular electron transfer by *Microcystis aeruginosa* is solely driven by high pH”
R. V. Lemos, S. Tsujimura, P. Ledezma, Y. Tokunou, A. Okamoto, S. Freguia
Bioelectrochemistry, 137, 107637 (2020)
6. “Mechanism of Anaerobic Microbial Corrosion Suppression by Mild Negative Cathodic Polarization on Carbon Steel”
M. Shiibashi, X. Deng, W. Miran, A. Okamoto
Environmental Science & Technology Letters, 7, 690-694 (2020)
7. “Improvement of Electrochemical Conditions for Detecting Redox Reaction of $K_3[Fe(CN)_6]$ toward the Application in Norovirus Aptasensor”
S. Hirano, J. Saito, T. Yukawa, D. Sano, A. Okamoto, S. Okabe, M. Kitajima
Electrochemistry, 88, 205-209 (2020)
8. “Electrochemical Characterization of Current Producing Human Oral-pathogens by Whole-Cell Electrochemistry”
D. Naradasu, A. Guionet, T. Okinaga, T. Nishihara, A. Okamoto,
ChemElectroChem, 7, 2012-2019 (2020)
9. “Involvement of Proton Transfer for Carbon Dioxide Reduction Coupled with Extracellular Electron Uptake in *Shewanella oneidensis* MR-1”
E. La Cava, A. Guionet, J. Saito, A. Okamoto
Electroanalysis, 32 1659-1663 (2020)
10. “Microbial current production from *Streptococcus mutans* correlates with biofilm metabolic activity”
D. Naradasu, A. Guionet, W. Miran, A. Okamoto
Biosensors and Bioelectronics, 112236 (2020)
11. “Metabolic Current Production by an Oral Biofilm Pathogen *Corynebacterium matruchotii*”
D. Naradasu, W. Miran, A. Okamoto
Molecules 25 (14), 3141 (2020)
12. “Biogenic Iron Sulfide Nanoparticles to Enable Extracellular Electron Uptake in Sulfate-Reducing Bacteria”
X. Deng, N. Dohmae, A. H. Kaksonen, A. Okamoto
Angew. Chem. Int. Ed., 59, 5995-5999 (2020)
13. “FeGenie: A Comprehensive Tool for the Identification of Iron Genes and Iron Gene Neighborhoods in Genome and Metagenome Assemblies”
A. I. Garber, K. H. Nealson, A. Okamoto, S. M. McAllister, C. S. Chan, R. A. Barco, N. Merino
Front. Microbiol., 11, 37 (2020)
14. “A Human Pathogen *Capnocytophaga ochracea* Exhibits Current Producing Capability”,
S. Zhang, W. Miran, D. Naradasu, S. Guo, A. Okamoto
Electrochemistry, 88, 224-229 (2020)

B. 総説・解説・その他

1. “電気細菌学者は電気羊の夢を見るか？”
岡本 章玄,
日本微生物生態学会誌, 35, 1,14-16 (2020)
2. “ブラック電気細菌たちが来た”
岡本 章玄
生物工学会誌, 98, 549 (2020)
3. “ブラック電気細菌はなぜ・どうやって電子を流すのか？電子移動を自在に操る鉄腐食細菌、病原細菌”
岡本 章玄
化学, 75, 66-67 (2020)

C. 著書

1. “Extracellular Electron Uptake Mechanisms in Sulfate-Reducing Bacteria”
X. Deng, A. Okamoto
In: Ishii M., Wakai S. (eds) Electron-Based Bioscience and Biotechnology.
Springer, Singapore. Chapter 4, Page 43-60

D. 招待講演

1. Mechanobiological Control of Electron Flow via Transmembrane Electric Wire in Living Bacteria
A. Okamoto
MANA international symposium, Ibaraki, 2021.03.02
2. 環境や人体に棲むブラック電気細菌
岡本 章玄
日本農芸化学会 2021 年度仙台大会 オンライン 2021.03.18－21
3. ハイスループット電極微生物培養は電気細菌の普遍性を示せるか？
岡本 章玄
日本農芸化学会 2021 年度仙台大会 オンライン 2021.03.18－21
4. Extracellular Electron Transport Mechanisms by Sulfate-reducing Bacteria
A. Okamoto
2020KSBB Fall Meeting and International Symposium: Hybrid Conference
(Korean Society for Biotechnology and Bioengineering) online 2020.10.21－23

5. 健全性崩壊をもたらす微生物による視認不可腐食の分子生物・電気化学的診断及び抑制技術の開発
岡本 章玄
第1回腐食分科会 (日本原子力研究開発機構主催) 2020.10.20
6. Interplay of low electron export and redox-repressor rex in modulation of pathogen's metabolism a new form for antibiotic assessment
A. Okamoto
1st virtual meeting ISMET 2020(International Society for Microbial Electrochemistry and Technology Global Conference) online 2020.10.7-9
7. Overlooked redox property of outer membrane vesicle surface
A. Okamoto
第58回 日本生物物理学会年会 オンライン 2020.9.16-18

E. 外部資金の取得状況 (2019.4-2020.3)

野口 秀典

共同研究 (新日鐵住金株式会社) (分担) :
「電池材料の電極表面の電気化学特性の解明」

日本学術振興会 科研費 挑戦的研究 (萌芽) (代表) :
「糖鎖の特異的な分子間相互作用と細胞のガン転移機構の分子論的解明」

岡本 章玄

英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業 (代表) :
「健全性崩壊をもたらす微生物による視認不可腐食の分子生物・電気化学的診断及び抑制技術の開発」

科学研究費補助金 (新領域) (代表) :
「ハイスループット電気化学培養法による電気細菌の同時複数単離法の開発」

JST 戦略的創造研究推進事業 さきがけ 研究領域「生体における微粒子の機能と制御」 (代表) :
「レドックス環境応答能を持つ歯周病細菌由来の膜小胞」

物質・材料研究機構 超伝導材料化学研究室

(現教員)

客員教授 山浦 一成

客員准教授 辻本 吉廣

(研究概要)

量子力学に基いた機能豊かな高機能材料・デバイスの社会実装を目標として、NIMS の卓越した研究環境を背景に量子材料の創製研究に取り組んでいます。具体的には超伝導体、強相関物質、トポロジカル物質、フラストレート磁性体などの新物質合成、高品質結晶育成、特性開発を進めています。

