

2017 年度

「物質階層原理研究」研究報告会

要旨集

2018 年 2 月 13 日（火） - 14（水）

於 理化学研究所 鈴木梅太郎ホール

理化学研究所

## はじめに

「物質階層原理研究」は、理化学研究所の独創的研究提案制度の新領域開拓課題として2017年度からスタートした5年プロジェクトです。正式名称は、

"Fundamental Principles Underlying the Hierarchy of Matter: A Comprehensive Experimental Study" (物質階層の原理を探求する統合的実験研究) です。

持続可能な社会の実現に向け、物質科学がエネルギー・環境・情報・医療技術等への基幹的な寄与を行うためには、その基盤をなす「物質」が如何に構築され 如何に振る舞うかを総合的に理解することが必須です。本プロジェクトは、理研が有する他に類を見ない総合性を最大限に発揮して、ハドロンから生体分子に至る物質階層の原理と機能を「物理・化学的な実験的アプローチ」を用いて探求します。具体的には、各物質階層において、その構造・機能を定める**相互作用**（主に強い相互作用と電磁相互作用）について実験研究を行い、理研の理論グループとの連携によってその基礎学理を明らかにします。さらに、物質の機能発現の要となる**励起**および**不均一性**の問題へと研究を展開していきます。前者においては、我々が未だその全容を理解していない励起現象の探索と解明に取組み、後者においては、電子デバイスや生体膜等の高度な機能を有する系における不均一な構造に基づく機能発現の原理に迫ります。

本プロジェクトは、今年度からスタートしましたが、予算の大幅な削減があったため、やむなく当初予定していた3つのテーマの内の**不均一性**を外し、他の2つのテーマ（**相互作用**と**励起**）も縮小した形でスタートしました。しかし、**不均一性**の研究は、これだけでも新領域開拓課題を構築できる広さと深さを持つので、金有洙 主任研究員を代表として、新たに研究計画を練り直し“Heterogeneity at Materials Interfaces”（ヘテロ界面研究）として、今年度、新規の申請を行いました。この申請は幸いにして高い評価を得て予算化される目処が立ち、これでようやく、来年度から実質的に本来の「物質階層原理研究」を推進できることになりました。

「物質階層原理研究」の大きな目標は、ボトムアップ研究に基づく理研横断的な物質科学研究ネットワークの構築です。その一環として、「レーザー」と「信号処理・データ収集」を中心とした先端的計測技術の共有しさらなる開発・展開を目指します。このために、「ExpRes 道場」と名付けた先端的計測技術に関する勉強会を、今年度は和光キャンパスで2回開催し、多くの研究者が参加して意見交換を行いました。これらの活動を通じて、物質科学の新しい知的基盤を構築します。同時に、総合研究所としての理研の環境を活かして、より広い、より深い物質観を有する若手研究者を育成します。

「物質階層原理研究」では、年度前半に若手の発表を中心とした合宿形式の研究会を、年度後半にPIによる成果報告を中心としたシンポジウムを行います。前者については、5月に御殿場で、理研内外から69名が参加して、パネルディスカッション「物質科学における異分野連携」を含む活発な討論を2日間にわたって交わし、盛会裏に終了しました。今回は、後者の第1回目にあたり、本プロジェクトのこの1年の成果報告と共に、関連分野で活躍されている所内外の研究者をお呼びして招待講演を企画しました。異なる研究分野の連携は、分野の垣根のない理研の最大の特徴であり、本プロジェクトの根

幹をなすものです。自由闊達な雰囲気のもとで、大いに議論し、交流を深め、新しい物質科学の芽が育つことを期待します。

2018年1月15日

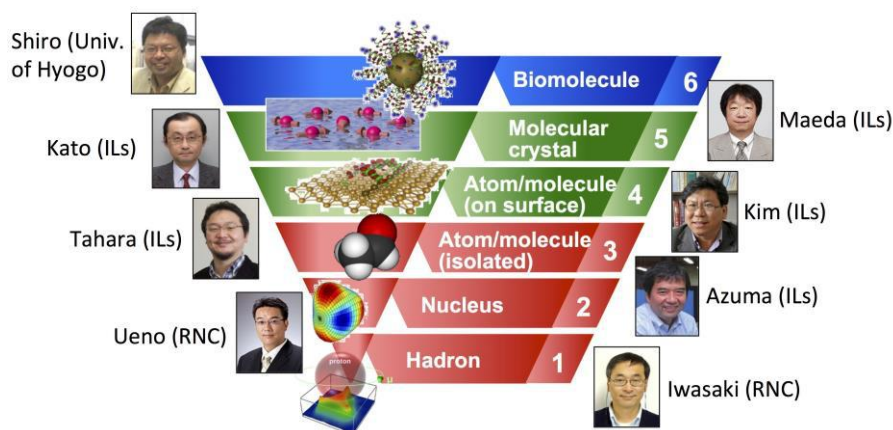
代表 加藤 礼三

# Fundamental Principles Underlying the Hierarchy of Matter:

## A Comprehensive Experimental Study

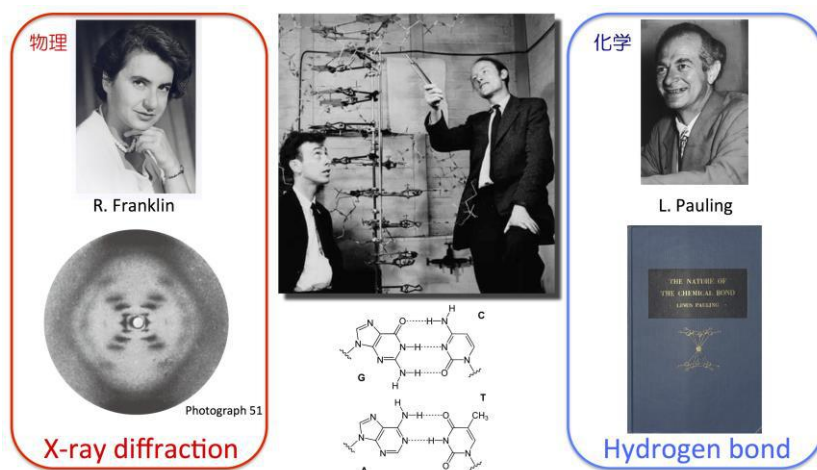
- Organization

This project is being carried out as a collaboration involving eight participating laboratories, in which we treat the hierarchy of matter from hadrons to biomolecules with three underlying and interconnected key concepts: *interaction*, *excitation*, and *heterogeneity*. The project consists of experimental research conducted using cutting-edge technologies, including lasers, signal processing and data acquisition, and particle beams at RIKEN RI Beam Factory (RIBF) and RIKEN Rutherford Appleton Laboratory (RAL).



- Physical and chemical views of matter lead to major discoveries

Although this project is based on the physics and chemistry of non-living systems, we constantly keep all types of matter, including living matter, in our mind. The importance of analyzing matter from physical and chemical points of view was demonstrated in the case of DNA. The Watson-Crick model of DNA was developed based on the X-ray diffraction, which is a physical measurement. The key feature of this model is the hydrogen bonding that occurs between DNA base pairs. Watson and Crick learned about hydrogen bonding in the renowned book “The Nature of the Chemical Bond,” written by their competitor,



L. Pauling, who was a leading authority on chemical bonding. This important lesson in history teaches us that viewing matter from physical and chemical perspectives can lead to dramatic advances in science.

