

平成25年度 新学術領域研究（研究領域提案型） 事後評価結果（所見）

研究領域名

高次 π 空間の創発と機能開発

研究期間

平成20年度～平成24年度

領域代表者

赤坂 健（東京学芸大学・教育学部・客員教授）

研究領域の概要

本新学術領域研究では、分子に多様な機能や構造をもたらす π 電子に焦点を当て、これまでにない超分子的集積化ならびに光・電子・磁場の影響など様々な相互作用の研究を展開する。この π 電子を軸とした相互作用により、高度で複雑な秩序やシステムまでもが生じる場を高次 π 空間と定義し、1) はっきりとした目的や方向性をもった研究、いわゆるストラテジックリサーチ および 2) 自立的な要素が多数集まる事で始めて起きる創発的研究を推進する。この2つの研究を同時にかつ並行して行い、サイエンスの確実な進歩と予測不可能性に根ざしたイノベーションを実現していくことで、次世代の新しい化学の学術創成に貢献することを目的とする。

領域代表者からの報告

1. 研究領域の目的及び意義

21世紀は「環境の世紀」とも言われ、環境保全と調和しながら持続的な経済成長を実現できるかどうか問われている。大量生産・消費・廃棄を基本としてきた利便性の追求というライフスタイルの見直しが迫られているが、化学においても、人間が創り出した科学技術を自らの手で規制する必要性と共に「量」から「質」の転換が迫られてきた。その為に我々化学者は、分子、原子の持っている固有の力を実験、理論の両面より探り出し、それを有効利用するという質的な化学に重心を移して来たが、昨今の異常な地球温暖化やエネルギー枯渇問題等の急速な顕在化を考えると、それでは間に合わない時代になりつつあると言える。こうした問題を打開する為に、本新学術領域研究では

- (1) はっきりとした目的や方向性をもった研究、いわゆるストラテジックリサーチ
- (2) 自立的な要素が多数集まる事で初めて起きる創発的研究

という2つの研究を同時にかつ平行して実現していくことで、サイエンスの確実な進歩と、予測不可能性に根ざしたイノベーションの両面により、「質」の化学を確実なものにしようとしている。ここで「創発」とは、要素間あるいは物質間に働く相互作用によって、その総和とは異なる、あるいはプラスアルファの機能や性質をもたらす現象を指す。さらにここ数年の測定技術の進歩により、分子と分子の相互作用、いわゆる超分子の研究が盛んになってきた。創発は高次元であるほどより多くの相互作用をもたらす性質がある。こうした状況の下、本新学術領域研究では、高次 π 空間を創発する化合物群として、平面・非平面制御などを念頭に π 電子系を創製し、さらにその集積化に主眼を置く基礎研究を遂行すると共に、その成果を基に革新的な電子・光・磁気機能の開発を目的とした応用研究も併せて実施する。本研究領域は、新規 π 電子系化合物を創製するトップダウンプロセスとそれらの集積化によるボトムアッププロセスのインテグレーションと異分野融合によって、革新的な機能を発現する高次 π 空間の創発を目指すものである。このため、次の4つの研究項目を実践する研究グループを構成し、集中的に研究を展開する。

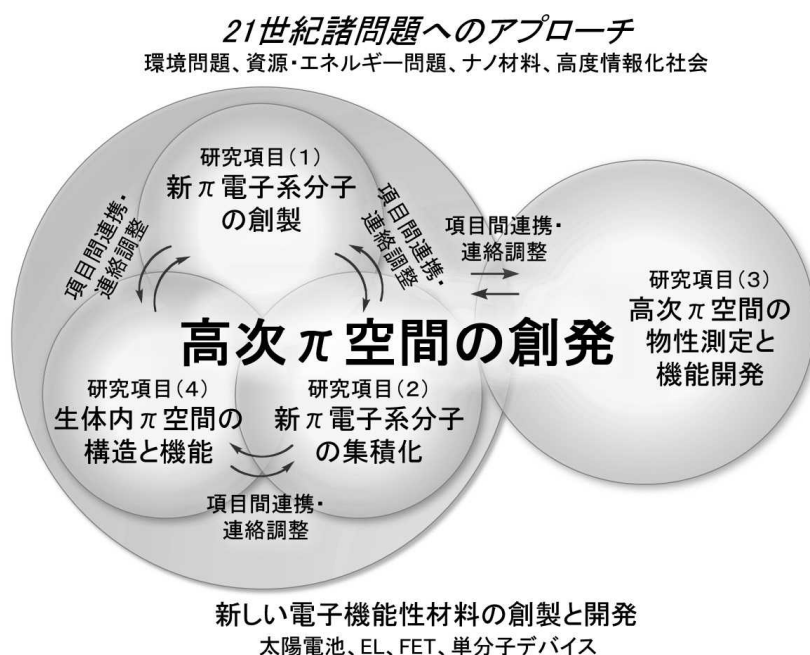
- (A01) 新しい π 電子化合物の創製
- (A02) π 電子化合物の集積化による高次 π 空間の開発
- (A03) 高次 π 空間を利用した革新的機能開発