極性金属は、ソフトフォノンと伝導電子が非弾性散乱することによる、高い伝導率を保持したまま異常に増大するゼーベック係数や、非従来型超伝導、磁気光学効果などを示すことが知られています。特に通常金属から極性金属への転移温度近傍でイノベーションに向けた様々な機能性の発現が期待されているにもかかわらず、室温で転移する極性金属が限られていることが問題でした。我々は圧力効果によって極性金属酸化物 LiOsO_3 の転移温度 (140 K) が室温まで高まることを実験的に確認しました (図 1)。この成果は実用的な極性金属の材料デザインに貢献すると考えています。

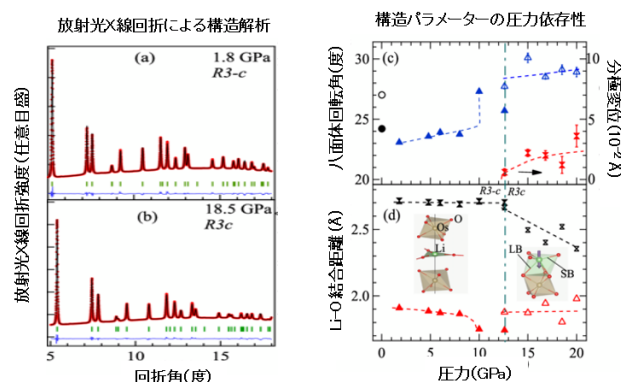


図 1 極性金属酸化物 LiOsO_3 の高圧力下での精密構造解析
J. J. Gao, *et al.*, *Phys. Rev. B* 101, 220101 (2020).

量子磁性を示す新物質探索を進める過程で、偶発的に合成されたガーネット型構造を有する新規酸化物 $\text{Ce}_2\text{CaMg}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ の単結晶をフラックス法で育成しました。結晶構造を単結晶 X 線回折法と放射光 X 線回折法 (図 2) によって精密化しました。この結晶は、磁気的には極低温まで長距離秩序を示さなかったため、おそらく結晶中の磁性元素 Ce の配置の乱れが大きく影響したと思われます。

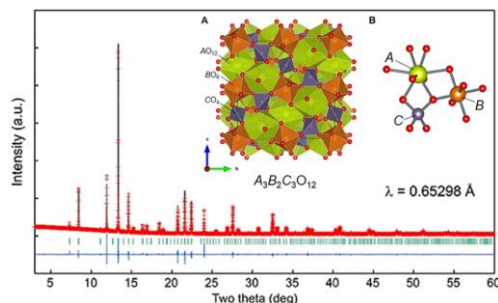


図 2 $\text{Ce}_2\text{CaMg}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ の粉末放射光 X 線回折パターン ($\lambda = 0.65298\text{\AA}$) ; (A) ガーネット化合物 $\text{A}_3\text{B}_2\text{C}_3\text{O}_{12}$ の結晶構造と (B) 金属イオン周辺の局所配位。
J. Chen, *et al.*, *Front. Chem.* 8, 91 (2020).

A. 原著論文

1. A-site-ordered quadruple perovskite manganite $\text{CeMn}_7\text{O}_{12}$ with trivalent cations
A. A. Belik, L. Zhang, N. Terada, Y. Katsuya, M. Tanaka, Y. Matsushita, and K. Yamaura
Journal of Solid State Chemistry, Vol. 283, 121161 (2020).
2. Study of Polycrystalline Bulk Sr_3OsO_6 Double-Perovskite Insulator: Comparison with 1000 K Ferromagnetic Epitaxial Films
J. Chen, H. L. Feng, Y. Matsushita, A. A. Belik, Y. Tsujimoto, M. Tanaka, D. Y. Chung, and K. Yamaura
Inorganic Chemistry, Vol. 59, 4049-4057(2020).
3. Enhanced magnetization of the highest- T_C ferrimagnetic oxide $\text{Sr}_2\text{CrOsO}_6$
J. Chen, X. Wang, Z. W. Hu, L. H. Tjeng, S. Agrestini, M. Valvidares, K. Chen, L. Nataf, F. Baudelet, M. Nagao, Y. Inaguma, A. A. Belik, Y. Tsujimoto, Y. Matsushita, T. Kolodiaznyi, R. Sereika, M. Tanaka, and K. Yamaura
Physical Review B, Vol. 102, 184418 (2020).
4. Electronic properties of perovskite strontium chromium oxyfluoride epitaxial thin films fabricated via low-temperature topotactic reaction
A. Chikamatsu, T. Maruyama, T. Katayama, Y. Su, Y. Tsujimoto, K. Yamaura, M. Kitamura, K. Horiba, H. Kumigashira, and T. Hasegawa
Physical Review Materials, Vol. 4, 025004 (2020).
5. Origin of negative magnetization phenomena in $(\text{Tm}_{1-x}\text{Mn}_x)\text{MnO}_3$: A neutron diffraction study
A. Donni, V. Y. Pomjakushin, L. Zhang, K. Yamaura, and A. A. Belik
Physical Review B, Vol. 101, 054442 (2020).
6. From antiferromagnetism to high- T_C weak ferromagnetism manipulated by atomic rearrangement in $\text{Ba}_3\text{NiOs}_2\text{O}_9$
H. L. Feng, J. Chen, Z. W. Hu, X. Wang, M. Reehuis, P. Adler, A. Hoser, M. X. Wu, S. Agrestini, H. B. Vasili, J. Herrero-Martin, L. Nataf, F. Baudelet, K. Chen, Y. Matsushita, M. R. Li, L. H. Tjeng, C. Felser, M. Jansen, and K. Yamaura
Physical Review Materials, Vol. 4, 064420 (2020).
7. Room-temperature polar metal stabilized under high pressure
J. J. Gao, S. Y. Fu, K. Yamaura, J. F. Lin, and J. S. Zhou
Physical Review B, Vol. 101, 220101 (2020).
8. Enhanced visible-light photocatalytic activity of anatase-rutile mixed-phase nano-size powder given by high-temperature heat treatment
T. Ishigaki, Y. Nakada, N. Tarutani, T. Uchikoshi, Y. Tsujimoto, M. Isobe, H. Ogata, C. N. Zhang, and D. Hao
Royal Society Open Science, Vol. 7, 191539 (2020).
9. High-pressure synthesis, crystal structure, and magnetic properties of the Shastry-Sutherland-lattice oxides $\text{BaLn}_2\text{ZnO}_5$ ($\text{Ln} = \text{Pr}, \text{Sm}, \text{Eu}$)
Y. Ishii, J. Chen, H. K. Yoshida, M. Oda, A. D. Christianson, and K. Yamaura
Journal of Solid State Chemistry, Vol. 289, 121489 (2020).