• Hierarchy of Matter: Universality vs. Diversity

We believe that the behavior of matter, including biological systems, can be understood through physical laws. P. Dirac, a great physicist, stated this universality as follows: “once we know the underlying physical laws, *the rest is chemistry*.” On the other hand, P. W. Anderson, another great physicist, claimed that the interactions among multiple components in complex systems create entirely new properties in each layer of the hierarchy, with his famous phrase “*More is different*”. This means that the science governing each layer is different, and it is not until we understand this diversity that we understand the universal principles completely. Therefore, we have selected “interaction” as the first key concept of this project. In addition, we selected “excitation” and “heterogeneity” as the other important key concepts to understand diversity in the hierarchy.

普遍性



P. Dirac

• *The rest is chemistry*

*The underlying physical laws necessary for the mathematical theory of a large part of physics and the whole of chemistry are thus completely known, and the difficulty is only that the exact application of these laws leads to equations much too complicated to be soluble.*

**The behavior of matter including biological systems can be understood through physical laws.**

多様性



P. W. Anderson

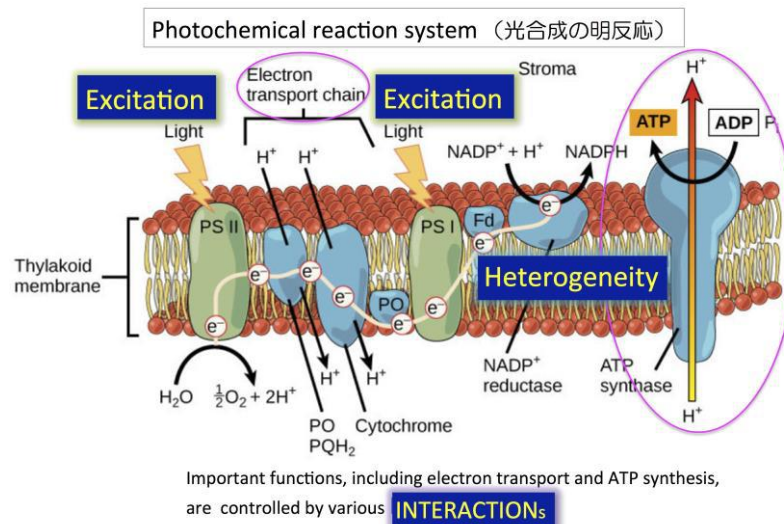
• *More is different*

*The behavior of large and complex aggregates of elementary particles is not to be understood in terms of a simple extrapolation of the properties of a few particles. Instead, at each level of complexity entirely new properties appear.*

**The interactions among multiple components in complex systems create entirely new properties in each layer of the hierarchy.**

• Three Key Concepts: Interaction, Excitation, and Heterogeneity

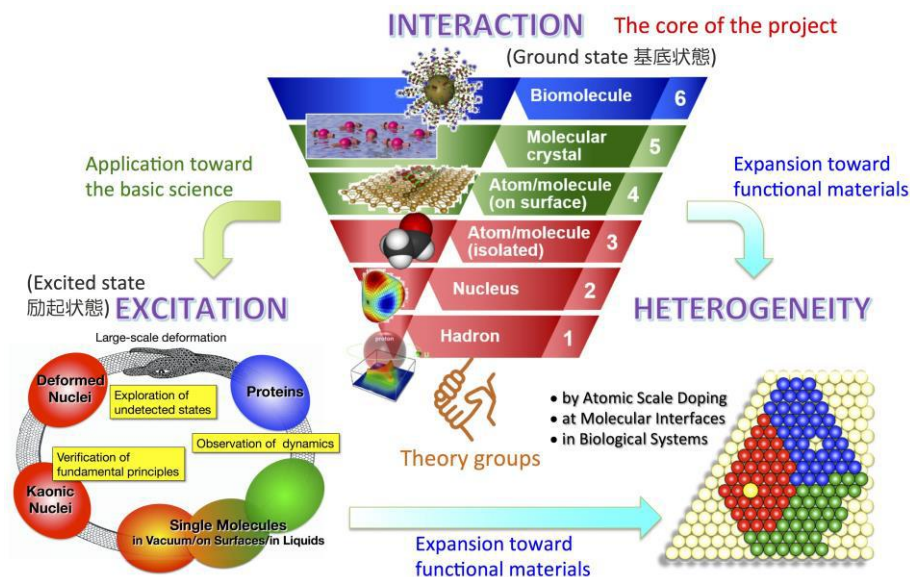
The importance of these three key concepts is well illustrated by the photochemical reaction system, involved in photosynthesis. First, the photosynthesis proceeds in the thylakoid membrane, which has a heterogeneous structure. This *heterogeneity* is essential for the emergence of the functionality of the membrane. *Excitation* by light is the most important step in photosynthesis. Finally, important processes,



including electron transport and ATP synthesis, are controlled by various *interactions*.

- Three Key Concepts and Sub-projects

The three key concepts are associated with three sub-projects: “Interaction in matter” lead by Dr. Ueno, “Excitation in matter” lead by Dr. Azuma, and “Heterogeneity in matter” lead by Dr. Kim. As mentioned, the “Interaction” sub-project is the core of this project. To comprehensively understand the nature of



interactions that take place in each layer, it is essential to collaborate with theory groups. The knowledge obtained by the “Interaction” sub-group will be applied toward the basic science of excitation. The “Interaction” sub-project investigates the ground state of systems, and the “Excitation” sub-project focuses on the excited states of systems. The results obtained by these two sub-projects will be expanded towards the development of functional materials by the “Heterogeneity” sub-group. A unique point of this project is that almost all members participate in more than two sub-projects, which enhances comprehensive understanding of these concepts.

- Interaction in Matter

The “Interaction” sub-group investigates the diversity of phenomena caused by interactions that occur in each level in the hierarchy of matter. The strong interaction and the electromagnetic interaction give rise to a variety of phenomena depending on many-body effects, geometry, dimensionality, external conditions and so on. The interactions studied by each team range from the strong interaction between quarks to the van der Waals interaction between single-stranded DNA molecules, with a focus on how interactions in systems with multiple degrees of freedom lead to a diversity of phenomena. This means that many-body effects and multiple degrees of freedom are key issues in every layer of the hierarchy.

- Excitation in Matter

Excitation is a key step for the emergence of functionality, but knowledge on this topic is surprisingly limited. Thus, in this sub-group, we carry out three types of research on excitation, “Exploration of undetected excited states” in deformed nuclei, “Verification of fundamental principles through excited states” in kaonic nuclei, and “Observation of excited state dynamics” in excited molecules in liquids, on surfaces, and in vacuum. We study excitation over a wide range of energies, sizes, and time scales. At the

same time, we study universality as indicated by the large-scale deformations observed in both excited-state nuclei and proteins.

- Heterogeneity in Matter

Heterogeneity is an important spatial property for the emergence of functionality as well as a challenging research target that drives the development of cutting-edge measurement technologies. This sub-group will apply the results of the “Interaction” and “Excitation” sub-groups toward the development of functional materials. In this sense, the “Heterogeneity” sub-group is closely tied to practical applications. The main topics investigated are superconducting doped diamond (as “Heterogeneity by Atomic Scale Doping”), electrical double layers in the field effect transistors (as “Heterogeneity at Molecular Interfaces”), and lipid membranes in solution (as “Heterogeneity in Biological Systems”), which are tackled through a wide range of collaborations.