(A04) 生体 π 空間の制御機構解明と新機能開発

これらを通して新しい π 電子系分子を創製し、高次 π 空間系の創発を図ると共に、これまで十分な試みがなされてこなかった機能開発をも実践することで化学の発展に寄与する。各研究項目において中核となる計画研究を置き、有機的な繋がりのある連携体制において共同研究を推進すれば、新物質創製、新材料創製、機能開拓を展開できるとともに、さらには、新現象の発見や新概念の創出につながるものと確信する。

π 電子系炭素クラスターや新規ポルフィリン誘導体を、強力な有機合成化学、無機合成化学や構造化学等と有機的に繋げることで、ナノ・IT・バイオ科学技術の基礎を築く π 空間化学の新局面を切り開く学術的成果と同時に、その成果を生かして電子・情報産業や生物学の発展に資する技術の基礎を築くことを目指すことは、次世代のエネルギー、情報、医療、環境分野などの科学技術の発展に大きく貢献するものと期待される。しかしながら、 π 電子系化合物の工学的・産業的応用は大きな期待を受けながら、十分にその高いポテンシャルを具体的に提示できているとは言い難い。本新学術領域研究では、これまでに個々に研究成果が蓄積されてきた π 電子系化合物の化学を基盤として、さらなる連携を通して新規 π 電子化合物を創製し、それらの集積化による高次 π 空間の創発を目的とする。

本研究では、高次 π 空間を創発する化合物群として、まず平面・非平面制御などを念頭に π 電子系を創製し、さらにその集積化に主眼を置く基礎研究を遂行するとともに、その成果を基に革新的な電子・光・磁気機能の開発を目的とした応用研究も合わせて実施する。新規 π 電子系化合物を創製するトップダウンプロセスとそれらの集積化によるボトムアッププロセスのインテグレーションと異分野融合によって、革新的な機能を発現する高次 π 空間の創発を目指すものである。具体的には、(1) 新しい概念に基づく新しい π 電子系分子を合成し、(2) それらの集積化により高次 π 空間を創出し、新しい性質・機能を発現させ、(3) 高次 π 空間を利用した革新的機能開発を行い、(4) 生体内 π 空間の構造と機能解析及びそこから得られる知見を活用した新しい機能性物質の開発に関する研究を展開することを基本計画としている。これら4つの研究項目を実践する研究グループを構成し、集中的に研究を展開している。これら学問分野の異なる4班の相互連携からなる研究推進体制を組織することで、卓越した分子設計と反応・合成設計を基盤とし、従前にはない斬新な π 電子系分子を創製し、平面・非平面構造の自在制御と、集合体や複合体への集積化、生体系 π 空間の理解による組織化と形態制御、精緻な物性評価に基づく革新機能の探求を実施する。これにより、加速度的な勢いで進展している世界の π 電子系科学の流れに抜きん出るばかりか、比類なき独創性と秀逸な基礎研究に裏付けられた、次世代の新しい化学の学術創成へと発展させる事ができると確信している。



2. 研究の進展状況及び成果の概要

π 電子系炭素クラスターや新規ポルフィリン誘導体を、強力な有機合成化学、無機合成化学や構造化学等と有機的に繋げることで、ナノ・IT・バイオ科学技術の基礎を築く π 空間化学の新局面を切り開く学術