10. Synthesis, structure, and luminescence properties of layered oxychloride $\text{Ba}_3\text{Y}_2\text{O}_5\text{Cl}_2$
Y. Iwasa, Y. Su, Y. Tsuchiya, M. Tatsuda, K. Kishio, T. Yanagida, F. Takada, T. Nishio, Y. Tsujimoto, K. Fujii, M. Yashima, and H. Ogino
Journal of Materials Chemistry C, Vol. 8, 17162-17168 (2020).
11. Magnetically induced metal-insulator transition in $\text{Pb}_2\text{CaOsO}_6$
H. Jacobsen, H. L. Feng, A. J. Princep, M. C. Rahn, Y. F. Guo, J. Chen, Y. Matsushita, Y. Tsujimoto, M. Nagao, D. Khalyavin, P. Manuel, C. A. Murray, C. Donnerer, J. G. Vale, M. M. Sala, K. Yamaura, and A. T. Boothroyd
Physical Review B, Vol. 102, 214409 (2020).
12. Coupled magnetic and structural phase transitions in the antiferromagnetic polar metal $\text{Pb}_2\text{CoOsO}_6$ under pressure
Y. Y. Jiao, Y. W. Fang, J. P. Sun, P. F. Shan, Z. H. Yu, H. L. Feng, B. S. Wang, H. M. Ma, Y. Uwatoko, K. Yamaura, Y. F. Guo, H. H. Chen, and J. G. Cheng
Physical Review B, Vol. 102, 144418 (2020).
13. Emergence of a Magnetostructural Dipolar Glass in the Quadruple Perovskite $\text{Dy}_{1-d}\text{Mn}_{7+d}\text{O}_{12}$
R. D. Johnson, D. D. Khalyavin, P. Manuel, L. Zhang, K. Yamaura, and A. A. Belik
Physical Review Letters, Vol. 125, 097601 (2020).
14. Fluorination and reduction of CaCrO_3 by topochemical methods
C. A. Juillerat, Y. Tsujimoto, A. Chikamatsu, Y. Masubuchi, T. Hasegawa, and K. Yamaura
Dalton Transactions, Vol. 49, 1997-2003 (2020).
15. High-Pressure Synthesis, Crystal Structures, and Properties of A-Site Columnar-Ordered Quadruple Perovskites $\text{NaRMn}_2\text{Ti}_4\text{O}_{12}$ with $R = \text{Sm, Eu, Gd, Dy, Ho, Y}$
R. Liu, R. Scatena, D. D. Khalyavin, R. D. Johnson, Y. Inaguma, M. Tanaka, Y. Matsushita, K. Yamaura, and A. A. Belik
Inorganic Chemistry, Vol. 59, 9065-9076(2020).
16. High-pressure synthesis, crystal structures, and magnetic and dielectric properties of GdFeO_3 -type perovskites $(\text{Dy}_{0.5}\text{Mn}_{0.5})(\text{Mn}_{1-x}\text{Ti}_x)\text{O}_3$ with $x=0.5$ and 0.75
R. Liu, M. Tanaka, K. Yamaura, and A. A. Belik
Journal of Alloys and Compounds, Vol. 825, 154019 (2020).
17. Magnetically driven loss of centrosymmetry in metallic $\text{Pb}_2\text{CoOsO}_6$
A. J. Princep, H. L. Feng, Y. F. Guo, F. Lang, H. M. Weng, P. Manuel, D. Khalyavin, A. Senyshyn, M. C. Rahn, Y. H. Yuan, Y. Matsushita, S. J. Blundell, K. Yamaura, and A. T. Boothroyd
Physical Review B, Vol. 102, 104410 (2020).
18. Aberrant electronic and structural alterations in pressure tuned perovskite NaOsO_3
R. Sereika, P. T. Liu, B. Kim, S. Kim, J. B. Zhang, B. J. Chen, K. Yamaura, C. Park, C. Franchini, Y. Ding, and H. K. Mao
Npj Quantum Materials, Vol. 5, 66 (2020).
19. Effects of magnetic dilution in the ferrimagnetic columnar ordered $\text{Sm}_2\text{MnMnMn}_{4-x}\text{Ti}_x\text{O}_{12}$ perovskites
A. M. Vibhakar, D. D. Khalyavin, P. Manuel, R. Liu, K. Yamaura, A. A. Belik, and R. D. Johnson

Physical Review B, Vol. 102, 214428 (2020).

20. Flux Crystal Growth, Structure, and Optical Properties of the New Germanium Oxysulfide $\text{La}_4(\text{GeS}_2\text{O}_2)_3$
H. Yan, A. Kuwabara, M. D. Smith, K. Yamaura, Y. Tsujimoto, and H. C. Zur Loye
Crystal Growth & Design, Vol. 20, 4054-4061(2020).
21. Static and dynamic spin properties in the quantum triangular lattice antiferromagnet Ag_2CoO_2
H. K. Yoshida, S. E. Dissanayake, A. D. Christianson, C. R. dela Cruz, Y. Q. Cheng, S. Okamoto, K. Yamaura, M. Isobe, and M. Matsuda
Physical Review B, Vol. 102, 024445 (2020).

E. 外部資金の取得状況 (2020.4-2021.3)

山浦 一成

(公財) 日本板硝子材料工学助成会研究助成 (代表) :
「ディラック電子由来のバルク性を持つ層状半金属の特性向上と新物質探索」

新学術領域研究(研究領域提案型) (公募研究) (代表) :
「高圧急冷法を用いた酸化物系ハイパーマテリアルの探索」

辻本 吉廣

新学術領域研究(研究領域提案型) (公募研究) (代表) :
「多重合成法による強相関電子系酸フッ化物の開拓」

物質・材料研究機構 光機能材料化学研究室

(現教員)

客員教授 葉 金花

客員教授 白幡 直人

(研究概要)

光機能材料化学研究室では、光吸収により無機結晶内に発生するキャリアの密度、遷移および寿命を制御することで発現した新奇な物性(発光、発熱、光触媒特性等)の学理解明および材料化に向けた研究を日々進めている。

白幡研究室では、バルク均一系の実験結果に基づいて構築された従来理論の予言とナノテクノロジーの進化と深化によって拓かれたナノ領域において初めて顕在化する現象との齟齬を解明すべく研究を進めている。さらに、ナノクリスタルの量子性に特徴付けられる光物性を利用したオプトエレクトロニクスデバイスやフォトサーマル現象を利用した医療材料など、エネルギー変換材料の開発に取り組んでいる。