- Goal of the Project

The most important goal of the project is the construction of a new cross-disciplinary research network based on the bottom-up style research activities at RIKEN, which will drive a dramatic evolution of science and lead to unpredictable by-products. This network includes *ExpRes Dojo* where we share, learn, and report information on cutting-edge experimental technologies, primarily laser and signal processing and data acquisition technologies. This consists of school-type meetings and workshops. An important output of the *ExpRes Dojo* is the application of new technologies developed through the physics and chemistry research to biological systems. At the same time, we nurture young researchers with wider and deeper views of matter. We believe that the scientific community is one where innovative discoveries are frequently achieved by newcomers in different research fields. The present project will maintain the diversity of science at RIKEN and ensure an environment in which young researchers with high ambitions can easily cross over the boundaries between disciplines.

Lead researcher  
Dr. Reizo Kato

# プログラム



# 「物質階層の原理を探求する統合的実験研究」

## 研究報告会 プログラム

2018年2月13日（火）－14日（水）

於 理化学研究所 鈴木梅太郎ホール

### 1日目：2018年2月13日（火）

13:20－13:30 開会挨拶（小安 重夫 理事）

13:30－13:40 概要説明（加藤 礼三）

#### 【座長：前田 瑞夫】

13:40－14:25 I-1 SACLA 自由電子レーザーによる膜タンパク質の構造の分子動画撮影  
岩田 想（SACLA 利用技術開拓グループ／京都大学）

14:25－14:50 O-1 生体内鉄動態：生体膜を通した鉄の取り込み  
城 宜嗣（兵庫県立大学）

14:50－15:05 休憩

#### 【座長：城 宜嗣】

15:05－15:50 I-2 クライオ電子顕微鏡単粒子解析による電位依存性チャンネルの構造解析  
重松 秀樹（ライフサイエンス技術基盤研究センター）

15:50－16:15 O-2 DNA を用いるナノ粒子集合体の配向制御  
前田 瑞夫（前田バイオ工学研究室）

16:15－16:30 休憩

#### 【座長：田原 太平】

16:30－17:15 I-3 量子化学研究の最新の展開：振動状態理論・反応経路網・ダイナミクス  
武次 徹也（北海道大学）

17:15－17:40 O-3 単一分子におけるエネルギー移動・変換  
金 有洙（Kim 表面界面科学研究室）

18:00－20:00 意見交換会（広沢クラブ）

## 2日目：2018年2月14日（水）

### 【座長：金 有洙】

- 9:15－10:00 I-4 星間雲の階層構造と化学  
山本 智（東京大学）
- 10:00－10:25 O-4 光受容タンパク質のフェムト秒構造変化の観測とその生物的機能発現における意味  
田原 太平（田原分子分光研究室）
- 10:25－10:40 休憩

### 【座長：東 俊行】

- 10:40－11:25 I-5 量子クラスターで読み解く物質の階層構造  
中村 隆司（東京工業大学）
- 11:25－11:50 O-5 K 中間子束縛核探査実験  
岩崎 雅彦（岩崎先端中間子研究室）
- 11:50－12:15 O-6 GeV RI ビームを用いた新たなレーザー核分光装置の開発  
上野 秀樹（上野核分光研究室）
- 12:15－13:30 昼食

### 【座長：岩崎 雅彦】

- 13:30－14:15 I-6 冷却原子気体を用いた極低温量子物質の実験的シミュレーション  
堀越 宗一（東京大学）
- 14:15－14:40 O-7 真空中に孤立した分子の excitation と dynamics の解明に向けて  
東 俊行（東原子分子物理研究室）
- 14:40－14:55 休憩

### 【座長：上野 秀樹】

- 14:55－15:40 I-7 固体における創発性粒子 － スキルミオン  
永長 直人（創発物性科学研究センター）
- 15:40－16:05 O-8 分子性量子スピン液体におけるスピン・電荷・軌道・格子自由度  
加藤 礼三（加藤分子物性研究室）
- 16:05－16:10 終わりに

# 招待講演

岩田 想

理研放射光科学総合研究センター・SACLA 利用技術  
開拓グループ

兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1

s.iwata@mfour.med.kyoto-u.ac.jp



## SACLA 自由電子レーザーによる膜タンパク質の構造の分子動画撮影

旧来の放射光を用いた X 線結晶構造解析の手法では、通常秒程度の露光時間が必要なため、基本的に生体高分子の静止した構造を得ることは可能でも、そのダイナミクスに関する情報はほとんどが失われていた。これに対して、X 線自由電子レーザー SACLA を用いると、その 10fs 程度の 1 つのパルスの中に構造解析に必要なデータを測定することが可能で、それを用いてタンパク質結晶の中の変化・動きを非常に高い時間分解能で観測することができる可能性がある。我々は測定装置開発グループと膜タンパク質構造研究グループを緊密に連携させることにより、膜タンパク質迅速構造解析法の確立を行った。これは多数の結晶をインジェクターを用いて供給しそれに XFEL パルスを当て、化学結合の切断されるより短い時間でデータを測定する装置を核としている。この装置を用いた XFEL 光の非常に短いパルス特性を生かして、高い時間分解能でタンパク質の動的構造を調べるポンプ・プローブ実験を開始している。これは可視光等のポンプレーザーを用い結晶中で反応を開始し、一定の時間後に XFEL 光を使って、データを測定するもので、結晶中でのタンパク質の構造変化のスナップショットを撮ることができる。この手法は理論的にはフェムト秒台の時間分解能を出せることそして平衡に達する前の構造変化を見ていることから、NMR や電子顕微鏡で観察されるダイナミクスとは本質的に異なっており、これらの手法や結晶構造解析を組み合わせた相関構造において、時間軸の情報を提供するのに非常に有効だと考えられる。

本講演では、これまでに動的構造解析に成功したバクテリオロドプシン及び光化学系 II の例を用いて、実際にどのようなタンパク質のダイナミクス情報が得られるのかを解説したい。

## 重松秀樹



## 理化学研究所ライフサイエンス技術基盤研究センター

横浜市鶴見区末広町 1-7-22

hideki.shigematsu@riken.jp

## クライオ電子顕微鏡単粒子解析による電位依存性チャネルの構造解析

2017年度のノーベル化学賞は「クライオ電子顕微鏡の開発」に貢献した3人の研究者に与えられた。生体高分子の構造解析手法として注目を集めているこの手法の「溶液中の生体分子を高分解能で構造決定できる」という部分が評価されてのことである。すなわち結晶化を必要としないこと、分解能が他の構造解析法に大きく近づいたことである。前者については以前から主張されてきたことだが、後者はこれまでのソフトウェア、ハードウェア開発が相まって起こった「分解能革命」といわれるブレークスルーに起因している。今回は、クライオ電子顕微鏡の特徴について概説すると共に現在われわれが取り組んでいる電位依存性カリウムチャネルの電位依存的な構造変化を明らかにする手法の開発状況について報告する。

細胞は脂質二分子膜を隔ててイオン組成が異なっており、これによって生じる電氣的なポテンシャルの差、膜電位を持つ。この膜電位に依存して機能を発現する電位依存性チャネルは、ノーベル生理学賞を受賞した MacKinnon らによる一連の X 線結晶構造解析によりその原子構造が明らかになっている。しかしながら、結晶構造は膜電位 0mV の状態であり、-100 mV 程度の不活性化状態の構造を得るには、脂質膜に埋め込まれた試料に膜電位を印可した状態で構造解析をしなくてはならない。われわれは、クライオ電子顕微鏡単粒子解析の特徴である結晶化を必要としない利点を活かし、脂質膜小胞に埋め込まれたチャネルに膜電位を進化した状態で構造解析を行う方法論開発を行っておりこれについて現状を報告する。