的成果と同時に、その成果を生かして電子・情報産業や生物学の発展に資する技術の基礎を築くことを目指すことは、次世代のエネルギー、情報、医療、環境分野などの科学技術の発展に大きく貢献するものと期待される。しかしながら、 π 電子系化合物の工学的・産業的応用は大きな期待を受けながら、十分にその高いポテンシャルを具体的に提示できているとは言い難い。本新学術領域研究では、これまでに個々に研究成果が蓄積されてきた π 電子系化合物の化学を基盤として、さらなる連携を通して新規 π 電子化合物を創製し、それらの集積化による高次 π 空間の創発を目的とした。

π 電子を持つ化合物に対し、電子や磁場等の影響や、別の化合物が相互作用する状況下において、より広がりを持った、あるいは特徴が変わった、そして究極的には高度で複雑な秩序やシステムまでもが生じる場を高次 π 空間と定義し、この機能、物性、構造および反応機構を明らかにした。すなわち、本研究では、高次 π 空間を創発する化合物群として、まず平面・非平面制御などを念頭に π 電子系を創製し、さらにその集積化に主眼を置く基礎研究を遂行するとともに、その成果を基に革新的な電子・光・磁気機能の開発を目的とした応用研究も合わせて実施した。詳細な具体的な内容については事項8に記載した。本研究では2つのアプローチを取った。すなわち、ストラテジックリサーチでのアプローチでは、領域全体、班全体、各計画研究、および共同研究等の連携ごとに、はっきりとした目的や方向性に基づくテーマを設定し、これを明らかにした。一方、創発的研究のアプローチにおいては、まだこの世に存在していないものを創り上げる、または創り上げた物質の機能や構造が予測不可能性を帯びている点で、何をどこまで明らかにすべきかは、本質的にあいまいさから逃れられなかったが、しかしながら予測や意図、計画を越えた構造変化や創造が誘発され、部分は全体を誘発し、全体は部分に影響を与える循環を明らかにする事ができた。すなわち、本領域研究では、新規 π 電子系化合物を創製するトップダウンプロセスとそれらの集積化によるボトムアッププロセスのインテグレーションと異分野融合によって、革新的な機能を発現する高次 π 空間の創発を目指し、次の4つの研究項目に集中して研究を展開した。

- (1) 新しい概念に基づく新しい π 電子系分子を合成する。
- (2) それらの集積化により高次 π 空間を創出し、新しい性質・機能を発現させる。
- (3) 高次 π 空間を利用した革新的機能開発を行う。
- (4) 生体内 π 空間の構造と機能解析及び得られる知見を活用した新しい機能性物質の開発を目指す。

これらを推進するため、本領域では以下の四つの班を設定し、班間での緊密な連携のもとに研究を行って来た。A01班は「非平面」を切り口に新しい π 電子系の創製を行い、A02班は π 電子系の集積化による機能性「高次 π 空間」の開発を行い、A03班では高次 π 空間にはたらく電子、光、磁氣的相互作用を明らかにしながら革新的機能の開発を行った。また、A04班では高次 π 空間を有する生体分子とタンパク質あるいは他の化合物との相互作用を研究することで新現象の発見や新概念の構築を図った。これにより、例えば湾曲した拡張 π 電子系を有するフラレン内部の高次 π 空間に常磁性金属原子を取り込んだ金属内包フラレンを鍵物質とし、その大量合成および種々の位置選択的付加反応の開発とそれによる誘導体合成に成功した。また、メビウス芳香族を示す拡張ポルフィリンおよびメビウス反芳香族性を示すヘキサフィリンのビスリン鎖体の合成に成功した。さらに、ポルフィリン多量体を用いた種々の新規超分子電荷分離分子系を構築し、その優れた電子移動特性を明らかにし、光デバイスへの応用展開を行った。また、低温赤外分光解析を用いて霊長類が赤や緑を識別する視物質の構造解析を初めて実現するとともに、アミノ酸の変異を用いて内向きプロトン輸送を行う蛋白質の創成に成功した。

これら学問分野の異なる4班の相互連携からなる研究推進体制を組織することで、卓越した分子設計と反応・合成設計を基盤とし、従前にはない斬新な π 電子系分子を創製し、平面・非平面構造の自在制御と、集合体や複合体への集積化、生体系 π 空間の理解による組織化と形態制御、精緻な物性評価に基づく革新機能の探求を実施した。これにより、加速度的な勢いで進展している世界の π 電子系科学の流れに抜き出るばかりか、比類なき独創性と秀逸な基礎研究に裏付けられた、次世代の新しい化学の学術創成へと発展させる事ができたものと確信している。