葉研究室では、太陽光利用技術の高度化を図るため、光触媒などの「光誘起機能性材料」の研究開発を行っている。組成や形態を制御したナノ金属、有機/無機半導体材料の創製およびヘテロ集積・複合化を行うことにより、太陽光の高度吸収利用および化学エネルギーへの効率的な変換を目指す。また、反応場の制御や理論計算とその場計測の連携による光子・電子・分子間の相互作用や反応活性種・反応パス等メカニズム究明を進めることで、新材料の開発に重要な設計指針を提供すると共に、新原理・新機能の発掘も推進している。これらの研究を通じ、VOC(揮発性有機化合物)など種々有害有機物を効率的に分解・除去できる環境浄化材料技術、および太陽光エネルギーを化学エネルギーへ変換・貯蔵する「人工光合成」技術への応用を目指している。

令和2年度、重金属フリー量子ドット発光ダイオードの開発を進める上で重要な知見を得た。具体的には、図1に示すようにデバイスを逆構造で設計したところ高電圧でも発光色が安定し強度を高めることに成功した。また、吸収光を効率良くエネルギー変換する結晶構造を複数見いだした。例示するとSi量子ドットにおいて光を熱に変換する効率がサイズ依存性を示すことを実験的に明らかにした。またX線照射下でフォトンエネルギーを結晶中に貯蔵しUVC光にエネルギー変換して放射する欠陥構造を明らかにした。

また、光触媒による温暖化ガスCO₂の還元&有用な物質への変換に関し、重要な知見を得た。C-C単結合およびC≡C三重結合を有する共役ポリマー光触媒を系統的に設計・創製することによって、共役ポリマー光触媒における分子間結合の違いが電子移動およびCO₂光還元の活性を大きく支配していることを明らかにした(*Nature Commu.* 2020, 11:1149)。

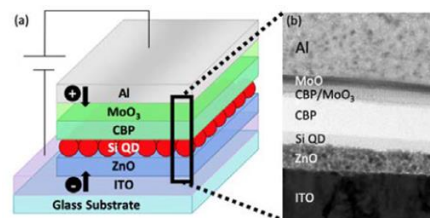


図1. 安定してエレクトロルミネッセンスを放射する発光ダイオードのデバイス構造と断面TEM像

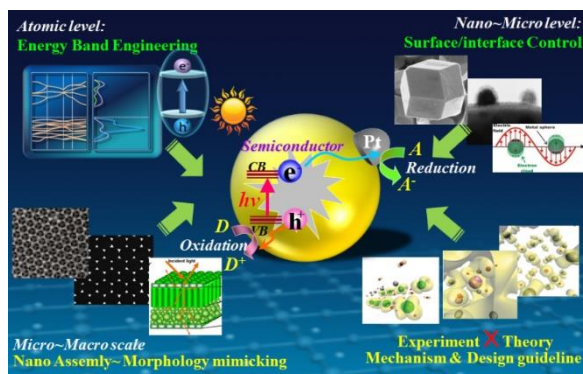


図2 研究内容のイメージ図(葉研究室)

また、安価な遷移金属Fe粒子から、高活性な単原子触媒の創製および固定をトップダウン手法で成功した。このように調製した触媒ではFe-N₄O活性点がCO₂分子の化学吸着を促進すると共に、中間体COOH*の形成障壁を低下させるため、CO₂の還元およびCOへの変換において従来の報告を大きく凌ぐ活性および選択性が得られた(*J. Am. Chem. Soc.* 2020, 142, 19259)。

A. 原著論文

1. Size-Dependent Photothermal Effect of Silicon Quantum Dots
İ. N. G. Özbilgin, B. Ghosh, H. Yamada, N. Shirahata
J. Phys. Chem. C, 125, 3421-3431 (2021).
2. Theory-Guided Rational Synthesis of Highly Luminescent Colloidal Cesium Tin Halide Perovskite Nanocrystals
Q. Liu, J. Yin, B. Zhang, J. Chen, L. Zhang, Y. Zhou, L. Wang, Q. Zhao, J. Hou, J. Shu, B. Song, N. Shirahata, O. F. Mohammed, O. M. Bakr, H. Sun
J. Am. Chem. Soc., 143, 5470–5480 (2021)
3. Improved Brightness and Color Tunability of Solution-Processed Silicon Quantum Dot Light-Emitting Diodes
H. Yamada, N. Saitoh, B. Ghosh, Y. Masuda, N. Yoshizawa, N. Shirahata
J. Phys. Chem. C, 124, 23333-23342 (2020).
4. Nano-Bio Interaction between Blood Plasma Proteins and Water-Soluble Silicon Quantum Dots with Enabled Cellular Uptake and Minimal Cytotoxicity
S. Chinnathambi, N. Hanagata, T. Yamazaki, N. Shirahata
Nanomaterials, 10, 2250 (1-19), (2020).
5. Zn-Al Layered Double Hydroxide-based Nanocomposite Functionalized with an Octahedral Molybdenum Cluster Exhibiting Prominent Photoactive and Oxidation Properties
Ngan Thi Kim Nguyen, Yoshio Matsui, Naoto Shirahata, Noée Dumait, Stéphane Cordier, Fabien Grasset, Naoki Ohashi, Tetsuo Uchikoshi
Appl. Clay Sci., 196, 105765 (1-11) (2020).
6. Selective Photooxidation of Methane to Methanol with Oxygen over Dual-Cocatalysts Modified Titanium Dioxide
H. Song, X. Meng, S. Wang, W. Zhou, S. Song, T. Kako, J. Ye
ACS Catal., 10(23), 14318–14326 (2020).
7. A Facile Top-down Strategy for Direct Metal Atomization and Coordination Achieving High Turnover-Number in CO₂ Photoreduction
Y. Li, S. Wang, X. Wang, Y. He, Q. Wang, Y. Li, M. Li, G. Yang, J. Yi, H. Lin, D. Huang, L. Li, H. Chen, J. Ye
J. Am. Chem. Soc., 142, 19259–19267 (2020).
8. Efficient photocatalytic CO₂ reduction mediated by transitional metal borides: metal site dependent activity and selectivity
L. Shi, P. Wang, Q. Wang, X. Ren, F. Ichihara, W. Zhou, H. Zhang, Y. Izumi, B. Cao, S. Wang, H. Chen, J. Ye
J Mater. Chem. A, 8, 21833-21841 (2020).
9. Plasmon-Enhanced CO Selective Oxidation in H₂ over Pt Nanoclusters Supported on Metallic Molybdenum Dioxide Nanocrystals