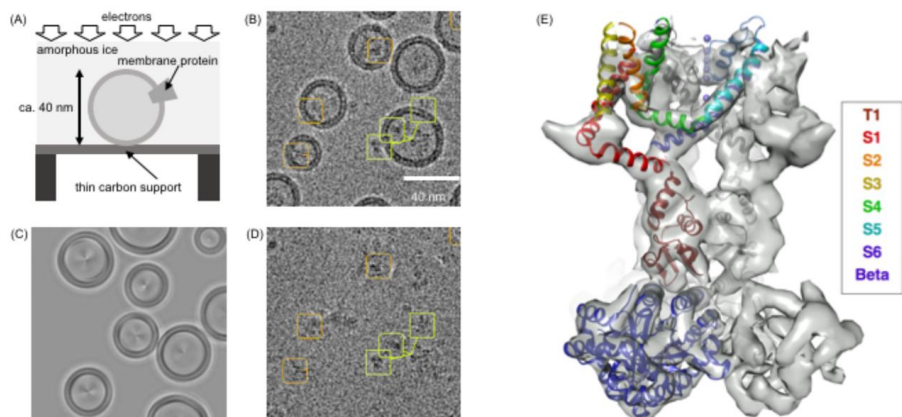


Fig. 1.7.5 A-reconstruction Kv1.2 potassium channel reconstituted in liposome. (A) cut-through model of the specimen (B) Images of proteoliposomes under cryoEM (C) Models used for membrane-density subtraction (D) Particles after membrane subtraction (E) 7.5 Å-cryoEM model with crystal structure fitted

## 武次 徹也

北海道大学 大学院理学研究院化学部門

札幌市北区北十条西8丁目

take@sci.hokudai.ac.jp



## 量子化学研究の最新の展開：振動状態理論・反応経路網・ダイナミクス

原子・分子の基礎方程式は Schrödinger 方程式であり、直後に提案された Born-Oppenheimer 近似により電子状態と原子核の運動は長らく分離して取り扱われてきたが、近年の電子状態理論の発展と計算機の高速化により、電子状態計算と原子核の運動を同時に取り扱う第一原理振動状態計算・第一原理動力学計算はその応用範囲を広げ、実験分光データが提示するミステリーの解決や、反応ダイナミクスにおける新しい概念に結び付く研究へと展開している。本講演では、我々のグループが最近報告した研究より、第一原理振動状態計算による Ar-PtCO 振動スペクトル算出と基音強度の消失の解明[1]、第一原理 MD による古典軌道の反応経路網に基づく解析の提案と金クラスター構造転移への応用[2]、電子励起状態に対する第一原理 MD によるスチルベン誘導体の長寿命 phantom state の解明[3]について紹介し、量子化学研究の今後の展望について述べる。

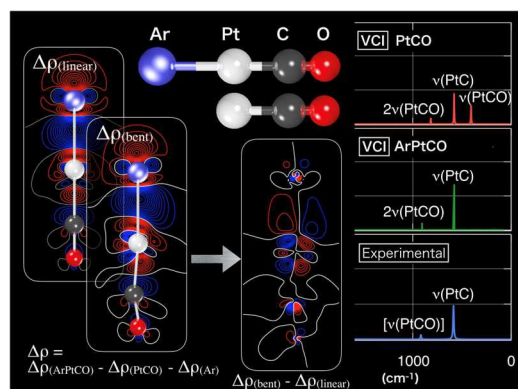


図 1. Ar-PtCO の差電子密度変化と理論および分光実験による振動スペクトル



図 2. 固有反応座標(IRC)による反応経路網上を超えていく動的反応経路の概念図

## 参考文献

- 1) Y. Ono, K. Yagi, T. Takayanagi, and T. Taketsugu, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, in press.
- 2) T. Tsutsumi, Y. Harabuchi, Y. Ono, S. Maeda, and T. Taketsugu, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, in press.
- 3) Y. Harabuchi, R. Yamamoto, S. Maeda, S. Takeuchi, T. Tahara, and T. Taketsugu, *J. Phys. Chem. A*, **120**, 8804-8812 (2016).

## 山本 智

## 東京大学大学院理学系研究科物理学専攻

東京都文京区本郷 7-3-1

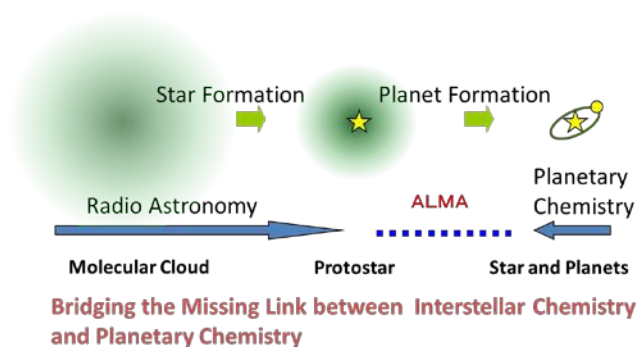
yamamoto@phys.s.u-tokyo.ac.jp



## 星間雲の階層構造と化学

星と星との間の星間空間には、希薄ではあるがガスと固体微粒子（星間塵）からなる雲、星間雲が存在する。星間雲の中で特に密度が高いところが星間分子雲で、数 10 万年程度をかけて自己重力で収縮し原始星を誕生させる。星形成は宇宙における最も基本的な構造形成過程として天文学における活発な研究対象となっている。一方、星間雲から恒星が誕生する過程は物質進化の過程でもある。星間空間は恒星からの紫外線に満ちており、希薄な星間雲では分子は壊されて原子（またはそのイオン）として存在する。密度が上がって星間分子雲の段階になると、星間塵によって紫外線が遮蔽され、様々な分子が生成ようになる。それらは気相または星間塵表面に吸着した状態で星形成領域にもたらされ、最終的には惑星系に至ると考えられる。恒星と惑星系形成に伴う物理過程とそこでの物質進化を解明することは、太陽系の起源の理解につながる重要なテーマである<sup>1)</sup>（左図）。

これらを観測的に研究する手段として最も重要な役割を果たしているのが電波観測である。分子の回転スペクトル線を観測することにより、構造形成過程とともに化学組成を克明に捉えることができる。これまでも大小の電波望遠鏡で研究が展開されてきたが、最近、国際共同大型ミリ波サブミリ波干渉計 ALMA（右図）の運用が開始され、これまでの予想を超えた星形成の描像が浮かび上がってきている。本講演では、星間雲から星形成に至る物質進化とその背景にある化学過程について最近の進展を中心に議論する。



## 参考文献

- 1) S. Yamamoto, 'Introduction to Astrochemistry', Springer (2017)