詳細は事項8に記載した通りであるが、A01では、新たな π 電子系化合物群の創製およびその集積化と機能開発を、共同研究の積極的な推進により展開した。A02では、学問的に重要な電子状態を持つ新規な化合物の合成やユニークな集積能を持つ芳香族系分子の開発に成功した。A03では、各人の個々の研究と

ともに数多くの共同研究により、高次 π 空間を利用したデバイス系の機能開発を行なった。A04では、高次 π 空間を有する生体分子や生体分子と他の化合物との相互作用を研究することにより、メカニズムの解明が進み、また新たな知見を得た。具体的な例をいくつか以下に示す。

研究項目 A01：新規フラレン物質群の創製を行った。班内共同研究により、段階的に2種類の原子をフラレン内部に内包させる手法を確立させた。多くの拡張 π 電子共役系の創製を行い、高いエネルギー変換効率を示すドナー／アクセプター型光電変換材料などを開発した。また、新規有機ケイ素物質群による π 空間創製を行った。さらに、新しい非平面型 π 空間の創製を行った。これまでにない非平面状の“ π 空間”をもつ化合物であるテトラベンゾフルオレン誘導体の特異な発光特性を見出した。

研究項目 A02： π 電子化合物の集積化による高次 π 空間の開発を行った。メビウス芳香族性分子の合成に続き、メビウス反芳香族性分子の合成にも成功し、分子トポロジーと芳香族性の関係が確立することができた。ポルフィリンが複数の結合で繋がれたポルフィリンチューブを合成した。このポルフィリンチューブは、内腔でフラレンを捕捉できる。環拡張、環縮小、ヘテロ原子置換などの様々なフタロシアニン骨格の合成に成功した。フラレンを取り込んだポルフィリンチューブを構築し、その光電流や高い電子移動度を明らかにした。すべて炭素架橋したオリゴフェニレンビニレン分子の系統的合成を行い、その光学特性を解明した。また、これら色素の有機トランジスタや有機太陽電池としての可能性を実証した。

研究項目 A03：広く有機 π 電子系化合物と電子、光、磁場との相互作用の基礎に立脚して「高次 π 空間」の精緻な物性評価手法を確立すると共に、その評価に基づいた新しい物質群の創製と構造構築により「高次 π 空間」の革新的機能開発を目指して研究を推進した。21世紀の最重要課題である地球環境エネルギー資源問題及び地球温暖化に対する根本的対策として、光合成機能を凌駕する人工光合成高次 π 空間システムを構築した。また、光捕集機能と電荷分離機能を融合した様々な π 系超分子を開発した。一方、革新的機能材料としては、常温導電性 π 接合金属ナノインクを初めて開発した。さらに室温印刷有機トランジスタとして世界最高の移動度を達成した。新たな物性評価手法としては、直流法および交流マイクロ波法によって、 π 共役高分子ワイヤーや自己組織化エレクトロニクス材料中での様々なナノ～マイクロスケールの電荷移動特性を領域内共同研究により明らかにした。

研究項目 A04：生体分子の機能に重要な役割を担う π 電子系の機能発現メカニズムを解明し、その知見を活用した機能性物質の開発を目指した。色覚視物質の構造解析によりレチナル分子の π 空間制御をもたらすタンパク質の構造要因を明らかにするとともに、遺伝子改変により微生物型ロドプシンの新しい機能をもたらすことに成功した。生物発光の代表であるホタルルシフェラーゼについて発光生成物アナログの解析により発光生成物オキシルシフェリンの結合様式の解明と発光色制御に関わる水素結合ネットワークを明らかにした。遷移金属イオンと π 共役系との酸化還元相互作用を調べるための新規なシステムを構築し、遷移金属錯体の酸化機能や電子移動特性に及ぼす π 共役系配位子の重要性を明らかにした。これらは生体 π 空間の電子移動に関わる成果と位置付けられる。

以上の本学術領域の進展は、ナノ・IT・バイオ科学技術の基礎を築く π 空間化学の新局面を切り開く学術的成果であり、同時に、その成果を生かして電子・情報産業や生物学の発展に資する技術の基礎を築くものである。このことは、次世代のエネルギー、情報、医療、環境分野などの科学技術の発展に大きく貢献するものと期待される。また、第3期科学技術基本計画の目標として、重点推進4分野（ライフサイエンス、情報通信、環境、ナノ・材料）の研究が遂行されているが、本新学術領域研究の「高次 π 空間」における研究成果は、この4大分野に横貫的に貢献し、他領域研究の発展に大きな波及効果をもたらすと共に、その正のスパイラルによって学術水準の向上・強化につながっている。