- Q. Zhang, Z. Yang, X. Chen, S. Ning, Y. Qi, L. Liu, J. Ye
Adv. Mater. Interfaces, 7(24), 2001657 (2020).
10. Cl⁻ modification for effective promotion of photoelectrochemical water oxidation over BiVO₄
Z. Li, Q. Zhang, X. Chen, F. Yang, D. Wang, L. Liu, J. Ye
Chem. Commun., 56, 13153-13156 (2020).
 11. Constructing Chemical Interaction between Hematite and Carbon Nanosheets with Single Active Sites for Efficient Photoelectrochemical Water Oxidation
G. Yang, Y. Li, H. Lin, X. Ren, D. Philo, Q. Wang, Y. He, F. Ichihara, S. Luo, S. Wang, J. Ye
Small Methods, 2000577 (2020).
 12. Solid-state synthesis of ultra-small freestanding amorphous MoP quantum dots for highly efficient photocatalytic H₂ production
F. Yang, D. Liu, Y. Li, S. Ning, L. Cheng, J. Ye
Chem. Eng. J., 406, 126838 (2021).
 13. Enhanced Photocatalytic CO₂ Reduction over TiO₂ Using Metalloporphyrin as the Cocatalyst
Z. Wang, W. Zhou, X. Wang, X. Zhang, H. Chen, H. Hu, L. Liu, J. Ye, D. Wang
Catalysts, 10, 654 (2020).
 14. Ultrafine Nano 1T-MoS₂ Monolayers with NiO_x as Dual Co-catalysts over TiO₂ Photoharvester for Highly Efficient Photocatalytic Hydrogen Evolution
H. Lin, K. Zhang, G. Yang, Y. Li, Xi. Liu, K. Chang, Y. Xuan, J. Ye
Appl. Catal. B: Environ., 279, 1193 (2020).
 15. SnO₂-x/Sb₂O₃ composites synthesized by mechanical milling method with excellent photocatalytic properties for isopropyl alcohol oxidation
L. Yang, J. Huang, H. Liu, S. Li, Y. Han, G. Qi, M. Lv, Y. Shang, J. Ye
J Mater. Sci - Mater. El, 31(11), 8564–8577 (2020).
 16. Recent advances of low-dimensional phosphorus-based nanomaterials for solar-driven photocatalytic reactions
X. Ren, D. Philo, Y. Li, L. Shi, K. Chang, J. Ye
Coordination Chemistry Reviews, 424, 213516 (2020).
 17. Fabrication of TiO₂/Fe₂O₃ core/shell nanostructure by pulse laser deposition toward stable and visible light photoelectrochemical water splitting
H. Lu, S. Fang, J. Hu, B. Chen, R. Zhao, H. Li, C. M. Li, J. Ye
ACS Omega, 5, 31, 19861–19867 (2020).
 18. Metal-Reduced WO₃-x Electrodes with Tunable Plasmonic Resonance for Enhanced Photoelectrochemical Water Splitting
X. Zhang, X. Wang, X. Yi, L. Liu, J. Ye, D. Wang
ACS Applied Energy Materials, 3(4), 3569-3576 (2020).
 19. Stabilizing CuGaS₂ by crystalline CdS through an interfacial Z-scheme charge transfer for

- enhanced photocatalytic CO₂ reduction under visible light
S. Wu, H. Pang, W. Zhou, B. Yang, X. Meng, X. Qiu, G. Chen, L. Zhang, S. Wang, X. Liu, R. Ma, J. Ye, N. Zhang
Nanoscale, 12, 8693–8700 (2020).
20. Nitrogen-doped ultrathin graphene encapsulated Cu nanoparticles decorated on SrTiO₃ as an efficient water oxidation photocatalyst with activity comparable to BiVO₄ under visible-light irradiation
L. Ren, X. Yi, L. Tong, W. Zhou, D. Wang, L. Liu, J. Ye
Appl. Catal. B: Environ., 279, 119352 (2020).
 21. Stabilizing atomically dispersed catalytic sites on tellurium nanosheets with strong metal-support interaction boosts photocatalysis
L. Shi, X. Ren, Q. Wang, Y. Li, F. Ichihara, H. Zhang, Y. Izumi, L. Ren, W. Zhou, Y. Yang, J. Ye
Small, 16, 2002356 (2020).
 22. Polymeric carbon nitride with frustrated Lewis pair sites for enhanced photofixation of nitrogen
Y. Ran, X. Yu, J. Liu, J. Cui, J. Wang, L. Wang, Y. Zhang, X. Xiang, J. Ye
J. Mater. Chem. A, 8, 13292–13298 (2020).
 23. Targeted Removal of Interfacial Adventitious Carbon towards Directional Charge Delivery to Isolated Metal Sites for Efficient Photocatalytic H₂ Production
Y. Li, S. Ouyang, S. Wang, P. Wang, Y. He, X. Wang, K. Chang, H. Lin, X. Ding, H. Chen, H. Zhang, Y. Izumi, J. Ye
Nano Energy, 76, 105077 (2020).
 24. Low-temperature strategy toward Ni-NC@Ni core-shell nanostructure with single-Ni sites for efficient CO₂ electroreduction
Y. He, Y. Li, J. Zhang, S. Wang, D. Huang, G. Yang, X. Yi, Y. Deng, J. Ye
Nano Energy, 77, 105010 (2020).
 25. Single cobalt atom anchored black phosphorous nanosheets as an effective cocatalyst promotes photocatalysis
X. Ren, L. Shi, Y. Li, S. Song, Q. Wang, S. Luo, L. Ren, H. Zhang, Y. Izumi, X. Peng, D. Philo, F. Ichihara, J. Ye
ChemCatChem, 12, 3870–3879 (2020).
 26. Plum Pudding-Like Electrocatalyst of N-Doped SnO_x@Sn Loaded on Carbon Matrix to Construct Photovoltaic CO₂ Reduction System with Solar-to-Fuel Efficiency of 11.3%
K. Xu, S. Ning, H. Chen, S. Ouyang, J. Wang, L. Song, J. Lv, J. Ye
Solar RRL, 2000116 (2020).
 27. Rules for Selecting Metal Cocatalyst Based on Charge Transfer and Separation Efficiency between ZnO Nanoparticles and Noble Metal Cocatalyst Ag/ Au/ Pt
Q. Liu, Z. Wang, H. Chen, H. Wang, H. Song, J. Ye, Y. Weng
ChemCatChem, 12(15), 3838–3842(2020).