## 中村隆司

東京工業大学 理学院物理学系

東京都目黒区大岡山 2-12-1

nakamura@phys.titech.ac.jp



### 量子クラスターで読み解く物質の階層構造

微視的世界にはクォーク、ハドロン（核子）、原子核、原子、分子という階層構造が存在する。しかし、「こうした物質の階層がなぜどのようなメカニズムで生じているのか」、という問いは自然科学の根源的問題でありながら、これまであまり議論されなかった。これは、各階層がほぼ完全に分離しているように見えたこと、また従来の研究が階層毎に独立して発展し、その間に関連性が見出されなかったからだと考えられる。本講演では、この階層構造の謎を解く鍵がさまざまな階層に現れる「クラスター」であると捉え、議論する。

それぞれの階層を特徴づけるのは、その階層の粒子を構成する「基本粒子」であり、その間に働く「力」である。例えば原子核階層においては、原子核を構成する「基本粒子」は陽子や中性子などの「核子」であり、階層を支配する「力」は核子間の「核力」である。この「基本粒子」が複合粒子系である場合が「クラスター」である。核子はクォーク3個が強い相互作用で結びついたクラスターであると考えられ、核子クラスター間の力である「核力」は裸のクォーク間の力よりはるかに弱い。すなわち、「クラスター」の形成メカニズムこそが、階層構造の形成メカニズムそのものであり、したがって「クラスター」が階層構造を理解する鍵となっていると考えられるのである。

本講演では、こうした考えのもと、まずは、「階層構造」を特徴づける「クラスター」や「力」によって「階層構造」が定性的にどのように理解できるのかを議論する。その上で、最近、急速に進展しつつあるハドロン物理、原子核物理における研究で現われてきた新奇の「クラスター」や、その研究がどのようにして各階層をつなぐ橋渡しをする可能性があるのかを議論したい。ここでは、最近の不安定核の研究で議論されるようになった「ダイニュートロン」と呼ばれる2中性子系の新奇クラスターを例に挙げながら[1]、従来の階層構造にとらわれない境界領域に現れる「サブ階層」について議論する。さらに、冷却原子系（原子層）と原子核（原子核層）の共通の性質など、階層を超えて存在する普遍的な量子多体系の性質などにも言及し、階層構造の謎に迫る今後の研究の展開を議論したい。

#### 参考文献

- 1) Y. Kondo, T. Nakamura *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **116**, 102503 (2016).



## 堀越宗一

## 東京大学理学系研究科附属フォトンサイエンス研究機構

東京都文京区本郷 7-3-1

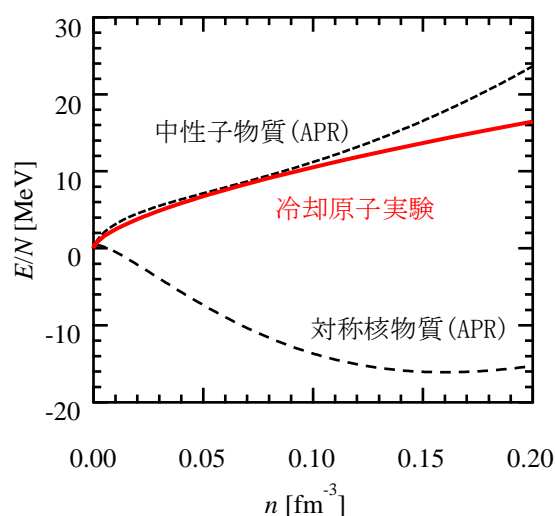
hori@psc.t.u-tokyo.ac.jp



## 冷却原子気体を用いた極低温量子物質の実験的シミュレーション

粒子の波動性が顕著になる量子系では、粒子は量子統計性を持った波として振る舞い、粒子間の相互作用の影響は散乱波の対称性と位相シフトとして現れる。低エネルギー極限では散乱過程は等方的な s 波散乱に従い、散乱長が散乱波の位相シフトを与える。また散乱長は量子多体系の相互作用エネルギーや熱力学量を与える重要な物理量でもある[1]。特に散乱長の絶対値が平均粒子間距離よりも大きい相互作用領域をユニタリー領域と呼び、物性物理や原子核物理の発展において極めて重要な研究領域となっている。しかしこれまで、基底状態におけるフェルミ超流動の様々な熱力学量（密度、圧力、内部エネルギー、化学ポテンシャル）や他の物理量（超流動ギャップ、超流動揺らぎ）と、粒子間相互作用のパラメータである散乱長との関係は完全には理解されていない状況であった。

冷却原子系は理想的なエネルギーの階層構造を満たし、散乱長や温度の制御や熱力学量の精密測定が可能のため、ユニタリー領域のフェルミ粒子系を普遍的かつ系統的に研究できる量子系を実現できる。本研究では  ${}^6\text{Li}$  原子を用いた冷却原子実験により、基底状態におけるフェルミ超流動の熱力学的特性を包括的に決定し普遍的な状態方程式を示し、様々な理論モデルの妥当性を評価した[2]。また得られた状態方程式からクーパー対の結合強度を与える超流動ギャップの大きさを示し、超流動ギャップと熱力学量の関係が明らかになった。さらに冷却原子実験で得られた状態方程式に中性子の質量と散乱長を与え、中性子星に存在すると期待されている超流動中性子物質の状態方程式を示した(図)[3]。これにより世界で初めて低密度領域の中性子物質の状態方程式が実験によって示され、また原子核理論 (APR) が我々の結果と近い値を示していることが確認された。



図：核物質の状態方程式

[1] 堀越宗一, しょうとつ, 2017年9月15日.

[2] M. Horikoshi, *et. al.*, PRX 7, 041004 (2017).

[3] 堀越宗一, 原子核研究 第61巻, 58-69 (2016)

永長 直人

理化学研究所創発物性科学研究センター

埼玉県和光市広沢 2-1

e-mail:nagaosa@riken.jp



## 固体における創発性粒子 — スキルミオン

創発性とは多数の自由度が相互作用しあうことで、個々の要素の性質からは想像もできないような現象や機能が発現することを意味する。固体中では、膨大な数の電子やスピンの存在するので、この創発現象がしばしば起きるが、特に磁性体において多数のスピンが一つの巨大な粒子を構成する場合がある。この創発性粒子の代表例として、渦巻状のトポロジカル創発粒子であるスキルミオンについて議論する（図1）。これは、長さエネルギーのスケールについての階層性が最も顕著に現れる舞台でもある。

反転対称性が破れた結晶では、反対称性相互作用と呼ばれるスピンのねじれを誘起する相互作用が存在し、これが強磁性相互作用と競合することでスキルミオン構造が実現する。この構造は、スピンの向きが単位球を一回被覆するのでトポロジ的な性質を持ち、このトポロジーが連続変形では変化できないということから安定性を獲得する。さらに、このトポロジーはスキルミオンの動的性質にも本質的な寄与をし、その高い易動度や集団励起モードをもたらす。講演では、スキルミオンの電流誘起ダイナミクス、熱揺らぎ、スピン波との衝突、生成・消滅過程、などについて議論する。

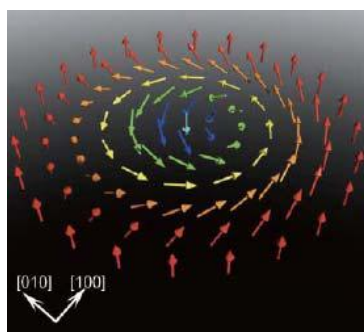


図1 スキルミオン構造

### 参考文献

- 1) N. Nagaosa and Y. Tokura, *Nature Nanotechnology* **8** 899-911 (2013).