総括班は、分野間の垣根を取り払うため、13回の公開シンポジウムを行うと共に、4回の若手主導による異分野研究者交流会を開催し、異分野間コミュニケーションによる創発を図った。その結果、個々の研究成果はもちろん、105件の共同研究が開始され、一部は既に論文として報告されている。また、領域研究のホームページを立ち上げ、研究内容、目標等を広く社会へ情報発信すると共に、研究代表者らの日本化学会賞を含む37件の受賞、研究協力者の受賞（117件）、新聞記事（29件）などの媒体掲載に関する広報に努めた。さらに、本新学術研究領域の重要性、期待される成果を社会にむけて広く発信する

ため市民向け公開シンポジウムを開催すると共にニュースレターを9刊発行し、研究内容・活動内容とその成果をわかりやすく発信した。研究内容・成果を国外に向けても広く発信するため、国際シンポジウムの開催も行った。

また、アメリカ、ドイツ、スペイン、スイス等の外国人評価委員9人及び国内評価委員8人によるピアレビュー・外部評価を実施し、本領域は「基礎科学研究において国際的に最も高いレベルのプロジェクト研究」という高い評価を受け、本領域研究の重要性を再確認すると共にさらなる飛躍的展開を図った。

審査部会における所見

A (研究領域の設定目的に照らして、期待どおりの成果があった)

1. 総合所見

本研究領域は、高次元空間における π 電子系を高次 π 空間として定義し、高次 π 空間の基礎研究から機能開発を目指す応用研究までを含むものである。新しい π 電子化合物の創成、 π 電子化合物の集積化、高次 π 空間を利用した新機能開発、そして生体内における π 空間の役割と機能開発の4つが研究項目として設定された。基礎的かつ重要な知見から、応用へとつながる新しい機能開発など、非常に多くの成果が得られており、研究領域の設定目的に照らして期待どおりの成果が得られている。

2. 評価に当たっての着目点ごとの所見

(a) 研究領域の設定目的の達成度

本研究領域は、異分野の研究者の連携による当該研究領域の発展が目的の一つとして設定されており、有機化学のみならずバイオや計測を専門とする研究者も参画・連携することで、当該研究領域は大いに発展したと言える。また、本領域の研究が他の研究領域の発展に波及効果をもたらすことも目的として設定されており、自然科学系のトップジャーナルに数多くの論文が掲載されるなど、エネルギー、情報、医療、環境分野など様々な領域に対して大きな波及効果があった。

(b) 研究成果

研究項目 A01 では新しい π 電子系化合物を数多く合成し、新規な物性を持つ化合物を見出している。研究項目 A02 では π 電子化合物の集積化における重要な学問的知見が多く得られた。機能開発を目的とする研究項目 A03 では、人工光合成などの応用につながる機能が数多く見つかっている。また、研究項目 A04 では生体分子における π 電子系化合物の役割について、その研究の重要性が強調される多くの成果が見出された。研究項目を横断する共同研究や共著論文も多く、 π 空間化学という新たな領域の研究を強力に推進した。

(c) 研究組織

π 電子に関する研究を軸としながらも、アプローチ手法の異なる研究者が集結し、全員が一丸となって本領域研究を遂行した。また、総括班が主体的に機能して、すべての研究項目を含む研究会やシンポジウムが実施され、多数の共同研究や共著論文としてその成果があがっている。

(d) 研究費の使用

特に問題点はなかった。

(e) 当該学問分野、関連学問分野への貢献度

当該分野の専門誌のみならず、非常に波及効果の高いトップジャーナルにも多くの論文が掲載されるなど、当該及び関連分野への貢献度は大きいと言える。また、本研究領域が主催となって国際・国内のシンポジウムやセミナーを数多く開催しており、国際的にも大きな波及効果をもたらした。

(f) 若手研究者育成への貢献度

若手研究者の創発的な研究を領域全体として支援する体制がとられており、大学院生を含む若手研究会を通じて、若手研究者同士の共同研究も盛んに行われた。また、若手研究者の受賞も非常に多いことから、その研究の質の高さは外部からも高く評価されたと言える。