28. Marimo-Bead-Supported Core-Shell Nanocomposites of Titanium Nitride and Chromium-Doped Titanium Dioxide as a Highly Efficient Water-Floatable Green Photocatalyst
M. Kaur, S. Shinde, S. Ishii, M. Yu, W. Jevasuwan, N. Fukata, Y. Li, J. Ye, T. Nagao
ACS Applied Materials & Interfaces, 12(28), 31327-31339 (2020).
29. Lithium incorporation assisted synthesis of ultra-small Mo₂C nanodots as efficient photocatalytic H₂ evolution cocatalysts
F. Yang, D. Liu, Y. Li, L. Cheng, J. Ye
Chem. Eng. J., 399, 125794 (2020).
30. Constructing Electron Delocalization Channels in Covalent Organic Frameworks Powering CO₂ Photoreduction in Water
Y. Xiang, W. Dong, P. Wang, S. Wang, X. Ding, F. Ichihara, Z. Wang, Y. Wada, S. Jin, Y. Weng, H. Chen, J. Ye
Appl. Catal. B: Environ., 274, 119096 (2020).
31. Molecular-level understanding of the deactivation pathways during methanol photo-reforming on Pt-decorated TiO₂
H. Huang, J. Feng, S. Zhang, H. Zhang, X. Wang, T. Yu, C. Chen, Z. Yi, J. Ye, Z. Li, Z. Zou
Appl. Catal. B: Environ., 272, 118980 (2020).
32. Solar-driven production of hydrogen and acetaldehyde from ethanol on Ni-Cu bimetallic catalysts with solar-to-fuels conversion efficiency up to 3.8%
S. Luo, H. Song, D. Philo, M. Oshikiri, T. Kako, J. Ye
Appl. Catal. B: Environ., 272, 118965 (2020).
33. Selective Activation of Benzyl Alcohol Coupled with Photoelectrochemical Water Oxidation via a Radical Relay Strategy
Lan Luo, Zhoujun Wang, Xu Xiang, Dongpeng Yan, Jinhua Ye
ACS Catalysis, 10, 4906–4913 (2020).
34. Self-Induced Strain in 2D Chalcogenide Nanocrystals with Enhanced Photoelectrochemical Responsivity
X. Yu, Y. Wu, J. Cui, Y. Ran, W. Lin, L. Liu, J. Ye, Y. Zhang, A. Cabot
Chem. Mater., 32, 2774–2781 (2020).
35. Ultrathin FeP Nanosheets as an Efficient Catalyst for Electrocatalytic Water Oxidation: Promoted Intermediates Adsorption by Surface Defects
F. Yang, X. Chen, Z. Li, D. Wang, L. Liu, J. Ye
ACS Appl. Energy Mater., 3, 4, 3577–3585 (2020).
36. Microstructure Induced Thermodynamic and Kinetic Modulation to Enhance CO₂ Photothermal Reduction: A Case of Atomic-Scale Dispersed Co–N Species Anchored Co@C Hybrid
S. Ning, H. Xu, Y. Qi, L. Song, Q. Zhang, S. Ouyang, J. Ye
ACS Catal., 10, 4726–4736 (2020).
37. Ultrathin graphene encapsulated Cu nanoparticles: A highly stable and efficient catalyst for

- photocatalytic H₂ evolution and degradation of isopropanol
L. Ren, L., Xinli Yi, W. Zhou, D. Wanga, L. Liu, J. Ye
Chem. Eng. J., 390, 124558 (2020).
38. Intermolecular Cascaded π -Conjugation Channels for Electron Delivery Powering CO₂ Photoreduction
S. Wang, X. Hai, X. Ding, S. Jin, Y. Xiang, P. Wang, B. Jiang, F. Ichihara, M. Oshikiri, X. Meng, Y. Li, W. Matsuda, J. Ma, S. Seki, X. Wang, H. Huang, Y. Wada, H. Chen, J. Ye
Nat. Commun., 11:1149 (2020).
 39. Electrocatalytic reduction of N₂ and nitrogen incorporation process on dopant-free defect graphene
Y. Du, C. Jiang, W. Xia, L. Song, P. Li, B. Gao, C. Wu, L. Sheng, J. Ye, T. Wang, J. He
J. Mater. Chem. A, 8, 55 (2020).
 40. Optimizing Electron Densities of Ni-N-C Complexes by Hybrid Coordination for Efficient Electrocatalytic CO₂ Reduction
Z. Wang, J. Choi, M. Xu, X. Hao, H. Zhang, Z. Jiang, M. Zuo, J. Kim, W. Zhou, X. Meng, Q. Yu, Z. Sun, S. Wei, J. Ye, G. G. Wallace, D. L. Officer, Y. Yamauchi
ChemSusChem, 13(5), 929-937 (2020).
 41. Toward visible-light-assisted photocatalytic nitrogen fixation: A titanium metal organic framework with functionalized ligands
H. Huang, X. Wang, D. Philo, F. Ichihara, H. Song, Y. Li, T. Qiu, S. Wang, J. Ye
Appl. Catal. B: Environ., 267, 118686 (2020).
 42. Two types of cooperative nitrogen vacancies in polymeric carbon nitride for efficient solar-driven H₂O₂ evolution
Y. Xie, Y. Li, Z. Huang, J. Zhang, X. Jia, X. Wang, J. Ye
Appl. Catal. B: Environ. 265, 118581 (2020).
 43. Hemispherical shell-thin lamellar WS₂ porous structures composited with CdS photocatalysts for enhanced H₂ evolution
L. Su, L. Luo, H. Song, Z. Wu, W. Tu, Z. Wang, J. Ye
Chem. Eng. J. 388, 124346 (2020).
 44. Photogenerated Charge Carriers Dynamics on La and/or Cr Doped SrTiO₃ Nanoparticles Studied by Transient Absorption Spectroscopy
F. Ichihara, F. Sieland, H. Pang, D. Philo, A. Duong, K. Chang, T. Kako, D. W. Bahnemann, J. Ye
J. Phys. Chem. C, 124, 1292–1302 (2020).
 45. A Mesoporous Non-Precious Metal Boride System: First Synthesis of Mesoporous Cobalt Boride under Strictly Controlled Chemical Reduction
B. Jiang, H. Song, Y. Kang, S. Wang, Q. Wang, X. Zhou, K. Kani, Y. Guo, J. Ye, H. Li, Y. Sakka, J. Henzie, Y. Ysuke
Chem. Sci., 11, 791-796 (2020).