# 口頭発表

## 城 宜嗣

## 兵庫県立大学大学院理学研究科

兵庫県赤穂郡上郡町光都 3-2-1

yshiro@sci.u-hyogo.ac.jp



## 生体内鉄動態：生体膜を通した鉄の取り込み

鉄 (Fe) は全ての生物にとって必須元素である。一方、過剰の鉄は活性酸素種の発生源となり、生物による食餌からの鉄の取り込みは厳密に制御されている。生体膜を通した鉄の細胞内への取込みには様々な膜タンパク質が関わっている。本研究では、細胞膜界面でおこなわれている鉄の動態（運搬、感知、貯蔵など）を、それら膜タンパク質の静的構造だけでなく構造ダイナミクスを基盤に理解する事を目的としている。

## 1. ヒト小腸の鉄還元酵素 Dcytb

食餌中の鉄は酸化型 ( $\text{Fe}^{3+}$ ) で存在するが、 $\text{Fe}^{3+}$  はヒト体内には吸収されない。それは、十二指腸・小腸の細胞膜に存在し鉄吸収に関わるタンパク質 (DMT1: Divalent Metal Transporter) が還元鉄 ( $\text{Fe}^{2+}$ ) のみしか通す事ができないからである。そのため、ヒト腸細胞膜には細胞内のアスコルビン酸を使って鉄を還元する酵素 (Dcytb: Duodenal cytochrome b561) が存在する。我々は、Dcytb の結晶構造を明らかにしたので (図 1) <sup>1</sup>、それによる膜を通した鉄還元機構に関して議論する。

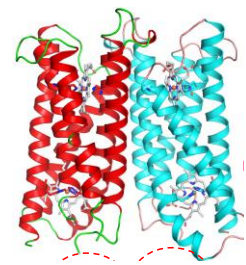


図 1 Dcytb の構造

## 2. 病原菌のヘムトランスポーター

病原菌にとっても感染・増殖・生存にとって鉄は必須である。病原菌は、感染先の赤血球ヘモグロビンのヘム (鉄-ポルフィリン錯体) を鉄源として、細胞膜に存在するヘム取込ポンプタンパク質 (図 2) <sup>2</sup>、ヘム濃度センサータンパク質<sup>3</sup>、ヘム分解酵素、ヘム排出ポンプタンパク質を機能させて感染先からヘムを奪っている。講演では、ヘム取込ポンプタンパク質に関する最近の我々の研究成果を述べる。

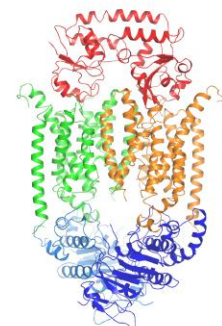


図 2 ヘム取込ポンプタンパク質の構造

## 参考文献

1) to be submitted.

2) Y. Naoe, N. Nakamura, A. Doi, H. Nakamura, Y. Shiro, H. Sugimoto *Nature Commun.* 7, 13411 (2016).3) G. S. A. Wright, A. Saeki, T. Hikima, Y. Nishizono, T. Hisano, M. Yamamoto, S. V. Antonyuk, S. S. Hasnain, Y. Shiro, H. Sawai *Sci. Signal.* in revision

前田瑞夫

理化学研究所 前田バイオ工学研究室

埼玉県和光市広沢 2-1

mizuo@riken.jp



## DNA を用いるナノ粒子集合体の配向制御

短鎖の DNA が密生した材料表面には、末端塩基対の構造に依存した界面間力が生じる。完全相補の二重らせんで修飾した場合はイオン強度に応じて引力が現れるが、末端ミスマッチの二重らせんで修飾した表面同士、あるいは完全相補表面と末端ミスマッチ表面の間には引力は生じない。この力は末端塩基対の間の疎水性相互作用（スタッキング相互作用）に由来することがコロイドプローブ原子間力顕微鏡による計測で示唆されている<sup>1)</sup>。この界面特性に基づいて配列設計した DNA で材料表面を部位選択的に修飾すると、末端塩基対の間で生じる引力と末端ミスマッチがもたらす斥力を空間的に制御できる。たとえば、形状異方性の金ナノ粒子（棒状や板状）の表面を部位選択的に DNA 修飾すると、高度に配向が制御されたナノ粒子集合体を得られる<sup>2)</sup>。また、球状の DNA ナノ粒子が数珠状に連結した線形集合体は、粒子表面が完全相補 DNA で覆われていると、溶媒の蒸発乾固とともに基板表面上で自発的に円形状に収縮し、粒子の 2 次元配列構造を与える<sup>3)</sup>。本年度は、完全相補 DNA で修飾された金ナノ粒子と末端ミスマッチ DNA で修飾された金ナノ粒子の数と配置を規定した線形オリゴマーを作製した。予想通り、完全相補の粒子間のみには引力が誘起され、溶媒乾固にともなって配向が揃ったオリゴマーの会合体が透過型電子顕微鏡で観察された。これらの結果は、エネルギー散逸系でも界面間力に末端構造依存性が発現することを意味しており、わずか一塩基がナノ粒子の自己組織化に規則性と多様性を付与していると言える。

- 1) N. Kanayama, T. Sekine, K. Ozasa, S. Kishi, T. Nyu, T. Hayashi, and M. Maeda, “Terminal-specific interaction between double-stranded DNA layers: colloidal dispersion behavior and surface force”, *Langmuir* **32**, 13296–13304 (2016).
- 2) G. Wang, Y. Akiyama, N. Kanayama, T. Takarada, and M. Maeda, “Directed assembly of gold nanorods by terminal-base pairing of surface-grafted DNA”, *Small* **13**, 1702137 (2017).
- 3) S. Shiraishi, L. Yu, Y. Akiyama, G. Wang, T. Kikitsu, K. Miyamura, T. Takarada, and M. Maeda, “Folding of nanoparticle chains into 2D arrays: structural change of DNA-functionalized gold nanoparticle assemblies”, *submitted*.

金 有洙

## Kim 表面界面科学研究室

埼玉県和光市広沢 2-1

ykim@riken.jp



### 単一分子におけるエネルギー移動・変換

エネルギーの移動や変換の過程を個々の分子に対して詳細に記述することは、分子とエネルギーとの相互作用を理解する上で最も重要な要素の1つである。本研究では、単一分子や分子集合体及び低次元分子性物質の構造と電子物性を明らかにし、エネルギー移動・変換の様子を可視化する手法の開発を目指している。そのため、主に走査トンネル顕微鏡 (STM) による実験と密度汎関数法 (DFT) による理論の両面で、分子・原子レベル研究を行っている。今年度の代表的な成果として、単一分子光化学反応の観察・制御及び機構解明に関する研究を紹介する。

近年、可視光で駆動する太陽電池や光触媒などのエネルギー変換システムに関する研究開発が世界中で盛んに行われている。一方で、これまで固体の金属表面上では、可視光の直接照射による分子の光化学反応は起こらないと考えられてきた。これは、可視光のエネルギーが光化学反応を引き起こすための電子励起に十分でないこと、分子と金属表面原子間の強い軌道混成により分子の励起寿命が短く、反応に至る前に励起状態が緩和してしまうことが主な原因として挙げられる。今回、銀および銅の基板に吸着したジメチルジスルフィド分子が可視光の照射により分解する様子を、STM を用いて分子レベルで観測し、反応挙動を解析した。さらに、STM 実験結果と DFT 計算結果の比較から、分子と金属基板の界面における相互作用によって、化学反応に必要な光エネルギーが減少し、分子の励起寿命が長くなった結果、金属基板上での可視光による新たな反応経路が形成されたことを明らかにした[1]。この研究により、分子の吸着状態により光化学反応のメカニズムを制御できることが初めて実証された。さらに、伝搬光のみならず、STM 探針と基板との間に発生した局所表面プラズモンによる化学反応の場合にも分子の吸着状態が反応経路を支配することを明らかにした[2]。

#### 参考文献

[1] “Direct pathway to molecular photodissociation on metal surfaces using visible light”, Emiko Kazuma, Jaehoon Jung, Hiromu Ueba, Michael Trenary, Yousoo Kim, *J. Am. Chem. Soc.* 139 (2017) 3115-3121.