46. Photo-Induced Defect Engineering: Enhanced Photothermal Catalytic Performance of 2D Black $\text{In}_2\text{O}_{3-x}$ Nanosheets with Bifunctional Oxygen Vacancy
Y. Qi, L. Song, S. Ouyang, X. Liang, S. Ning, Q. Zhang, J. Ye
Adv. Mater. 32, 1903915 (2020).
47. Wafer-scale Si nanoconed arrays induced syngas in the photoelectrochemical CO_2 reduction
H Pang, G Yang, P Li, H Huang, F Ichihara, T Toshiaki, J Ye
Catalysis Today 339, 321–327 (2020).

B. 総説・解説・その他

1. Metal-free Scintillators Excite X-ray Community
J. Chen, N. Shirahata, H. Sun
Nature Photon. 15, 171-172 (2021).
2. Titanium-based MOF Materials: from Crystal Engineering to Photocatalysis
L. Li, X. Wang, T. Liu, J. Ye
Small Methods, 2000486 (2020).
3. Recent progress on exploring stable MOFs for photocatalytic solar fuel production
X. Wang, L. Li, D. Li, J. Ye
Solar RRL, 1900547 (2020).
4. Coupling of Solar Energy and Thermal Energy for Carbon Dioxide Reduction: Status and Prospects
Z. Wang, H. Song, H. Liu, J. Ye
Angew. Chem. Int. Ed., 59, 8016-8035 (2020).
5. Recent advances in tuning the electronic structures of atomically dispersed M-N-C materials for efficient gas-involving electrocatalysis
D. Huang, Y. Luo, S. Li, L. Liao, Y. Li, H. Chen, J. Ye
Mater. Horiz., 7, 970-986 (2020).
6. Stressed Lattice Creating New Electric Field for Photoelectrocatalysis
J. Ye
Chem. Res. Chinese Universities, 36(4), 725-726 (2020).

D. 招待講演

1. 重金属フリーコロイダル量子ドット粉末の湿式調製と光学的応用
白幡直人
粉体粉末冶金協会 2020 年度秋季大会(第126 回講演大会), 2020.10.27-29, オンライン開催.
2. 太陽光エネルギーの高度利用による温室効果ガスの資源化に関する研究

葉 金花

光機能材料研究会第77回講演会, 2020.8.28, オンライン開催.

E. 外部資金の取得状況 (2020.4-2021.3)

葉 金花

科研費 基盤研究 (B) (一般) :

「二酸化炭素の資源化に向けた耐熱合金プラズモニックナノ触媒の創成」

白幡 直人

研究成果展開事業 研究成果最適展開支援プログラム A-STEP (産業ニーズ対応タイプ)

「ナノブロック高次秩序化による配向性ナノ構造体の開発と表面ドーピングによる高機能化」

科研費 挑戦的研究 (萌芽) :

「多光子励起場における光熱変換と熱輸送を制御するナノ構造設計と実践」

科研費 特別研究員奨励費

「無毒な多光子励起用バイオマーカーの創製: セラノティクスへの展開」

F. 受賞関係

葉 金花

2020 Highly Cited Researcher in Materials Science (Clarivate Analytics)に選出 (Nov. 18, 2020)

2020 Highly Cited Researcher in Chemistry (Clarivate Analytics)に選出 (Nov. 18, 2020)

物質・材料研究機構 ナノ組織化材料化学研究室

(現教員)

教授 吉尾 正史

教授 増田 卓也

(研究概要)

ナノ組織化材料化学研究室では、有機高分子化学、電気化学、表面計測科学を基盤として、自己組織化能を有するイオン・電子・光機能性の有機分子や無機ナノ粒子の合成、それらの構造解析と機能物性評価に関する研究を進めています。研究の柱の一つとして、洗練された分子デザインに基づく液晶を用いた機能性材料の開発があります。液晶は、結晶のような秩序構造を形成しながらも液体のような流動性を示します。この液晶のユニークな特性を活かして、エネルギー・情報伝達や環境の分野で役立つ物質・材料を創出することを目標としています。例えば、イオン伝導型ソフトアクチュエータや水処理膜として機能するプロトン伝導性液晶高分子フィルム材料(図 1)の開発を行っています。もう一つの柱として、走査型プローブ顕微鏡およびシンクロトロン放射光などを利用して、多様な固液、固固界面現象をその場観察するための基盤技術の開発(図 2, 3)と、蓄電池をはじめとしたエネルギー変換デバイスへの応用も推進しています。先進的な蓄電池においてはエネルギー密度を極限まで高める目的で活物質、導電助剤、結着剤、電解液が高密度で充填されており、狭小空間において熱・応力・物質が偏在した状態で複雑な物理化学現象が進行します。原子間力顕微鏡 (AFM)、X 線吸収微細構造法 (XAFS)、表面 X 線散乱法 (SXS) および X 線光電子分光法 (XPS) などを駆使して、デバイスの特性や寿命、安全性の背景となる事象を詳らかにし、反応機構の理解に基づいた材料設計指針の創出を行っています。

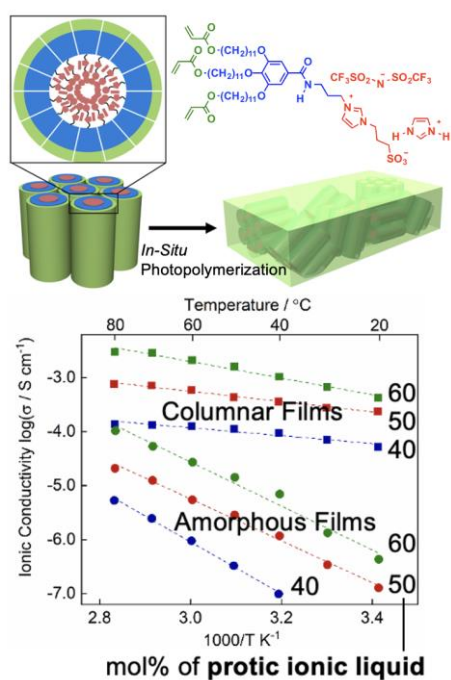


図 1. 双性イオン分子/プロトン性イオン液体の自己組織化によるプロトン伝導性カラムナー液晶高分子膜の開発。
Crystals, 10, 276 (2020).