[2] “Real-space and real-time observation of a plasmon-induced chemical reaction of a single molecule”, Emiko Kazuma, Jaehoon Jung, Hiromu Ueba, Michael Trenary, Yousoo Kim, submitted.

田原太平

理化学研究所 田原分子分光研究室

〒351-0198 埼玉県和光市広沢 2-1

tahei@riken.jp



## 光受容タンパク質のフェムト秒構造変化の観測とその生物的機能発現における意味

光合成に代表される光エネルギー変換や視覚に代表される光刺激の検知など、光は生命活動に大きな役割を果たしている。このような生物の光応答の第一段階は、光受容タンパク質と呼ばれるタンパク質が担っている。バクテリオロドプシンはレチナールを発色団として有する一群のタンパク質の一つで、最も研究が行われている代表的な光受容タンパク質である。このバクテリオロドプシンでは、可視光を発色団であるレチナールが吸収してトランスーシス異性化反応を起こすが、このフェムト秒領域で起る局所的構造変化をきっかけに、後続の連鎖的な反応・構造変化がタンパク質内で進行し、最終的に生物学的な機能（この場合、高度好塩菌という細菌が光エネルギーを利用してプロトンを細胞内から細胞外に能動輸送するという機能）が発現する。大変興味深い事に、溶液中に単体として存在するレチナール分子に比べて、タンパク質内に発色団として存在するレチナールの光異性化反応は速く進行し、またその量子効率も高いことが知られている。すなわち生物は進化の過程で、レチナール発色団が光トリガーとして効率的に発動できる環境をタンパク質内に実現したと言えるが、分子レベルで何がタンパク質内で最適化されているかなどは全く分かっていない。

以上のようにバクテリオロドプシンでは、光によってレチナール発色団の構造変化が起ることが機能発現の第一段階であると考えられてきた。ところが最近、われわれが紫外光を用いたフェムト秒誘導ラマン分光を用いて光励起に伴うタンパク質骨格の変化を調べたところ、レチナール発色団の構造変化より前に、周囲のタンパク質構造が変化していることを強く示唆する結果が得られた。これはバクテリオロドプシンの機能発現の第一段階が発色団の構造変化であるという従来の考え方を覆す結果のように見える。発表ではこの新しい実験結果とそれのもつ意味について議論する。

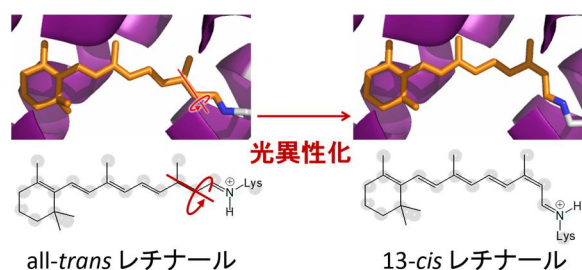


図. バクテリオロドプシンの光初期過程

## 岩崎雅彦

## 理化学研究所 岩崎中間子研究室

埼玉県和光市広沢 2-1

masa@riken.jp



## K 中間子束縛核探查実験

湯川は最も単純なスカラー場を記述する Klein-Gordon 方程式の全エネルギー0 の特殊解の形と原子核サイズとから、核内に核子を繋ぎ止める糊(仮想粒子)としての  $\pi$  中間子の存在とその質量を予言した(核力/強い相互作用)。一方、真空中の中間子は粒子として振る舞う。仮に、中間子が原子核の構成要素になれば、これまでに全く知られていない原子核物質の発見につながるばかりか、「高密度核物質の物理」や「物質の質量の起源」の研究に新たな扉を開くことが期待される。

最も軽い  $\pi$  中間子は、核子と S 波で斥力的なので、核力では束縛状態を作りえない。そこで、次に軽い K 中間子ではどうなのかが疑問となる。我々が過去に KEK で行った、K 中間子水素原子の x 線観測実験から、K 中間子と陽子の間の核力が原子核束縛状態を作れるほど強い引力であることが明らかになり、これまで  $\Lambda(1405)$  と呼ばれていた共鳴が、強い相互作用による K-中間子-陽子の束縛状態ではないかと考えられるようになった。これが本当ならば、当然そこにもう一つ陽子を加えた系 “K- pp” も束縛すると考えられる。

そこで、我々はその新奇な状態の探查実験 J-PARC E15 実験を行った。この実験は、大強度 K-中間子ビームで  ${}^3\text{He}$  の中の中性子を前方に叩き出すことで、“K- pp” を実験室系でほぼ静止状態で作り出し、その崩壊の終状態を特定して不変質量スペクトルを観測した(図 1)。

本公演では、得られたスペクトルとその物理的意義に関して解説する。

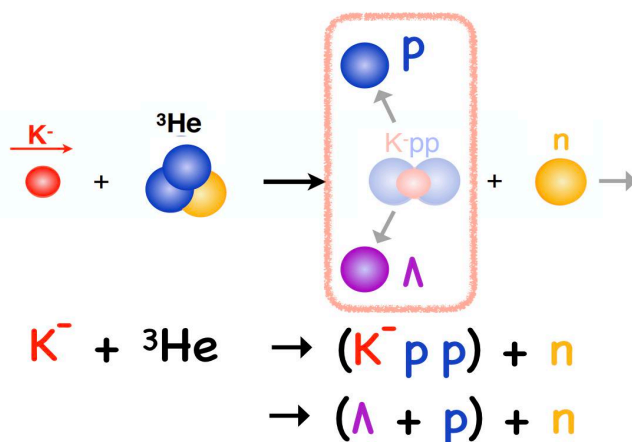


図 1. 反応の模式図



## 上野秀樹

### 理研仁科加速器研究センター 上野核分光研究室

埼玉県和光市広沢 2-1

ueno@riken.jp



## GeV RI ビームを用いた新たなレーザー核分光装置の開発

理研 RIBF 施設では、CERN-ISOLDE に代表される低エネルギー RI ビーム施設で得られない広範な元素・同位体の RI ビームを生成することができる一方、得られる RI ビームのエネルギーは  $\sim$ GeV 以上と非常に高くその広がりも大きいため、歴史的に核物理研究で重要な役割を果たしてきた精密分光法であるレーザー分光法が適用できない。本研究ではこのような「汚い」RI ビームを用いたレーザー分光を可能にすべく、まずは高効率に原子精密分光可能なエネルギーまで減速冷却する低速RIビーム変換装置とコリニアレーザー分光法を組み合わせた新たなレーザー分光システムの開発を進めている。

当研究では特異変形が理論的に予言されているが、低エネルギーRIビーム施設では原理的に生成が困難な  $^{80}\text{Zr}$  に対し、その基底状態の変形度をレーザー分光によって実験的に検証すること最大の目標に掲げている。これに向け本年度は、主に i) Ba を用いたその性能評価に向けた準備研究、及び ii) Zr のオフライン開発用のイオン生成及び分光用光源の開発を行った。i) に関しては現在、コリニアビームラインにおける Ba 表面電離イオン源を使ったビーム輸送試験を進めている。Ba<sup>+</sup>イオン励起用の外部共振器型半導体レーザーもほぼ完成しているため、近々に 20 keV Ba<sup>+</sup>イオンビームに対するコリニアレーザー分光試験を行い、装置の性能評価および改良を進める。ii) に関しては、Nd:YAG パルスレーザーアブレーションを利用した Zr イオン源開発、および Nd:YAG レーザー励起色素レーザーと第二次高調波発生器を用いた Zr イオン励起用レーザー光源の開発を進めている。これまでのところ、簡易的な装置を使った試験により、オフライン分光試験に必要な量の Zr イオンをレーザーアブレーションによって生成できることを確認している。

その他、発表では超流動ヘリウム中に置かれた不純物原子の特性を活かしたレーザー・マイクロ波二重共鳴法の開発、 $\beta$ 線検出型 NMR 法の物質科学への応用、及び基本的対称性の破れの検証に向けた能動帰還型核スピンメーザー装置の開発研究など、当プログラムと相性の良さそうな関連研究活動についても紹介する。

## 東俊行

## 東原子分子物理研究室

理化学研究所 埼玉県和光市広沢 2-1

toshiyuki-azuma@riken.jp

真空中に孤立した分子の **excitation** と **dynamics** の解明に向けて

ミリ秒から数時間に至る極めて遅い時間スケール、かつ極低温における多自由度孤立系の励起／脱励起ダイナミクスの科学は、短パルスレーザーの開発に伴って発展してきたいわゆるフェムト秒やアト秒科学の取り扱う時間領域とは、好対照をなす先端研究領域であり、さまざまな手法の発展によって実験的にこのような状態を用意し観測することが可能になってきたことから、世界的にも幾つかのグループで精力的な実験が始まった。今回は我々のグループが採用した2つのアプローチについて報告するとともに、国際的競争の状況を紹介する。

ひとつは、イオン源によって生成された高温分子イオンを極低温静電型イオン蓄積リング RICE に蓄積し、時間分解回転分光するアプローチである。周囲温度 4K の環境下に長時間蓄積する間、分子イオンは赤外輻射や蛍光によってその内部エネルギーを放出し、振動・回転基底状態へと数 10 分以上に及ぶ長い時間をかけて緩和していく。この冷却過程をリアルタイムに測定し、最終的に振動回転基底状態へ至る様相を観測する。具体的には、 $\text{N}_2\text{O}^+$  正分子イオンを対象として波長可変色素レーザーによって電子遷移を起こさせ、前期解離に伴って放出される数 10keV の中性 N 原子を検出し、いわゆる **action spectroscopy** を行った。極低温リングにおける分子分光スペクトルとして、回転バンドの変化が明瞭に現れている世界で最も高分解能の観測データが得られた。

また、分子イオンを巨大ヘリウム液滴に内包させビームとして取り出す試みも順調に進展してきた。一般に分子の回転エネルギーは 0.1-1K の範囲にあることから、回転状態に関しては RICE 周回によっても十分には冷却されない。そこで、超流動ヘリウムのナノ液滴に注目した。捕捉された分子イオンの環境は気相孤立状態に限りなく近いうえに、内部自由度が 0.4 K まで急冷されることから、回転状態を含めほぼ基底状態にある分子を生成することができる。冷却パルスバルブを採用したヘリウム液滴開発に取り組んだ結果、その液滴サイズを  $10^{11}$  まで増加させることに成功した。また、ヘリウム液滴に捕捉された分子イオンの振動・回転状態を分光的に探索する手法としてレーザー誘起蛍光検出を採用し、既に中性フタロシアニン分子に対するスペクトルから液滴内で振動状態が十分冷却された基底状態にあること確認している。現在、振動回転遷移に対応する微弱な赤外吸収信号を可視領域蛍光として高感度に検出するため、波長可変中赤外レーザーを同時に照射した二重共鳴法の開発に取り組んでいる。これによって、ヘリウム液滴内の分子イオンの振動・回転状態の冷却過程を捉えることが可能となると期待される。

## 加藤礼三

## 理化学研究所 加藤分子物性研究室

埼玉県和光市広沢 2-1

reizo@riken.jp



## 分子性量子スピン液体におけるスピン・電荷・軌道・格子自由度

正三角形を辺共有で敷き詰めた格子の各頂点に電子を 1 つずつ置いた時、電子のスピン間に（スピンを互いに逆向きにして整列しようとする）反強磁性相互作用が働くと、スピンの向きが定まらず（スピンがどちらを向いてもエネルギーが変わらない）フラストレーションが起こる。量子効果の強い  $S=1/2$  スピンの場合は、スピン間に valence bond（スピン一重項：2 つの状態の量子力学的線形結合。共有結合）が形成され、その位置が定まらないで膨大な数の配置パターンが量子力学的に重なり合うというのが、Resonating Valence Bond (RVB) と呼ばれる「量子スピン液体」(QSL) のモデルである。QSL は、未だに波動関数すら確定していないエキゾチックな量子状態である。我々は、金属錯体のアニオンラジカル塩  $\text{EtMe}_3\text{Sb}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$  が QSL の候補物質であることを見出し、その性質を研究している[1]。この系ではスピン  $1/2$  を有する二量体ユニット  $[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2^-$  が三角格子を形成している。対カチオン部位 ( $\text{EtMe}_3\text{Sb}^+$ ) の置換・混晶化によって三角格子の異方性が制御でき、基底状態が、反強磁性 (AF) 相、電荷秩序 (CO) 相、Valence bond 秩序 (VBO) 相と多様に変化する。 $\text{EtMe}_3\text{Sb}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$  の QSL 状態は、「相」として AF 相と CO 相との間に挟まれている。CO 相と VBO 相は、いずれも格子変形を伴う非磁性状態への転移によって生じ、VBO 相では四量体、CO 相では八量体が形成され、両者共に、不均一な電荷分布を伴う閉殻構造を持つ。重要な点は、これらの閉殻多量体において、valence bond 形成による安定化と、電荷の不均化によるクーロン反発の緩和とが連携していることである。また、AF 相においても、1 つの  $\text{Pd}(\text{dmit})_2$  分子の左右で電荷の不均化が起きていることを観測した[2]。

振動（赤外・ラマン）スペクトル解析は、QSL 状態において 3 つの状態（二量体、四量体、八量体）が絶えず組み替わり、QSL 状態の発現に重要な役割を果たしていることを示唆している[3]。通常、「スピン系」の議論はスピンの自由度だけを取り扱うが、分子系の量子スピン液体では、さらに電荷・軌道・格子自由度が、連動して関与することが明らかとなってきた。

## 参考文献

- 1) R. Kato, *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, **87**, 355-374 (2014).
- 2) S. Fujiyama and R. Kato, ISCOM2017, POS-035, Miyagi, Japan, 2017 September.
- 3) T. Yamamoto, T. Fujimoto, T. Naito, Y. Nakazawa, M. Tamura, K. Yakushi, Y. Ikemoto, T. Moriawaki, and R. Kato, *Scientific Reports*, **7**, 12930 (2017).