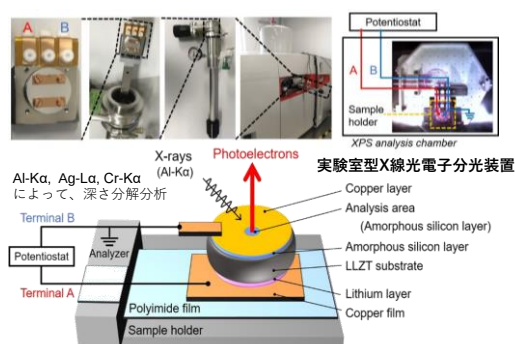


図 2. 独自に開発したオペランド全固体電池反応解析用 X 線光電子分光測定システムの模式図。

J. Phys. Chem. Lett., 11, 6649-6654 (2020).

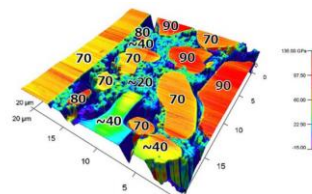


図 3. バイモーダル原子間力顕微鏡によるナノ力学特性マッピング。

J. Power Sources, 413, 29-33 (2019).

A. 原著論文

1. SR Applications for Fuel Cell Electrodes.
T. Masuda,
Synchrotron Radiation News, Vol. 33(5), 27-33 (2020).
2. Sulfide Passivation of InP(100) Surface.
M. V. Lebedev, Yu. M. Serov, T. V. Lvova, I. V. Sedova, R. Endo, T. Masuda,
Semiconductors, Vol. 54(14), 1843-1846 (2020).
3. InP(1 0 0) surface passivation with aqueous sodium sulfide solution.
M. V. Lebedev, Y. M. Serov, T. V. Lvova, R. Endo, T. Masuda, I. V. Sedova,
Applied Surface Science, Vol. 533, 147484 (2020).
4. Solvent-Dependent Adsorption of Perfluorosulfonated Ionomers on a Pt(111) Surface Using Atomic Force Microscopy.
R. Devivaraprasad, T. Masuda,
Langmuir, Vol. 36(46), 13793-13798 (2020).
5. Instrumentation for Tracking Electrochemical Reactions by X-ray Photoelectron Spectroscopy under Conventional Vacuum Conditions.
R. Endo, T. Ohnishi, K. Takada, T. Masuda,
Journal of Physics Communications, Vol. 5(1), 015001 (2021).
6. Anomalously Slow Conformational Change Dynamics of Polar Groups Anchored to Hydrophobic Surfaces in Aqueous Media.
T. Fu, H. Xing, E. S. Silver, Y. Itoh, S. Chen, T. Masuda, K. Uosaki, F. Huang, T. Aida,
Chemistry – An Asian Journal, Vol. 15(20), 3321-3325 (2020).
7. In Situ Observation of Lithiation and Delithiation Reactions of a Silicon Thin Film Electrode for All-Solid-State Lithium-Ion Batteries by X-ray Photoelectron Spectroscopy.
R. Endo, T. Ohnishi, K. Takada, T. Masuda,
Journal of Physical Chemistry Letters, Vol. 11(16), 6649-6654 (2020).
8. Ion-Conductive Nanostructured Polymer Films Formed by Photopolymerization of Lyotropic Columnar Liquid-Crystalline Monomers, Composed of a Zwitterionic Compound and a Protic Ionic Liquid.
S. Cao, M. Yoshio, A. Seki,
Crystals, Vol. 10(4), 276 (2020).
9. Ferroelectric Liquid-Crystalline Binary Mixtures Based on Achiral and Chiral Trifluoromethylphenylterthiophene.
A. Seki, M. Yoshio, Y. Mori, M. Funahashi
ACS Appl. Mater. Interfaces, 12(47), 53029-53038 (2020).
10. Multi-Color Photoluminescence Based on Mechanically and Thermally Induced Liquid-Crystalline Phase Transitions of a Hydrogen-Bonded Benzodithiophene Derivative.
A. Seki, M. Yoshio,

ChemPhysChem, 21(4), 328-334 (2020).

11. Development of Functional Nanoporous Membranes Based on Photocleavable Columnar Liquid Crystals – Selective Adsorption of Ionic Dyes.
Y. Suzuki, T. Sakamoto, M. Yoshio, T. Kato,
Eur. Polym. J., 134, 109859 (2020).

B. 総説・解説・その他

1. 研究現場最前線 物質・材料研究機構 機能性材料研究拠点 吉尾研究室.
吉尾正史,
液晶: 日本液晶学会誌, 132-133 (2020).

C. 著書

D. 招待講演

1. 実験室型X線光電子分光装置を利用した溶液、固液および固固界面計測
増田卓也
日本物理学会 2020 年秋季大会, 2020 年 9 月 14 日–17 日, 熊本大学・オンライン
2. Development of a laboratory-based in situ XPS apparatus for liquid samples and electrochemical interfaces
Takuya Masuda
Next Generation Spectro-Microscopy and Micro-Spectroscopy Workshop 2020, October 28-29, 2020, UVSOR, Okazaki, Japan
3. X線光電子分光装置を基盤とした液体および固液界面計測と全固体電池反応その場計測
増田卓也
2020 年度触媒学会北海道支部札幌講演会, 2020 年 12 月 2 日, 北海道大学・オンライン
4. 相分離液晶を活用したイオン機能性材料の構築
吉尾正史
高分子学会 印刷・情報・電子用材料研究会, 2020 年 12 月 1 日, オンライン

E. 外部資金の取得状況 (2020.4–2021.3)

増田 卓也

基盤研究(B) (代表):

「電極-固体電解質相におけるイオン輸送と化学状態の同時その場解析」

新学術領域研究(研究領域提案型) (代表) :

「深さ分解 X 線光電子分光法による界面異相抵抗発現機構の解明」

基盤研究(A) (分担) :

「超高感度全反射蛍光 XAFS の開発と燃料電池白金触媒の合金効果機構の解明」

基盤研究(B) (分担) :

「大気圧下での貴金属表面構造とその触媒活性の解明」

国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO) 燃料電池等利用の飛躍的拡大に向けた共通課題解決型産官学連携研究開発事業 (代表) :

「共通課題解決型基盤技術開発／硫黄化合物等の吸着脱離メカニズム解明と被毒予防・回復技術開発」

Annual Report 2020

編集：北海道大学大学院理学研究院化学部門 広報委員会

発行日：2021年7月1日

発行所：北海道大学大学院理学研究院化学部門

〒060-0810

北海道札幌市北区北10条西8丁目

TEL 011-706-2722

本文書の内容、テキスト、画像等の無断転載・無断使用を固く禁じます。